



THESIS / THÈSE

DOCTEUR EN SCIENCES

Théorie de diffusion électronique tridimensionnelle par matrices de transfert et fonctions de Green appliquée à la simulation du microscope à projection de Fresnel

Mayer, Alexandre

Award date:
1998

Awarding institution:
Universite de Namur

[Link to publication](#)

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

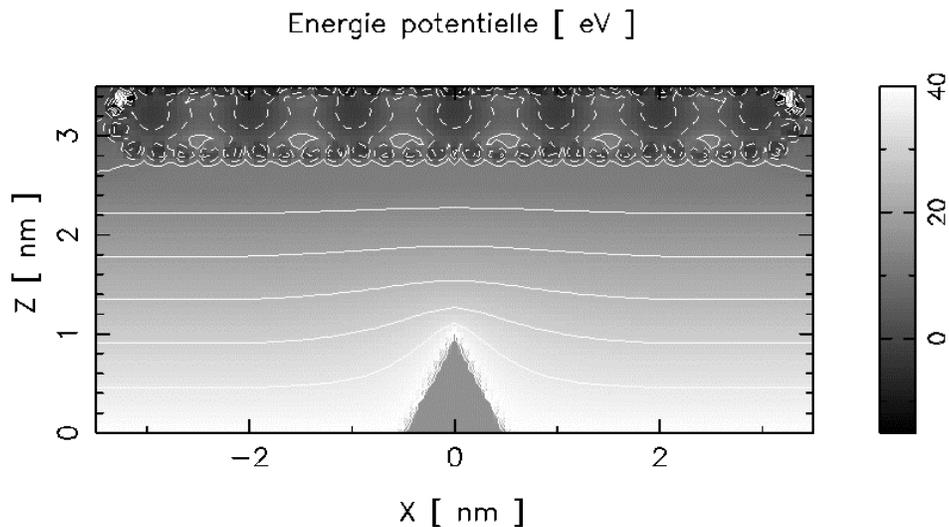
- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal ?

Take down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.



Théorie de diffusion électronique tridimensionnelle par matrices de transfert et fonctions de Green appliquée à la simulation du Microscope à Projection de Fresnel



Dissertation présentée par
Alexandre Mayer
en vue d'obtenir le grade de
Docteur en Sciences



Théorie de diffusion électronique tridimensionnelle par
matrices de transfert et fonctions de Green appliquée à
la simulation du Microscope à Projection de Fresnel

Dissertation présentée par
Alexandre Mayer
en vue d'obtenir le grade de
Docteur en Sciences

Composition du jury :

Vu Thien Binh
Joseph Delhalle
Michel Devel
Amand A. Lucas
Jean-Pol Vigneron (promoteur)

1998

© Presses universitaires de Namur & A. Mayer
Rempart de la Vierge, 8
B - 5000 Namur (Belgique)

Tous droits de reproduction, traduction, adaptation, même partielle, y compris les microfilms et les supports informatiques, réservés pour tous pays.

Imprimé en Belgique
ISBN: 2-87037-274-4
Dépôt légal: D / 1998 / 1881 / 20

Facultés Universitaires Notre-Dame de la Paix
Faculté des Sciences
Rue de Bruxelles 61, B - 5000 Namur, Belgium

**Théorie de diffusion électronique tridimensionnelle par matrices de transfert et fonctions de Green
appliquée à la simulation du Microscope à Projection de Fresnel**

par Alexandre Mayer

Résumé : Nous avons développé une méthode permettant de calculer la diffusion électronique tridimensionnelle, en vue d'une simulation du Microscope à Projection de Fresnel. Notre méthode se place dans le cadre général des matrices de transfert. Les problèmes d'instabilités propres à cette technique ont été maîtrisés grâce à l'algorithme des tranches et un estimateur d'erreur. Ce dernier fournit une estimation de l'erreur relative sur le résultat - avant le calcul de diffusion proprement dit. Les équations de propagation tiennent compte de l'absorption électronique (représentée par une partie imaginaire dans le potentiel) et de la présence de champs magnétiques. Les fonctions d'onde sont décrites dans une base permettant de scinder le problème en n parties indépendantes lorsque le système présente un axe de symétrie central d'ordre n . Les états de sortie, obtenus par matrices de transfert, sont propagés sur des distances macroscopiques en utilisant le formalisme des fonctions de Green. Nous avons simulé efficacement l'émission de champ à partir de nanopointes et confirmé leur intérêt pour la microscopie à projection. Nos simulations reproduisent des angles d'ouverture et des distributions d'énergie totale en accord avec l'expérience. Nous avons illustré les diffractions de type Fraunhofer et Fresnel obtenues lors de l'observation d'une fibre de carbone et exploré l'influence des propriétés générales de la fibre. Nous sommes ensuite passés à une description atomique de la matière pour montrer comment les propriétés spécifiques de celles-ci peuvent influencer les images observées. Des simulations avec champs magnétiques confirment la présence de franges de diffraction orientées selon les lignes de champ dont l'espacement diminue avec l'intensité du champ.

**Theory of three-dimensional electronic scattering by transfer matrices and Green functions applied
to the simulation of the Fresnel Projection Microscope**

by Alexandre Mayer

Abstract : We developed a method to compute the electronic three-dimensional scattering, in order to simulate the Fresnel Projection Microscope. The framework of our model is the general transfer matrix methodology. The inherent instabilities were controlled with the layer addition algorithm and an accuracy estimator. This estimator provides an estimation of the relative error on the result - before the scattering computation itself. The propagation equations take account of the electronic absorption (represented by an imaginary component in the potential energy) and the magnetic fields. With the basis used for the wavefunction representation, the problem is split into n independent parts in the case of a central n -fold symmetry axis. The outgoing states, obtained within the transfer-matrix methodology, are propagated over macroscopic distances in the Green function formalism. We simulated efficiently field emission from nanotips and confirmed their usefulness for projection microscopy. Our simulations provide opening angles and total energy distributions in agreement with experimental results. We illustrated the Fraunhofer and Fresnel diffraction in the observation of a carbon fiber and investigated the influence of its general properties. We then used an atomic description of the matter to show how its specific properties can shape the diffraction figures. Simulations with magnetic fields confirm the existence of diffraction fringes that are oriented parallel to the field lines and tend to get closer with increasing field strength.

Dissertation doctorale en Sciences Physiques (Ph. D. thesis in Physics)

18 décembre 1998 (December 18th, 1998)

Laboratoire de Physique du Solide (Profs. A.A. Lucas, J.-P. Vigneron et Ph. Lambin)

Promoteur (Advisor) : Prof. J.-P. Vigneron

Remerciements

Je remercie tous les membres du Laboratoire de Physique du Solide pour m'avoir accueilli parmi eux. Ma reconnaissance s'adresse à Amand Lucas et à Jean-Pol Vigneron pour avoir soutenu ce projet et s'être portés garants de son succès. Je les remercie pour leur confiance.

Si en principe tous les chemins mènent à Rome, tous n'y conduisent pas avec la même facilité. La plupart se révèlent infranchissables. Malgré la puissance des machines à ma disposition, celles-ci produisent plus volontiers du bruit qu'une image intéressante. Je remercie Jean-Pol Vigneron pour m'avoir aidé à trouver un chemin praticable.

Ma gratitude s'adresse à toutes les personnes qui se sont intéressées à mon travail durant sa réalisation. Je commencerai par citer Michel Devel, Christian Girard et Christophe Adessi qui ont partagé mon projet, par une approche complémentaire à la mienne. Cette collaboration est très motivante. Je remercie aussi dans ce contexte Vu Thien Binh et Vincent Semet. Leur intérêt justifie ce travail et j'espère qu'ils trouveront entre les équations de cet ouvrage certaines réponses à leurs questions. Je remercie également Laurent Philippe et Philippe Lambin pour avoir suivi de plus près ce travail.

Si la méthode de calcul de l'énergie potentielle présentée au chapitre 9 a pris une forme définitive relativement simplifiée, elle est le fruit de nombreuses discussions avec Patrick Senet que je ne peux manquer de remercier.

Mes remerciements s'adressent à Vincent pour ses tours de magie informatiques, ainsi qu'à Annick, Damien, Christophe, Anna, Luc, Isabelle, Alain, ... pour l'ambiance conviviale de ce labo. Je remercie ma famille pour m'avoir permis de réaliser ces études en Physique et pour leur soutien quotidien. Je remercie également Anne, Thomas et Denis pour leur intérêt régulier, ainsi que Jacqueline, Olivier et Catherine pour avoir relu ce travail.

Enfin, je remercie le Fonds National de la Recherche Scientifique pour avoir financé ce projet.

Table des matières

Introduction	1
1 La microscopie à projection	7
1.1 Introduction	7
1.2 Les nanopointes	9
1.2.1 Fabrication	9
1.2.2 Propriétés	10
1.2.3 Intérêt pour la microscopie à projection	15
1.3 Le Microscope à Projection de Fresnel	16
1.3.1 Présentation générale	16
1.3.2 Caractéristiques	17
1.3.3 Résultats	21
1.3.4 Perspectives	25
2 Théories	27
2.1 Introduction	27
2.2 Modèles en diffusion simple	27
2.2.1 Théorie de Fresnel-Kirchhoff	28
2.2.2 Théories de diffusion à partir de sites atomiques	30
2.3 Modèles en diffusions multiples	31
2.3.1 Méthode des fonctions de Green	31
2.3.2 Méthode des éléments finis	33
2.3.3 Méthode des matrices de transfert	35
2.4 Notre méthode	36
3 Théorie de diffusion électronique par un potentiel réel	39
3.1 Introduction	39
3.2 Représentation de la fonction d'onde	41
3.2.1 Fonctions de base pour un espace infini	41
3.2.2 Fonctions de base pour un espace restreint	42
3.3 Ecriture de l'énergie potentielle	45
3.4 Traitement de l'équation de Schrödinger	45
3.4.1 Equation de propagation	45

3.4.2	Groupes indépendants	47
3.4.3	Implémentation numérique	47
3.5	Solutions avec conditions limites de diffusion	48
3.5.1	Etats limites	49
3.5.2	Solutions locales par matrices de transfert	50
3.5.3	Prolongement des solutions par fonctions de Green	52
3.6	Groupes de solutions conjugués	55
3.7	Calcul de la densité de courant totale	58
3.7.1	Densité d'états	58
3.7.2	Normalisation des états de base	60
3.7.3	Incohérence entre états incidents	61
3.7.4	Expression de la densité de courant totale	61
3.8	Calcul du courant total	62
3.9	Cohérence et incohérence	63
3.10	Lien avec la théorie des groupes	65
4	Théorie de diffusion électronique par un potentiel complexe	67
4.1	Introduction	67
4.2	Potentiel complexe et absorption	67
4.3	Origine physique de la partie imaginaire du potentiel	70
4.4	Traitement de l'équation de Schrödinger	72
4.4.1	Ecriture de la fonction d'onde	72
4.4.2	Ecriture de l'énergie potentielle	73
4.4.3	Equation de propagation	73
4.4.4	Implémentation numérique	73
5	Théorie de diffusion électronique par un champ magnétique	77
5.1	Introduction	77
5.2	Traitement de l'équation de Schrödinger	78
5.2.1	Ecriture de la fonction d'onde	78
5.2.2	Ecriture de l'énergie potentielle et du champ d'induction magnétique	78
5.2.3	Equation de propagation	79
5.3	Construction du potentiel vecteur	82
5.4	Traitement de la zone extérieure au champ magnétique	84
6	Matrices de transfert rectangulaires et contrôle de stabilité	87
6.1	Introduction	87
6.2	Principe du calcul des matrices de transfert	87
6.3	Matrices de transfert rectangulaires	89
6.3.1	Motivation	89
6.3.2	Implémentation par inverses généralisées	90
6.3.3	Interprétation des formules d'inversion	94
6.4	Contrôle de stabilité	98

6.4.1	Motivation	98
6.4.2	Représentation de l'erreur	98
6.4.3	Précision des matrices de transfert	101
6.4.4	L'algorithme des tranches	104
6.4.5	Précision des matrices de transfert implémentées avec l'algorithme des tranches	106
6.4.6	Conséquences pratiques	109
6.4.7	Confirmation par un exemple	112
7	Emission de champ à partir de nanopointes	115
7.1	Introduction	115
7.2	Modèle de pointe	115
7.3	Calcul de l'énergie potentielle par ajustement de dipôles	118
7.4	Emission de champ à partir d'une nanopointe	121
7.5	Cohérence énergétique	123
7.6	Cohérence spatiale et caractère ponctuel de la source	126
7.6.1	Nanopointe complète	127
7.6.2	Nanopointe avec une terminaison à trois atomes	129
7.6.3	Pointe macroscopique	129
7.7	Conclusion	132
8	Observation de fibres de carbone	133
8.1	Introduction	133
8.2	Modèle de pointe et de fibre	134
8.3	Calcul de l'énergie potentielle par sur-relaxation	134
8.3.1	Equation différentielle pour le calcul du potentiel électrique	134
8.3.2	Expression numérique de la dérivée première et seconde	136
8.3.3	Equation aux différences pour le calcul des potentiels électriques	137
8.3.4	Extension pour le calcul du potentiel image	140
8.3.5	Possibilités d'amélioration	141
8.4	Modes Fraunhofer - Fresnel	142
8.4.1	Mode Fraunhofer	142
8.4.2	Mode Fresnel	152
8.5	Effet de la polarisation - Sucking-in	156
8.6	Effet du travail d'extraction - Résonances	158
8.7	Effet de l'absorption	160
8.8	Conclusion	160
9	Observation de molécules de carbone	163
9.1	Introduction	163
9.2	Théorie élémentaire du problème à $N + 1$ électrons	163
9.2.1	Formulation du problème et équations à résoudre	163
9.2.2	Réduction des N électrons de la molécule à une densité	165

9.2.3	Modèle de densité électronique gaussien	166
9.2.4	Polarisabilités statique et dynamique	167
9.2.5	Critique	169
9.3	Modèle de pointe et de molécule	169
9.4	Observation d'une molécule de C_{60}	170
9.4.1	Mode Fraunhofer - Effet de sucking-in	170
9.4.2	Mode Fresnel	171
9.5	Conclusion	174
10	Observation de champs magnétiques	177
10.1	Introduction	177
10.2	Observation d'un champ magnétique uniforme	177
10.3	Conclusion	180
	Conclusion	181
	Bibliographie	187
	Table des figures	193

Introduction

Parmi les fondateurs de notre système de pensée, Platon (427-347 av. JC) est certainement celui à qui revient le mérite d'introduire ce travail. Dans son mythe de la caverne, les hommes sont assis face à une paroi et assistent à un grand spectacle d'ombres. Ces ombres constituent le seul regard qu'ils peuvent avoir sur la réalité du dehors, une réalité imperceptible directement. L'extérieur de la caverne symbolise dans ce mythe le monde des idées, univers abstrait, mais le seul, selon lui, méritant le qualificatif de "réalité". Platon est certainement le premier théoricien pur et dur. Plus de deux millénaires se sont écoulés depuis. Notre regard sur la réalité s'est éclairé par de nombreuses inventions. Notre vision du monde nous apparaît de plus en plus cohérente, mais restera toujours, comme dans ce mythe, une des interprétations possibles d'une réalité que nous ne contemplerons jamais directement. Le sujet de ce travail, un microscope dont le principe repose sur la projection d'ombres, illustre bien cet aspect de notre existence.

Plus récemment, au dix-septième siècle, l'invention du microscope optique nous permit de porter un regard nouveau sur notre univers. Les limites de principe de cette technique furent mises en évidence par E. Abbé en 1873. En tenant compte des phénomènes de diffraction, responsables en fin de compte de ces limites, il exprima le *pouvoir de résolution* (distance minimale entre deux points discernables dans l'image) par la relation :

$$\delta = k\lambda / (n_0 \sin \alpha) \quad (1)$$

où λ est la longueur d'onde d'illumination, n_0 l'indice de réfraction du milieu d'observation, α l'angle entre l'axe optique et le rayon le plus incliné reliant l'échantillon à l'objectif et k une constante dépendant de la cohérence de l'illumination. Pour des valeurs typiques de $\lambda=550$ nm, $n_0 \sin \alpha=1.6$ et $k=0.61$, le pouvoir de résolution du microscope optique se trouve limité à 0.2 micron, une limite effectivement atteinte au dix-neuvième siècle. A cause des problèmes de focalisation qui interviennent pour des longueurs d'onde plus petites que celles du spectre visible, il n'était guère possible d'obtenir mieux.

Les fondements de la mécanique quantique apportèrent aux microscopistes un souffle nouveau. Le concept qui allait être à la base de la microscopie électronique fut formulé par L. de Broglie, qui postula que toute particule matérielle se propage comme une onde, la longueur d'onde associée étant donnée par :

$$\lambda = h/p \quad (2)$$

avec $h = 2\pi\hbar$ la constante de Planck ($6.626 \cdot 10^{-34}$ J.s) et p la quantité de mouvement.

Cette scène quantique est caractérisée par un principe d'incertitude, formulé par Heisenberg et indépendant des détails de la méthode de mesure. Selon ce principe, la précision¹ pouvant être obtenue dans la mesure de position (Δx) d'une particule est reliée à l'incertitude sur sa quantité de mouvement dans cette direction (Δp_x) par la relation :

$$\Delta x \cdot \Delta p_x \geq \frac{\hbar}{2} \quad (3)$$

La limite de résolution, qui semblait purement instrumentale, devient ici une limite de principe intrinsèque aux corpuscules utilisés dans la mesure.

Des tensions d'accélération suffisantes permirent alors de produire des électrons caractérisés par une longueur d'onde 10^5 fois plus petite que dans le spectre visible. Une nette amélioration du pouvoir de résolution pouvait être attendue.

Cela devint techniquement réalisable grâce à l'invention en 1926 des lentilles magnétiques par H. Bush, qui démontra la possibilité de focaliser des faisceaux électroniques avec des champs magnétiques à symétrie axiale. Des lentilles électrostatiques furent inventées par la suite.

Toutes les conditions étaient dorénavant remplies pour la construction du premier microscope électronique. Cela fut réalisé en 1931 par M. Knoll et E. Ruska [1, 2]. Les électrons devant passer à travers l'échantillon, il fut baptisé Transmission Electron Microscope (TEM) et, plus tard, Conventional Transmission Electron Microscope (CTEM), pour éviter toute confusion avec des variantes ultérieures. Sa résolution, initialement de quelques dizaines de nanomètres, fut réduite jusqu'à des valeurs proches de 0.2 nm.

Ce premier microscope fut le point de départ d'une série, fonctionnant selon des principes divers. Dans cette série, le Scanning Electron Microscope (SEM), construit par M. von Ardenne en 1938 et commercialisé à partir de 1965 grâce aux travaux de C.W. Oatley, fonctionne selon un mode de balayage et offre une résolution comprise entre 0,5 et 20 nanomètres.

Ces microscopes permirent l'observation de défauts cristallographiques et fournirent des images à haute résolution de la structure interne d'échantillons ainsi que des figures de diffraction à partir de cristaux. L'étude spectroscopique des rayons X et des électrons secondaires induits par le faisceau incident donna accès à l'étude de la chimie locale des matériaux. C'est ainsi que la mise en place d'un spectromètre à rayons X dans le SEM et de spectromètres pour rayons X et électrons dans le TEM fut à la base de l'Electron Probe MicroAnalyzer (EPMA) et de l'Analytical Electron Microscope (AEM).

Malgré l'excellente résolution de ces microscopes, l'usage de lentilles les soumet à certaines aberrations. Par ailleurs, les échantillons biologiques résistent mal au flux d'électrons de haute énergie (entre 1 et 40 keV pour le SEM et entre 100 et 400 keV pour le TEM). La

1. définie dans le sens de l'écart quadratique moyen de l'observable associée.

microscopie à projection, introduite en 1939 par Morton et Ramberg, auteurs du Point Projector Microscope, a évolué de manière à supprimer complètement ces deux inconvénients.

Dans sa version actuelle, le microscope à projection a su tirer avantage de la technologie [3] développée pour le Scanning Tunneling Microscope (STM) [4] et des nanopointes. Ces nanopointes, qui servent de source électronique, consistent en nanoprotrusions à terminaison monoatomique de 2-3 nm de haut, situées à l'extrémité d'une pointe hémisphérique en tungstène, de rayon de courbure inférieur à 100 nm. Les techniques de positionnement par cellules piézo-électriques, dont la précision est de l'ordre de l'angström, permettent d'approcher la molécule étudiée à quelques nanomètres de la pointe. L'ombre due à la présence de cette molécule dans le faisceau électronique est observée sur un écran fluorescent situé à 10 cm. Cette technique n'utilise donc pas de lentille électronique et les tensions d'extraction (appliquées entre la source électronique et le support de la molécule) sont comprises entre 50 et 300 V. Ces caractéristiques sont dues aux dimensions réduites de la nanopointe et à la possibilité de positionnement rapproché. Les nanopointes offrent de nombreux avantages utiles à leur application en microscopie, que nous préciserons dans le chapitre suivant. Les dimensions caractéristiques du système projecteur-échantillon sont donc du même ordre de grandeur que les longueurs d'ondes associées aux électrons. Il en résulte des franges de diffraction visibles dans l'image finale. Cependant, sous certaines conditions, les figures de diffraction restent en relation directe avec l'aspect de la molécule. A cause de l'analogie entre ces figures de diffraction et celles de Fresnel, ce microscope porte le nom de Fresnel Projection Microscope (FPM).

Si une interprétation géométrique, en termes de projection du contour de l'objet à partir de la source, suffisait à expliquer les premières images obtenues dans ce type de microscopie, il en va autrement actuellement. Bien que notre intuition recoure toujours à cette interprétation, et qu'un résultat se veuille rassurant à condition de pouvoir s'expliquer qualitativement de cette manière, il est indéniable que la plupart des caractéristiques des images ne peuvent s'expliquer que par la nature ondulatoire des électrons. Les "ombres" que nous identifions dans l'image sont en effet accompagnées de franges parallèles et présentent des structures (variations de contraste suivant des bandes intérieures parallèles et oscillations sur la longueur), qui ne peuvent s'expliquer que par un modèle plus réaliste.

Traiter de manière quantique l'ensemble des électrons faisant partie d'un métal, d'une nanopointe et d'une molécule située à quelques nanomètres, pour finalement calculer une distribution d'intensités sur un écran à dix centimètres ne peut se faire sans certaines simplifications.

Nous ramènerons ce problème à plusieurs corps à celui à un seul électron évoluant dans le potentiel moyen dû à l'ensemble de tous les autres électrons et noyaux. Nous ne tenons ainsi pas compte des phénomènes de corrélation et d'échange [5]. Dans le métal, il suffit de prendre une valeur de potentiel moyen qui inclut ces effets. Dans une molécule, nous évaluerons l'énergie d'échange à partir de la densité électronique rencontrée par l'expression

de Slater. Dans le vide, la corrélation et l'échange peuvent être négligés. En effet, pour un courant maximal de 1 nA et une tension de 50 V, on calcule facilement qu'en une seconde $6.24 \cdot 10^{10}$ électrons traversent les 10 cm avec une vitesse de 4000 km/s (soit environ 1% de la vitesse de la lumière, ce qui justifie de négliger les effets relativistes). En moyenne, 156 électrons traversent les 10 cm en même temps, ce qui représente une distance moyenne de 0.6 mm et une énergie d'interaction coulombienne de $2.24 \cdot 10^{-6}$ eV. Ces estimations justifient par ailleurs que notre modèle puisse négliger les phénomènes de charge d'espace [6] qui interviennent lors d'expériences d'émission de champ à haute tension.

Le potentiel ressenti par l'électron sera déterminé pour une géométrie fixée des atomes constituant la nanopointe et la molécule éventuellement présente. Les phénomènes de relaxation qui pourraient intervenir à cause du champ électrique ne seront pas considérés. Des modèles simples de potentiel seront choisis pour décrire l'intérieur du métal (modèle de Sommerfeld) et de la molécule (que nous ramènerons dans un premier temps à un barreau de potentiel intérieur constant).

Un modèle plus réaliste du métal n'est pas nécessaire. Une description plus détaillée de la nanopointe suffit en effet pour reproduire les effets de bande observables dans la distribution énergétique des électrons émis, la nanopointe étant la dernière partie du métal à traverser.

Une description de la molécule par un barreau à potentiel intérieur constant offre l'avantage de pouvoir attribuer avec certitude l'origine des structures observées dans les figures de diffraction à une interférence des électrons incidents plutôt qu'à une structure dans le potentiel de la molécule. Il est important de savoir si les structures observées sont caractéristiques du moyen d'observation ou de l'objet observé lui-même.

Lorsque ces points auront été éclaircis, nous passerons à une description atomique de la molécule. Nous garderons cependant un modèle simple et nous contenterons de décrire le nuage électronique par une distribution gaussienne, dont seul le centre sera susceptible de se déplacer en réponse à l'électron incident. Nous tâcherons d'inclure l'énergie d'échange dans cette description. Un tel modèle sera suffisant pour reproduire les caractéristiques essentielles de l'énergie potentielle dans et autour de la molécule observée.

Enfin, les champs magnétiques seront incorporés dans notre modèle. Nous pourrons donc simuler la diffusion électronique résultant de champs magnétiques locaux et vérifier leur influence sur l'image finale. Cette description s'arrêtera à la force de Lorentz (qui tient compte uniquement de la charge de l'électron) et n'inclura pas le couplage avec le spin de l'électron. Cette dernière partie est sans doute utile pour expliquer la division du faisceau électronique extrait des nanopointes magnétiques et sera traitée dans un autre travail.

Mis à part la réduction du problème à celui à un seul électron, les simplifications invoquées ne concernent que la distribution du potentiel électrostatique. L'invariance du potentiel dans le temps implique une théorie de diffusion stationnaire. Cette théorie de diffusion, se voulant générale, ne devra pas être affectée par des simplifications dans ce qui sert de paramètre d'entrée.

Réaliser un calcul de diffusion tridimensionnel à travers une barrière de potentiel haute

de plusieurs dizaines d'électron-volts et étendue sur plusieurs dizaines de nanomètres est loin d'être simple. Les méthodes développées pour le STM, malgré la grande similarité avec le FPM, ne conviennent pas, pour des raisons de stabilité ou de taille mémoire. Ce travail consiste donc surtout en un développement des méthodes applicables au STM, en vue de maîtriser les instabilités inhérentes aux conditions plus difficiles rencontrées dans la modélisation du FPM. Nous avons décidé de nous placer dans la méthodologie des matrices de transfert, pour des raisons données plus loin, tout en profitant des avantages qu'offrent la méthodologie des fonctions de Green pour la propagation lointaine des champs.

Ce travail commence par un chapitre consacré entièrement à la microscopie à projection. Les étapes de son développement, le mode de fabrication et les propriétés des nanopointes sont détaillés. Le mode de fonctionnement du FPM est précisé. Des résultats représentatifs des possibilités offertes par cette technique sont présentés.

Le chapitre suivant est consacré à diverses théories susceptibles de modéliser le FPM. Une présentation critique est proposée. Les points intéressants ainsi que les raisons qui nous ont conduit à l'élaboration d'un modèle différent sont expliqués.

Notre méthode de diffusion sera donnée en détail dans les trois chapitres qui suivent. Par rapport au cas général correspondant à la diffusion par un potentiel complexe en présence de champs magnétiques, le traitement de situations caractérisées par un potentiel purement réel sans champ magnétique s'accompagne dans notre modèle de propriétés particulières qui méritent d'être données. Celles-ci sont principalement l'hermiticité des matrices à diagonaliser (qui permet d'améliorer la précision des calculs) et l'existence de groupes de solutions conjugués (qui permet de réduire les temps de calcul jusqu'à un facteur 2). Nous exposerons donc notre théorie dans ce cadre, qui par ailleurs couvre la majorité des situations utiles à considérer.

L'absorption des électrons dans les fibres épaisses est à l'origine de l'aspect opaque de leur image à grande distance. La simulation de ce phénomène se réalise de manière astucieuse par l'introduction d'une partie imaginaire dans le potentiel de la fibre. Cette situation nécessite un traitement plus particulier afin de conserver une bonne efficacité. Nous consacrerons donc un chapitre à la modélisation de la diffusion électronique par des potentiels complexes.

Le troisième volet de cette présentation sera consacré au traitement des champs magnétiques. Ceux-ci sont introduits dans l'équation de Schrödinger par l'intermédiaire d'un potentiel vecteur. Un choix de jauge particulier est nécessaire pour conserver l'invariance de l'hamiltonien par rapport à une symétrie précisée par la suite et pour ramener l'équation de Schrödinger à une forme exploitable. Le traitement fait apparaître une partie imaginaire dans l'hamiltonien et requiert donc les techniques exposées dans le chapitre précédent.

Les problèmes de stabilité étant importants dans cette approche, nous avons consacré un chapitre aux méthodes permettant de les contrôler. Par ailleurs, le traitement de certaines situations nécessite l'introduction de matrices de transfert rectangulaires. Ce chapitre présente également cette extension de la technique.

La méthodologie étant donnée, le reste de cette dissertation est consacré à la présentation

de simulations. Les techniques particulières utilisées pour calculer l'énergie potentielle dans chaque application sont précisées au début de chaque chapitre.

Les premières simulations concernent l'émission de champ à partir de nanopointes. Celles-ci jouent un rôle crucial dans le processus permettant l'observation de figures de diffraction de type Fresnel. Les atomes constituant les nanopointes seront représentés par des dipôles. Nous exploiterons ce modèle pour reproduire la distribution d'énergie totale (TED) des électrons émis et confirmer leur faible dispersion énergétique. La qualité du faisceau sera évaluée en réalisant des expériences de diffraction à travers une ouverture circulaire. Les résultats seront comparés à ceux obtenus lorsque la pointe est dégradée. La perte de contraste que nous constaterons dans les figures de diffraction nous prouvera l'importance de travailler avec des nanopointes à terminaison monoatomique.

Une fois cela établi, nous nous tournerons vers l'observation d'une fibre de carbone, afin d'étudier le type d'image que l'on peut attendre de l'observation d'un objet simple. Nous rechercherons également les conditions qui entraînent une ressemblance de l'image avec la distribution spatiale de l'objet. Nous affinerons petit à petit la description de la fibre, en lui permettant d'abord de se polariser et ensuite de devenir absorbante. Nous étudierons aussi l'influence du travail d'extraction de la fibre sur l'image finale.

Puisque les conditions favorables à l'observation d'un objet auront été examinées, nous chercherons à déterminer quelle information sur la structure atomique de l'objet peut être observée. Nos simulations montreront surtout comment l'information présente au niveau de la molécule évolue avec la tension d'extraction.

Enfin, nous terminerons par quelques résultats de diffusion en présence de champs magnétiques. Ceux-ci induisent une déviation du faisceau ainsi que des franges d'interférence d'autant plus nombreuses que le champ est intense. Ces observations expérimentales sont confirmées par nos simulations.

Chapitre 1

La microscopie à projection

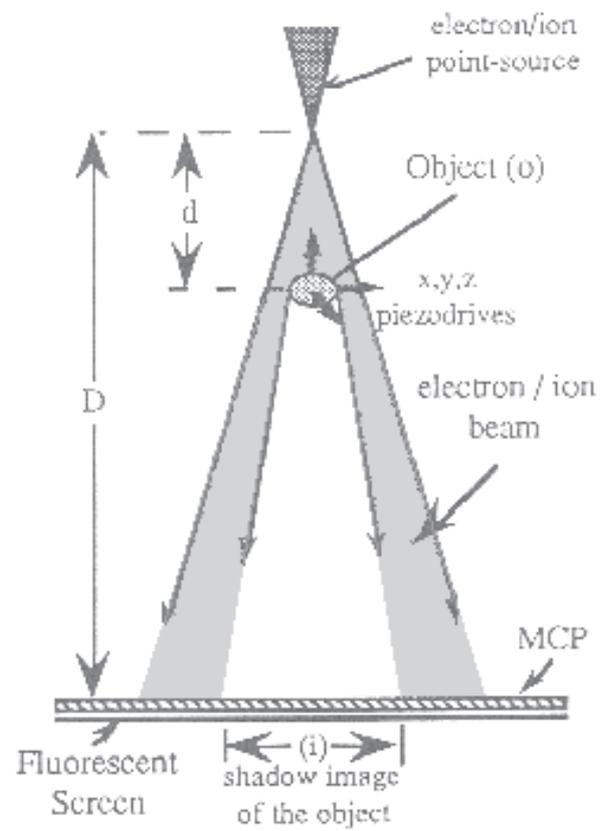
1.1 Introduction

La microscopie à projection permet de découvrir la forme d'un objet par l'ombre qu'il produit lors d'une illumination. Pour une distance objet-écran donnée, l'agrandissement est d'autant plus important que la source d'illumination est proche de l'objet et l'ombre d'autant mieux définie que la source est réduite. Cette technique fut proposée en 1939 par Morton et Ramberg [7], auteurs du Point Projector Electron Microscope. Une image réduite de la source (un canon à électrons) était obtenue grâce à des lentilles électroniques. Cette technique, en général juste capable de fournir des images de résolution moyenne, permit tout de même de discerner des détails de l'ordre de 25 nm grâce au montage de Boersch [8], dans lequel deux lentilles furent employées pour produire une source apparente de 6 nm (pour une longueur d'onde de $7 \cdot 10^{-2}$ Å et un objet situé à 18 microns).

Par la suite, ce système de lentilles fut abandonné grâce à l'utilisation de fines pointes métalliques servant de source électronique [9, 10]. Des détails d'environ 50 nm purent être observés pour des distances projecteur-objet de 10 microns. Cela permit l'observation d'objets de dimensions analogues à celles du projecteur (quelques centaines de nanomètres d'extrémité), pour des tensions projecteur-objet typiques de 3500 V.

En parallèle, l'idée de remplacer les électrons par des ions, obtenus en atmosphère gazeuse à partir de pointes, fut exploitée par E.W. Müller [11], auteur en 1968 du Field Ion Shadow Projection Microscope.

La fin des années '80 vit la réduction de ces pointes à des dimensions nanométriques, avec l'élaboration de pointes pyramidales à terminaison monoatomique [12]. Leur production consistait à induire l'extraction des atomes constituant les faces de la pointe par un champ électrique intense (évaporation de champ) et à déposer le dernier atome depuis une atmosphère de tungstène. L'utilisation combinée de ces nouvelles pointes et des techniques de positionnement par céramiques piézo-électriques permit rapidement l'observation de figures de diffraction avec des fibres de carbone de diamètre compris entre 10 et 20 nm, ainsi que l'observation de fines couches d'or [13] dans un montage à projection à faible tension (190 V) [14, 15]. Ces nouvelles tensions de travail, comprises entre quelques volts

FIG. 1.1 – *Principe de la microscopie à projection.*

et quelques centaines de volts, étaient dorénavant bien adaptées à l’observation non destructive de macromolécules. Comme nous le verrons par la suite, la finition de la source électronique détermine de manière cruciale le type d’images que l’on peut obtenir dans un montage à projection. Les pointes mentionnées ici fournissent des images (des “kendrogrammes”) qui nécessitent des techniques de reconstruction spécifiques afin de retrouver l’aspect de l’objet diffusant [16]. Cette différence provient d’une part du caractère encore relativement délocalisé et du manque de symétrie de la source électronique et d’autre part des conditions d’utilisation où l’objet est placé à des distances de l’ordre de 0.1 micron de la source.

Les nanopointes [17] firent leur apparition presque simultanément. Comme nous le verrons, ces dernières présentent des caractéristiques idéales pour leur utilisation en microscopie. La précision actuelle des techniques de positionnement — de l’ordre de l’angström — permet de les exploiter pleinement.

1.2 Les nanopointes

Examinons donc ces nanopointes, en présentant leur fabrication ainsi que les propriétés qui les rendent intéressantes pour la microscopie à projection [18].

1.2.1 Fabrication

Le support des nanopointes consiste en fines pointes métalliques, habituellement en tungstène, mais parfois aussi en d’autres matériaux (Au, Pt, Fe, ...). Dans le cas du tungstène, elles sont obtenues à partir d’un cristal orienté dans la direction $\langle 111 \rangle$, auquel un traitement électrochimique confère une forme initiale conique. Cette orientation est choisie pour son énergie libre de surface relativement élevée (qui en fait une surface relativement petite au départ, c’est-à-dire proche de la structure souhaitée) et pour sa barrière de diffusion également importante (1.8 eV) (assurant une bonne stabilité thermique). Dans un traitement ultérieur en ultra-haut vide (pression de $5 \cdot 10^{-11}$ Torr), la pointe est portée à une température de 3200 K en présence de champs électriques élevés (dus à des tensions typiques de 3500 V entre cette pointe, dont le rayon de courbure initial à l’extrémité est de quelques centaines de nanomètres au plus, et une grille située à quelques millimètres). Etant donné la symétrie essentiellement sphérique du montage, la position de la grille influence très peu la valeur du champ au niveau de la pointe. De cette étape résulte une pointe purifiée présentant une extrémité hémisphérique, dont le rayon de courbure est compris entre 70 et 100 nm [19].

La nanopointe est ensuite construite sur ce support par un principe similaire. L’application simultanée d’un champ électrique intense dirigé vers l’extérieur de la pointe (typiquement $2 \text{ V}/\text{\AA}$) et d’une température d’environ un tiers de la température de fusion (3680 K) permet de donner à la diffusion en surface un niveau comparable à celui rencontré lors de la fusion. L’écrantage du champ électrique restreint la liquéfaction à la dernière couche atomique.

Les atomes en surface ont tendance à se déplacer à la fois vers les régions de courbure faible et vers les régions de champ fort. Pour une faible concentration initiale de défauts, la première tendance l'emporte sur la seconde. La diffusion tend à uniformiser la surface et à favoriser la croissance des plans d'indice faible (de distance interplan élevée). Le processus aboutit à la production d'une pointe "build-up", pyramide déterminée par la rencontre de trois plans (112) relativement peu intéressante pour la microscopie à projection. Pour une concentration initiale de défauts suffisamment élevée, la seconde tendance l'emporte (d'autant plus facilement que le champ appliqué est fort). La diffusion se fait alors préférentiellement vers les protrusions existantes, ce qui tend à les agrandir et à amplifier le phénomène.

Dans ces conditions, et tant que la température et la tension électrique sont maintenues, l'apport d'atomes entraîne une émission continue d'ions (à raison de $10^5/s$) à partir de l'atome terminal de ces protrusions, où l'énergie de liaison est la plus faible. Des sources localisées d'ions métalliques, émettant dans un faisceau de 2 degrés d'angle d'ouverture, sont ainsi réalisées.

La dernière étape de la fabrication des nanopointes consiste à geler la structure de ces protrusions. Cela se fait par refroidissement rapide, en mettant la pointe en contact avec un réservoir d'azote liquide, le champ électrique étant maintenu. Les nanopointes ainsi produites ont une hauteur comprise entre 2 et 5 nm.

Ces structures ont pu être étudiées [19, 20] en microscopie à émission de champ (FEM), en observant leur émission électronique lorsque la direction du champ est inversée, et par microscopie à émission de champ ionique (FIM), en observant l'émission d'ions induits par le champ intense existant au voisinage de ces structures dans une atmosphère de He ou Ne de 10^{-5} Torr. Les mesures en FIM, pour lesquelles des tensions élevées sont nécessaires (typiquement 15 kV), se font à la température de l'azote liquide pour maintenir la stabilité de la nanopointe. En désorbant progressivement les atomes (par l'action du champ électrique), il est possible d'en examiner la structure. Une terminaison monoatomique apparaît, soutenue par 3 atomes, ainsi qu'une base pyramidale, rencontre de plusieurs plans de surface. Les premières couches apparaissent peu ordonnées, ce qui s'explique par l'étape de refroidissement rapide.

Ces nanopointes sont stables, pour autant que les champs électriques n'induisent pas de nouvelle fusion de surface. Les valeurs critiques des champs applicables sont comprises entre 1.2 et 1.6 V/Å.

1.2.2 Propriétés

Emission électronique

En appliquant un champ électrique vers les nanopointes, celles-ci émettent un faisceau électronique [21] à partir de l'atome terminal (à cause de l'amplification plus importante du champ électrique en ce point). La dispersion angulaire (largeur à mi-hauteur) initiale est estimée à 15-20 degrés [22, 23]. Celle observée à grande distance est autocollimatée à environ 5 degrés à cause de l'influence du support de la nanopointe, à condition que

l'électrode d'extraction soit située à plus de quelques dizaines de microns. Pour des distances inférieures à quelques centaines de nanomètres, la dispersion angulaire finale du faisceau se rapproche de sa valeur initiale.

L'émission électronique reste stable durant des heures, pour des courants inférieurs à 1 nA. Pour des courants plus élevés, jusqu'à $0.1 \mu\text{A}$, le courant peut fluctuer occasionnellement entre plusieurs niveaux (flip-flop), à cause de modifications de la structure de la nanopointe induites par l'échauffement de celle-ci. Enfin, pour des valeurs de courant supérieures, les modifications induites par l'échauffement de la nanopointe tendent à la dégrader irréversiblement.

Distribution d'énergie totale en pics

Une propriété remarquable de cette émission électronique est sa distribution d'énergie totale (TED) en pics [24, 25, 26]. Ces pics se trouvent en général sur un intervalle d'énergie de 2 eV en dessous du niveau de Fermi dans le support métallique. Les théories d'émission de champ classique [27] ne permettent pas de reproduire leur distribution.

Leur nombre dépend de la géométrie particulière et de la nature de la protrusion. En augmentant la tension entre le support de la nanopointe et l'anode, les intensités relatives des différents pics se modifient. Ils se déplacent tous vers des valeurs en énergie plus faibles, d'une même quantité linéairement proportionnelle à la différence de tension appliquée. Le degré de déplacement est fonction lui aussi de la géométrie et de la nature de la nanoprotusion. La largeur de chacun des pics n'est modifiée que si un échauffement de la nanopointe a lieu suite à l'augmentation de la tension. La figure 1.2 illustre une distribution énergétique à deux pics avec les modifications induites par un changement de tension.

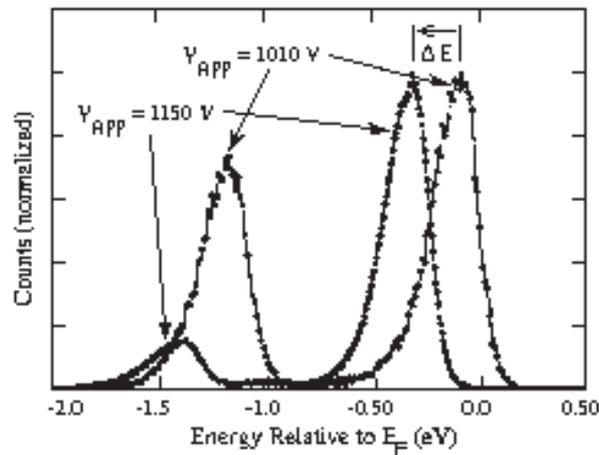


FIG. 1.2 – Distribution d'énergie totale à deux pics caractérisant l'émission de champ à partir d'une nanopointe. Cette figure illustre le décalage en énergie induit par une modification de la tension appliquée entre le support de la nanopointe et une anode sphérique à 3 cm.

Une explication proposée pour cette distribution en pics postule l'existence d'une structure de bandes localisée dans la région terminale de la pointe. L'émission électronique serait due à un effet tunnel résonnant à travers celles-ci [28]. Le déplacement en énergie induit par une modification de la tension serait lié à l'accumulation de charges dans l'extrémité de la pointe. Nous avons reproduit à la figure 1.3 un diagramme en énergie proposé dans la littérature[24] pour illustrer ces explications.

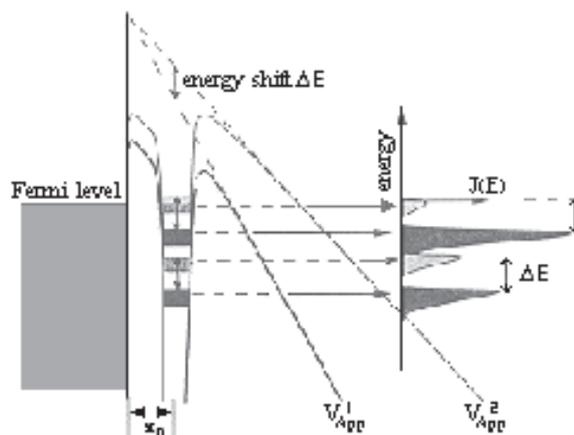


FIG. 1.3 – *Modèle simplifié de l'émission de champ par une nanopointe, résultant d'un effet tunnel résonnant à travers les bandes localisées dans la région terminale de la pointe, illustré pour deux valeurs différentes de la tension.*

Des expériences avec agrégats métalliques déposés sur protrusions ont montré que les pics caractérisant la distribution énergétique des électrons émis ont tendance à devenir plus fins et prononcés quand la taille des agrégats est réduite [29, 30] ou la taille de la protrusion augmentée. Ces expériences confirment l'importance d'un confinement électronique dans un espace restreint en bout de pointe. Par ailleurs, des calculs en "tight binding" ont démontré l'existence d'une structure de bandes locale sur l'extrémité des nanopointes, pour un nombre minimum de 4 couches et à condition d'avoir une terminaison monoatomique [31].

Effet Nottingham

L'effet Nottingham [32, 33] rend compte de l'échauffement (parfois du refroidissement) d'un métal suite à une émission électronique. Dans une telle situation, les électrons extraits doivent obligatoirement être remplacés. Un échauffement (refroidissement) du métal peut se produire lorsque l'énergie moyenne des électrons de remplacement est supérieure (inférieure) à l'énergie moyenne des électrons extraits.

Dans le cas de pointes, cet effet est négligeable pour des rayons de courbure supérieurs à quelques dizaines de nanomètres et des courants inférieurs à $1 \mu A$. Par contre, il peut devenir très important dans le cas de nanopointes, à cause de la structure en pics caractérisant

son spectre d'émission.

En effet, en considérant la figure 1.3, on s'aperçoit que pour chaque électron extrait à partir de l'une des bandes représentées, les électrons de remplacement peuvent provenir d'un niveau de même énergie dans le continuum du substrat (comme dans l'effet Nottingham classique), mais aussi de niveaux supérieurs ou d'une autre bande dans la structure locale. Dans ces deux derniers cas (propres à la nanopointe), la différence d'énergie entre l'électron extrait et l'électron de remplacement peut être de l'ordre de l'électron-volt et contribuer à échauffer la structure locale.

Ces effets d'échauffement ont pu être mesurés [34, 35]. Lorsqu'un atome de l'atmosphère gazeuse vient s'adsorber sur l'extrémité de la nanopointe, il peut se mettre à osciller (par sauts discrets) entre positions voisines sous l'effet de la température, chaque position étant associée à une TED propre. Après calibration, il est possible de mesurer la température locale de la nanopointe à partir de la fréquence d'oscillation de la TED (flip-flop). Pour des valeurs de tension trop grandes, la molécule adsorbée devient instable et la mesure de température se base alors sur l'élargissement des pics dans la TED.

Les résultats de ces études sont représentés par les figures 1.4 et 1.5, qui montrent l'accroissement de la température d'une nanopointe en fonction du courant extrait et de la tension entre le support de cette nanopointe et une anode sphérique située à 3 cm. Les valeurs de tension V_{app} sont reliées aux valeurs de champ local F par la relation :

$$F [V/m] = \beta V_{app} [V] \quad (1.1)$$

où β prend la valeur [36] : $\beta = 5 - 10 \cdot 10^6 [m^{-1}]$, qui est du même ordre de grandeur que celle obtenue en représentant le support de la nanopointe et l'anode par deux sphères emboîtées, dont les rayons seraient respectivement le rayon de courbure du support de la nanopointe et 3 cm.

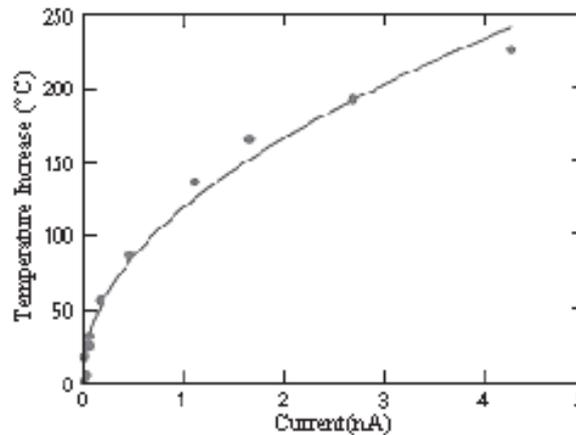


FIG. 1.4 – Modification de la température d'une nanopointe en fonction du courant extrait.

Afin d'éviter un échauffement excessif de la nanopointe, pouvant résulter en dégradations irréversibles, il s'avère que les valeurs critiques du courant extrait et du champ électrique

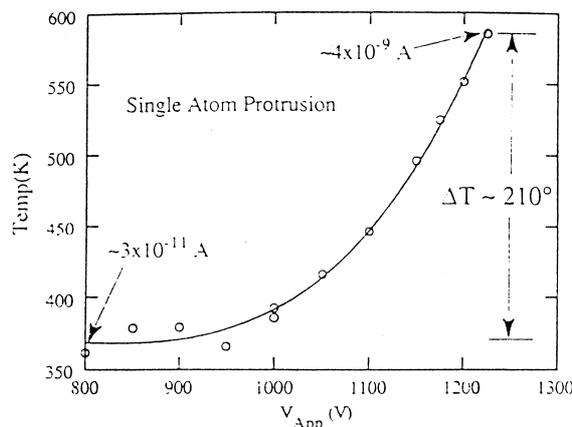


FIG. 1.5 – *Modification de la température de la nanopointe en fonction de la tension appliquée entre son support et une anode sphérique à 3 cm.*

local sont respectivement de 10 nA et 1 V/Å. Cette dernière valeur est en conformité avec les conclusions de la section 1.2.1.

La distribution d'énergie totale des électrons émis peut présenter des pics situés au-dessus du niveau de Fermi du support métallique. De telles situations sont possibles lorsque la largeur des bandes concernées est plus petite que l'intervalle d'énergie caractérisant le pied de la distribution de Fermi. Les électrons extraits dans ces bandes contribuent alors à refroidir la pointe. De telles situations ont été réalisées expérimentalement avec des agrégats d'or [37].

Nanopointes magnétiques

Des nanopointes en fer ont été réalisées [38]. Leur support consiste en fibres monocristallines de Fe orientées dans la direction $\langle 111 \rangle$ ou $\langle 110 \rangle$, préparées par traitements électrochimique et thermique successifs. Les nanopointes sont produites comme celles en tungstène.

Lors de l'émission électronique, le faisceau se scinde en deux (avec un écart angulaire de 4 à 6 degrés) lorsque la température de la nanopointe est inférieure à une température critique proche de la température de Curie du support (1042 K). L'émission d'ions métalliques, lors de l'étape de synthèse de la nanopointe, présente des structures suggérant également la présence de champs magnétiques.

Ces phénomènes sont attribués à l'existence d'une interaction magnétique intense au niveau de la nanopointe, bien qu'une explication précise ne soit pas encore donnée.

1.2.3 Intérêt pour la microscopie à projection

Les nanopointes constituent des sources électroniques idéales pour la microscopie à projection, avec des brillances élevées comprises entre 10^6 et 10^7 A cm⁻² str⁻¹ pour une tension d'extraction de 100 V. Cette grandeur, ramenée à sa valeur théorique maximale, définit le facteur de dégénérescence δ , qui est de l'ordre de 10^{-3} pour 1 nA à 200 V. Cette valeur est plusieurs ordres de grandeur au-dessus de celles correspondant à d'autres sources électroniques [39].

Comme nous l'avons mentionné, le faisceau est autocollimaté avec un angle d'ouverture (largeur à mi-hauteur) de 5 degrés environ, pour une électrode d'extraction à plus de quelques dizaines de microns, sans qu'une lentille électronique ne soit nécessaire. Par ailleurs, le faisceau électronique est très stable en intensité, avec des variations inférieures à 1% pendant un intervalle de temps compris entre 2-3 heures et 10 heures.

La distribution en pics de l'énergie totale des électrons extraits permet l'utilisation d'électrons caractérisés par une faible dispersion énergétique. On utilisera des nanopointes caractérisées par des TED à un seul pic. En pratique, on obtient des largeurs à mi-hauteur d'environ 0.1 eV à température ambiante [40]. La longueur de cohérence longitudinale, qui donne la distance parcourue par l'électron durant l'intervalle de temps lié à la dispersion énergétique ΔE du faisceau par la relation d'incertitude de Heisenberg, est donnée par :

$$l_c = \left(\sqrt{\frac{2 * E}{m}} \right) \left(\frac{\hbar}{\Delta E} \right) \quad (1.2)$$

Pour une dispersion énergétique moyenne de 0.1 eV et une tension typique de 200 V, on trouve une longueur de cohérence longitudinale de 55 nm. Il s'agit d'un critère pour qualifier la dispersion énergétique. Il peut s'interpréter comme la différence de chemin entre deux trajectoires, à partir de laquelle des ondes correspondant aux valeurs extrêmes de l'énergie et initialement en phase présentent un déphasage supérieur à 2π . Dans le cadre du FPM, ce critère n'est utile que si une relation de phase initiale existe entre les électrons de différente énergie. Il est important de constater que si une telle relation de phase existe, la longueur de cohérence longitudinale est suffisamment grande pour que les phénomènes de diffraction ne soient pas limités par ce critère. En effet, pour une longueur d'onde inférieure à 0.1 nm, il faudrait une différence de chemin supérieure à 550 longueurs d'onde avant qu'une perte de contraste des franges apparaisse à cause de la dispersion en énergie. Travailler avec une dispersion énergétique faible est très important. Une caractérisation plus adéquate à l'utilisation du faisceau en microscopie à projection sera donnée en section 1.3.2.

La terminaison monoatomique de la nanopointe, sans laquelle la dispersion énergétique des électrons serait plus importante, est responsable de la grande cohérence spatiale du faisceau, puisque les électrons extraits proviennent tous d'une région de taille atomique. Le faisceau présente donc des caractéristiques idéales (voir aussi réf. [41]) pour l'observation de phénomènes de diffraction. Selon un modèle de cohérence [42], la longueur de cohérence transverse sur un écran éloigné est donnée, à un facteur multiplicatif près, par :

$$l_t \sim (\lambda L/a) \quad (1.3)$$

avec λ la longueur d'onde de l'électron, L la distance de l'écran et a le rayon caractéristique de la source. Cette relation peut être déduite des relations d'incertitude de Heisenberg reliant l'incertitude sur la position (les dimensions de la source) et celle sur la quantité de mouvement, dans le plan où ces dimensions sont considérées. Remarquons que cette grandeur dépend de la valeur particulière de L . Il est donc nécessaire de préciser à quelle distance une longueur de cohérence transverse est donnée. En prenant des valeurs caractéristiques, on trouve une longueur de cohérence transverse à l'écran de quelques centimètres. Cette distance calculée au niveau de l'objet donne l'écart maximum entre deux points de celui-ci, dans un plan parallèle à l'écran, pouvant donner des franges d'interférence contrastées.

De la localisation de la source découle la possibilité d'observer des molécules avec une onde incidente de forme essentiellement sphérique, et donc d'observer des figures de diffraction de type Fresnel.

La géométrie particulière de ces nanopointes fait que le point de projection virtuel (point d'où semblent provenir les électrons à grande distance) se trouve seulement à une distance comprise entre quelques nanomètres et quelques dizaines de nanomètres de l'espace pouvant contenir l'objet à observer. Pour un écran à 10 cm et un objet généralement à moins de 100 nm du point de projection virtuel, des agrandissements supérieurs à 10^6 sont envisageables.

Enfin, la possibilité de scinder le faisceau électronique grâce à des pointes magnétiques, dans un processus où le spin de l'électron doit être essentiel, est très intéressante mais n'a pas été exploitée jusqu'ici.

1.3 Le Microscope à Projection de Fresnel

Comme nous l'avons vu, les nanopointes offrent de nombreux avantages pour la microscopie à projection. Nous allons examiner les caractéristiques de cette technique lorsqu'elle est associée à leur utilisation.

1.3.1 Présentation générale

Le Microscope à Projection de Fresnel, inventé par Vu Thien Binh [43, 44, 45, 21], utilise les propriétés remarquables de ces nanopointes en tungstène. Celles utilisées dans ce montage ont une hauteur d'environ 2 nm.

La tension d'extraction est appliquée entre le support de la pointe et une grille en or de 3 mm utilisée en Microscopie Electronique à Transmission. Cette grille est recouverte d'un film de carbone d'environ 10 nm d'épaisseur présentant de nombreux trous et sert de support pour les molécules à observer. Sa position est contrôlée par des cellules piézo-électriques, ce qui permet d'approcher la grille à quelques dizaines de nanomètres de la pointe. Des tensions d'extraction comprises entre 50 et 300 V suffisent à l'émission de champ.

L'écran est à 10 cm et consiste en un amplificateur de courant couplé à un écran fluorescent. L'amplificateur est constitué de nombreux canaux indépendants, afin de ne

pas dégrader la résolution de l'image. Une tension électrique peut être appliquée entre la grille et l'écran fluorescent (typiquement moins de 50 V).

En l'absence d'échantillon, on observe un spot d'environ 1 cm sur l'écran. Le courant extrait de la nanopointe, pour des tensions généralement comprises entre 200 et 300 V, est dans la plupart des cas situé entre 1 et 5 pA, c'est-à-dire trois ordres de grandeurs en dessous des valeurs de courant pouvant entraîner une dégradation de la nanopointe.

Les molécules à observer sont dissoutes dans une solution de chloroforme à une concentration de quelques mg/l. Plusieurs μl de cette solution sont déposés sur la grille en or. Après évaporation du solvant, la probabilité que certaines molécules enjambent un trou de la grille est grande. Après positionnement de la grille, celles-ci peuvent alors être observées par projection. Un déplacement contrôlé de la grille, grâce aux cellules piézo-électriques, et l'observation du déplacement correspondant de l'image à 10 cm permettent de déduire les dimensions de l'objet.

Les manipulations se font en ultra-haut vide (10^{-11} Torr) à température ambiante. Aucune protection contre les champs magnétiques parasites n'est nécessaire. Un système pneumatique offre une protection suffisante contre les vibrations.

1.3.2 Caractéristiques

Point de projection virtuel

A cause de la distribution du champ électrique autour de la nanopointe, et en l'absence d'objet sur la grille, la trajectoire des électrons extraits est incurvée de telle manière qu'à grande distance ceux-ci semblent provenir d'un point reculé par rapport au point d'origine. Ce lieu, défini par l'intersection des trajectoires rectilignes observées asymptotiquement, est appelé "point de projection virtuel".

La dispersion angulaire du faisceau extrait est réduite, par rapport à sa valeur initiale, d'un facteur 2 [46] ou plus, lorsque la grille est située à quelques dizaines de microns de la pointe. Ce confinement de la dispersion angulaire a lieu alors dans les 10 nm qui suivent la pointe. Dans les conditions de travail habituelles, en supposant que les électrons quittent la pointe selon des trajectoires perpendiculaires à la surface, le point de projection virtuel est donc situé à un minimum de deux fois le rayon de courbure de l'extrémité de la nanopointe. Habituellement, il se situe à une distance comprise entre quelques nanomètres et quelques dizaines de nanomètres de l'extrémité de la nanopointe. Ces valeurs sont beaucoup plus petites que celles correspondant à des pointes hémisphériques (rayon de courbure supérieur à 50 nm). Cet effet de confinement du faisceau électronique sur la position du point de projection virtuel est illustré à la figure 1.6.

La présence d'un objet peut modifier les caractéristiques du faisceau à grande distance, et donc la position du point de projection virtuel. En effet, les équipotentielles étant déformées dans le voisinage de l'objet, les électrons subissent une déviation supplémentaire et le point d'où ils semblent provenir à grande distance peut changer par rapport à une situation où l'objet serait absent. Par exemple, pour des fibres d'environ 1 nanomètre de diamètre, le point de projection virtuel apparaît dans certaines situations devant la nano-

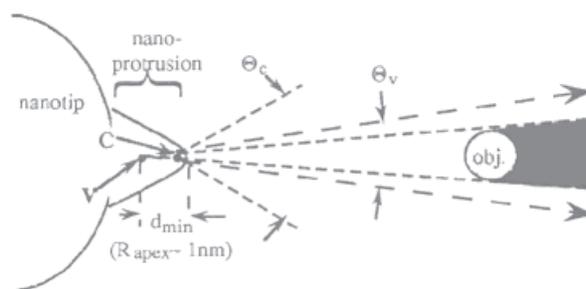


FIG. 1.6 – *Effet du confinement électronique résultant en un point de projection virtuel V différent du centre de courbure C de l'extrémité de la nanopointe.*

pointe.

Ces commentaires montrent la nécessité de modéliser la diffusion électronique aussi bien au voisinage de l'objet que près de la pointe, étant donné qu'il n'existe pas de point source intrinsèque à la nanopointe, mais plutôt une position effective qui dépend de l'ensemble du système.

Possibilité d'une diffraction de type Fresnel

Etant donné la terminaison monoatomique des nanopointes, l'émission électronique se fait à partir d'une région dont les dimensions caractéristiques sont d'environ 0.5 nm. Cette région d'émission peut être considérée comme ponctuelle et, en dessous d'une distance critique, l'onde incidente au niveau de l'objet a un caractère essentiellement sphérique.

Tous les modèles s'accordent pour attribuer à ce caractère sphérique la possibilité d'obtenir, à partir d'un objet étudié, des figures de diffraction de type Fresnel. Les images obtenues sont dans ce cas fortement corrélées à la distribution spatiale réelle de l'objet.

Pour des sources plus délocalisées ou une distance pointe-objet trop grande, l'onde incidente au niveau de l'objet est essentiellement plane et les figures de diffraction sont de type Fraunhofer. Une analyse plus complexe est alors nécessaire pour déduire, à partir des images, des informations sur l'objet étudié.

La distance critique, marquant le passage entre une diffraction de type Fresnel et une diffraction de type Fraunhofer, est donnée par :

$$d_{critique} = a^2/\lambda \quad (1.4)$$

avec a la dimension caractéristique de l'objet et λ la longueur d'onde électronique. A 300 V, pour un petit objet de 1.4 nm, cette distance critique est d'environ 30 nm. Une observation est donc possible avec un champ électrique proche de la valeur critique de 1 V/Å. Cette valeur de 1.4 nm est justement le double du pouvoir de résolution à 300 V, tel que nous l'estimerons par la suite.

Résolution

Plusieurs facteurs peuvent limiter la résolution du FPM [47]. Il s'agit du temps d'exposition, de l'étendue de la source, des phénomènes de diffraction, de la dispersion énergétique, des champs magnétiques et des vibrations. Nous allons considérer chacun de ces facteurs séparément.

Le temps d'exposition En considérant l'image comme l'accumulation des contributions individuelles de chaque électron arrivant sur l'écran, on comprend la nécessité d'un nombre minimum d'électrons afin que l'image soit suffisamment définie pour permettre la distinction de deux régions différentes de l'objet.

Une équation donnant la résolution minimale d'une image en fonction de la dose d'électrons et de l'efficacité de leur utilisation a été proposée par Rose [48]. Le principe du raisonnement consiste à dire que deux régions circulaires adjacentes seront discernables si chacune d'elle reçoit un minimum de 20 électrons utilisés efficacement.

Dans le cas du FPM, pour un courant compris entre 1 et 5 pA, un temps d'exposition d'environ 0.5 s suffit. Par ailleurs, compte tenu de la stabilité de plusieurs heures du faisceau électronique, ce critère ne peut être celui fixant en fin de compte la résolution, puisqu'il peut être contourné en exposant l'image suffisamment longtemps. D'autre part, un modèle comme celui présenté dans ce travail, qui détermine la fonction d'onde, et donc la distribution de probabilité de détection des électrons, prédit directement l'image obtenue après un temps d'exposition infiniment long.

La taille de la source Par un modèle géométrique simple, l'étendue sur l'écran définie par les droites joignant le contour de la source électronique et un point de l'objet apparaît identique à l'image donnée par une zone centrée autour de ce point de l'objet, de taille égale à celle de la source. Selon ce raisonnement, la limite de résolution due aux dimensions non nulles de la source serait donnée par l'étendue de la source, qui est estimée à 0.5 nm. Le fait que cette valeur soit supérieure aux dimensions caractéristiques de l'atome terminal (de l'ordre de 0.1 nm) peut être attribué à l'action du champ électrique, qui est responsable par ailleurs du déplacement du point de projection effectif.

Ce raisonnement considère à tort la source comme un ensemble de points complètement incohérents, alors qu'il existe une relation de phase définie entre eux, pour des électrons d'énergie donnée.

Un modèle de diffraction plus réaliste, dont les bases sont données au paragraphe suivant, tient compte de la cohérence spatiale de la source. Ce modèle [49] montre que la taille de la source limite le contraste des franges de diffraction uniquement lorsque la position de ces franges implique des distances supérieures à la longueur de cohérence au niveau de l'écran. Dans le cas d'une figure obtenue à partir d'un objet opaque, cette limite est justement atteinte lorsque l'interfrange, ramenée au niveau de l'objet, est égale aux dimensions de la source. Nous allons voir immédiatement que cette situation n'est rencontrée que lorsque l'on sort des limites de résolution dues à la diffraction.

La diffraction Lorsqu'un objet est placé dans le faisceau électronique, l'interférence observée en un point éloigné sera constructive si la différence de chemin entre ce point et l'extrémité de la pointe, par un parcours direct et par un parcours passant par l'extrémité de l'objet, est égal à un nombre entier de longueurs d'onde. Cette interférence est destructive lorsque cette différence de chemin est rallongée d'une demi-longueur d'onde. On donne au faisceau réfléchi par l'objet un changement de phase équivalent à $\frac{3}{8}\lambda$ si le faisceau réfléchi passe en dehors de l'ombre de l'objet et $-\frac{1}{8}\lambda$ sinon [49].

Compte tenu de ces règles élémentaires, on peut estimer l'incertitude sur la position exacte du bord de l'objet dans l'image par la moitié de la largeur de la frange de diffraction dans laquelle il se trouve. Cette distance ramenée au niveau de l'objet définit la limite de résolution due à la diffraction :

$$\Delta_d = \frac{1}{2}\sqrt{\lambda d} \quad (1.5)$$

Pour une résolution comprise entre 0.4 et 1 nm (à 300 V), on voit qu'il faut une distance point virtuel - objet d comprise entre 10 et 60 nm.

Cette limite de résolution due à la diffraction est toujours inférieure à la longueur de cohérence transverse au niveau de l'objet. Elle est égale à l'étendue de la source (0.5 nm) lorsque la moyenne géométrique entre la longueur d'onde et la distance pointe-objet vaut 1 nm et lui est supérieure pour des distances plus grandes. Il est intéressant de remarquer que la figure de diffraction devient de type Fraunhofer lorsque la limite de résolution due à la diffraction dépasse la moitié du diamètre de l'objet.

Pour avoir une idée des valeurs de la limite de résolution due à la diffraction, nous avons représenté à la figure 1.7 l'équation 1.5 en prenant $d [\text{Å}] = V [\text{V}]$, c'est-à-dire une distance correspondant à un champ électrique proche de sa valeur critique.

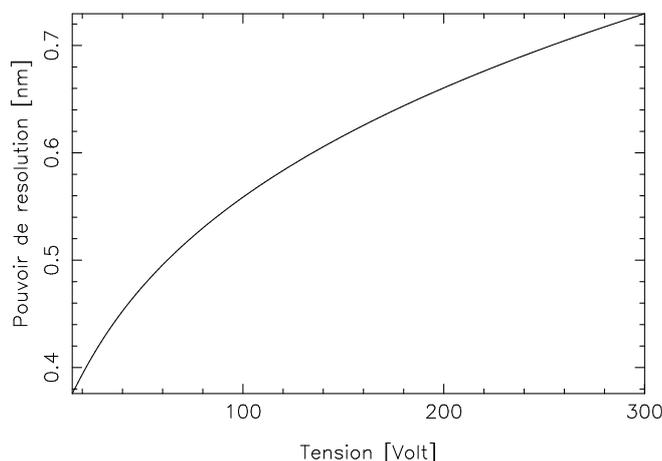


FIG. 1.7 – Limite de résolution due à la diffraction pour un champ électrique proche de sa valeur critique (1 V/Å).

Le raisonnement utilisé ici est appliqué à un objet essentiellement opaque où seuls les électrons diffractés sur le bord de l'objet contribuent à l'image. Il se place dans le cadre

d'une diffraction de type Fresnel, ce qui se justifie tant que le pouvoir de résolution ne dépasse pas la moitié des dimensions de l'objet.

Dispersion énergétique du faisceau incident Le raisonnement utilisé pour calculer la limite de résolution due à la diffraction peut également être employé pour estimer l'influence de la dispersion énergétique du faisceau électronique. En supposant une incohérence complète entre électrons d'énergie différente, on trouve que les franges entourant l'image d'un point de l'objet sont affectées d'un déplacement relatif, par rapport à la projection géométrique de ce point, donné par :

$$\frac{\Delta x}{x} = \frac{1}{4} \frac{\Delta E}{E} \quad (1.6)$$

avec ΔE la dispersion énergétique et E l'énergie moyenne des électrons.

Pour une dispersion énergétique maximale de 0.2 eV et même pour une tension aussi petite que 15 V, cet écart relatif n'est que de 0.5 %, c'est-à-dire une valeur négligeable.

Champs magnétiques parasites Des champs magnétiques alternatifs parasites peuvent occasionner une perte de résolution. Compte tenu de la grandeur de ces champs, leur effet à 10 cm sur la déviation du faisceau électronique est de l'ordre de 20 à 100 μm , ce qui correspond à une limite au pouvoir de résolution du microscope (pour une diffraction de type Fresnel) inférieure à 0.1 nm. Cette quantité est moins importante que celle correspondant à la géométrie de la pointe ou aux phénomènes de diffraction, de sorte que les champs magnétiques parasites peuvent être négligés comme facteurs limitant la résolution.

Vibration du système pointe-objet Une variation de la position relative de l'objet par rapport à la pointe peut entraîner une perte de résolution. Dans un mode de diffraction de type Fresnel, la variation relative sur la position des franges est donnée par la variation relative de la position de l'objet par rapport à la pointe. Les vibrations parasites sont contrôlées efficacement par un système pneumatique.

Compte tenu de ces différents facteurs, il s'avère que la résolution du FPM est fixée par la diffraction. Des valeurs typiques de 0.5 nm sont obtenues vers 200 V.

1.3.3 Résultats

Observation de fibres de carbone

La grille en or est recouverte d'une membrane de carbone qui présente de nombreux trous traversés par des fibres. Des figures de diffraction peuvent être obtenues à partir de celles-ci.

Selon leur taille, elles apparaissent brillantes ou opaques. Cette différence de comportement est interprétée par une absorption des électrons dans la fibre où par des chocs au

cours desquels les électrons concernés perdent toute relation de phase avec ceux diffusés élastiquement et ne contribuent ainsi plus à la formation d'une image cohérente. L'importance de ce phénomène est proportionnel à la taille du matériau à traverser.

Fibres transparentes Lorsque les fibres sont suffisamment fines (de diamètre inférieur à 1 ou 2 nm), le faisceau électronique peut les traverser sans perdre une part importante de son intensité. Ces fibres apparaissent alors transparentes.

La figure 1.8 montre l'observation d'une fibre de carbone de 1.4 nm de diamètre, qui apparaît transparente. On y perçoit la résolution du microscope qui est d'environ 0.5 nm. En effet, chaque point de l'image correspond à une moyenne de la transmission à travers l'objet sur une petite région de 0.5 nm de rayon entourant le point de l'objet correspondant au point de l'image. C'est pour cette raison que les bords de la fibre apparaissent gris sur 0.5 nm puisque la région sur laquelle se fait la moyenne contient une partie en dehors de la fibre.

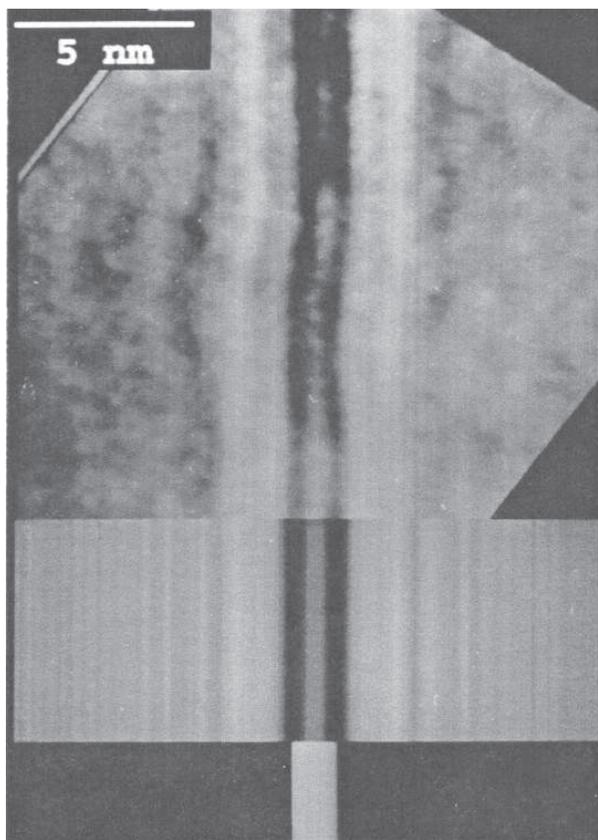


FIG. 1.8 – De haut en bas: figure de diffraction de type Fresnel obtenue avec une fibre de carbone de 1.4 nm de diamètre; une simulation par le formalisme de Kirchhoff; la projection géométrique, à partir de la source virtuelle, du modèle servant à la simulation. La tension est de 300 V.

Pour des telles dimensions, l'influence de la fibre elle-même sur les électrons devient comparable à celle du champ électrique environnant. Ce dernier a tendance à attirer les électrons vers la fibre (effet de sucking-in). Un modèle plus élaboré est nécessaire pour tenir compte de cet effet.

Fibres opaques Pour des largeurs de fibre supérieures à 2 nm, c'est-à-dire pour des largeurs dépassant le libre parcours moyen des électrons (inférieur à 1 nm) dans les fibres, celles-ci deviennent opaques au faisceau. La figure 1.9 montre une fibre épaisse (opaque) qui se scinde en deux fibres plus fines (transparentes).

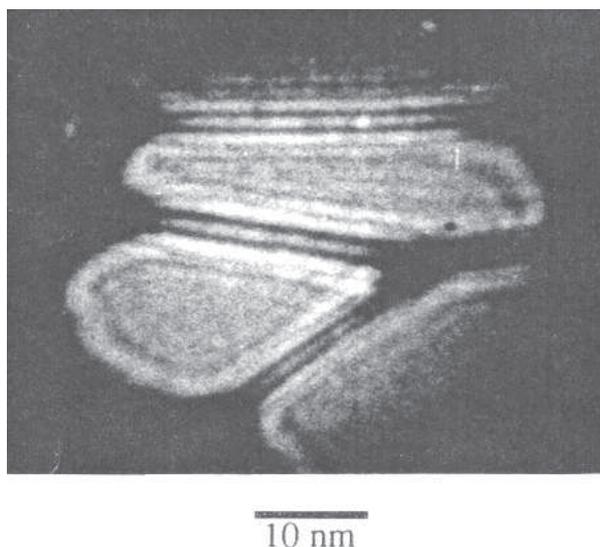


FIG. 1.9 – Séparation d'une fibre de carbone épaisse (opaque) en deux fibres fines (transparentes).

La littérature s'accorde pour donner au libre parcours moyen des électrons dans un matériau organique des valeurs comprises entre 0.5 et 1 nm pour des énergies comprises entre 100 et 300 eV (voir références [49, 50]). En utilisant les expressions recommandées [51] pour les matériaux organiques et la densité volumique du carbone ($3.516 \cdot 10^3 \text{ kg/m}^3$) [52], le libre parcours moyen des électrons dans les matériaux organiques peut être estimé par :

$$\lambda [nm] = 0.28 \left[\frac{49}{E^2} + 0.11E^{1/2} \right] \quad (1.7)$$

où l'énergie E est en eV. Cette équation fournit des valeurs proches de 0.5 nm pour des énergies comprises entre 200 et 300 eV. Notons que ces valeurs correspondent à des mesures effectuées sur des solides. Il est normal que les valeurs observées en microscopie à projection soient supérieures, puisque les électrons ont ici la possibilité de s'échapper par le côté.

Observation de polymères

Les images obtenues avec des polymères sont plus complexes que celles obtenues avec des fibres. Un exemple de ces images est donné à la figure 1.10. Des oscillations périodiques sont observées sur la longueur des superstructures formées par les polymères (avec une période typique de 5 nm). L'interprétation de ces images nécessite une description précise du champ électrique entourant les molécules.

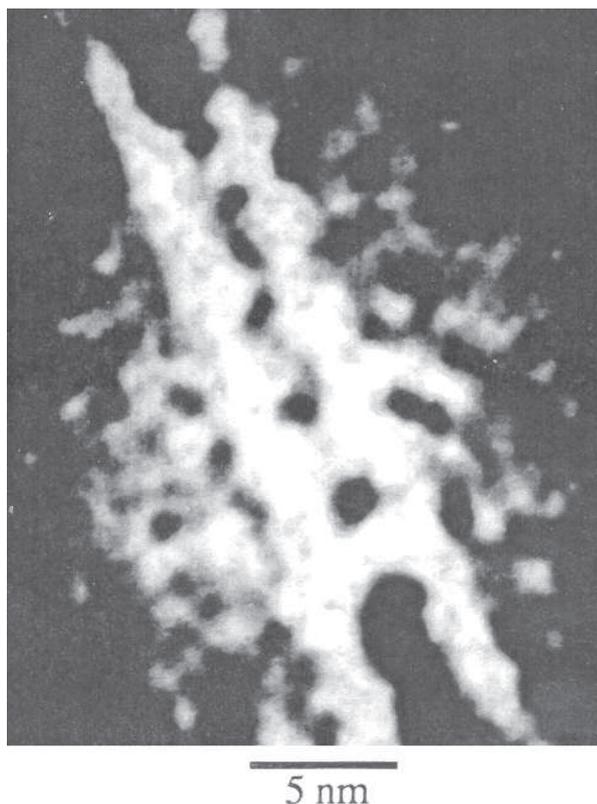


FIG. 1.10 – *Diffractogramme d'une superstructure formée par des polymères provenant d'un mélange de polysulfone de bis-phenol-A (95 %) et de polyvinylpyrrolidone (5 %).*

Observation de champs magnétiques

Des champs magnétiques ont été observés autour de particules de Fe_3O_4 [53, 54] de quelques dizaines de nm^3 présentant un seul domaine magnétique, ainsi que sur des surfaces en escalier. Des transitions entre ferromagnétisme et superparamagnétisme ont pu être observées. Nous avons reproduit à la figure 1.11 l'observation d'un agrégat de particules magnétiques.

Les franges caractéristiques des champs magnétiques apparaissent claires, généralement perpendiculaires à la surface des particules, suivant les trajectoires supposées du champ

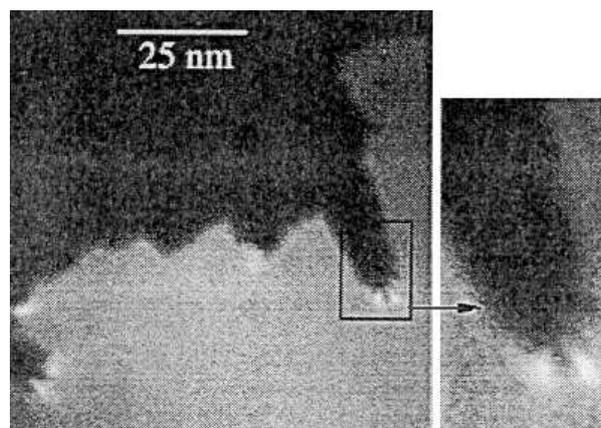


FIG. 1.11 – Image d'un agrégat de particules magnétiques.

magnétique. L'espacement entre ces franges est régulier dans des régions de champ constant. Leur forme exacte varie avec la position relative du faisceau incident. Les ombres de ces particules sont moins marquées que celles de particules non magnétiques.

Ces affirmations sont confirmées par un modèle utilisant les intégrales de Kirchhoff. Selon ce modèle, le champ magnétique induit une différence de phase entre les trajectoires passant par deux points voisins dans ce champ, proportionnelle à son intensité. Les calculs montrent qu'il est possible de détecter des variations de phase supérieures à $2\pi/50$ et qu'une variation brutale de phase de $2\pi/10$ donne le même contraste qu'un objet opaque. Il est ainsi possible de détecter des champs magnétiques de 0.5 Tesla sur des particules de 10 nm de côté.

Le FPM s'avère donc très sensible aux champs magnétiques. Cette sensibilité s'explique par le caractère essentiellement ponctuel de la source. Les conditions limites de plusieurs faisceaux électroniques arrivant au même point de l'écran sont très bien définies (puisque le point de départ est le même). Pour une configuration donnée du système pointe-objet-écran, les variations de phase, qui déterminent les franges observées, sont liées uniquement aux caractéristiques de l'objet.

1.3.4 Perspectives

Comme nous l'avons vu, le Microscope à Projection de Fresnel donne des images fortement corrélées à une simple projection géométrique. Cette technique fournit en une seule étape une image complète de la partie de l'échantillon située dans le faisceau électronique.

Des chaînes de polymères et d'ARN ont pu être visualisées. Ces observations permettent d'analyser l'organisation de ces molécules après l'évaporation du solvant. Cette organisation n'est pas influencée par la présence d'un substrat comme en STM, mais est observée dans un milieu (le vide) qui ne présente pas les mêmes conditions physico-chimiques que celles propres aux milieux aqueux. Cet outil donne cependant accès à de nombreuses applications intéressantes en biologie.

L'observation de structures périodiques dans certains polymères ou tubules de carbone permet de vérifier les propriétés prédites par les calculs de potentiel [55, 56]. Cet instrument est également très sensible aux champs magnétiques et offre ici aussi des possibilités d'observation particulièrement intéressantes. Enfin, la structure ouverte du montage laisse la possibilité de manipuler l'objet étudié [15].

Chapitre 2

Théories

2.1 Introduction

Il existe beaucoup de théories pour expliquer l'émission de champ à partir de corps métalliques [57, 58, 59, 60, 61, 62, 63, 64, 65, 66, 67]. Une modélisation du Microscope à Projection de Fresnel ne peut cependant se contenter d'une description du phénomène d'émission, mais doit inclure une modélisation des phénomènes de diffraction qui suivent l'émission. Cette dernière partie nécessite un modèle de diffusion en 3 dimensions, ce qui exclut directement les modèles à une dimension, comme les approximations WKB, les fractions continues,... Nous présenterons différents modèles qui rendent compte des phénomènes de diffraction ultérieurs à l'émission, souvent au détriment d'une description précise de ce phénomène de départ.

Nous commencerons par les théories les plus simples. Le premier modèle, basé sur les intégrales de Kirchhoff, fera l'objet d'une plus longue attention, étant donné les nombreux renseignements qu'il nous donne sur l'interprétation des images.

Les autres techniques seront celles utilisées principalement en STM, étant donné la similitude de configuration avec le FPM. Nous nous limiterons à une présentation critique de méthodes basées sur les fonctions de Green, la méthode des éléments finis et enfin la méthode des matrices de transfert.

Une dernière partie sera consacrée à notre méthode, afin de la situer par rapport aux autres techniques, de voir en quoi elle les améliore et comment elle intègre les avantages de chacune.

2.2 Modèles en diffusion simple

La plupart des techniques de simulation supposent l'existence d'une onde incidente sphérique. Les conséquences de la géométrie de la pointe, de la terminaison atomique et du potentiel accélérateur sont ainsi comprises dans les hypothèses de départ.

Les modèles que nous présenterons dans cette section correspondent à une théorie de Green dans un espace vide et ne tiennent pas explicitement compte du potentiel accélérateur.

On peut toutefois considérer que son effet est grossièrement inclus dans la position du point source, qui doit correspondre au point de projection virtuel. Notons à ce sujet que les ondes sphériques sont solutions uniquement dans un espace vide (à potentiel constant) à l'exception d'une source ponctuelle. L'onde incidente, sous l'effet d'un champ accélérateur, ne peut donc certainement pas rester sphérique.

Le fait que ces théories donnent malgré tout des résultats satisfaisants confirme la justesse des idées de départ, à savoir l'émission d'une onde à caractère sphérique depuis la nanopointe.

2.2.1 Théorie de Fresnel-Kirchhoff

Cette théorie [68, 69, 70], empruntée à l'optique, réduit l'objet à une surface décrite par un coefficient de transmission. La base de la méthode est le principe de Huygens que nous retrouverons ultérieurement dans le formalisme de Green. Cette méthode est basée sur la formule de Fresnel-Kirchhoff [71], où l'onde incidente et sa dérivée sont conservées dans l'objet et annulées à côté. La fonction d'onde diffusée en un point \mathbf{r} de l'écran, pour une onde incidente de forme sphérique et d'amplitude Ψ_0 , est la suivante :

$$\Psi_s(\mathbf{r}) = \frac{\Psi_0}{i\lambda} \iint_{\text{objet}} T(x_0, y_0) B(x_0, y_0) \frac{e^{ik(r_{to} + r_{os})}}{r_{to} r_{os}} \frac{\cos(\mathbf{n}, \mathbf{r}_{to}) + \cos(\mathbf{n}, \mathbf{r}_{os})}{2} dx_0 dy_0 \quad (2.1)$$

où λ est la longueur d'onde associée à l'onde incidente, k la norme de son vecteur d'onde, \mathbf{r}_{to} un vecteur reliant le point source au point considéré de l'objet, \mathbf{r}_{os} un vecteur reliant celui-ci au point \mathbf{r} de l'écran, \mathbf{n} un vecteur unitaire normal à la surface, $B(x_0, y_0)$ une fonction permettant de moduler la distribution angulaire du faisceau incident au niveau de l'objet et enfin $T(x_0, y_0)$ la fonction de transmission de ce dernier. Les grandeurs vectorielles invoquées sont représentées à la figure 2.1.

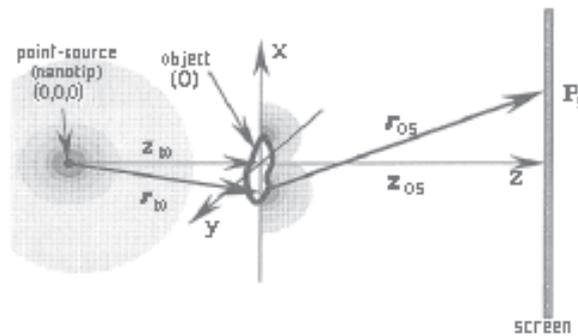


FIG. 2.1 – Géométrie du système source-objet-écran.

Fonction de transmission homogène

Certains objets, comme des fibres, peuvent être décrits adéquatement par une fonction de transmission homogène. Celle-ci peut prendre des valeurs comprises entre 0 et 1 selon

le degré de transparence souhaité. Avec des approximations justifiées par l'importance des distances source-objet et objet-écran par rapport aux autres dimensions caractéristiques du problème, le formalisme de Kirchhoff montre que l'image à grande distance présente les caractéristiques essentielles d'une projection géométrique à partir du point source, à condition que l'onde incidente garde un caractère sphérique sur l'étendue de l'objet. Cette condition n'est plus vérifiée lorsque l'objet est trop éloigné de la source.

Cette diffraction dirigée préférentiellement dans une direction s'explique par l'inhomogénéité du faisceau incident sur l'objet. Les interférences entre les ondes diffusées à partir du voisinage immédiat d'un point donné \mathbf{r}_0 de l'objet ne sont constructives que dans une direction pour laquelle la phase de ces ondes présente un minimum de variations. Ces ondes diffusées étant proportionnelles à l'onde incidente, cette interférence constructive se fera dans la direction pour laquelle l'onde incidente en ce point \mathbf{r}_0 présente elle-même un minimum de variations, c'est-à-dire la direction correspondant à une projection géométrique à partir du point source. Etant donné la forme sphérique de l'onde incidente, la phase dans le plan contenant l'objet et parallèle à l'écran augmente comme le carré de la distance à ce point \mathbf{r}_0 . Seuls les points associés à une phase suffisamment proche de celle correspondant au point en question peuvent participer à une interférence constructive. Compte tenu de la variation rapide de la phase, ceux-ci sont restreints à une zone réduite de sorte que le faisceau diffusé n'emporte qu'une information locale. La région participant à cette information locale correspond à la résolution du microscope. Il s'avère que les points situés à une distance donnée par la limite de résolution due à la diffraction Δ_d présentent un déphasage de $\pi/4$. Cette distance Δd marque donc la limite des points pouvant interférer de manière constructive. Des points situés à une distance double sont en opposition de phase. Ces commentaires confirment l'analyse faite au chapitre 1. Rappelons que cette limite Δ_d est toujours inférieure à la longueur de cohérence transverse au niveau de l'objet, grâce aux dimensions des nanopointes.

Quand l'onde incidente est homogène au niveau de l'objet, ce qui est le cas lorsque la source est très éloignée ou étendue, la diffraction est de type Fraunhofer et implique une participation globale de l'objet quelle que soit la direction de diffusion. L'image de l'objet correspond alors à sa transformée de Fourier.

Fonction de transmission inhomogène pour une description des champs électriques et magnétiques

De manière générale, la fonction de transmission de l'objet peut être écrite comme :

$$T(x_0, y_0) = \exp(-\alpha(x_0, y_0) + i\xi(x_0, y_0)) \quad (2.2)$$

La fonction ξ permet d'incorporer dans le formalisme l'action des champs électriques et magnétiques. La différence de phase entre deux électrons qui empruntent des trajectoires différentes entre deux points limites est donnée par [72] :

$$\Delta\xi = \frac{e}{\hbar} \oint V dt - \frac{e}{\hbar} \iint \mathbf{B} \cdot d\mathbf{S} \quad (2.3)$$

où les intégrales sont effectuées sur le contour (pour le potentiel V) et la surface (pour l'induction magnétique \mathbf{B}) définie par les deux trajectoires considérées. Cette relation est utilisée pour définir la différence de phase à attribuer entre deux points de l'objet en considérant des trajectoires reliant la source électronique au point d'observation sur l'écran et passant par les points de l'objet en question.

Cette notion de trajectoire n'est pas claire dans un contexte ondulatoire. Elle permet cependant de comprendre comment la distribution des champs influence la formation des franges. A nouveau, une interférence constructive se fera à partir d'un point donné de l'objet dans une direction telle que la phase présente un minimum de variation avec les points voisins. Dans le cadre de ce formalisme, une interférence constructive à partir d'un point donné se fera préférentiellement avec l'ensemble des points appartenant à l'isosurface de ξ passant par le point en question.

Lorsque seuls des champs électriques sont présents, cette isosurface correspond aux équipotentiels de V . En effet, on peut imaginer que l'électron emprunte différents chemins entre le point source et un point donné de l'écran, à condition que ces chemins correspondent aux mêmes conditions limites (position et temps au départ et à l'arrivée). Les chemins intervenant dans l'intégrale $\oint V dt$ doivent donc correspondre au même intervalle de temps et s'ils se situent sur une équipotentielle, l'intégrale est nulle. Cela montre que les franges d'interférence sont dirigées dans les directions données par les équipotentiels en l'absence de champ magnétique.

Lorsque seuls des champs magnétiques sont présents, les isosurfaces de ξ suivent les lignes du champ d'induction magnétique \mathbf{B} . En effet, l'intégrale $\iint \mathbf{B} \cdot d\mathbf{S}$ fait intervenir la composante de \mathbf{B} normale à la surface considérée. Si \mathbf{B} est entièrement contenu dans cette surface, cette composante est nulle et par conséquent l'intégrale aussi. Cela montre que les franges d'interférence sont dirigées selon les lignes d'induction magnétique en l'absence de champ électrique.

La critique essentielle de cette méthode est la réduction de l'objet à une surface de transmission supposée connue. On néglige de cette façon les effets dûs à la distribution tridimensionnelle de l'objet, comme les diffusions multiples, les ondes stationnaires pouvant s'établir dans l'objet, ... Cette méthode est difficilement applicable pour traiter de véritables distributions de champs électriques ou magnétiques, mais donne une correspondance intéressante entre les champs et les franges de diffraction.

2.2.2 Théories de diffusion à partir de sites atomiques

Certaines techniques de modélisation [13] utilisent un développement de la fonction d'onde en ondes sphériques centrées autour des atomes constituant l'objet étudié. A chaque site atomique est associé un pouvoir diffuseur ponctuel. Les phénomènes de diffusions multiples, qui interviennent à partir de plusieurs plans atomiques dans l'objet, ne sont pas considérés.

Ces modèles tiennent compte de la distribution spatiale de l'objet diffusant mais le processus de diffusion est fortement simplifié puisque, d'une part la diffusion multiple est

négligée et d'autre part, compte tenu de l'énergie des électrons incidents, ceux-ci interagissent avec l'ensemble du potentiel entourant les molécules observées, et ne se réduisent donc pas à une interaction avec un ensemble de diffuseurs ponctuels.

Des modèles plus élaborés [73] et basés sur les mêmes idées permettent d'incorporer le nuage électronique dans la description et de traiter la diffusion multiple.

2.3 Modèles en diffusions multiples

A partir de quelques couches atomiques dans l'objet, il est nécessaire de tenir compte des phénomènes de diffusions multiples. Nous allons considérer les méthodes par fonctions de Green, par éléments finis et par matrices de transfert qui permettent ce traitement.

2.3.1 Méthode des fonctions de Green

L'équation de Schrödinger indépendante du temps

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + V_0(\mathbf{r}) + V_p(\mathbf{r}) \right] \Psi(\mathbf{r}) = E\Psi(\mathbf{r}) \quad (2.4)$$

peut être résolue par cette méthode à condition de connaître la solution $\Psi_0(\mathbf{r})$ de cette équation lorsque $V_p(\mathbf{r}) = 0$ et la fonction de Green $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', E)$ solution de :

$$\left[E + \frac{\hbar^2}{2m} \nabla_{\mathbf{r}}^2 - V_0(\mathbf{r}) \right] G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', E) = \delta(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) \quad (2.5)$$

et satisfaisant les conditions de continuité ainsi que les conditions frontières de la fonction d'onde. Pour un potentiel non perturbé $V_0(\mathbf{r}) = 0$ et des conditions limites correspondant au vide (annulation de la fonction d'onde et de ses dérivées à l'infini), la fonction de Green a pour expression :

$$G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', E) = -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} e^{i\sqrt{\frac{2mE}{\hbar^2}}|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \quad (2.6)$$

La solution de l'équation de Schrödinger complète peut alors s'exprimer par l'équation de Lippmann-Schwinger :

$$\Psi(\mathbf{r}) = \Psi_0(\mathbf{r}) + \iiint dv' G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', E) V_p(\mathbf{r}') \Psi(\mathbf{r}') \quad (2.7)$$

Cette méthode est très intéressante lorsque le potentiel perturbé $V_p(\mathbf{r})$ est restreint à une petite région de l'espace. Elle nécessite cependant une résolution autoconsistante de la fonction d'onde dans la région où $V_p(\mathbf{r}') \neq 0$ (appelée diffuseur). Selon la méthode de Fredholm [74, 75], cette solution peut être approchée par une discrétisation du diffuseur. Les dimensions des cellules de discrétisation doivent être inférieures à la longueur d'onde

associée à E . Une fois la solution connue dans le diffuseur, elle peut être propagée en un point quelconque en utilisant l'équation 2.7.

Cette étape de résolution de la fonction d'onde dans le diffuseur, par discrétisation de l'espace, nécessite l'inversion d'une matrice dont le nombre de lignes/colonnes est donné par le nombre de cellules de discrétisation. Pour un diffuseur peu localisé, la taille mémoire nécessaire à l'application de la méthode devient vite excessive.

Plusieurs solutions existent pour réduire la taille du diffuseur à considérer. La solution évidente consiste à placer la plus grande partie du potentiel dans le terme V_0 , dans la mesure où l'on est toujours capable de calculer la fonction de Green associée. Dans le cadre du FPM, une barrière de potentiel triangulaire [76] réduit le diffuseur à la pointe et à la molécule observée.

Une solution de simplicité consiste à passer l'étape d'inversion et prendre comme fonction d'onde dans le diffuseur l'expression de l'onde incidente. On se place alors dans le cadre de la première approximation de Born et on néglige les diffusions multiples qui apparaissent pour un objet de plus de quelques couches atomiques. Une telle méthode a été appliquée au FPM [77]. Pour une onde incidente plane dans le métal, on reproduit bien l'émission électronique à partir de la pointe, mais il faudrait considérer au minimum une diffusion double pour que l'onde incidente au niveau de l'objet ait un caractère sphérique. Dans le cadre de la première approximation de Born, l'onde incidente au niveau de l'objet est plane et les figures de diffraction obtenues sont de type Fraunhofer.

Une simplification supplémentaire du problème consiste à remplacer le système métal-pointe par une source ponctuelle. Associés à la première approximation de Born, ces modèles sont ceux exposés à la section 2.2.

Des simplifications moins fortes sur la forme de l'onde incidente sont possibles. Kreuzer [78, 16], par un développement de l'onde incidente en coordonnées sphériques, laisse la possibilité à l'onde incidente de n'être pas strictement sphérique, mais ne précise pas la forme exacte de celle-ci. L'objet est réduit à un ensemble de points diffuseurs, centrés sur les noyaux atomiques. Le prix de ce raffinement de l'onde incidente est une augmentation de la taille du système à résoudre, puisque le nombre de lignes/colonnes de la matrice à inverser devient le produit entre le nombre d'atomes constituant l'objet et le nombre de fonctions de base nécessaires au développement de la fonction d'onde.

Des méthodes plus raffinées pour la résolution des équations de Lippmann-Schwinger existent. La méthode des propagateurs généralisés [79, 80, 81, 82, 83] permet d'introduire les cellules constituant le diffuseur l'une après l'autre. Cet algorithme remplace l'inversion brutale de la matrice considérée jusqu'ici par des étapes successives. En général, la méthode gagne en stabilité par rapport à une inversion de matrice directe mais un examen attentif de l'algorithme montre qu'une matrice de taille équivalente à celle obtenue sans application de cette technique est nécessaire au départ. Une autre façon d'aborder le problème consiste à remplacer l'inversion de matrice par une résolution de système, lorsqu'un seul état incident $\Psi_0(\mathbf{r})$ (ou un nombre inférieur à la dimension de la matrice) doit être considéré. Cette dernière approche est la plus stable.

Une méthode efficace pour réduire la taille du système à inverser consiste à tenir compte de symétries présentes dans le problème. Dans le cadre du FPM, le système peut être caractérisé par la présence d'un axe central d'ordre n (qui laisse le système invariant après rotation autour de cet axe d'un angle de $2\pi/n$). La matrice à inverser devient bloc-circulante [84, 85, 86] et réduit la dimension des matrices à inverser de n .

Dans cet ordre d'idées, un système de coordonnées bien adapté peut réduire la taille des matrices à inverser [87]. Ainsi, en coordonnées cylindriques, seules certaines composantes de la fonction d'onde doivent être considérées, les autres contribuant de façon négligeable à la solution.

Enfin, il est possible de restreindre la diffusion dans le diffuseur à des cellules voisines. La matrice à inverser devient ainsi bande-diagonale, ce qui réduit quelque peu les ressources nécessaires. Pour une cellule donnée, le nombre de cellules voisines à considérer (et donc le nombre de bandes dans la matrice) reste cependant élevé.

Pour fixer les idées sur la taille mémoire nécessaire à l'application de cette méthode en FPM, nous considérerons un système perturbatif réduit à la pointe elle-même, dans le cas le plus favorable, à savoir une pointe à symétrie axiale avec un système de coordonnées cylindriques adapté à cette symétrie. A 50 V, la longueur d'onde λ est d'environ 1.5 Å. Nous devons discrétiser $10 \times 20 \text{ Å}^2$ avec des éléments de surface de $\lambda/4$ de côté. Le nombre de cellules de discrétisation est d'environ 1400. Pour des nombres complexes en simple précision, la matrice à inverser est de 15 Mb. Pour des situations plus habituelles, qui ne sont pas caractérisées par une symétrie axiale, une description en coordonnées cartésiennes conduit à l'inversion d'une matrice de 170 GB! Selon la description du problème, qui dépend des symétries exploitables, la taille de la matrice à inverser est comprise entre ces deux extrêmes, pour la pointe uniquement. Notons cependant que quelques couches atomiques suffisent à représenter la nanopointe dans une simulation. La taille des matrices à considérer est alors moins importante, mais atteint les valeurs données lorsque les éléments à discrétiser occupent un volume de $(20 \text{ Å})^3$.

2.3.2 Méthode des éléments finis

Dans le cadre du STM, le principe de cette méthode consiste à développer la fonction d'onde, pour chaque état incident dans le métal, suivant un nombre fini N de fonctions de base connues $\Phi_i(\mathbf{r})$:

$$\Psi(\mathbf{r}) = \Psi_{inc}(\mathbf{r}) + \sum_i^N \Psi_i \Phi_i(\mathbf{r}) \quad (2.8)$$

Ces fonctions de base contiennent les états réfléchis dans le métal d'incidence, les états transmis dans le métal situé en face, des solutions analytiques dans les régions où le potentiel le permet et enfin des fonctions de base localisées sur un maillage dans les régions où le potentiel nécessite un traitement numérique. Elles sont construites de manière à limiter leur recouvrement sur des mailles adjacentes. Ces fonctions, leurs dérivées premières et

croisées selon les différents axes de coordonnées doivent être continues, afin de respecter les conditions de continuité imposées à la fonction d'onde et faciliter le calcul des intégrales de recouvrement. En chaque point du maillage, deux fonctions de base par dimension spatiale suffisent.

La discrétisation des états incidents, réfléchis et transmis est réalisée en imposant certaines conditions frontières. Dans un modèle de STM basé sur une symétrie axiale du potentiel [88, 89, 90], cette discrétisation est obtenue en imposant aux électrons de rester à l'intérieur d'un cylindre de rayon fixé.

Les coefficients inconnus Ψ_i sont déterminés en résolvant matriciellement le système algébrique suivant :

$$\sum_i^N \Psi_i \langle \Phi_j | (H - E) | \Phi_i \rangle = - \langle \Phi_j | (H - E) | \Phi_{inc} \rangle \quad (2.9)$$

où $H = -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + V(\mathbf{r})$ est l'hamiltonien du système. Pour des expressions simples des fonctions de base, le calcul des éléments de la matrice à inverser présente peu de difficultés.

Comme dans la méthode par fonctions de Green, la résolution de l'équation de Schrödinger revient à la résolution d'un système dont la dimension est fixée par le nombre total de fonctions de base. Pour un même potentiel à traiter, les matrices à considérer sont plus grandes que par la méthode des fonctions de Green. En effet, bien que la résolution du maillage soit équivalente, à chaque point de celui-ci sont associées plusieurs fonctions de base (2^{Ndim} , $Ndim$ étant le nombre de dimensions) auxquelles s'ajoutent les fonctions de base dans les régions d'incidence et de transmission. Cependant, à cause du recouvrement limité à des mailles adjacentes, cette matrice présente une structure en bandes qui allège fortement les conditions de stockage et de résolution. En effet, pour la même grille décrivant la pointe en coordonnées cartésiennes, le stockage des bandes de la matrices correspondant aux fonctions de base localisées sur les points de la grille nécessite 660 MB (c'est-à-dire 1000 fois moins que par la méthode par fonctions de Green). En cas de symétrie axiale, le stockage nécessite 875 KB (environ 20 fois moins que par la méthode précédente). Une telle structure ne peut être atteinte en formalisme de Green avec le même degré de précision.

Lorsque la matrice est inversée, elle devient utilisable pour toutes les ondes incidentes. Notons que le formalisme de Green offre cette possibilité aussi, pour des électrons d'énergie donnée. Ce formalisme est cependant moins adapté que celui par fonctions de Green pour propager la solution depuis le diffuseur jusqu'à une distance lointaine, comme cela doit se faire dans une simulation du FPM.

L'efficacité de cette méthode est principalement alourdie par l'estimation qu'elle donne de la fonction d'onde dans le diffuseur. Cette estimation exige la résolution d'un système de taille trop importante pour que nous considérions cette méthode dans un modèle de FPM.

2.3.3 Méthode des matrices de transfert

Un calcul de fonction d'onde dans le diffuseur présente un intérêt, mais alourdit fortement les calculs. Les méthodes par matrices de transfert ne donnent à aucun moment une estimation de ces valeurs et se contentent de fournir une expression de la fonction d'onde en dehors du diffuseur. Comme dans la méthode par éléments finis, les états incidents, réfléchis et transmis sont quantifiés. La méthode par matrices de transfert ne fournit que les états transmis et réfléchis, pour chaque état incident.

Pour y parvenir, on considère chaque état sortant séparément. Les valeurs de la fonction d'onde et de ses dérivées sont ainsi fixées en sortie de la zone de diffusion ($z = D$). Une méthode numérique quelconque est alors utilisée pour propager ces valeurs jusqu'à l'entrée de la zone de diffusion ($z = 0$), où la fonction d'onde est décomposée en états incidents et réfléchis. On obtient ainsi un ensemble de solutions :

$$\begin{aligned} \bar{\Psi}_j(\mathbf{r}) &\stackrel{z \leq 0}{\equiv} \sum_i^N A_{i,j} \Psi_i^{inc}(\mathbf{r}) + \sum_i^N B_{i,j} \Psi_i^{ref}(\mathbf{r}) \\ &\stackrel{z \geq D}{\equiv} \Psi_j^{trans}(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (2.10)$$

Etant donné la linéarité de l'équation de Schrödinger, ces solutions peuvent être combinées pour donner le résultat souhaité :

$$\begin{aligned} \Psi_j(\mathbf{r}) &\stackrel{z \leq 0}{\equiv} \Psi_j^{inc}(\mathbf{r}) + \sum_i^N t_{i,j}^{-+} \Psi_i^{ref}(\mathbf{r}) \\ &\stackrel{z \geq D}{\equiv} \sum_i^N t_{i,j}^{++} \Psi_i^{trans}(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (2.11)$$

où $t^{++} = A^{-1}$ et $t^{-+} = BA^{-1}$.

Cette méthode a permis une simulation efficace du STM [91, 92]. Elle est beaucoup plus économe que les deux méthodes précédentes, car la taille des matrices à inverser ne dépend que du nombre de fonctions de base utilisées en dehors du diffuseur et pas du nombre de mailles nécessaires pour représenter le potentiel dans celui-ci. Ici aussi une résolution de système peut remplacer l'inversion de matrice lorsqu'une partie seulement des solutions $\Psi_j(\mathbf{r})$ est souhaitée. Reprenons l'exemple de la pointe. Fixons les états de base en imposant aux électrons d'être enfermés dans un cube de 60 Å de côté (ce qui est beaucoup par rapport au diamètre de la pointe, qui n'est que de 20 Å). Pour une longueur d'onde de 1.5 Å, le nombre d'états de base est de 1600 et la matrice à inverser ne fait "que" 20 MB (à comparer avec 170 GB (Green) et 660 MB (éléments finis)). Dans le cas d'une symétrie axiale, les 20 MB se réduisent à 3 KB (à comparer avec 15 MB (Green) et 875 KB (éléments finis)). Notons qu'un cube de 60 Å de côté peut contenir plus qu'une pointe de 20 Å de diamètre, mais que la validité des résultats fournis dépend de celle de l'hypothèse de confinement dans le volume de 60 Å de côté. La taille croissante du faisceau extrait remet en question cette hypothèse à partir d'une certaine distance de la pointe.

Cette méthode présente des problèmes d'instabilités à cause de l'étape de propagation numérique à travers le diffuseur et l'étape d'inversion. En effet, cette formulation du problème implique l'inversion d'une matrice qui contient la transmission à travers une barrière de potentiel d'états associés à des valeurs d'énergie normale $E - \frac{\hbar^2}{2m}k_{\parallel}^2$ très différentes. La condition de la matrice à inverser est donnée par le rapport entre l'amplitude de transmission maximale et minimale. Pour une distance entre le support de la pointe et la grille de 60 Å, cette condition vaut environ $e^{2\pi/\lambda^*D} = 10^{110}$. En double précision, le nombre de chiffres significatifs n'est que de 15 ...

Enfin, comme la méthode par éléments finis, celle-ci est mal adaptée pour propager la fonction d'onde en sortie du diffuseur sur une grande distance.

2.4 Notre méthode

Il est intéressant à ce stade de montrer comment notre méthode [93, 94] se situe par rapport à ces trois derniers modèles et comment elle a su profiter des avantages de chacun.

Ces modèles nous ont montré à quel point il est utile de tenir compte des symétries éventuellement présentes dans le problème. La symétrie axiale est une condition qui restreint fortement les systèmes pouvant être traités. Nous relâcherons cette condition en supposant la présence d'un axe de symétrie d'ordre n , laissant le système invariant après une rotation de $2\pi/n$ autour d'un axe central. Cette condition n'empêche pas de traiter des situations quelconques pour lesquelles $n = 1$. Comme dans le cas axial, une description en coordonnées cylindriques s'impose.

Le calcul de diffusion proprement dit nécessite un minimum de place mémoire lorsqu'il est traité par matrices de transfert. Notre modèle se place ainsi dans cette méthodologie. La quantification des états incidents, réfléchis et transmis se fait comme dans un modèle de STM par éléments finis [88, 89, 90], en imposant aux électrons de rester confinés à l'intérieur d'un cylindre de rayon donné.

Les problèmes de stabilité ont été maîtrisés sur deux plans. L'étape de propagation des ondes, qui précède l'inversion de matrice (dans un contexte où toutes les solutions correspondant à chaque état incident possible sont utilisées), se fait de manière exacte, moyennant l'hypothèse que le potentiel varie en escaliers. Cette hypothèse est faible, puisqu'il suffit de prendre des paliers suffisamment petits, et évite les méthodes numériques classiques. Ensuite, l'étape d'inversion de la matrice finale, qui entraîne une perte complète des chiffres significatifs, est remplacée par plusieurs inversions de matrices exprimant des résultats intermédiaires mais mieux conditionnées. Cette dernière étape est due à la méthode des tranches introduite par Pendry [95, 96]. Cette technique consiste à diviser la région de diffusion en plusieurs sous-régions adjacentes, à calculer les matrices de transfert de chaque tranche et à les combiner pour obtenir celles du système complet. Un modèle exprimant la précision des matrices obtenues par cette méthode a été développée dans ce travail. Il permet de prévoir avant tout calcul la précision du résultat final.

Les matrices de transfert sont habituellement carrées. Nous avons développé la méthode en permettant le traitement de situations dont la représentation implique des matrices

rectangulaires.

Finalement, le formalisme de Green est le mieux adapté pour propager les fonctions d'onde sur une grande distance. Notre méthode emprunte à cette théorie cet avantage, en propageant les ondes sortant du diffuseur, telles que calculées par matrices de transfert, selon le principe de Huygens obtenu dans le formalisme de Green.

Chapitre 3

Théorie de diffusion électronique par un potentiel réel

3.1 Introduction

Le problème que nous avons à traiter comporte trois parties: le support métallique de la pointe, la région entre la surface de ce support et la grille conductrice et enfin la région s'étendant au-delà de cette grille jusqu'à l'écran. Nous désignerons ces trois régions respectivement par région I ($z \leq 0$), II ($0 \leq z \leq D$) et III ($z \geq D$). Ces trois régions sont représentées à la figure 3.1.

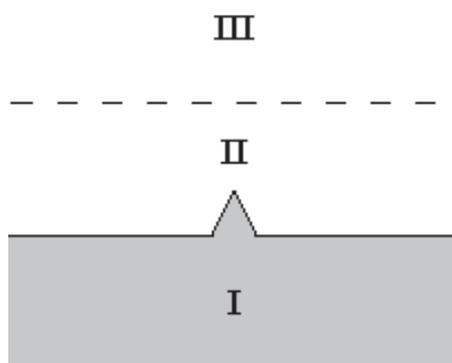


FIG. 3.1 – *Disposition des trois régions intervenant dans notre modèle.*

Nous supposons le support métallique délimité par le plan $z = 0$ et occupant l'espace $z \leq 0$. Le métal dans cette partie du problème sera décrit par un modèle d'électrons libres et caractérisé par des valeurs empiriques de l'énergie de Fermi (E_F) et du travail d'extraction (W).

La région intermédiaire II contient la pointe et l'objet observé. L'énergie potentielle dans cette région dépend du problème considéré. Nous supposons simplement que cette

distribution de potentiel reste invariante sous l'action d'une rotation de $2\pi/n$ autour de l'axe central z . Cette hypothèse est vérifiée par la structure atomique des nanopointes que nous considérerons par la suite (où $n=3$) ainsi que par les objets que nous étudierons (où $n=2$). Elle n'entraîne aucune perte de généralité puisque le cas $n=1$ permet de traiter toutes les situations.

La région III correspond au vide entre la grille conductrice et l'écran. Nous supposons l'écran au même potentiel que la grille, de sorte que l'énergie potentielle dans cette région est constante. Nous poserons cette constante égale à 0. Avec cette convention, l'énergie potentielle dans la région I est alors $V_{met} = eV - W - E_F$, où $-e$ est la charge de l'électron et V la tension appliquée entre la grille et le support métallique.

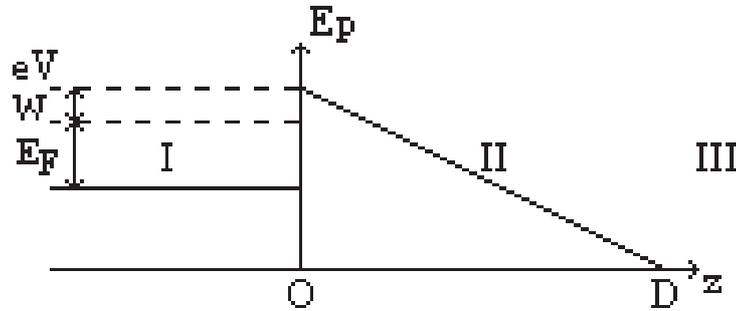


FIG. 3.2 – *Energie potentielle dans les trois régions du modèle.*

La région I est parcourue par un très grand nombre d'électrons. Certains de ceux-ci parviennent à s'échapper du métal, en traversant par effet tunnel la barrière de potentiel représentée schématiquement à la figure 3.2. Ces électrons sont diffusés dans la région II avant de se propager librement dans la région III jusqu'à l'écran. L'image observée sur cet écran est due à la contribution de chacun de ces électrons. Le but de ce chapitre est de présenter une méthode permettant de reproduire cette image, dans le cas où l'énergie potentielle ne prend que des valeurs réelles.

Nous chercherons dans un premier temps une représentation de la fonction d'onde bien adaptée aux conditions de ce problème. Nous examinerons ensuite ce que devient l'équation de Schrödinger dans cette représentation ainsi que les méthodes numériques qui permettent de la traiter. Nous nous servirons alors de ces méthodes pour établir un ensemble de solutions qui correspondent aux conditions de diffusion (c'est-à-dire des solutions qui décrivent la transmission et la réflexion d'électrons incidents dans la région I). Ces solutions seront utilisées pour calculer la densité de courant totale à l'écran.

3.2 Représentation de la fonction d'onde

Puisque nous souhaitons une théorie de diffusion capable d'exploiter un axe de symétrie central, il est nécessaire de choisir une représentation bien adaptée. Les coordonnées cylindriques s'imposent d'elles-mêmes. Elles décrivent en effet idéalement la surface du métal, la grille ainsi que la pointe qui en première approximation peut être réduite à un cône. Notons donc ρ (distance à l'axe central) et ϕ (angle azimutal) les coordonnées complémentaires à z .

3.2.1 Fonctions de base pour un espace infini

Afin de comprendre l'utilité des hypothèses que nous poserons par la suite, commençons par établir un développement de la fonction d'onde valable dans tout l'espace. Le développement que nous choisissons est le suivant :

$$|\Psi\rangle(z) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \int_0^{+\infty} dk_{//} \Phi_{m,k_{//}}(z) |m, k_{//}\rangle \quad (3.1)$$

Dans ce développement, nous avons séparé la dépendance en z , qui devra être déterminée par la suite, de la dépendance en ρ et ϕ , qui est décrite de manière analytique par des fonctions de base. Les oscillations de la fonction d'onde sont donc à partir de ce point parfaitement décrites dans deux dimensions de l'espace. Ces fonctions de base sont données par :

$$\langle \rho, \phi | m, k_{//} \rangle = \sqrt{\frac{k_{//}}{2\pi}} J_m(k_{//}\rho) e^{im\phi} \quad (3.2)$$

où J_m désigne les fonctions de Bessel de première espèce. Les fonctions présentes dans ces expressions ont chacune un comportement régulier dans tout l'espace.

Pour s'assurer de la qualité de la représentation, commençons par vérifier la complétude de la base $|m, k_{//}\rangle$ par rapport à ρ et ϕ . La base est complète si elle vérifie :

$$\mathbf{1}_{\rho, \phi} = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \int_0^{+\infty} dk_{//} |m, k_{//}\rangle \langle m, k_{//}| \quad (3.3)$$

En utilisant les relations :

$$\delta(\phi - \phi') = \frac{1}{2\pi} \sum_{m=-\infty}^{+\infty} e^{im(\phi - \phi')} \quad (3.4)$$

$$\delta(\rho - \rho') = \rho \int_0^{+\infty} dk_{//} k_{//} J_m(k_{//}\rho) J_m(k_{//}\rho') \quad (3.5)$$

l'équation 3.3 fournit le résultat correct suivant :

$$\langle \rho, \phi | \rho', \phi' \rangle = \frac{1}{\rho} \delta(\phi - \phi') \delta(\rho - \rho') \quad (3.6)$$

qui confirme la complétude de la base.

Par ailleurs, en utilisant les relations :

$$\delta_{m,m'} = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} d\phi e^{i(m-m')\phi} \quad (3.7)$$

$$\delta(k_{//} - k'_{//}) = k_{//} \int_0^{+\infty} d\rho \rho J_m(k_{//}\rho) J_m(k'_{//}\rho) \quad (3.8)$$

on établit facilement le résultat suivant :

$$\langle m, k_{//} | m', k'_{//} \rangle = \delta_{m,m'} \delta(k_{//} - k'_{//}) \quad (3.9)$$

qui montre que la base est orthonormale.

En utilisant cette propriété, on déduit l'expression des coefficients du développement :

$$\begin{aligned} \Phi_{m,k_{//}}(z) &= \langle m, k_{//} | \Psi \rangle (z) \\ &= \sqrt{\frac{k_{//}}{2\pi}} \int_0^{+\infty} d\rho \rho \int_0^{2\pi} d\phi J_m(k_{//}\rho) e^{-im\phi} \Psi(\rho, \phi, z) \end{aligned} \quad (3.10)$$

Une expression du type 3.1 permet donc de décrire la fonction d'onde de manière complète. Malheureusement, l'indice $k_{//}$ est continu et la représentation est ainsi mal adaptée à un traitement numérique. Par ailleurs, les coefficients 3.10 décrivent une distribution (chacun d'eux diverge!) et ne peuvent être manipulés en dehors de l'expression 3.1. Ces problèmes peuvent être résolus en imposant une quantification de l'indice $k_{//}$.

3.2.2 Fonctions de base pour un espace restreint

On peut forcer une discrétisation du continuum d'indice $k_{//}$ en imposant à la fonction d'onde de rester confinée dans un espace restreint. Etant donné la géométrie cylindrique envisagée jusqu'ici, nous choisirons comme espace de confinement un cylindre centré sur l'axe z et de rayon R . La figure 3.3 illustre cette hypothèse de confinement, que nous posons uniquement dans les régions I et II.

Cette hypothèse est parfaitement adéquate pour le problème qui nous intéresse puisque les électrons sortent du métal principalement par la pointe et que, pour une valeur de R suffisamment grande, une fraction négligeable de la fonction d'onde rencontre les parois du cylindre en deçà de la grille conductrice. Par contre cette hypothèse ne pourrait être maintenue dans la région III puisque le faisceau finirait par rencontrer les limites du cylindre avant d'atteindre l'écran à 10 cm. Nous imposerons donc :

$$\Psi(\rho, \phi, z) = 0 \quad \text{si } \rho > R \text{ et } z \leq D \quad (3.11)$$

La sélection des valeurs de $k_{//}$ dépend de la condition que nous imposons en $\rho = R$. On pourrait choisir des valeurs qui vérifient $J_m(k_{m,j}R) = 0$, où les nouveaux indices indiquent la quantification et le fait que les valeurs dépendent de celles de m . Imposer cela revient à annuler la fonction d'onde ainsi que la densité de courant en $\rho = R$. Il est préférable

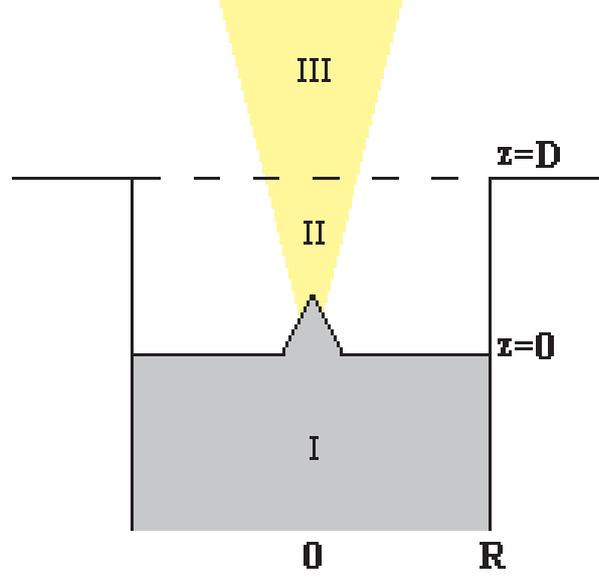


FIG. 3.3 – Hypothèse de confinement dans les régions I et II.

d'imposer plutôt $J'_m(k_{m,j}R) = 0$ car cette condition revient à annuler uniquement la densité de courant radiale en $\rho = R$. Cette condition est donc moins forte. De plus, la racine $k_{0,0}=0$ qui correspond à un état dont le vecteur d'onde est purement axial appartient alors à la représentation. Etant donné qu'elle correspond à la partie la plus importante de la fonction d'onde, il est préférable de la conserver.

La fonction d'onde s'exprime alors comme :

$$|\Psi \rangle (z) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \sum_j \Phi_{(m,j)}(z) |m,j \rangle \quad (3.12)$$

avec :

$$\langle \rho, \phi | m, j \rangle \begin{cases} \rho \leq R \\ \equiv \frac{J_m(k_{m,j}\rho) e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}} \\ \rho > R \\ \equiv 0 \end{cases} \quad (3.13)$$

Le fait que les séries de Fourier-Bessel $f(x) = \sum_j a_j J_m(\beta_{m,j} \frac{x}{a})$ convergent de manière uniforme [97, 98] à l'intérieur de l'intervalle $[0, a]$ (avec $\beta_{m,j}$ la $j^{\text{ième}}$ racine de J'_m) nous autorise à écrire la relation

$$\delta(\rho - \rho') = \rho \sum_j \frac{J_m(k_{m,j}\rho) J_m(k_{m,j}\rho')}{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \quad (3.14)$$

qui s'applique à l'intervalle $[0, R]$.

En utilisant cette expression ainsi que la relation 3.4, on montre que notre représentation est complète, c'est-à-dire que

$$\mathbf{1}_{\rho, \phi} = \sum_m \sum_j |m, j\rangle \langle m, j| \quad (3.15)$$

pour les fonctions d'onde Ψ vérifiant $\Psi = 0$ quand $\rho > R$ et $z \leq D$ ainsi que $\frac{d\Psi}{d\rho} = 0$ en $\rho = R$.

En utilisant la relation 3.7 ainsi qu'une des intégrales de Lommel :

$$\begin{aligned} & \int_0^R \rho J_m(k_{m,j}\rho) J_m(k_{m,j'}\rho) d\rho \\ \stackrel{j \neq j'}{=} & \frac{1}{k_{m,j'}^2 - k_{m,j}^2} R(k_{m,j} J'_m(k_{m,j}R) J_m(k_{m,j'}R) - k_{m,j'} J'_m(k_{m,j'}R) J_m(k_{m,j}R)) \\ \stackrel{j \neq j'}{=} & 0 \text{ puisque } J'_m(k_{m,j}R) = J'_m(k_{m,j'}R) = 0 \end{aligned} \quad (3.16)$$

il est facile de montrer l'orthonormalisation de la base :

$$\langle m, j | m', j' \rangle = \delta_{m,m'} \delta_{j,j'} \quad (3.17)$$

Cette relation nous aide à calculer les coefficients du développement de la façon suivante :

$$\begin{aligned} \Phi_{(m,j)}(z) &= \langle m, j | \Psi \rangle (z) \\ &= \int_0^R d\rho \rho \int_0^{2\pi} d\phi \frac{J_m(k_{m,j}\rho) e^{-im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}} \Psi(\rho, \phi, z) \end{aligned} \quad (3.18)$$

Afin de limiter le nombre de fonctions de base, nous conserverons uniquement celles qui vérifient l'inégalité :

$$\frac{\hbar^2 k_{m,j}^2}{2m} \leq E \quad (3.19)$$

Comme nous le verrons par la suite, cette condition revient à travailler avec les fonctions de base associées à des solutions propagatives dans la région III. Les fonctions négligées correspondent à des solutions évanescentes dans cette région III (et en général dans les régions I et II) qui n'atteignent donc pas l'écran. Leur influence sur le résultat final ne peut se faire que par une interaction dans la région II avec les solutions associées aux fonctions conservées. Cette interaction est d'autant plus négligeable que ces solutions évanescentes tendent à disparaître rapidement.

3.3 Ecriture de l'énergie potentielle

Avant de regarder ce que devient l'équation de Schrödinger dans notre représentation, écrivons l'énergie potentielle sous la forme suivante :

$$V(\rho, \phi, z) = V_0(z) + \sum_{q=-\infty}^{+\infty} \bar{V}_q(\rho, z) e^{iqn\phi} \quad (3.20)$$

Nous supposons donc l'énergie potentielle fournie sur une grille en coordonnées cylindriques. Le terme $V_0(z)$ dans l'expression précédente permet de séparer le comportement asymptotique (ou toute autre contribution) fonction de z seulement du reste du potentiel V . Le deuxième terme de l'expression 3.20 est simplement l'écriture sous forme de série de Fourier du reste du potentiel que nous avons supposé périodique selon ϕ (avec une période de $2\pi/n$). Les valeurs de l'énergie potentielle peuvent être réparties de manière indifférente entre les deux parties de l'expression précédente, sans aucune perte de généralité.

Les coefficients du développement 3.20 doivent se calculer par la relation :

$$\bar{V}_q(\rho, z) = \frac{n}{2\pi} \int_0^{2\pi/n} (V(\rho, \phi, z) - V_0(z)) e^{-iqn\phi} d\phi \quad (3.21)$$

L'évaluation numérique de ces coefficients présente peu de difficultés. Une bonne précision peut être obtenue en exprimant la dépendance en ϕ du potentiel au moyen de fonctions polynomiales [99]. L'intégration du terme $(V(\rho, \phi, z) - V_0(z))$ peut alors se faire analytiquement.

3.4 Traitement de l'équation de Schrödinger

Nous savons maintenant comment exprimer les fonctions d'ondes au moyen de l'équation 3.12. Afin de connaître complètement le comportement de ces fonctions d'onde, les coefficients $\Phi_{(m,j)}(z)$ restent à déterminer. L'équation de Schrödinger fournit une équation de propagation pour ces coefficients que nous allons établir ici.

3.4.1 Equation de propagation

Considérons l'équation de Schrödinger stationnaire en représentation $\{|\mathbf{r}\rangle\}$:

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 \Psi(\mathbf{r}) + V(\mathbf{r}) \Psi(\mathbf{r}) = E \Psi(\mathbf{r}) \quad (3.22)$$

Remplaçons dans cette équation $\Psi(\mathbf{r})$ par :

$$\Psi(\mathbf{r}) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \sum_j \Phi_{(m,j)}(z) \frac{J_m(k_{m,j}\rho) e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}} \quad (3.23)$$

En exprimant le Laplacien en coordonnées cylindriques, en tenant compte du fait que les fonctions de Bessel J_m vérifient l'équation :

$$\frac{d^2 J_m(x)}{dx^2} + \frac{1}{x} \frac{dJ_m(x)}{dx} + \left(1 - \frac{m^2}{x^2}\right) J_m(x) = 0 \quad (3.24)$$

et en projetant l'équation résultante sur les fonctions de base, on trouve :

$$\frac{d^2 \Phi_{(m,j)}(z)}{dz^2} + \left[\frac{2m}{\hbar^2} E - k_{m,j}^2 \right] \Phi_{(m,j)}(z) = \sum_{m'} \sum_{j'} \Omega_{m,j}^{m',j'}(z) \Phi_{(m',j')}(z) \quad (3.25)$$

où les coefficients $\Omega_{m,j}^{m',j'}(z)$ s'écrivent comme :

$$\Omega_{m,j}^{m',j'}(z) = \frac{2m \int_0^R d\rho \int_0^{2\pi} d\phi V(\rho, \phi, z) J_m(k_{m,j}\rho) J_{m'}(k_{m',j'}\rho) e^{i(m'-m)\phi}}{\hbar^2 2\pi \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m'}(k_{m',j'}\rho)]^2}} \quad (3.26)$$

Si on utilise l'expression 3.20 pour l'énergie potentielle V dans l'expression précédente, l'intégration sur ϕ fournit le résultat suivant :

$$\begin{aligned} \Omega_{m,j}^{m',j'}(z) &= \frac{2m}{\hbar^2} V_0(z) \delta_{m,m'} \delta_{j,j'} \\ &+ \sum_{q=-\infty}^{+\infty} \frac{2m}{\hbar^2} \frac{\int_0^R d\rho \rho \bar{V}_q(\rho, z) J_m(k_{m,j}\rho) J_{m'}(k_{m',j'}\rho)}{\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m'}(k_{m',j'}\rho)]^2}} \delta_{qn+m',m} \end{aligned} \quad (3.27)$$

de sorte que l'équation de Schrödinger se réduit à :

$$\frac{d^2 \Phi_{(m,j)}(z)}{dz^2} + \left[\frac{2m}{\hbar^2} E - k_{m,j}^2 - \frac{2m}{\hbar^2} V_0(z) \right] \Phi_{(m,j)}(z) = \sum_q \sum_{j'} M_{m,j}^{q,j'}(z) \Phi_{(m-qn,j')}(z) \quad (3.28)$$

avec :

$$M_{m,j}^{q,j'}(z) = \frac{2m}{\hbar^2} \frac{\int_0^R d\rho \rho \bar{V}_q(\rho, z) J_m(k_{m,j}\rho) J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)}{\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \quad (3.29)$$

Ces deux dernières équations sont celles à utiliser pour propager les coefficients $\Phi_{(m,j)}(z)$ de la fonction d'onde.

Les coefficients de couplage $M_{m,j}^{q,j'}(z)$ varient avec z et exigent l'intégration d'un produit entre les composantes de Fourier du potentiel et deux fonctions de Bessel. Il est intéressant pour calculer ces coefficients de supposer que le potentiel varie en escaliers selon ρ . On peut se rapprocher aussi près que l'on veut du vrai potentiel en prenant des paliers suffisamment petits. Sur chacun de ces paliers, l'intégrale dans 3.29 n'implique plus que deux fonctions de Bessel. Ces intégrales peuvent être calculées analytiquement lorsque les indices sont les mêmes et numériquement sinon. Un bon choix de $V_0(z)$ dans 3.20 permet de réduire le domaine d'intégration dans 3.29 et d'améliorer la précision des facteurs intervenant dans l'équation 3.28, puisque le terme $V_0(z)$ y est traité de manière exacte.

3.4.2 Groupes indépendants

Il est important de constater que l'équation 3.28 décrit un couplage uniquement entre composantes de la fonction d'onde dont les indices m sont séparés par un multiple entier de l'ordre de l'axe de symétrie n . Cela signifie que la fonction d'onde est décrite par n groupes de fonctions de base indépendants. Si pour une valeur particulière de z , la fonction d'onde ne possède des composantes non nulles que dans un de ces groupes, les composantes correspondant aux autres $n - 1$ groupes resteront nulles pour toute valeur de z . On peut donc séparer le problème de propagation en n parties indépendantes, où chaque groupe est traité séparément.

Par exemple, pour un axe de symétrie d'ordre 3, on a trois groupes distincts correspondant aux indices m suivants :

- groupe 1 : $\dots, -6, -3, 0, 3, 6, \dots$
- groupe 2 : $\dots, -5, -2, 1, 4, \dots$
- groupe 3 : $\dots, -4, -1, 2, 5, \dots$

Les deux derniers groupes ne diffèrent que par le signe des indices m . Nous dirons qu'ils sont *conjugués*. Lorsque le potentiel est réel, il est possible de transposer les résultats pour un de ces groupes à son groupe conjugué. Nous reviendrons sur ce point par la suite.

3.4.3 Implémentation numérique

Nous avons déjà dit comment calculer les coefficients de couplage $M_{m,j}^{q,j'}(z)$ en considérant que le potentiel varie en escaliers selon ρ . Il reste encore à les utiliser efficacement dans l'équation 3.28.

L'équation 3.28 peut être traitée de manière très précise en supposant que le potentiel varie en escaliers dans la direction z . A nouveau, il suffit de prendre des paliers suffisamment petits pour rester proche du véritable potentiel. Avec cette hypothèse, les coefficients de couplage $M_{m,j}^{q,j'}(z)$ restent constants sur chaque palier et l'équation 3.28 peut être résolue analytiquement.

Pour montrer de quelle manière la propagation est traitée, considérons un palier de longueur Δz et notons $M_{m,j}^{q,j'}(\Delta z)$ la valeur des coefficients de couplage sur ce palier. La valeur du potentiel asymptotique sera notée $V_0(\Delta z)$.

Plaçons l'ensemble des coefficients $\Phi_{(m,j)}(z)$ à traiter dans un vecteur que nous notons $\bar{\Phi}(z)$. L'équation de propagation 3.28 peut alors s'écrire sous forme matricielle :

$$\frac{d^2}{dz^2} \bar{\Phi}(z) + \mathbf{E} \bar{\Phi}(z) = \mathbf{M} \bar{\Phi}(z) \quad (3.30)$$

où \mathbf{E} est une matrice diagonale qui contient les éléments $\frac{2m}{\hbar^2} E - k_{m,j}^2 - \frac{2m}{\hbar^2} V_0(\Delta z)$ et \mathbf{M} une matrice qui contient les coefficients de couplage $M_{m,j}^{q,j'}(\Delta z)$. L'élément de \mathbf{M} dont la ligne correspond au couple d'indices (m,j) et la colonne au couple d'indices (m',j') est donc $M_{m,j}^{(m-m')/n,j'}(\Delta z)$. L'élément symétrique sera $M_{m',j'}^{(m-m)/n,j}(\Delta z)$. En examinant l'expression 3.29, on constate que $M_{m,j}^{(m-m')/n,j'}(\Delta z)$ et $M_{m',j'}^{(m-m)/n,j}(\Delta z)$ font intervenir des composantes

de Fourier du potentiel de signe opposé. Pour un potentiel réel, ces composantes sont simplement les complexes conjuguées l'une de l'autre. Le reste étant identique, on en déduit que la matrice \mathbf{M} est hermitienne.

L'équation 3.30 peut encore s'écrire :

$$\frac{d^2}{dz^2}\bar{\Phi}(z) + \mathbf{H}\bar{\Phi}(z) = 0 \quad (3.31)$$

où $\mathbf{H} = \mathbf{E} - \mathbf{M}$ est une matrice hermitienne comme \mathbf{E} et \mathbf{M} .

Nous pouvons alors calculer numériquement les valeurs et vecteurs propres de la matrice \mathbf{H} . Le calcul sera d'autant plus précis qu'une sous-routine spécialisée est capable d'utiliser l'hermiticité de \mathbf{H} . Notons $\mathbf{\Lambda}$ la matrice diagonale contenant les valeurs propres (réelles) de \mathbf{H} et \mathbf{U} la matrice unitaire qui contient en colonnes les vecteurs propres de \mathbf{H} . L'équation précédente devient alors :

$$\frac{d^2}{dz^2}\bar{\Phi}(z) + \mathbf{U} \mathbf{\Lambda} \mathbf{U}^\dagger \bar{\Phi}(z) = 0 \quad (3.32)$$

où \mathbf{U}^\dagger est la matrice transposée complexe conjuguée de \mathbf{U} .

En multipliant par la gauche cette équation par \mathbf{U}^\dagger et en se rappelant que \mathbf{H} est indépendant de z sur le palier Δz , l'équation précédente se met sous la forme :

$$\frac{d^2}{dz^2}\bar{\xi}(z) + \mathbf{\Lambda}\bar{\xi}(z) = 0 \quad (3.33)$$

où nous avons utilisé $\mathbf{U}^\dagger \mathbf{U} = \mathbf{I}$ (unicité de \mathbf{U}) et défini $\bar{\xi}(z) = \mathbf{U}^\dagger \bar{\Phi}(z)$.

Puisque $\mathbf{\Lambda}$ est diagonale, l'équation 3.33 est triviale à résoudre. Chaque composante $\xi_i(z)$ de $\bar{\xi}(z)$ s'exprime en effet comme une paire d'exponentielles réelles ou imaginaires selon le signe de la valeur propre correspondante λ_i dans $\mathbf{\Lambda}$:

$$\xi_i(z) = A_i e^{i\sqrt{\lambda_i}z} + B_i e^{-i\sqrt{\lambda_i}z} \quad (3.34)$$

où les racines sont imaginaires si $\lambda_i < 0$. Les coefficients A_i et B_i sont fixés par les valeurs de $\bar{\xi} = \mathbf{U}^\dagger \bar{\Phi}$ et $\frac{d}{dz}\bar{\xi} = \mathbf{U}^\dagger \frac{d}{dz}\bar{\Phi}$ à l'extrémité du palier Δz d'où la solution est propagée.

Les coefficients $\Phi_{(m,j)}(z)$ et $\frac{d}{dz}\Phi_{(m,j)}(z)$ contenus dans $\bar{\Phi}(z)$ et $\frac{d}{dz}\bar{\Phi}(z)$ peuvent donc être propagés d'un palier à l'autre en effectuant au début de chaque palier les transformations $\bar{\xi}(z) = \mathbf{U}^\dagger \bar{\Phi}(z)$ et $\frac{d}{dz}\bar{\xi}(z) = \mathbf{U}^\dagger \frac{d}{dz}\bar{\Phi}(z)$, en utilisant l'équation 3.33 pour propager $\bar{\xi}(z)$ et $\frac{d}{dz}\bar{\xi}(z)$ jusqu'à l'autre extrémité du palier où $\bar{\Phi}(z)$ et $\frac{d}{dz}\bar{\Phi}(z)$ sont retrouvés par $\bar{\Phi}(z) = \mathbf{U}\bar{\xi}(z)$ et $\frac{d}{dz}\bar{\Phi}(z) = \mathbf{U}\frac{d}{dz}\bar{\xi}(z)$. La précision de la méthode ne dépend que de la précision de la sous-routine qui calcule $\mathbf{\Lambda}$ et \mathbf{U} . Les bibliothèques standard conviennent parfaitement.

3.5 Solutions avec conditions limites de diffusion

Nous savons maintenant comment exprimer les fonctions d'onde et traiter l'équation de Schrödinger dans cette représentation. Nous disposons donc de tous les outils nécessaires

pour calculer les solutions qui correspondent à notre problème. Ces solutions sont celles qui décrivent un état électronique incident dans la région I sur la barrière de potentiel (région II) et donnent les états transmis et réfléchis correspondants.

Nous allons donner dans cette section la procédure à suivre pour établir ces solutions particulières. Cette procédure se place dans le cadre des matrices de transfert pour établir la forme locale de ces solutions (c'est-à-dire leur expression au voisinage immédiat de la grille en $z = D$) et dans le cadre des fonctions de Green pour établir leur forme lointaine sur l'écran à 10 cm.

3.5.1 Etats limites

Afin de préciser ce que l'on entend par états électroniques incidents, transmis et réfléchis, cherchons les solutions de l'équation 3.28 dans la région I et III (en $z = D$). Ces solutions sont particulièrement faciles à obtenir, puisque en prenant $V_0(z) = V_{met} = eV - W - E_F$ pour $z \leq 0$ et $V_0(z) = 0$ pour $z \geq D$, les coefficients de couplage $M_{m,j}^{a,j'}(z)$ sont nuls. Les coefficients $\Phi_{(m,j)}(z)$ prennent alors la forme générale suivante :

$$\Phi_{(m,j)}(z) = A_{(m,j)} e^{i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E-V_{met})-k_{m,j}^2}z} + B_{(m,j)} e^{-i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E-V_{met})-k_{m,j}^2}z} \quad (3.35)$$

dans la région I, où les racines sont imaginaires quand l'argument est négatif, et

$$\Phi_{(m,j)}(z) = A_{(m,j)} e^{i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}E-k_{m,j}^2}z} + B_{(m,j)} e^{-i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}E-k_{m,j}^2}z} \quad (3.36)$$

en $z = D$.

La fonction d'onde Ψ s'exprime donc dans la région I et en $z = D$ comme combinaison linéaire de solutions partielles, que nous appellerons *états*. Dans la région I, ces états sont :

$$\Psi_{(m,j)}^{I,+}(\mathbf{r}) = e^{i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E-V_{met})-k_{m,j}^2}z} \frac{J_m(k_{m,j}\rho)e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho\rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}} \quad (3.37)$$

$$\Psi_{(m,j)}^{I,-}(\mathbf{r}) = e^{-i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E-V_{met})-k_{m,j}^2}z} \frac{J_m(k_{m,j}\rho)e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho\rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}} \quad (3.38)$$

et en $z = D$:

$$\Psi_{(m,j)}^{III,+}(\mathbf{r}) = e^{i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}E-k_{m,j}^2}z} \frac{J_m(k_{m,j}\rho)e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho\rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}} \quad (3.39)$$

$$\Psi_{(m,j)}^{III,-}(\mathbf{r}) = e^{-i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}E-k_{m,j}^2}z} \frac{J_m(k_{m,j}\rho)e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho\rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}} \quad (3.40)$$

Ces expressions sont accompagnées d'indices qui désignent la région d'application ainsi que le sens de propagation.

Nous appelons donc *états incidents et réfléchis dans la région I* respectivement les états $\Psi_{(m,j)}^{I,+}$ et $\Psi_{(m,j)}^{I,-}$. Les états $\Psi_{(m,j)}^{III,+}$ seront les *états transmis* correspondants. Si l'on considère des électrons incidents depuis la région III, on désignera par *états incidents et réfléchis dans la région III* respectivement les états $\Psi_{(m,j)}^{III,-}$ et $\Psi_{(m,j)}^{III,+}$ et les *états transmis* correspondants sont alors les $\Psi_{(m,j)}^{I,-}$.

Ces états servent donc à décrire la fonction d'onde totale correspondant à une condition limite donnée. Les coefficients de ces états dans le développement de la fonction d'onde dépendent de la façon dont ces états sont diffusés dans la région II. La méthode permettant de les calculer est le sujet de la section suivante.

3.5.2 Solutions locales par matrices de transfert

L'image observée à 10 cm est due à la contribution de tous les électrons incidents dans le métal, dont une partie parvient jusqu'à l'écran. Les états incidents $\Psi_{(m,j)}^{I,+}$ dans la région I décrivent chacun une partie de ces électrons, mais de manière incomplète puisque la fonction d'onde totale comprend également les états réfléchis et transmis correspondants. Nous sommes donc intéressés par l'expression complète des fonctions d'onde dont la partie incidente dans la région I correspond à un seul de ces états $\Psi_{(m,j)}^{I,+}$. Ces fonctions d'onde seront exprimées de la façon suivante :

$$\Psi_{(m,j)}^+(\mathbf{r}) \stackrel{z \leq 0}{\cong} \Psi_{(m,j)}^{I,+}(\mathbf{r}) + \sum_{(m',j')} t_{(m',j'),(m,j)}^{-+} \Psi_{(m',j')}^{I,-}(\mathbf{r}) \stackrel{z=D}{\equiv} \sum_{(m',j')} t_{(m',j'),(m,j)}^{++} \Psi_{(m',j')}^{III,+}(\mathbf{r}) \quad (3.41)$$

Les matrices \mathbf{t}^{++} et \mathbf{t}^{-+} contiennent les coefficients des états transmis et réfléchis correspondant à chaque état incident dans la région I. Leur valeur dépend du processus de diffusion dans la région II. Remarquons que l'expression de $\Psi_{(m,j)}^+$ n'est pas précisée dans la région II ($0 < z < D$), mais cette information n'est pas nécessaire pour calculer son expression à l'écran. Par ailleurs, cela permet de réduire la description de l'ensemble de ces solutions à deux matrices, une description idéalement économique.

Il existe d'autres solutions qui décrivent chacune un état incident dans la région III. Elles sont décrites par :

$$\Psi_{(m,j)}^-(\mathbf{r}) \stackrel{z \leq 0}{\cong} \sum_{(m',j')} t_{(m',j'),(m,j)}^{--} \Psi_{(m',j')}^{I,-}(\mathbf{r}) \stackrel{z=D}{\equiv} \Psi_{(m,j)}^{III,-}(\mathbf{r}) + \sum_{(m',j')} t_{(m',j'),(m,j)}^{+-} \Psi_{(m',j')}^{III,+}(\mathbf{r}) \quad (3.42)$$

où deux autres matrices \mathbf{t}^{--} et \mathbf{t}^{+-} contiennent les coefficients des états transmis et réfléchis correspondant à chaque état incident en $z = D$. L'intérêt de considérer de telles solutions apparaîtra dans le chapitre 6.

Pour obtenir les solutions données en 3.41, on commence par établir un autre ensemble de solutions :

$$\bar{\Psi}_{(m,j)}^+(\mathbf{r}) \stackrel{z \leq 0}{\equiv} \sum_{(m',j')} A_{(m',j'),(m,j)}^+ \Psi_{(m',j')}^{I,+}(\mathbf{r}) + \sum_{(m',j')} B_{(m',j'),(m,j)}^+ \Psi_{(m',j')}^{I,-}(\mathbf{r}) \stackrel{z=D}{\equiv} \Psi_{(m,j)}^{III,+}(\mathbf{r}) \quad (3.43)$$

Ces solutions correspondent à une situation imaginaire où un ensemble d'états incidents en $z = 0$ auraient les amplitudes et les phases nécessaires pour produire un seul état sortant en $z = D$. Ces solutions sont plus faciles à obtenir que celles en 3.41 car les matrices inconnues sont rassemblées du même côté de la région II et que les valeurs de $\bar{\Psi}_{(m,j)}^+(z)$ et de $\frac{d}{dz} \bar{\Psi}_{(m,j)}^+(z)$ sont parfaitement définies en $z = D$. On peut alors utiliser la méthode donnée à la section 3.4.3 pour propager ces valeurs jusqu'en $z = 0$ où la décomposition de $\bar{\Psi}_{(m,j)}^+(z)$ en états incidents et réfléchis fournit les matrices \mathbf{A}^+ et \mathbf{B}^+ . Comme nous le verrons au chapitre 6, la propagation numérique de $\bar{\Psi}_{(m,j)}^+(z)$ à contre-courant de la propagation physique fait coïncider la solution physique avec la solution numériquement instable qui domine le résultat du calcul. Les solutions 3.43 sont donc obtenues avec une très bonne précision.

Ces solutions peuvent être utilisées pour établir les solutions recherchées 3.41 grâce à la linéarité des équations de propagation. En effet, l'équation de Schrödinger étant linéaire, toute combinaison linéaire de ses solutions reste solution de l'équation. Il suffit donc de chercher la combinaison des solutions $\bar{\Psi}_{(m,j)}^+$ qui se met sous la forme 3.41. On s'aperçoit alors que les matrices \mathbf{t}^{++} et \mathbf{t}^{-+} sont liées aux matrices \mathbf{A}^+ et \mathbf{B}^+ par les relations¹

$$\mathbf{t}^{++} = \mathbf{A}^{+-1} \quad (3.44)$$

$$\mathbf{t}^{-+} = \mathbf{B}^+ \mathbf{A}^{+-1} \quad (3.45)$$

lorsque les nombres d'états en $z = 0$ et $z = D$ sont identiques. La manière de traiter des représentations qui impliquent des matrices de transfert rectangulaires sera détaillée au chapitre 6. Notons qu'une résolution de système peut remplacer l'inversion de la matrice \mathbf{A}^+ lorsqu'une partie seulement des solutions $\Psi_{(m,j)}^+$ est souhaitée.

1. En effet, les relations 3.43 peuvent s'écrire sous la forme :

$$(\dots, \bar{\Psi}_{(m,j)}^+, \dots) \stackrel{z \leq 0}{\equiv} (\dots, \Psi_{(m,j)}^{I,+}, \dots) \mathbf{A}^+ + (\dots, \Psi_{(m,j)}^{I,-}, \dots) \mathbf{B}^+ \stackrel{z=D}{\equiv} (\dots, \Psi_{(m,j)}^{III,+}, \dots)$$

En multipliant par la droite par \mathbf{A}^{+-1} , on trouve

$$(\dots, \bar{\Psi}_{(m,j)}^+, \dots) \mathbf{A}^{+-1} \stackrel{z \leq 0}{\equiv} (\dots, \Psi_{(m,j)}^{I,+}, \dots) + (\dots, \Psi_{(m,j)}^{I,-}, \dots) \mathbf{B}^+ \mathbf{A}^{+-1} \stackrel{z=D}{\equiv} (\dots, \Psi_{(m,j)}^{III,+}, \dots) \mathbf{A}^{+-1}$$

qui est de la forme :

$$(\dots, \Psi_{(m,j)}^+, \dots) \stackrel{z \leq 0}{\equiv} (\dots, \Psi_{(m,j)}^{I,+}, \dots) + (\dots, \Psi_{(m,j)}^{I,-}, \dots) \mathbf{t}^{-+} \stackrel{z=D}{\equiv} (\dots, \Psi_{(m,j)}^{III,+}, \dots) \mathbf{t}^{++}$$

correspondant à l'équation 3.41.

Les solutions 3.42 sont obtenues de manière similaire en établissant dans un premier temps des solutions du type :

$$\bar{\Psi}_{(m,j)}^-(\mathbf{r}) \stackrel{z \leq 0}{\equiv} \Psi_{(m,j)}^{I,-}(\mathbf{r}) \stackrel{z = D}{\equiv} \sum_{(m',j')} A_{(m',j'),(m,j)}^- \Psi_{(m',j')}^{III,-}(\mathbf{r}) + \sum_{(m',j')} B_{(m',j'),(m,j)}^- \Psi_{(m',j')}^{III,+}(\mathbf{r}) \quad (3.46)$$

et en les combinant pour les mettre sous la forme 3.42. Les deux matrices de transfert \mathbf{t}^{--} et \mathbf{t}^{+-} sont liées aux matrices \mathbf{A}^- et \mathbf{B}^- de 3.46 par les relations :

$$\mathbf{t}^{--} = \mathbf{A}^{-1} \quad (3.47)$$

$$\mathbf{t}^{+-} = \mathbf{B}^- \mathbf{A}^{-1} \quad (3.48)$$

Nous reviendrons sur la méthodologie des matrices de transfert au chapitre 6, où nous montrerons comment la précision sur le calcul peut être estimée à l'avance.

3.5.3 Prolongement des solutions par fonctions de Green

Les solutions que nous venons d'établir décrivent les fonctions d'onde correspondant à chaque état incident possible dans la région I. La représentation que nous avons utilisée pour la fonction d'onde est valable pour $z \leq D$ mais ne peut être prolongée jusqu'à 10 cm. Nous disposons cependant de toute l'information nécessaire pour prolonger ces solutions dans le formalisme des fonctions de Green.

Principe de Huygens en formalisme de Green

Afin d'établir l'équation qui nous permettra de prolonger nos solutions, considérons l'équation de Schrödinger ainsi que celle définissant la fonction de Green associée :

$$\nabla_{\mathbf{r}'}^2 \Psi(\mathbf{r}') + \frac{2m}{\hbar^2} (E - V(\mathbf{r}')) \Psi(\mathbf{r}') = 0 \quad (3.49)$$

$$\nabla_{\mathbf{r}'}^2 G(\mathbf{r}', \mathbf{r}, E) + \frac{2m}{\hbar^2} (E - V(\mathbf{r}')) G(\mathbf{r}', \mathbf{r}, E) = \frac{2m}{\hbar^2} \delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}) \quad (3.50)$$

Multiplions la première équation par $G(\mathbf{r}', \mathbf{r}, E)$ et la deuxième par $\Psi(\mathbf{r}')$. Nous pouvons soustraire les deux équations et intégrer le résultat sur un volume \mathcal{V} qui contient un point donné \mathbf{r} . On trouve alors :

$$\iiint_{\mathcal{V}} (G(\mathbf{r}', \mathbf{r}, E) \nabla_{\mathbf{r}'}^2 \Psi(\mathbf{r}') - \Psi(\mathbf{r}') \nabla_{\mathbf{r}'}^2 G(\mathbf{r}', \mathbf{r}, E)) dV' = -\frac{2m}{\hbar^2} \Psi(\mathbf{r}) \quad (3.51)$$

En utilisant la formule de Green, ce résultat devient :

$$\iint_{\mathcal{S}} \mathbf{n} \cdot (G(\mathbf{r}', \mathbf{r}, E) \nabla_{\mathbf{r}'} \Psi(\mathbf{r}') - \Psi(\mathbf{r}') \nabla_{\mathbf{r}'} G(\mathbf{r}', \mathbf{r}, E)) dS' = -\frac{2m}{\hbar^2} \Psi(\mathbf{r}) \quad (3.52)$$

où \mathcal{S} est la surface extérieure de \mathcal{V} et \mathbf{n} un vecteur unitaire perpendiculaire à la surface en dS' et pointant vers l'extérieur.

Dans notre problème, \mathbf{r} est situé sur l'écran à 10 cm. Prenons donc un volume d'intégration \mathcal{V} reposant sur la grille $z = D$ et se refermant en $\rho = \infty$ sur la surface $z = +\infty$. Dans l'approximation de Kirchhoff, nous pouvons utiliser sur toute la surface $z = D$ les valeurs connues de la fonction d'onde et de sa dérivée selon \mathbf{n} . Compte tenu des conditions frontières de notre modèle, $\Psi(\mathbf{r}')$ et $\nabla_{\mathbf{r}'} \Psi(\mathbf{r}')$ ne prennent sur cette surface des valeurs non nulles que sur l'ouverture du cylindre servant à discrétiser les états utilisés dans la technique des matrices de transfert. En connaissant l'expression de la fonction d'onde et de sa dérivée suivant z dans cette ouverture, celle en un point \mathbf{r} peut être calculée par :

$$\Psi(\mathbf{r}) = \frac{\hbar^2}{2m} \iint_{Ouv.Circ.} (G(\mathbf{r}', \mathbf{r}, E) \frac{d\Psi(\mathbf{r}')}{dz'} - \Psi(\mathbf{r}') \frac{dG(\mathbf{r}', \mathbf{r}, E)}{dz'}) dS' \quad (3.53)$$

Approximation à grande distance

Comme nous avons posé que l'énergie potentielle dans la région III vaut $V = 0$ et puisque les conditions limites propres au vide (annulation de la fonction d'onde et de ses dérivées à l'infini) s'appliquent dans cette région, l'expression à considérer pour la fonction de Green est la suivante :

$$G(\mathbf{r}', \mathbf{r}, E) \stackrel{\mathbf{r}, \mathbf{r}' \in \text{reg.III}}{=} -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \frac{1}{|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|} e^{ik_E|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|} \quad (3.54)$$

où $k_E = \sqrt{\frac{2mE}{\hbar^2}}$.

Le facteur $|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|$ peut être développé en série de Taylor par rapport aux composantes de \mathbf{r}' :

$$|\mathbf{r}' - \mathbf{r}| = |\mathbf{r}| - \mathbf{r}^0 \cdot \mathbf{r}' + \frac{1}{2|\mathbf{r}|} \left(|\mathbf{r}'|^2 - (\mathbf{r}^0 \cdot \mathbf{r}')^2 \right) + \dots \quad (3.55)$$

où \mathbf{r}^0 est un vecteur unitaire pointant dans la direction de \mathbf{r} , de composantes $(1, \theta, \phi)$ en coordonnées sphériques.

En ne conservant que les deux premiers termes de ce développement, l'équation 3.53 devient :

$$\Psi(r, \theta, \phi) \stackrel{r \gg 0, \theta < \frac{\pi}{2}}{=} -\frac{1}{4\pi r} e^{ik_E(r - \cos(\theta)D)} \int_0^R \int_0^{2\pi} \left(\frac{d\Psi(\rho, \phi', D)}{dz'} + i\Psi(\rho, \phi', D) k_E \cos(\theta) \right) e^{-ik_E(\rho \cos(\phi' - \phi) \sin(\theta))} \rho d\rho d\phi' \quad (3.56)$$

Pour les distances qui nous intéressent, le premier terme du développement 3.55 domine largement les termes suivants. En effet, pour $r = 10$ cm et une valeur maximale pour R de 20 nm, le deuxième terme ne vaut que 10^{-7} fois le premier. Ce terme dominant n'apparaît cependant que dans le facteur de phase $e^{ik_E r}$, qui ne contient aucune dépendance angulaire et se simplifie lors du calcul de la densité de probabilité et de courant². Il est donc nécessaire de recourir aux autres termes de 3.55 pour moduler la valeur de $\Psi(r, \theta, \phi)$ (et donc des composantes de la densité de courant J_r , J_θ et J_ϕ) selon θ et ϕ .

Les deux termes suivants sont du même ordre de grandeur pour une distance critique $d_{crit} \sim \frac{|r'|}{2} \sim \frac{R}{2}$. Le comportement asymptotiquement radiatif³ de Ψ , J_r , J_θ et J_ϕ est donc atteint avec une bonne approximation après :

$$d_{radiatif} = 50R \quad (3.57)$$

Avec la même valeur maximale de 20 nm pour R , la propagation de la densité de courant est donc essentiellement radiative après 1 micron. A 10 cm, le troisième terme du développement ne représente plus que 10^{-7} fois le deuxième. L'approximation introduite dans cette section est donc tout à fait justifiée.

Prolongement des états transmis

On peut maintenant introduire l'expression 3.41 dans l'équation 3.56, en tenant compte de la forme exacte de l'état transmis 3.39, pour trouver l'expression de $\Psi_{(m,j)}^+$ à grande distance. Les calculs fournissent le résultat exact suivant :

$$\Psi_{(m,j)}^+(r, \theta, \phi) \stackrel{r \gg 0, \theta < \frac{\pi}{2}}{=} \frac{e^{ik_E r}}{r} \sum_{m', j'} t_{(m', j'), (m, j)}^{++} \sigma(\theta, m', j', E) e^{im' \phi} \quad (3.58)$$

où $\sigma(\theta, m', j', E)$ prend l'expression :

2. La dominance de ce terme s'exprime cependant par le fait que la densité de courant \mathbf{J} associée à $\Psi(r, \theta, \phi)$ ne prend, à grande distance, que des valeurs significatives selon r . En effet, on peut écrire 3.56 comme $\Psi(r, \theta, \phi) \stackrel{r \gg 0, \theta < \frac{\pi}{2}}{=} e^{ik_E r} A(\theta, \phi)$. Il est facile alors de calculer les composantes de la densité de courant associée :

$$\begin{aligned} J_r &= \frac{\hbar}{m} \operatorname{Re} \left[\Psi^* \frac{1}{i} \frac{d}{dr} \Psi \right] = \frac{\hbar}{m} \frac{k_E}{r^2} |A(\theta, \phi)|^2 \\ J_\theta &= \frac{\hbar}{m} \operatorname{Re} \left[\Psi^* \frac{1}{i} \frac{d}{r d\theta} \Psi \right] = \frac{\hbar}{m} \frac{1}{r^3} \operatorname{Re} \left(A(\theta, \phi)^* \frac{1}{i} \frac{d}{d\theta} A(\theta, \phi) \right) \\ J_\phi &= \frac{\hbar}{m} \operatorname{Re} \left[\Psi^* \frac{1}{i} \frac{d}{r \sin(\theta) d\phi} \Psi \right] = \frac{\hbar}{m} \frac{1}{r^3 \sin(\theta)} \operatorname{Re} \left(A(\theta, \phi)^* \frac{1}{i} \frac{d}{d\phi} A(\theta, \phi) \right) \end{aligned}$$

Etant donné que $k_E \gg 1/r$, nous avons $J_r \gg J_\theta, J_\phi$. Physiquement, ce comportement s'explique par la conservation du moment angulaire dans la région III (puisque aucune force n'agit sur l'électron) et par le fait que les électrons proviennent d'une région beaucoup plus petite que les dimensions de l'écran.

3. c'est-à-dire où les fonctions ne varient selon r que par un facteur d'échelle identique pour toutes les valeurs de θ et ϕ .

$$\begin{aligned}
\sigma(\theta, m', j', E) = & -\frac{e^{-ik_E \cos(\theta)D}}{2} \left(\sqrt{k_E^2 - k_{m',j'}^2} + k_E \cos(\theta) \right) \\
& i^{1-m'} \frac{e^{i\sqrt{k_E^2 - k_{m',j'}^2}D}}{\sqrt{2\pi \int_0^R [J_{m'}(k_{m',j'}\rho)]^2 \rho d\rho}} \\
& \int_0^R d\rho \rho J_{m'}(k_{m',j'}\rho) J_{m'}(k_E \sin(\theta)\rho) \quad (3.59)
\end{aligned}$$

Ce dernier coefficient peut se calculer analytiquement grâce aux intégrales de Lommel [97].

Conditions frontières de Dirichlet et de Neumann

Plutôt que supposer connues en $z = D$ à la fois la fonction d'onde et sa dérivée suivant z , on peut n'utiliser qu'une seule de ces grandeurs et laisser l'autre prendre éventuellement des valeurs non nulles en dehors de l'ouverture. On utilise alors les conditions frontières de Dirichlet (quand on utilise la fonction d'onde) ou de Neumann (quand on utilise la dérivée) [100].

Lorsqu'on utilise les conditions frontières de Dirichlet, la fonction de Green à utiliser est donnée par $G_D(\mathbf{r}', \mathbf{r}, E) \stackrel{\mathbf{r}, \mathbf{r}' \in \text{reg. III}}{=} \frac{1}{2}(G(\mathbf{r}', \mathbf{r}, E) - G(\mathbf{r}', I(\mathbf{r}), E))$, où $I(\mathbf{r})$ est l'image miroir de \mathbf{r} par rapport à $z = D$. Cette fonction s'annule en $z = D$.

Lorsqu'on utilise les conditions frontières de Neumann, la fonction de Green à utiliser est donnée par $G_N(\mathbf{r}', \mathbf{r}, E) \stackrel{\mathbf{r}, \mathbf{r}' \in \text{reg. III}}{=} \frac{1}{2}(G(\mathbf{r}', \mathbf{r}, E) + G(\mathbf{r}', I(\mathbf{r}), E))$, dont la dérivée suivant z s'annule en $z = D$.

Ces conditions frontières impliquent une modification des expressions 3.56 et 3.59. On peut montrer que la fonction d'onde obtenue dans l'approximation de Kirchhoff est la moyenne de celles obtenues en utilisant séparément les conditions frontières de Dirichlet et de Neumann. Nous n'avons constaté aucune différence importante entre les résultats associés à chacune de ces conditions frontières.

3.6 Groupes de solutions conjugués

Nous avons déjà signalé la présence de groupes conjugués, dont les indices m qui caractérisent les fonctions de base appartenant à chaque groupe ne diffèrent que par le signe. Nous allons maintenant préciser la correspondance entre ceux-ci.

Revenons sur l'expression des états de base utilisés pour décrire la fonction d'onde en $z = D$:

$$\Psi_{(m,j)}^{III,\pm}(\mathbf{r}) = e^{\pm i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}E - k_{m,j}^2}z} \frac{J_m(k_{m,j}\rho)e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}} \quad (3.60)$$

Etant donné que les valeurs de $k_{m,j}$ utilisées sont celles pour lesquelles $\frac{\hbar^2}{2m}k_{m,j}^2 \leq E$, on montre facilement que le complexe conjugué des états de base vérifie la relation:

$$\Psi_{(m,j)}^{III,\pm}(\mathbf{r})^* = (-1)^m \Psi_{(-m,j)}^{III,\mp}(\mathbf{r}) \quad (3.61)$$

où le $(-1)^m$ provient de la propriété des fonctions de Bessel $J_{-m}(x) = (-1)^m J_m(x)$.

Considérons de même les états de base utilisés dans la région I :

$$\Psi_{(m,j)}^{I,\pm}(\mathbf{r}) = e^{\pm i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E-V_{met})-k_{m,j}^2}z} \frac{J_m(k_{m,j}\rho)e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}} \quad (3.62)$$

où la racine est réelle si $k_{m,j} \leq \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E-V_{met})}$ et imaginaire sinon. Le complexe conjugué de ces états de base vérifie alors la relation :

$$\begin{aligned} \Psi_{(m,j)}^{I,\pm}(\mathbf{r})^* &= (-1)^m \Psi_{(-m,j)}^{I,\mp}(\mathbf{r}) \quad \text{si } k_{m,j} \leq \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E-V_{met})} \\ &= (-1)^m \Psi_{(-m,j)}^{I,\pm}(\mathbf{r}) \quad \text{si } k_{m,j} > \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E-V_{met})} \end{aligned} \quad (3.63)$$

On voit donc que le complexe conjugué des états de base appartenant à un groupe donne (à un facteur multiplicatif près) les états de base appartenant à son groupe conjugué. Or, lorsque le potentiel est réel, le complexe conjugué d'une solution de l'équation de Schrödinger reste solution⁴ ! Cela signifie que le complexe conjugué des solutions $\Psi_{(m,j)}^+$ et $\Psi_{(m,j)}^-$ d'un groupe donne un ensemble de solutions dans son groupe conjugué. A nouveau, ces solutions peuvent être combinées pour les mettre sous la forme souhaitée $\Psi_{(-m,j)}^+$ ou $\Psi_{(-m,j)}^-$. Après avoir calculé les matrices de transfert correspondant à un groupe d'états de base par la méthode donnée en 3.5.2, il est possible de remplacer l'étape de propagation dans le calcul des matrices de transfert de son groupe conjugué en prenant simplement le complexe conjugué des solutions obtenues dans le premier groupe.

Pour trouver la façon d'y parvenir, écrivons les solutions 3.41 et 3.42 du premier groupe sous la forme :

$$\begin{aligned} (\dots, \Psi_{(m,j)}^+, \dots) &\stackrel{z \leq 0}{\equiv} (\dots \Psi_{(m,j)}^{I,+} \dots \Psi_{(m,j)}^{I,-} \dots) \begin{pmatrix} \mathbf{I} \\ \mathbf{t}^{+-} \end{pmatrix} \\ &\stackrel{z \equiv D}{\equiv} (\dots \Psi_{(m,j)}^{III,+} \dots \Psi_{(m,j)}^{III,-} \dots) \begin{pmatrix} \mathbf{t}^{++} \\ \mathbf{0} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (3.64)$$

$$\begin{aligned} (\dots, \Psi_{(m,j)}^-, \dots) &\stackrel{z \leq 0}{\equiv} (\dots \Psi_{(m,j)}^{I,+} \dots \Psi_{(m,j)}^{I,-} \dots) \begin{pmatrix} \mathbf{0} \\ \mathbf{t}^{--} \end{pmatrix} \\ &\stackrel{z \equiv D}{\equiv} (\dots \Psi_{(m,j)}^{III,+} \dots \Psi_{(m,j)}^{III,-} \dots) \begin{pmatrix} \mathbf{t}^{+-} \\ \mathbf{I} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (3.65)$$

4. En effet, Ψ est solution de l'équation de Schrödinger si :

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 \Psi(\mathbf{r}) + V(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{r}) = E\Psi(\mathbf{r})$$

Comme Ψ est le seul élément complexe, le complexe conjugué de cette équation donne :

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 \Psi(\mathbf{r})^* + V(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{r})^* = E\Psi(\mathbf{r})^*$$

qui montre que Ψ^* est solution aussi.

Prenons le complexe conjugué de ces deux relations et écrivons le résultat dans la représentation du groupe conjugué :

$$\begin{aligned} (\dots, \Psi_{(m,j)}^{+*}, \dots) &\stackrel{z \leq 0}{\equiv} (\dots \Psi_{(-m,j)}^{I,+} \dots \Psi_{(-m,j)}^{I,-} \dots) \begin{pmatrix} \mathbf{S}(\mathbf{I} - \mathbf{P}) & \mathbf{SP} \\ \mathbf{SP} & \mathbf{S}(\mathbf{I} - \mathbf{P}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{I} \\ \mathbf{t}^{-+*} \end{pmatrix} \\ &\stackrel{z = D}{\equiv} (\dots \Psi_{(-m,j)}^{III,+} \dots \Psi_{(-m,j)}^{III,-} \dots) \begin{pmatrix} \mathbf{0} & \mathbf{S} \\ \mathbf{S} & \mathbf{0} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{t}^{++*} \\ \mathbf{0} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (3.66)$$

$$\begin{aligned} (\dots, \Psi_{(m,j)}^{-*}, \dots) &\stackrel{z \leq 0}{\equiv} (\dots \Psi_{(-m,j)}^{I,+} \dots \Psi_{(-m,j)}^{I,-} \dots) \begin{pmatrix} \mathbf{S}(\mathbf{I} - \mathbf{P}) & \mathbf{SP} \\ \mathbf{SP} & \mathbf{S}(\mathbf{I} - \mathbf{P}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{0} \\ \mathbf{t}^{--*} \end{pmatrix} \\ &\stackrel{z = D}{\equiv} (\dots \Psi_{(-m,j)}^{III,+} \dots \Psi_{(-m,j)}^{III,-} \dots) \begin{pmatrix} \mathbf{0} & \mathbf{S} \\ \mathbf{S} & \mathbf{0} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{t}^{+-*} \\ \mathbf{I} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (3.67)$$

où \mathbf{S} est une matrice diagonale qui contient les signes $(-1)^m$ et définie par :

$$S_{(m',j'),(m,j)} = \begin{cases} (-1)^m & \text{si } (m',j') = (m,j) \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (3.68)$$

et \mathbf{P} est une matrice diagonale qui décrit les permutations dans le sens de propagation des états et définie par :

$$P_{(m',j'),(m,j)} = \begin{cases} 1 & \text{si } (m',j') = (m,j) \text{ et } k_{m,j} \leq \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E - V_{met})} \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (3.69)$$

Pour trouver les deux premières matrices de transfert du groupe conjugué (que nous noterons avec des majuscules), il faut multiplier par la droite les relations 3.66 et 3.67 par deux matrices \mathbf{A} et \mathbf{B} afin de trouver une solution de la forme :

$$\begin{aligned} (\dots, \Psi_{(-m,j)}^+, \dots) &\stackrel{z \leq 0}{\equiv} (\dots \Psi_{(-m,j)}^{I,+} \dots \Psi_{(-m,j)}^{I,-} \dots) \begin{pmatrix} \mathbf{I} \\ \mathbf{T}^{-+} \end{pmatrix} \\ &\stackrel{z = D}{\equiv} (\dots \Psi_{(-m,j)}^{III,+} \dots \Psi_{(-m,j)}^{III,-} \dots) \begin{pmatrix} \mathbf{T}^{++} \\ \mathbf{0} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (3.70)$$

On obtient alors un système de quatre équations, dont deux servent à déterminer les matrices \mathbf{A} et \mathbf{B} et les deux autres à exprimer \mathbf{T}^{++} et \mathbf{T}^{-+} . Le résultat est donné par :

$$\mathbf{T}^{++} = \mathbf{S}(\mathbf{t}^{+-})^{*-1}(\mathbf{t}^{++})^* \left[\mathbf{P}(\mathbf{t}^{--})^*(\mathbf{t}^{+-})^{*-1}(\mathbf{t}^{++})^* - [(\mathbf{I} - \mathbf{P}) + \mathbf{P}(\mathbf{t}^{-+})^*] \right]^{-1} \mathbf{S} \quad (3.71)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{T}^{-+} &= \mathbf{S} \left[(\mathbf{I} - \mathbf{P})(\mathbf{t}^{--})^*(\mathbf{t}^{+-})^{*-1}(\mathbf{t}^{++})^* - [\mathbf{P} + (\mathbf{I} - \mathbf{P})(\mathbf{t}^{-+})^*] \right] \\ &\quad \left[\mathbf{P}(\mathbf{t}^{--})^*(\mathbf{t}^{+-})^{*-1}(\mathbf{t}^{++})^* - [(\mathbf{I} - \mathbf{P}) + \mathbf{P}(\mathbf{t}^{-+})^*] \right]^{-1} \mathbf{S} \end{aligned} \quad (3.72)$$

Les deux autres matrices de transfert du groupe conjugué s'obtiennent d'une manière similaire en mettant les relations 3.66 et 3.67 sous la forme :

$$\begin{aligned} (\dots, \Psi_{(-m,j)}^-, \dots) &\stackrel{z \leq 0}{\equiv} (\dots \Psi_{(-m,j)}^{I,+} \dots \Psi_{(-m,j)}^{I,-} \dots) \begin{pmatrix} \mathbf{0} \\ \mathbf{T}^{--} \end{pmatrix} \\ &\stackrel{z = D}{\equiv} (\dots \Psi_{(-m,j)}^{III,+} \dots \Psi_{(-m,j)}^{III,-} \dots) \begin{pmatrix} \mathbf{T}^{+-} \\ \mathbf{I} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (3.73)$$

Le résultat est donné par :

$$\mathbf{T}^{+-} = \mathbf{S} \left[(\mathbf{t}^{+-})^* - (\mathbf{t}^{++})^* [(\mathbf{I} - \mathbf{P}) + \mathbf{P}(\mathbf{t}^{-+})^*]^{-1} \mathbf{P}(\mathbf{t}^{--})^* \right]^{-1} \mathbf{S} \quad (3.74)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{T}^{--} = \mathbf{S} & \left[(\mathbf{I} - \mathbf{P})(\mathbf{t}^{--})^* - [\mathbf{P} + (\mathbf{I} - \mathbf{P})(\mathbf{t}^{-+})^*] [(\mathbf{I} - \mathbf{P}) + \mathbf{P}(\mathbf{t}^{-+})^*]^{-1} \mathbf{P}(\mathbf{t}^{--})^* \right] \\ & \left[(\mathbf{t}^{+-})^* - (\mathbf{t}^{++})^* [(\mathbf{I} - \mathbf{P}) + \mathbf{P}(\mathbf{t}^{-+})^*]^{-1} \mathbf{P}(\mathbf{t}^{--})^* \right]^{-1} \mathbf{S} \end{aligned} \quad (3.75)$$

Ces quatre relations sont écrites sous une forme qui implique uniquement l'inversion des matrices \mathbf{t}^{+-} et \mathbf{t}^{-+} . Ces matrices sont en effet très bien conditionnées car elles expriment la réflexion des états incidents devant la barrière de potentiel dans la région II. Leurs valeurs sont donc soit très proches de 1 si l'énergie normale $E - \frac{\hbar^2}{2m} k_{m,j}^2$ de l'état incident est plus petite que la hauteur de la barrière ou proches de 0 dans le cas contraire. Les matrices \mathbf{t}^{++} et \mathbf{t}^{--} qui expriment la transmission des états incidents à travers la barrière de potentiel dans la région II sont quant à elles très mal conditionnées. Leurs valeurs varient en effet sur plusieurs ordres de grandeurs, étant donné la dépendance exponentielle du taux de transmission par rapport à l'énergie normale des états incidents.

L'application de ces relations demande une fraction de seconde, tandis que le passage par un calcul de propagation peut demander plusieurs heures. Pour un axe central d'ordre n , il existe $n - 1$ groupes conjugués si n est impair (on doit exclure le groupe contenant $m = 0$) et $n - 2$ groupes conjugués si n est pair (on doit exclure en plus le groupe contenant $m = n/2$). Comme le temps de calcul est divisé par 2 pour ces groupes conjugués, le traitement des n groupes ne demande plus que $\frac{1}{2} \frac{n-1}{n}$ (pour n impair) ou $\frac{1}{2} \frac{n-2}{n}$ (pour n pair) du temps de calcul initial. Pour n grand, les calculs peuvent se faire en 2 fois moins de temps. Rappelons cependant que ces relations ne sont applicables que lorsque le potentiel est réel.

3.7 Calcul de la densité de courant totale

Nous disposons à ce stade de toute la technique nécessaire pour calculer la diffusion jusqu'à l'écran de tous les états incidents possibles dans le métal. La densité de courant que nous observons à l'écran est due à la contribution de tous les électrons incidents dans le métal qui parviennent jusque là. Chacun des états de base est représentatif d'une partie de ces électrons. Mais nous ne savons pas encore de combien, ni comment tenir compte de toutes ces contributions. Cette section est consacrée à ces questions.

3.7.1 Densité d'états

Commençons par répondre à la question : de combien d'électrons chaque état de base est-il représentatif ? En fait cette question en appelle deux, la première étant : combien d'électrons chaque état peut-il contenir relativement aux autres ? La seconde question qu'il

faut se poser est alors : combien d'électrons répartir dans ces états de base? Traitons ici la première sous-question.

Considérons un espace restreint de longueur L . Nous savons que les seules longueurs d'onde λ permises pour une onde dans cet espace sont celles pour lesquelles la longueur L est un multiple entier de cette longueur d'onde : $L = i\lambda$. Le vecteur d'onde $k = 2\pi/\lambda$ associé à chaque longueur d'onde permise vérifie donc : $k = i\frac{2\pi}{L}$. Nous voyons qu'une valeur pour le vecteur d'onde est possible tous les $\frac{2\pi}{L}$ pour chaque dimension de longueur L . Le principe de Pauli nous apprend que deux électrons ne peuvent être caractérisés par les mêmes nombres quantiques. Le raisonnement ici ne tient pas compte du spin qui peut prendre deux valeurs différentes. Dans un métal, les électrons vont donc se répartir à raison de 2 par intervalle $\frac{2\pi}{L}$ en remplissant au fur et à mesure les états disponibles d'énergie la plus faible (du moins à 0 Kelvin). Ils se répartissent ainsi sur une gamme d'énergie qui est l'énergie de Fermi E_F .

Considérons maintenant nos états de base dans le volume du métal :

$$\Psi_{(m,j)}^{I,\pm}(\mathbf{r}) = e^{\pm i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E-V_{met})-k_{m,j}^2}z} \frac{J_m(k_{m,j}\rho)e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho\rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}} \quad (3.76)$$

Ces états sont déjà quantifiés selon les deux dimensions associées à ρ et ϕ . Le vecteur d'onde associé à la direction z est pour chaque état $\Psi_{(m,j)}^{I,\pm}$ d'énergie E donné par $k_{z(m,j)} = \pm\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E-V_{met})-k_{m,j}^2}$. Dans le corps du métal (c'est-à-dire infiniment loin de toute surface), on ne peut trouver que des états de base pour lesquels le vecteur d'onde k_z est réel (les autres donnant des solutions explosives physiquement inacceptables ou évanescents à partir d'une surface dont nous sommes suffisamment éloignés).

Pour estimer la capacité de chaque état à contenir des solutions, considérons un instant une portion isolée de longueur L suivant z dans le corps métallique. Comptons le nombre d'états disponibles dans ce cylindre, sur tous les niveaux d'énergie occupés entre V_{met} et E .

Le vecteur d'onde $k_{z(m,j)}$ associé à chaque état de base $\Psi_{(m,j)}^{I,\pm}$ peut varier entre 0 et $\pm\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E-V_{met})-k_{m,j}^2}$ sur l'intervalle d'énergie considéré $[V_{met}, E]$. Le nombre de solutions permises sur cet intervalle est donc :

$$N_{(m,j)}^{\pm}(E) = 2\frac{L}{2\pi}\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E-V_{met})-k_{m,j}^2} \quad (3.77)$$

où le facteur 2 tient compte des deux valeurs de spin. Le nombre d'états correspondant par unité de volume dans le métal est donc :

$$\mathcal{N}_{(m,j)}^{\pm}(E) = \frac{1}{\pi R^2 L} 2\frac{L}{2\pi}\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E-V_{met})-k_{m,j}^2} \quad (3.78)$$

On peut encore exprimer ces grandeurs comme :

$$\mathcal{N}_{(m,j)}^{\pm}(E) = \int_{V_{met}}^E \mathcal{D}_{(m,j)}^{\pm}(E')dE' \quad (3.79)$$

où $\mathcal{D}_{(m,j)}^{\pm}(E)$ est la *densité d'états* associée à chaque état de base $\Psi_{(m,j)}^{I,\pm}$ et finalement donnée par :

$$\mathcal{D}_{(m,j)}^{\pm}(E) = \begin{cases} \frac{m}{\pi^2 \hbar^2 R^2} \frac{1}{\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E - V_{met}) - k_{m,j}^2}} & \text{si } k_{m,j} \leq \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E - V_{met})} \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (3.80)$$

3.7.2 Normalisation des états de base

Les états électroniques dans notre modèle sont caractérisés par trois nombres quantiques m, j, E (plus le spin). Les densités d'états $\mathcal{D}_{(m,j)}^{\pm}(E)$ expriment la capacité de chaque fonction de base $\frac{J_m(k_{m,j}\rho)e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}}$ caractérisée par deux indices m, j à contenir des solutions permises selon le troisième indice E .

Chaque état de base correspondant à des valeurs permises de m, j, E donne la même probabilité de trouver un électron dans une section donnée du métal. En effet, les états de base $\Psi_{(m,j)}^{I,\pm}$ sont construits de telle sorte que l'intégrale $\int_{\Delta z} dz \int_0^R d\rho \int_0^{2\pi} \rho d\phi \left| \Psi_{(m,j)}^{I,\pm} \right|^2$ soit identique pour toutes les valeurs de m, j et E permises. Chaque état de base caractérisé par ces valeurs est donc représentatif du même nombre d'électrons dans le métal.

Il nous reste maintenant à répartir les électrons réellement présents dans le métal parmi ces différents états de base et donc à déterminer précisément de combien d'électrons dans le métal chaque état est représentatif.

Dans un métal d'électrons libres, les électrons se répartissent dans l'espace réciproque en occupant tous les états permis dans une sphère dont le rayon est le vecteur d'onde de Fermi $k_F = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} E_F}$. Pour un métal de volume L^3 , le nombre d'états permis dans cette sphère est donc $2 \frac{L^3}{(2\pi)^3} \frac{4}{3} \pi k_F^3$ et le nombre d'électrons par unité de volume $n_e = \frac{1}{3(\pi)^2} k_F^3$.

Il faut donc faire en sorte que chaque état de base soit représentatif du nombre d'électrons par unité de volume adéquat pour que les contributions de tous les états fournissent la valeur réelle n_e . Changer le nombre d'électrons par unité de volume dont chaque état est représentatif peut se faire facilement en renormalisant les fonctions de base, c'est-à-dire en les multipliant par un facteur commun A de manière à reproduire n_e .

La densité électronique dans notre modèle est donnée (en tenant compte du facteur de renormalisation A) par :

$$\begin{aligned} n(\mathbf{r}) &= \int_{V_{met}}^{V_{met}+E_F} dE \sum_{m,j} \left(\mathcal{D}_{m,j}^+(E) \left| A \Psi_{(m,j)}^{I,+}(\mathbf{r}) \right|^2 + \mathcal{D}_{m,j}^-(E) \left| A \Psi_{(m,j)}^{I,-}(\mathbf{r}) \right|^2 \right) \\ &= \int_{V_{met}}^{V_{met}+E_F} dE \sum_{m,j} \frac{2m}{(\pi \hbar R)^2} \frac{1}{\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E - V_{met}) - k_{m,j}^2}} \frac{A^2 [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}{2\pi \int_0^R d\rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \end{aligned} \quad (3.81)$$

Cette expression est plus facile à évaluer en $\mathbf{r} = \mathbf{0}$, où seule la contribution de $m = 0$

subsiste :

$$n(\mathbf{0}) = A^2 \int_{V_{met}}^{V_{met}+E_F} dE \sum_j \frac{2m}{(\pi\hbar R)^2} \frac{1}{\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E - V_{met}) - k_{0,j}^2}} \frac{1}{2\pi \int_0^R d\rho [J_0(k_{0,j}\rho)]^2} \quad (3.82)$$

Il suffit donc de prendre la valeur de A qui satisfait :

$$n(\mathbf{0}) = n_e \quad (3.83)$$

et de l'inclure dans les fonctions de base.

3.7.3 Incohérence entre états incidents

Nous sommes presque prêts à calculer une densité de courant sur l'écran. Il reste un dernier point à éclaircir : quelle relation de phase existe-t-il entre les différents états incidents ? Cette question est importante. C'est en effet l'existence d'une phase définie entre les deux fentes de l'expérience de Young qui est responsable en fin de compte de la figure d'interférence. Qu'en est-il dans notre situation ?

La réponse à cette question est qu'aucune relation de phase particulière ne doit être considérée entre les différents états incidents. Ceux-ci proviennent du fond du métal et ont perdu toute relation de phase particulière avant d'arriver à la surface en $z = 0$. L'arrivée de chaque état peut être considérée comme une expérience indépendante de l'arrivée des autres états. Il en découle que la probabilité d'observer un électron à l'écran suite à l'arrivée simultanée des divers états de base coïncide avec la somme des probabilités associées à l'arrivée d'un seul état de base à la fois. Les états incidents sont *incohérents* les uns par rapport aux autres.

3.7.4 Expression de la densité de courant totale

Nous avons donc établi un ensemble de solutions $\Psi_{(m,j)}^+$. A chacune de ces solutions est associée une densité de probabilité

$$n_{(m,j)}^+(\mathbf{r}) = |\Psi_{(m,j)}^+(\mathbf{r})|^2 \quad (3.84)$$

ainsi qu'une densité de courant :

$$\mathbf{J}_{(m,j)}^+(\mathbf{r}) = \frac{1}{m} \text{Re} \left[\Psi_{(m,j)}^+(\mathbf{r})^* \frac{\hbar}{i} \nabla \Psi_{(m,j)}^+(\mathbf{r}) \right] \quad (3.85)$$

Ces quantités doivent être calculées en utilisant l'expression de $\Psi_{(m,j)}^+$ donnée en 3.41 (si l'on souhaite des valeurs en $z = D$ ou en $z \leq 0$) ou en 3.58 (si l'on souhaite des valeurs à l'écran). La forme relativement simple des fonctions de base utilisées permet un calcul analytique.

Les solutions $\Psi_{(m,j)}^+$ ont été établies en travaillant avec une valeur donnée de l'énergie E . La densité de probabilité et la densité de courant que l'on obtient en considérant l'ensemble

de ces solutions sont donc celles qui correspondent à cette valeur particulière de l'énergie. Compte tenu de l'incohérence entre états incidents, elles sont données par :

$$n^E(\mathbf{r}) = \sum_{m,j} \mathcal{D}_{(m,j)}^+ n_{(m,j)}^+(\mathbf{r}) \quad (3.86)$$

$$\mathbf{J}^E(\mathbf{r}) = \sum_{m,j} \mathcal{D}_{(m,j)}^+ \mathbf{J}_{(m,j)}^+(\mathbf{r}) \quad (3.87)$$

Il est alors nécessaire de recommencer tous les calculs en considérant d'autres valeurs de l'énergie E pour obtenir les densités de probabilité et de courant électrique totales :

$$n(\mathbf{r}) = \int_{V_{met}}^{V_{met}+E_F} n^E(\mathbf{r}) dE \quad (3.88)$$

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}) = (-e) \int_{V_{met}}^{V_{met}+E_F} \mathbf{J}^E(\mathbf{r}) dE \quad (3.89)$$

où $(-e)$ dans la dernière relation est la charge de l'électron.

Terminons par un commentaire sur l'hypothèse du cylindre de rayon R . Nous avons posé son existence dans l'espace $z \leq D$. Cela limite la validité du développement 3.12 à cette région. Les valeurs de densité de courant que l'on peut obtenir dans la région III sont donc situées soit en $z = D$ soit à l'écran. Il est possible toutefois d'obtenir des résultats significatifs dans le voisinage immédiat de $z = D$ en prolongeant l'expression 3.12 dans la région III. Il faut garder à l'esprit en faisant cela que ce développement de la fonction d'onde implique l'existence d'un mur cylindrique en $\rho = R$. Pour une distance à la grille trop importante dans la région III, le faisceau électronique finit par rencontrer ce mur. Une réflexion du faisceau se produit et le résultat cesse d'être significatif.

3.8 Calcul du courant total

La méthode développée jusqu'ici permet un calcul de la distribution spatiale de la densité de courant. C'est évidemment le but à atteindre pour une simulation des images obtenues en microscopie à projection. Dans certaines applications, on est parfois intéressé de connaître simplement le courant total extrait d'une source électronique quelconque et de caractériser sa dépendance par rapport à l'énergie. Notre méthode permet de simuler cela.

Une fois les électrons dans la région III, ils se propagent vers l'écran et n'ont plus jamais l'occasion de revenir en arrière. On peut donc calculer le courant extrait en $z = D$, où la contribution due à la solution $\Psi_{(m,j)}^+$ pour l'énergie E est donnée par :

$$\begin{aligned} I_{(m,j)} &= \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^R d\rho \rho J_{z(m,j)}^+(\rho, \phi, D) \\ &= \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^R d\rho \rho \frac{1}{m} \operatorname{Re} \left[\Psi_{(m,j)}^+(\rho, \phi, D)^* \frac{\hbar}{i} \frac{d}{dz} \Psi_{(m,j)}^+(\rho, \phi, D) \right] \end{aligned} \quad (3.90)$$

Il suffit alors d'introduire l'expression de $\Psi_{(m,j)}^+(\rho, \phi, D)$ qui est :

$$\Psi_{(m,j)}^+(\rho, \phi, D) = \sum_{m', j'} t_{(m', j'), (m, j)}^{++} e^{i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}E - k_{m', j'}^2}D} \frac{AJ_{m'}(k_{m', j'}\rho)e^{im'\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho\rho [J_{m'}(k_{m', j'}\rho)]^2}} \quad (3.91)$$

Les calculs se font analytiquement et fournissent le résultat simple suivant :

$$I_{(m,j)} = \frac{\hbar A^2}{m} \sum_{m', j'} |t_{(m', j'), (m, j)}^{++}|^2 \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}E - k_{m', j'}^2} \quad (3.92)$$

où la dépendance en z a complètement disparu, ce qui est logique suite aux commentaires faits en début de cette section.

Le courant extrait correspondant à tous les électrons d'énergie E est donné par :

$$I^E = \sum_{m, j} \mathcal{D}_{(m, j)}^+(E) I_{(m, j)} \quad (3.93)$$

et le courant électrique total par :

$$I = (-e) \int_{V_{met}}^{V_{met} + E_F} I^E dE \quad (3.94)$$

On voit donc qu'une fois les matrices de transfert calculées, le calcul du courant extrait est quasi immédiat.

3.9 Cohérence et incohérence

Nous avons donc établi une théorie qui permet le calcul d'une densité de courant. Cette théorie a été écrite en travaillant dans une base utilisant les coordonnées cylindriques. La question que nous pouvons nous poser maintenant est la suivante: le résultat est-il le même que si nous avons travaillé dans une autre représentation, une base d'ondes planes par exemple?

On est trop rapidement tenté de répondre par oui. Si on se souvient de l'hypothèse d'incohérence entre états incidents, la réponse à cette question devient moins évidente. En effet, chaque état de base cylindrique peut être décomposé en somme (cohérente) d'ondes planes. De même chaque onde plane peut s'écrire comme somme (cohérente) d'états de base cylindriques. Dans les sections précédentes, nous avons envoyé un ensemble incohérent d'états de base cylindriques. Il n'est pas du tout évident a priori qu'envoyer de manière incohérente des groupes cohérents (les ondes planes) de ces mêmes états de base cylindriques donne le même résultat.

Pour clarifier le problème et en même temps le résoudre, considérons le développement d'une onde plane en coordonnées cylindriques :

$$e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} e^{im(\frac{\pi}{2} - \phi_k)} \left(e^{ik_z z} J_m(k_{//}\rho) e^{im\phi} \right) \quad (3.95)$$

où $\mathbf{k} = (k_{//}, \phi_k, k_z)$ est le vecteur d'onde associé. Travailler avec une base d'ondes planes n'a de sens que dans un espace infini. Afin de comparer les résultats obtenus dans une représentation par ondes planes et par fonctions cylindriques, nous devons nous placer dans le même contexte et supposer que la base d'ondes cylindriques décrit également un espace infini. Nous reconnaissons alors dans les parenthèses de cette expression les états de base cylindriques correspondant à un espace non restreint.

Pour une énergie E , les états incidents dans une représentation en ondes planes sont décrits par les indices $k_{//}$ et ϕ_k , tandis qu'en ondes cylindriques les indices $k_{//}$ et m sont utilisés. La notation des états incidents ne diffère donc que par un indice.

Intéressons-nous donc à la densité de probabilité correspondant à une valeur donnée de l'indice commun $k_{//}$. En représentation d'ondes planes, cette intensité est due à la contribution (incohérente) de toutes les valeurs de ϕ_k , tandis qu'en représentation d'ondes cylindriques elle est due à la contribution (incohérente) de toutes les valeurs de m . En représentation d'ondes planes, cette densité de probabilité est donnée par :

$$n_{k_{//}}^+ = \int_0^{2\pi} d\phi_k \mathcal{D}_{k_{//}}^+ \left| \Psi_{k_{//}, \phi_k}^+ \right|^2 \quad (3.96)$$

où $\mathcal{D}_{k_{//}}^+$ est la densité d'état (qui ne dépend que de la valeur de $k_{//}$). Etant donné que chaque onde plane incidente peut être considérée comme une combinaison linéaire d'ondes cylindriques (avec $e^{im(\frac{\pi}{2} - \phi_k)}$ les coefficients du développement), la linéarité de l'équation de Schrödinger nous permet d'écrire ce dernier résultat en fonction des solutions obtenues avec une base d'ondes cylindriques :

$$n_{k_{//}}^+ = \int_0^{2\pi} d\phi_k \mathcal{D}_{k_{//}}^+ \left| \sum_{m=-\infty}^{+\infty} e^{im(\frac{\pi}{2} - \phi_k)} \Psi_{m, k_{//}}^+ \right|^2 \quad (3.97)$$

Ce résultat se transforme alors comme :

$$\begin{aligned} n_{k_{//}}^+ &= \mathcal{D}_{k_{//}}^+ \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \sum_{m'=-\infty}^{+\infty} \int_0^{2\pi} d\phi_k e^{i(m-m')(\frac{\pi}{2} - \phi_k)} \Psi_{m, k_{//}}^+ \Psi_{m', k_{//}}^{+*} \\ &= 2\pi \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \mathcal{D}_{k_{//}}^+ \left| \Psi_{m, k_{//}}^+ \right|^2 \end{aligned} \quad (3.98)$$

Cette dernière expression coïncide avec celle que l'on aurait utilisé pour calculer la densité de probabilité $n_{k_{//}}^+$ correspondant à tous les états incidents de vecteur d'onde parallèle $k_{//}$ dans une représentation par ondes cylindriques. Les deux approches sont donc équivalentes.

3.10 Lien avec la théorie des groupes

La théorie que nous avons développée exploite la présence d'un axe de symétrie central d'ordre n . Nous avons constaté en manipulant l'équation de Schrödinger l'existence de n groupes de fonctions de base indépendants. La symétrie posée dans ce problème est un cas particulier de toutes les symétries traitées par une autre théorie, la théorie des groupes. Quel lien existe-t-il entre cette théorie et la nôtre?

L'existence d'un axe central d'ordre n correspond dans la théorie des groupes à l'existence d'un opérateur de rotation \hat{C}_n . Le groupe de symétrie correspondant est noté \mathbf{C}_n et contient les n opérateurs $\{\hat{E}, \hat{C}_n, \hat{C}_n^2, \dots, \hat{C}_n^{n-1}\}$. Etant donné que ces opérateurs commutent entre eux, le groupe \mathbf{C}_n est abélien et il existe n classes C_n^i (avec C_n^0 noté E) qui correspondent à chacun de ces opérateurs. Il existe donc également n représentations inéquivalentes irréductibles du groupe.

Dans notre théorie, nous avons n groupes de fonctions de base indépendants que nous noterons avec un indice $m_0 = 0, 1, \dots, n-1$ de la façon suivante: $\{ \langle \rho, \phi | m_0 + q.n, j \rangle \}_{q \in \mathbf{Z}}$. Chacun de ces groupes de fonctions constitue une représentation du groupe \mathbf{C}_n . En effet, dans un mode passif où les opérateurs agissent sur un système de coordonnées droitier (ou dans un mode actif où les opérateurs agissent sur la situation physique décrite dans un système gaucher), on vérifie pour chaque fonction du groupe m_0 que :

$$\begin{aligned}
 \langle \rho, \phi | \hat{C}_n^i | m_0 + q.n, j \rangle &= \langle (\hat{C}_n^i)^{-1}(\rho, \phi) | m_0 + q.n, j \rangle \\
 &= \frac{J_m(k_{m,j}\rho) e^{i(m_0+q.n)(\phi + \frac{2\pi}{n}i)}}{\sqrt{2\pi} \int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \\
 &= \omega_{m_0}^i \langle \rho, \phi | m_0 + q.n, j \rangle
 \end{aligned} \tag{3.99}$$

avec $\omega_{m_0} = e^{im_0 \frac{2\pi}{n}}$ une des n racines $n^{\text{ièmes}}$ de l'unité.

Chaque groupe de fonctions de base caractérisé par l'indice m_0 représente la classe C_n^i par le nombre complexe $\omega_{m_0}^i$ qui est le caractère $\chi^{m_0}(C_n^i)$ de la représentation. Notre représentation est ainsi résumée par la table de caractères suivante :

\mathbf{C}_n	E	C_n	C_n^2	\dots	C_n^{n-1}
groupe 0	1	1	1	\dots	1
groupe 1	1	ω_1^1	ω_1^2	\dots	ω_1^{n-1}
\vdots					
groupe $n-1$	1	ω_{n-1}^1	ω_{n-1}^2	\dots	ω_{n-1}^{n-1}

On reconnaît la table de caractères correspondant aux représentations inéquivalentes irréductibles du groupe \mathbf{C}_n . Elles sont en effet inéquivalentes puisque l'ensemble des caractères associé à chaque groupe m_0 diffère de celui des autres groupes. Elles sont irréductibles puisque les caractères sous E valent tous 1.

Par ailleurs, on peut s'assurer de l'orthogonalité entre les lignes de la table de caractères en vérifiant la relation :

$$\sum_{i=0}^{n-1} \chi^{m_0}(C_n^i)^* \chi^{m'_0}(C_n^i) = g \delta_{m_0, m'_0} \quad (3.100)$$

avec l'ordre du groupe $g = n$, ainsi que l'orthogonalité entre colonnes par :

$$\sum_{m_0=0}^{n-1} \chi^{m_0}(C_n^i)^* \chi^{m_0}(C_n^{i'}) = \frac{g}{N_i} \delta_{i, i'} \quad (3.101)$$

où N_i est le nombre d'opérateurs dans la classe C_n^i qui vaut ici 1.

Nos groupes de fonctions de base correspondent donc chacune à une des représentations inéquivalentes irréductibles du groupe \mathbf{C}_n . Le groupe qui contient l'indice $m = 0$ correspond à la représentation habituellement notée A . Lorsque n est pair, le groupe qui contient l'indice $n/2$ correspond à la représentation notée B . Enfin, les autres groupes, qui comme nous l'avons vu, se présentent par paires de groupes conjugués, sont habituellement rassemblées dans la table de caractères par paires notées E .

Ceci termine la présentation de notre théorie de diffusion correspondant à un potentiel réel. Nous reviendrons au chapitre 6 sur la méthodologie des matrices de transfert. Nous verrons comment étendre cette méthodologie au traitement des matrices rectangulaires et comment contrôler les instabilités inhérentes à cette technique. Les deux chapitres suivants constituent une extension de ce chapitre au traitement des potentiels complexes et des champs magnétiques.

Chapitre 4

Théorie de diffusion électronique par un potentiel complexe

4.1 Introduction

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, l'observation de fibres de carbone conduit à leur classification en deux familles : les fibres dites transparentes et les fibres opaques.

Les premières apparaissent brillantes à l'écran. Elles ont typiquement un diamètre de l'ordre du nanomètre. Le champ électrique entourant ces fibres joue un rôle important dans l'aspect de l'image, en attirant les électrons par effet de sucking-in.

Les fibres opaques apparaissent au contraire noires à l'écran et correspondent donc mieux à ce que l'on attend d'une microscopie à projection. Leur diamètre est typiquement supérieur à 2 nm.

L'origine de cette distinction est attribuée dans la littérature à l'absorption des électrons dans le matériau de la fibre. Cette absorption est d'autant plus importante que la fibre est épaisse.

Notre modèle a supposé jusque maintenant une distribution d'énergie potentielle réelle. Il résulte de cette hypothèse que la densité de courant vérifie l'équation de continuité et que les électrons ne peuvent donc pas disparaître. Comme nous allons le voir dans la section suivante, l'introduction d'une partie imaginaire dans l'énergie potentielle permet de reproduire cette absorption.

4.2 Potentiel complexe et absorption

Pour comprendre ce qui se passe lorsque l'énergie potentielle prend une partie imaginaire, commençons par regarder l'équation de Schrödinger :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dz^2} + V(z,t) \right] \Psi(z,t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(z,t) \quad (4.1)$$

où nous avons pris une seule dimension z .

Lorsque l'énergie potentielle ne dépend pas du temps, on peut séparer la dépendance spatiale et temporelle de la fonction d'onde en écrivant :

$$\Psi(z,t) = \Psi(z)\Psi(t) \quad (4.2)$$

L'équation de Schrödinger se résout donc en deux parties :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dz^2} + V(z) \right] \Psi(z) = E\Psi(z) \quad (4.3)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(t) = E\Psi(t) \quad (4.4)$$

où l'énergie E apparaît ici comme une constante de séparation.

La deuxième équation est triviale à résoudre et fournit le résultat suivant :

$$\Psi(t) = e^{-i\frac{E}{\hbar}t} \quad (4.5)$$

Lorsque l'énergie potentielle prend la valeur constante $V < E$, la première équation fournit le résultat général :

$$\Psi(z) = Ae^{ikz} + Be^{-ikz} \quad (4.6)$$

avec $k = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E - V)}$, de sorte que la fonction d'onde totale est donnée par :

$$\Psi(z,t) = Ae^{i(kz - \frac{E}{\hbar}t)} + Be^{i(-kz - \frac{E}{\hbar}t)} \quad (4.7)$$

Il est facile de se rendre compte que la première partie de la solution décrit une onde qui se propage vers la droite (dans le sens des z croissants) et la deuxième partie une onde qui se propage vers la gauche. Aucune absorption n'est présente.

Regardons maintenant ce qui arrive lorsqu'on ajoute une partie imaginaire négative à l'énergie potentielle. Restons dans le cas où la partie réelle de l'énergie potentielle prend une valeur constante V_r et notons la partie imaginaire négative $V_i(\mathbf{r}) = -V_i$.

L'équation à résoudre est alors la suivante :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dz^2} + (V_r - iV_i) \right] \Psi(z,t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(z,t) \quad (4.8)$$

Cette équation peut à nouveau se résoudre par séparation de variables. Deux manières de faire sont possibles, suivant l'expression de la constante de séparation. Commençons par le cas le plus simple et prenons comme constante de séparation $E - iV_i$. L'équation à résoudre se met alors sous la forme :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dz^2} + V_r \right] \Psi(z) = (E - iV_i)\Psi(z) \quad (4.9)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(t) = (E - iV_i)\Psi(t) \quad (4.10)$$

où la première équation prend une forme identique à celle correspondant à l'énergie potentielle purement réelle. La deuxième équation fournit le nouveau résultat :

$$\Psi(t) = e^{-i\frac{E}{\hbar}t} e^{-\frac{V_i}{\hbar}t} \quad (4.11)$$

et la fonction d'onde totale se met sous la forme :

$$\Psi(z,t) = \left(A e^{i(kz - \frac{E}{\hbar}t)} + B e^{i(-kz - \frac{E}{\hbar}t)} \right) e^{-\frac{V_i}{\hbar}t} \quad (4.12)$$

avec $k = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E - V_r)}$.

On a toujours deux ondes se propageant dans des sens opposés, mais cette fois-ci la fonction d'onde disparaît au cours du temps à cause du facteur $e^{-\frac{V_i}{\hbar}t}$. La probabilité de trouver l'électron varie dans le temps comme :

$$|\Psi(z,t)|^2 \sim e^{-t/\tau} \quad (4.13)$$

où τ est le temps de vie caractéristique de l'électron donné par :

$$\tau = \frac{\hbar}{2V_i} \quad (4.14)$$

Une autre manière de résoudre l'équation 4.8 consiste à prendre E comme constante de séparation. Cette équation se ramène cette fois au système :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dz^2} + (V_r - iV_i) \right] \Psi(z) = E\Psi(z) \quad (4.15)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(t) = E\Psi(t) \quad (4.16)$$

La deuxième équation reste alors identique à celle rencontrée lorsque l'énergie potentielle est purement réelle et fournit le même résultat $\Psi(t) = e^{-i\frac{E}{\hbar}t}$. La première équation donne quant à elle la nouvelle solution :

$$\Psi(z) = A e^{i\bar{k}z} + B e^{-i\bar{k}z} \quad (4.17)$$

avec $\bar{k} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}((E - V) + iV_i)}$. Comme $(E - V)$ et V_i sont positifs, \bar{k} peut s'écrire sous la forme $\bar{k} = k_r + ik_i$ où k_r et k_i sont positifs.

La solution de l'équation 4.8 prend alors la forme complète :

$$\Psi(z,t) = A e^{i(k_r z - \frac{E}{\hbar}t) - k_i z} + B e^{i(-k_r z - \frac{E}{\hbar}t) + k_i z} \quad (4.18)$$

La première partie décrit toujours une onde se propageant vers la droite et la seconde une onde se propageant vers la gauche. Les facteurs $e^{\pm k_i z}$ sont responsables de l'absorption de l'onde dans la direction de propagation.

On peut à nouveau calculer l'absorption de l'onde électronique au fur et à mesure de sa progression. On trouve alors :

$$|\Psi(z,t)|^2 \sim e^{-|z|/\lambda} \quad (4.19)$$

où λ est la distance caractéristique d'absorption de l'électron donnée par :

$$\lambda = \frac{1}{2k_i} \quad (4.20)$$

En considérant l'expression de \bar{k} , on peut calculer l'expression exacte de k_i . On trouve alors

$$\begin{aligned} k_i &= \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} \frac{\sqrt{(E - V_r)^2 + V_i^2} - (E - V_r)}{2}} \\ &\sim \frac{1}{2} \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}} \frac{V_i}{\sqrt{E - V_r}} \end{aligned} \quad (4.21)$$

L'expression de λ devient alors :

$$\lambda \sim \frac{\hbar^2}{2m} \frac{\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E - V_r)}}{V_i} = \tau(\hbar k/m) \quad (4.22)$$

Dans cette dernière équation, on retrouve la distance caractéristique d'absorption de l'électron comme produit de son temps caractéristique d'absorption par ce qui peut être considéré comme sa vitesse. Les deux approches sont donc cohérentes et on dispose ainsi de relations utiles entre la valeur de la partie imaginaire de l'énergie potentielle V_i , le temps caractéristique d'absorption τ et la distance caractéristique d'absorption λ . Nous utiliserons par la suite la deuxième approche, qui reste applicable lorsque la partie imaginaire de l'énergie potentielle V_i varie dans l'espace.

4.3 Origine physique de la partie imaginaire du potentiel

Expliquons pour commencer la signification physique de cette absorption. Il est évident que l'électron ne peut disparaître physiquement (nous excluons les processus de capture électronique (par exemple) qui pourraient transformer l'électron). Le fait d'avoir une partie imaginaire dans l'énergie potentielle permet de réduire de manière aisée le nombre d'électrons *décrits par la fonction d'onde*. Que deviennent alors les autres ? Les électrons qui disparaissent de la description peuvent avoir donné une partie de leur énergie à un noyau atomique ou un électron lors d'une collision. Ils peuvent aussi lors d'une de ces interactions avoir perdu toute relation de phase avec le reste des électrons. Dans les deux cas, ces électrons ne sont plus capables de participer à la formation de la figure de diffraction et ne doivent donc plus être considérés comme appartenant à la fonction d'onde utilisée pour calculer cette figure.

Maintenant d'où provient cette partie imaginaire *mathématiquement*? Pendry [50] donne une réponse à cette question dans un ouvrage consacré à la technique LEED. Nous donnerons ici un résumé de son explication.

Le vrai problème à considérer est un problème à $N+1$ électrons, dans lequel l'électron que nous avons considéré jusqu'ici est décrit avec les N électrons du matériau observé dans une fonction d'onde totale $\Psi(\mathbf{r}_0, s_0; \dots; \mathbf{r}_N, s_N)$, où les variables s_i sont les spins. Cette fonction d'onde est solution de l'équation à $N+1$ électrons :

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \sum_{i=0}^N \nabla_i^2 \Psi + \sum_{i=0}^N V_c(\mathbf{r}_i) \Psi + \sum_{i=0}^N \sum_{j=i+1}^N \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i|} \Psi = E_{total} \Psi \quad (4.23)$$

où V_c est l'énergie potentielle due à la présence de tous les noyaux atomiques.

L'idée de Pendry est de séparer Ψ en une partie décrivant l'électron incident et une partie décrivant l'ensemble des autres N électrons, par une somme antisymétrisée :

$$\Psi = \sum_k \phi_k(\mathbf{r}_0, s_0) \Gamma_k(\mathbf{r}_1, s_1; \dots; \mathbf{r}_N, s_N) \quad (4.24)$$

où les indices k correspondent au niveau d'excitation des N électrons, décrits par les états orthonormés Γ_k :

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \sum_{i=1}^N \nabla_i^2 \Gamma_k + \sum_{i=1}^N V_c(\mathbf{r}_i) \Gamma_k + \sum_{i=1}^N \sum_{j=i+1}^N \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i|} \Gamma_k = E_k \Gamma_k \quad (4.25)$$

E_0 est le niveau fondamental de la distribution des N électrons. ϕ_k correspond à un état où l'électron incident a donné une partie de son énergie $E_k - E_0$ pour exciter les autres N électrons et les amener de l'état Γ_0 à Γ_k .

En introduisant l'expression 4.24 dans l'équation 4.23, on obtient :

$$\begin{aligned} & \sum_k \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_0^2 + V_c(\mathbf{r}_0) + \sum_{j=1}^N \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_0|} \right] \phi_k(\mathbf{r}_0, s_0) \Gamma_k(\mathbf{r}_1, s_1; \dots; \mathbf{r}_N, s_N) \\ &= \sum_k (E_{total} - E_k) \phi_k(\mathbf{r}_0, s_0) \Gamma_k(\mathbf{r}_1, s_1; \dots; \mathbf{r}_N, s_N) \end{aligned} \quad (4.26)$$

D'après les commentaires précédents, les états ϕ_k où l'électron incident a perdu une partie de son énergie ne sont pas ceux à considérer pour calculer la figure de diffraction finale. L'état qui nous intéresse est celui où les N électrons sont restés dans leur état fondamental. On isole cet état en multipliant l'équation précédente par Γ_0^* et en intégrant sur les coordonnées des N électrons :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_0^2 + V_c(\mathbf{r}_0) + v_{op}(\mathbf{r}_0, s_0) \right] \phi_0(\mathbf{r}_0, s_0) = (E_{total} - E_0) \phi_0(\mathbf{r}_0, s_0) \quad (4.27)$$

Dans cette équation, v_{op} est le *potentiel optique* dont l'expression est la suivante :

$$v_{op}(\mathbf{r}_0, s_0) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{j=1}^N \sum_k \frac{\phi_k(\mathbf{r}_0, s_0)}{\phi_0(\mathbf{r}_0, s_0)} \sum_{s_1 \dots s_N} \iiint dV_1 \dots \iiint dV_N \frac{\Gamma_0^*(\mathbf{r}_1, s_1; \dots; \mathbf{r}_N, s_N) \Gamma_k(\mathbf{r}_1, s_1; \dots; \mathbf{r}_N, s_N)}{|\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_0|} \quad (4.28)$$

Une évaluation de ce terme est proposée à la référence [50]. On admet aisément qu'il puisse prendre des valeurs complexes et prenne donc la forme générale $v_{op}(\mathbf{r}) = V_r(\mathbf{r}) + iV_i(\mathbf{r})$, faisant apparaître les expressions que nous utilisons depuis le début de ce chapitre.

Ce raisonnement met en évidence l'origine de la partie imaginaire de l'énergie potentielle, qui apparaît bien ici comme résultant d'une excitation des autres électrons du matériau. Le raisonnement peut être généralisé pour inclure l'excitation de phonons ou toute autre interaction résultant en un transfert d'énergie de l'électron incident au matériau. On comprend aussi que plus l'énergie de l'électron incident est grande, plus il aura l'occasion de donner une partie $E_k - E_0$ de cette énergie pour exciter le matériau. La partie imaginaire de l'énergie potentielle augmente donc (en valeur absolue) à chaque fois qu'une nouvelle excitation est possible. Pour des grandes valeurs de l'énergie, l'électron devient trop rapide et la partie imaginaire de l'énergie potentielle tend à décroître comme $\ln E/\sqrt{E}$. Pour des métaux (Cu, Ni, Ag, ...), $V_i(\mathbf{r})$ prend des valeurs typiques de -1 eV (pour $E < 15$ eV), -4 eV pour ($15 \text{ eV} < E < 100 \text{ eV}$) et ne descend pas en dessous de -10 eV au-delà.

4.4 Traitement de l'équation de Schrödinger

Après cette longue présentation, reprenons notre modèle et voyons comment traiter ces parties imaginaires de l'énergie potentielle.

4.4.1 Ecriture de la fonction d'onde

Nous décrivons la fonction d'onde de la même manière que dans le chapitre précédent, par l'expression :

$$\Psi(\mathbf{r}) = \sum_{m,j} \Phi_{(m,j)}(z) \frac{J_m(k_{m,j}\rho) e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}} \quad (4.29)$$

où les $k_{m,j}$ sont solutions de $J'_m(k_{m,j}R) = 0$.

4.4.2 Ecriture de l'énergie potentielle

Nous séparerons les parties réelles et imaginaires de l'énergie potentielle en l'exprimant comme :

$$V(\rho, \phi, z) = (V_{0r}(z) + iV_{0i}(z)) + \sum_{q=-\infty}^{+\infty} \bar{V}_{rq}(\rho, z)e^{iqn\phi} + i \sum_{q=-\infty}^{+\infty} \bar{V}_{iq}(\rho, z)e^{iqn\phi} \quad (4.30)$$

où les quantités $\bar{V}_{rq}(\rho, z)$ et $\bar{V}_{iq}(\rho, z)$ doivent être calculées par :

$$\bar{V}_{rq}(\rho, z) = \frac{n}{2\pi} \int_0^{2\pi/n} (\operatorname{Re}V(\rho, \phi, z) - V_{0,r}(z))e^{-iqn\phi} d\phi \quad (4.31)$$

$$\bar{V}_{iq}(\rho, z) = \frac{n}{2\pi} \int_0^{2\pi/n} (\operatorname{Im}V(\rho, \phi, z) - V_{0,i}(z))e^{-iqn\phi} d\phi \quad (4.32)$$

Cette écriture permet de garder les relations $\bar{V}_{r-q}(\rho, z) = \bar{V}_{rq}^*(\rho, z)$ ainsi que $\bar{V}_{i-q}(\rho, z) = \bar{V}_{iq}^*(\rho, z)$.

4.4.3 Equation de propagation

L'équation de Schrödinger se traite de la même façon que dans le chapitre précédent et fournit l'équation de propagation suivante :

$$\begin{aligned} \frac{d^2\Phi_{(m,j)}(z)}{dz^2} + \left[\frac{2m}{\hbar^2}E - k_{m,j}^2 - \frac{2m}{\hbar^2}(V_{0,r}(z) + iV_{0,i}(z)) \right] \Phi_{(m,j)}(z) \\ = \sum_q \sum_{j'} (M_{m,j}^{q,j'}(z) + iN_{m,j}^{q,j'}(z)) \Phi_{(m-qn,j')}(z) \end{aligned} \quad (4.33)$$

avec :

$$M_{m,j}^{q,j'}(z) = \frac{2m}{\hbar^2} \frac{\int_0^R d\rho \rho \bar{V}_{rq}(\rho, z) J_m(k_{m,j}\rho) J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)}{\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \quad (4.34)$$

$$N_{m,j}^{q,j'}(z) = \frac{2m}{\hbar^2} \frac{\int_0^R d\rho \rho \bar{V}_{iq}(\rho, z) J_m(k_{m,j}\rho) J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)}{\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \quad (4.35)$$

Cette équation préserve l'existence de n groupes de fonctions de base indépendants. Son traitement diffère cependant de celui présenté au chapitre précédent.

4.4.4 Implémentation numérique

Le traitement de l'équation 4.33 se fait à nouveau en supposant que l'énergie potentielle complexe $V(\mathbf{r})$ varie en escaliers et prend des valeurs constantes sur chaque palier de longueur Δz . Notons $V_{0,r}(\Delta z)$, $V_{0,i}(\Delta z)$, $M_{m,j}^{q,j'}(\Delta z)$ et $N_{m,j}^{q,j'}(\Delta z)$ les valeurs asymptotiques des composantes de l'énergie potentielle et les coefficients de couplage sur ce palier.

Si l'ensemble des coefficients $\Phi_{(m,j)}(z)$ à traiter est stocké dans un vecteur $\bar{\Phi}(z)$, l'équation 4.33 peut se mettre sous la forme :

$$\frac{d^2}{dz^2}\bar{\Phi}(z) + \mathbf{E}\bar{\Phi}(z) = (\mathbf{M} + i\mathbf{N})\bar{\Phi}(z) \quad (4.36)$$

où \mathbf{E} est une matrice diagonale qui contient les éléments $\frac{2m}{\hbar^2}E - k_{m,j}^2 - \frac{2m}{\hbar^2}(V_{0,r}(\Delta z) + iV_{0,i}(\Delta z))$ et \mathbf{M} et \mathbf{N} les matrices qui contiennent les coefficients de couplage $M_{m,j}^{q,j'}(\Delta z)$ et $N_{m,j}^{q,j'}(\Delta z)$.

Les matrices \mathbf{M} et \mathbf{N} sont hermitiennes. Cette propriété nous permet donc de calculer la moitié de chacune seulement. Il n'en est pas de même pour la matrice $\mathbf{G} = \mathbf{E} - \mathbf{M} - i\mathbf{N}$, qui ne présente aucune symétrie exploitable. Il est donc nécessaire de la construire en entier sur chaque palier Δz et de la diagonaliser par une sous-routine permettant le traitement de matrices générales.

Notons $\mathbf{\Lambda}$ la matrice diagonale contenant les valeurs propres (complexes) de \mathbf{G} et \mathbf{V} la matrice qui contient en colonnes les vecteurs propres de \mathbf{G} . L'équation précédente devient alors :

$$\frac{d^2}{dz^2}\bar{\Phi}(z) + \mathbf{V} \mathbf{\Lambda} \mathbf{V}^{-1}\bar{\Phi}(z) = 0 \quad (4.37)$$

où \mathbf{V}^{-1} est la matrice inverse de \mathbf{V} .

En multipliant par la gauche cette équation par \mathbf{V}^{-1} et en se rappelant que la matrice \mathbf{G} est indépendante de z sur le palier Δz l'équation précédente se met sous la forme :

$$\frac{d^2}{dz^2}\bar{\xi}(z) + \mathbf{\Lambda}\bar{\xi}(z) = 0 \quad (4.38)$$

où nous avons utilisé $\mathbf{V}^{-1} \mathbf{V} = \mathbf{I}$ et défini $\bar{\xi}(z) = \mathbf{V}^{-1}\bar{\Phi}(z)$.

Puisque $\mathbf{\Lambda}$ est diagonale, l'équation 4.38 est triviale à résoudre. Chaque composante $\xi_i(z)$ de $\bar{\xi}(z)$ s'exprime en effet comme une paire d'exponentielles complexes :

$$\xi_i(z) = A_i e^{i\sqrt{\lambda_i}z} + B_i e^{-i\sqrt{\lambda_i}z} \quad (4.39)$$

où λ_i est la valeur propre complexe correspondant à $\xi_i(z)$ dans $\mathbf{\Lambda}$. Les coefficients A_i et B_i sont fixés par les valeurs de $\bar{\xi} = \mathbf{V}^{-1}\bar{\Phi}$ et $\frac{d}{dz}\bar{\xi} = \mathbf{V}^{-1}\frac{d}{dz}\bar{\Phi}$ à l'extrémité du palier Δz d'où la solution est propagée.

La propagation des coefficients $\Phi_{(m,j)}(z)$ sera moins précise que lorsque l'énergie potentielle est réelle. D'une part, le calcul des valeurs propres et vecteurs propres de la matrice \mathbf{G} doit se faire par une sous-routine qui ne peut exploiter aucune symétrie. D'autre part, la décomposition $\bar{\xi}(z) = \mathbf{V}^{-1}\bar{\Phi}(z)$ demande l'inversion numérique préalable de \mathbf{V}^{-1} , alors que

1. En effet, il est plus rapide de propager les coefficients correspondant aux différentes solutions $\bar{\Psi}_{(m,j)}^{\pm}$ simultanément. Le nombre de systèmes à résoudre coïncide alors avec la dimension de la matrice. Résoudre ces systèmes séparément ne se justifie alors pas au point de vue de la stabilité.

pour une énergie potentielle purement réelle cette matrice aurait été unitaire et donc inversible analytiquement. Les problèmes numériques viennent essentiellement de ce dernier point. Il s'avère même que les sous-routines standard ne conviennent pas !

Une solution à ce problème consiste à remplacer l'opération \mathbf{V}^{-1} par :

$$\mathbf{V}^{-1} = (V^\dagger V)^{-1} V^\dagger \quad (4.40)$$

En procédant de cette manière, on remplace l'inversion de la matrice générale \mathbf{V} par celle de $(V^\dagger V)$ qui est hermitienne définie positive ! On peut donc utiliser une sous-routine appropriée qui donne de meilleurs résultats.

Que signifie cette relation ? L'opération d'inversion d'une matrice \mathbf{V} peut être considérée comme une opération permettant le calcul des coordonnées contravariantes d'un vecteur quelconque le long de la base constituée par les colonnes de \mathbf{V} . Le facteur de droite de la relation 4.40 fournit les composantes covariantes de la décomposition souhaitée. Le facteur de gauche représente l'inverse de la métrique, dont l'application permet le passage aux coordonnées contravariantes.

Cette formule s'avère plus efficace par le fait que l'opération V^\dagger est analytique et traite donc de manière exacte la phase des vecteurs auxquels elle s'applique. L'opération $(V^\dagger V)^{-1}$ concerne essentiellement les amplitudes des vecteurs traités. Les résultats sont moins sensibles à des erreurs dans cette dernière partie.

La méthode présentée ici permet la propagation des coefficients $\Phi_{(m,j)}(z)$. Leur utilisation est identique à celle présentée dans le chapitre 3. Les relations entre matrices de transfert appartenant à deux groupes conjugués ne sont cependant plus applicables lorsque l'énergie potentielle prend une partie imaginaire. En effet, le complexe conjugué de la solution d'une équation de Schrödinger avec une énergie potentielle complexe correspond à une onde dont l'amplitude augmenterait exponentiellement dans le sens de propagation. Ces solutions ne correspondent à rien de physique dans ce contexte.

Chapitre 5

Théorie de diffusion électronique par un champ magnétique

5.1 Introduction

Ce troisième volet de notre présentation méthodologique est consacré à la diffusion électronique par des champs magnétiques. Nous avons vu au chapitre 1 que des particules de Fe_3O_4 présentent une magnétisation permanente qui induit des franges caractéristiques à l'écran. Ces franges apparaissent parallèles aux lignes de champ et d'autant plus resserrées que le champ est fort.

Pour vérifier ces observations, il est nécessaire d'étendre notre théorie de diffusion au traitement des champs magnétiques. Cette extension de la théorie se place très bien à la suite des chapitres 3 et 4 puisque, comme nous le verrons, l'équation de Schrödinger prend des parties imaginaires. Nous pouvons donc nous servir en grande partie des techniques développées jusqu'ici.

Nous supposerons comme toujours la présence d'un axe de symétrie d'ordre n , en particulier dans la distribution du champ d'induction magnétique \mathbf{B} . Ce dernier sera notre paramètre d'entrée. Le champ d'induction magnétique intervient dans l'équation de Schrödinger par l'intermédiaire d'un potentiel vecteur \mathbf{A} que nous devons construire à partir de la distribution du champ. Comme nous le savons, nous disposons d'une certaine liberté pour la construction du potentiel vecteur. Nous préciserons au fur et à mesure du traitement de l'équation de Schrödinger les conditions sur \mathbf{A} qui nous apparaîtront utiles. Ces conditions en fixeront ainsi la jauge. Après la présentation des techniques de traitement de l'équation de Schrödinger, nous montrerons comment construire, à partir de la distribution de \mathbf{B} , le potentiel vecteur \mathbf{A} dans la jauge que nous aurons précisée.

Etant donné que c'est \mathbf{A} qui intervient dans l'équation de Schrödinger, nous pouvons dès maintenant imposer une première condition : que \mathbf{A} soit (comme toutes les quantités considérées jusqu'ici) invariant sous toute rotation de $2\pi/n$ autour de l'axe z . Etant donné les constatations faites jusque maintenant, nous pouvons nous attendre à ce que cette condition maintienne l'existence de n groupes de fonctions de base indépendants, ce qui

allège considérablement les conditions de calcul.

5.2 Traitement de l'équation de Schrödinger

5.2.1 Ecriture de la fonction d'onde

Venons-en donc au traitement de l'équation de Schrödinger. Nous décrirons comme toujours la fonction d'onde par l'expression :

$$\Psi(\mathbf{r}) = \sum_{m,j} \Phi_{(m,j)}(z) \frac{J_m(k_{m,j}\rho)e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}} \quad (5.1)$$

où les $k_{m,j}$ sont solutions de $J'_m(k_{m,j}R) = 0$.

5.2.2 Ecriture de l'énergie potentielle et du champ d'induction magnétique

Nous utiliserons la même expression que dans le chapitre 4 pour l'énergie potentielle :

$$V(\rho, \phi, z) = (V_{0r}(z) + iV_{0i}(z)) + \sum_{q=-\infty}^{+\infty} \bar{V}_{rq}(\rho, z)e^{iqn\phi} + i \sum_{q=-\infty}^{+\infty} \bar{V}_{iq}(\rho, z)e^{iqn\phi} \quad (5.2)$$

où les quantités $\bar{V}_{rq}(\rho, z)$ et $\bar{V}_{iq}(\rho, z)$ se calculent par :

$$\bar{V}_{rq}(\rho, z) = \frac{n}{2\pi} \int_0^{2\pi/n} (\text{Re}V(\rho, \phi, z) - V_{0,r}(z))e^{-iqn\phi} d\phi \quad (5.3)$$

$$\bar{V}_{iq}(\rho, z) = \frac{n}{2\pi} \int_0^{2\pi/n} (\text{Im}V(\rho, \phi, z) - V_{0,i}(z))e^{-iqn\phi} d\phi \quad (5.4)$$

Etant donné que le potentiel vecteur $\mathbf{A}(\rho, \phi, z)$ est périodique en ϕ avec une période de $2\pi/n$, nous pouvons exprimer la dépendance en ϕ de chacune de ses composantes en série de Fourier :

$$\mathbf{A}(\rho, \phi, z) = \sum_{q=-\infty}^{+\infty} \bar{\mathbf{A}}_q(\rho, z)e^{iqn\phi} \quad (5.5)$$

où les coefficients $\bar{\mathbf{A}}_q(\rho, z)$ doivent se calculer par :

$$\bar{\mathbf{A}}_q(\rho, z) = \frac{n}{2\pi} \int_0^{2\pi/n} \mathbf{A}(\rho, \phi, z)e^{-iqn\phi} d\phi \quad (5.6)$$

Les coefficients de Fourier vérifient les relations utiles : $\bar{V}_{r-q}(\rho, z) = \bar{V}_{rq}^*(\rho, z)$, $\bar{V}_{i-q}(\rho, z) = \bar{V}_{iq}^*(\rho, z)$ ainsi que $\bar{\mathbf{A}}_{-q}(\rho, z) = \bar{\mathbf{A}}_q^*(\rho, z)$.

5.2.3 Equation de propagation

Considérons l'opérateur hamiltonien H , fonction des opérateurs de position \mathbf{R} , d'impulsion \mathbf{P} , d'énergie potentielle V (fonction de \mathbf{R} seulement) et du potentiel vecteur \mathbf{A} :

$$\begin{aligned} H &= \frac{1}{2m} [\mathbf{P} - (-e)\mathbf{A}]^2 + V(R) \\ &= \frac{\mathbf{P}^2}{2m} - \frac{(-e)}{2m} [\mathbf{P} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{P}] + \frac{e^2}{2m} A^2 + V(R) \end{aligned} \quad (5.7)$$

Nous pouvons en déduire l'équation de Schrödinger stationnaire :

$$\langle \mathbf{r} | H | \Psi \rangle = E \langle \mathbf{r} | \Psi \rangle \quad (5.8)$$

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta \Psi + i \frac{(-e)\hbar}{2m} [\nabla \cdot (\mathbf{A}\Psi) + \mathbf{A} \cdot \nabla \Psi] + (V + \frac{e^2}{2m} A^2) \Psi = E \Psi \quad (5.9)$$

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta \Psi + i \frac{(-e)\hbar}{2m} [\nabla \cdot \mathbf{A}\Psi + 2\mathbf{A} \cdot \nabla \Psi] + (V + \frac{e^2}{2m} A^2) \Psi = E \Psi \quad (5.10)$$

Cette équation fait intervenir une dérivée première de la fonction d'onde à cause de $\nabla \Psi$. En utilisant les expressions 5.2 et 5.5 pour l'énergie potentielle et le potentiel vecteur, ainsi que 5.1 pour la fonction d'onde et en projetant cette équation sur chaque fonction de base, on obtient le résultat (provisoire) suivant :

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \Phi_{(m,j)}(z)}{dz^2} &+ \left[\frac{2m}{\hbar^2} E - k_{m,j}^2 - \frac{2m}{\hbar^2} (V_{0,r}(z) + iV_{0,i}(z)) \right] \Phi_{(m,j)}(z) \\ &= \sum_{q,j'} ((M_{m,j}^{q,j'}(z) + O_{m,j}^{q,j'}(z)) + i(N_{m,j}^{q,j'}(z) + P_{m,j}^{q,j'}(z))) \Phi_{(m-qn,j')}(z) \\ &+ \sum_{q,j'} iQ_{m,j}^{q,j'}(z) \frac{d}{dz} \Phi_{(m-qn,j')}(z) \end{aligned} \quad (5.11)$$

avec :

$$M_{m,j}^{q,j'}(z) = \frac{2m \int_0^R d\rho \rho (\overline{V}_{r_q}(\rho, z) + \frac{e^2}{2m} \overline{A}_q^2(\rho, z)) J_m(k_{m,j}\rho) J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)}{\hbar^2 \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \quad (5.12)$$

$$N_{m,j}^{q,j'}(z) = \frac{2m \int_0^R d\rho \rho (\overline{V}_{i_q}(\rho, z) + \frac{(-e)\hbar}{2m} \overline{\nabla \cdot \mathbf{A}}_q(\rho, z)) J_m(k_{m,j}\rho) J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)}{\hbar^2 \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \quad (5.13)$$

$$O_{m,j}^{q,j'}(z) = -\frac{2(-e)}{\hbar} (m - qn) \frac{\int_0^R d\rho \overline{A}_{\phi_q}(\rho, z) J_m(k_{m,j}\rho) J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)}{\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \quad (5.14)$$

$$P_{m,j}^{q,j'}(z) = \frac{2(-e)}{\hbar} k_{m-qn,j'} \frac{\int_0^R d\rho \rho \overline{A}_{\rho_q}(\rho, z) J_m(k_{m,j}\rho) J'_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)}{\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \quad (5.15)$$

$$Q_{m,j}^{q,j'}(z) = \frac{2(-e)}{\hbar} \frac{\int_0^R d\rho \rho \overline{A}_{z_q}(\rho, z) J_m(k_{m,j}\rho) J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)}{\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \quad (5.16)$$

Dans ces équations, $\overline{A^2}_q(\rho, z)$ et $\overline{\nabla \cdot \mathbf{A}}_q(\rho, z)$ sont les composantes de Fourier de A^2 et $\nabla \cdot \mathbf{A}$. Elles peuvent être mises sous une forme plus pratique en considérant la forme particulière du facteur $\overline{\nabla \cdot \mathbf{A}}_q(\rho, z)$:

$$\overline{\nabla \cdot \mathbf{A}}_q(\rho, z) = \frac{1}{\rho} \frac{\partial(\rho \overline{A}_{\rho, q}(\rho, z))}{\partial \rho} + \frac{iqn}{\rho} \overline{A}_{\phi, q}(\rho, z) + \frac{\partial \overline{A}_{z, q}(\rho, z)}{\partial z} \quad (5.17)$$

et en notant que $N_{m, j}^{q, j'}(z)$ contient un terme qui peut se réécrire comme :

$$\begin{aligned} & \frac{2m}{\hbar^2} \frac{(-e)\hbar}{2m} \frac{\int_0^R d\rho \rho \frac{1}{\rho} \frac{\partial(\rho \overline{A}_{\rho, q}(\rho, z))}{\partial \rho} J_m(k_{m, j} \rho) J_{m-qn}(k_{m-qn, j'} \rho)}{\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m, j} \rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn, j'} \rho)]^2}} \\ &= \frac{(-e)}{\hbar} \left[\left| \rho \overline{A}_{\rho, q}(\rho, z) J_m(k_{m, j} \rho) J_{m-qn}(k_{m-qn, j'} \rho) \right|_0^R \right. \\ & \quad - \int_0^R d\rho \rho \overline{A}_{\rho, q}(\rho, z) k_{m, j} J'_m(k_{m, j} \rho) J_{m-qn}(k_{m-qn, j'} \rho) \\ & \quad \left. - \int_0^R d\rho \rho \overline{A}_{\rho, q}(\rho, z) J_m(k_{m, j} \rho) k_{m-qn, j'} J'_{m-qn}(k_{m-qn, j'} \rho) \right] \\ & / \left[\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m, j} \rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn, j'} \rho)]^2} \right] \quad (5.18) \end{aligned}$$

où les dérivées partielles par rapport à ρ et z des grandeurs concernées peuvent être remplacées par des dérivées totales puisque ces deux variables sont indépendantes.

L'équation 5.11 prend alors la forme :

$$\begin{aligned} & \frac{d^2 \Phi_{(m, j)}(z)}{dz^2} + \left[\frac{2m}{\hbar^2} E - k_{m, j}^2 - \frac{2m}{\hbar^2} (V_{0, r}(z) + iV_{0, i}(z)) \right] \Phi_{(m, j)}(z) \\ &= \sum_{q, j'} ((M_{m, j}^{q, j'}(z) + O_{m, j}^{q, j'}(z)) + i(N_{m, j}^{q, j'}(z) + P_{m, j}^{q, j'}(z))) \Phi_{(m-qn, j')}(z) \\ & + \sum_{q, j'} iQ_{m, j}^{q, j'}(z) \frac{d}{dz} \Phi_{(m-qn, j')}(z) \quad (5.19) \end{aligned}$$

avec :

$$M_{m, j}^{q, j'}(z) = \frac{2m}{\hbar^2} \frac{\int_0^R d\rho \rho (\overline{V}_{r, q}(\rho, z) + \frac{e^2}{2m} \overline{A^2}_q(\rho, z)) J_m(k_{m, j} \rho) J_{m-qn}(k_{m-qn, j'} \rho)}{\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m, j} \rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn, j'} \rho)]^2}} \quad (5.20)$$

$$\begin{aligned} N_{m, j}^{q, j'}(z) &= \frac{2m}{\hbar^2} \frac{\int_0^R d\rho \rho (\overline{V}_{i, q}(\rho, z) + \frac{(-e)\hbar}{2m} \frac{d\overline{A}_{z, q}(\rho, z)}{dz}) J_m(k_{m, j} \rho) J_{m-qn}(k_{m-qn, j'} \rho)}{\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m, j} \rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn, j'} \rho)]^2}} \\ &+ \frac{(-e)}{\hbar} \frac{R \overline{A}_{\rho, q}(R, z) J_m(k_{m, j} R) J_{m-qn}(k_{m-qn, j'} R)}{\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m, j} \rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn, j'} \rho)]^2}} \quad (5.21) \end{aligned}$$

$$O_{m, j}^{q, j'}(z) = -\frac{(-e)}{\hbar} (m + (m - qn)) \frac{\int_0^R d\rho \overline{A}_{\phi, q}(\rho, z) J_m(k_{m, j} \rho) J_{m-qn}(k_{m-qn, j'} \rho)}{\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m, j} \rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn, j'} \rho)]^2}} \quad (5.22)$$

$$P_{m,j}^{q,j'}(z) = \frac{(-e) \int_0^R d\rho \rho \overline{A_{\rho q}}(\rho, z) \left(J_m(k_{m,j}\rho) \frac{d}{d\rho} J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho) - \frac{d}{d\rho} J_m(k_{m,j}\rho) J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho) \right)}{\hbar \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \quad (5.23)$$

$$Q_{m,j}^{q,j'}(z) = \frac{2(-e) \int_0^R d\rho \rho \overline{A_{zq}}(\rho, z) J_m(k_{m,j}\rho) J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)}{\hbar \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \quad (5.24)$$

L'existence de n groupes de fonctions de base indépendants est préservée par l'équation 5.19. Nous pouvons la traiter en supposant toutes les grandeurs constantes sur des paliers de longueur Δz et en notant leur valeur par (Δz) . On note \mathbf{M} , \mathbf{N} , \mathbf{O} , \mathbf{P} et \mathbf{Q} les matrices contenant respectivement les coefficients de couplage $M_{m,j}^{q,j'}(\Delta z)$, $N_{m,j}^{q,j'}(\Delta z)$, $O_{m,j}^{q,j'}(\Delta z)$, $P_{m,j}^{q,j'}(\Delta z)$ et $Q_{m,j}^{q,j'}(\Delta z)$ ainsi que \mathbf{E} une matrice diagonale contenant les termes $\frac{2m}{\hbar^2} E - k_{m,j}^2 - \frac{2m}{\hbar^2} (V_{0,r}(\Delta z) + iV_{0,i}(\Delta z))$. Si l'ensemble des coefficients $\overline{\Phi}_{(m,j)}(z)$ à traiter est stocké dans un vecteur $\overline{\Phi}(z)$, l'équation 5.19 prend la forme :

$$\frac{d^2}{dz^2} \overline{\Phi}(z) + \mathbf{E} \overline{\Phi}(z) = ((\mathbf{M} + \mathbf{O}) + i(\mathbf{N} + \mathbf{P})) \overline{\Phi}(z) + (i\mathbf{Q}) \frac{d}{dz} \overline{\Phi}(z) \quad (5.25)$$

En définissant $\mathbf{G} = \mathbf{E} - (\mathbf{M} + \mathbf{O}) - i(\mathbf{N} + \mathbf{P})$, l'équation précédente se met sous une forme

$$\frac{d^2}{dz^2} \overline{\Phi}(z) + \mathbf{G} \overline{\Phi}(z) = (i\mathbf{Q}) \frac{d}{dz} \overline{\Phi}(z) \quad (5.26)$$

que nous ne savons pas résoudre, parce que les matrices \mathbf{G} et \mathbf{Q} ne se laissent en général pas diagonaliser simultanément ! Heureusement, nous n'avons pas encore déterminé complètement la forme de \mathbf{A} et nous pouvons encore lui imposer de satisfaire la condition :

$$A_z = 0 \quad (5.27)$$

Avec cette condition, l'équation 5.19 prend sa forme définitive :

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \overline{\Phi}_{(m,j)}(z)}{dz^2} + \left[\frac{2m}{\hbar^2} E - k_{m,j}^2 - \frac{2m}{\hbar^2} (V_{0,r}(z) + iV_{0,i}(z)) \right] \overline{\Phi}_{(m,j)}(z) \\ = \sum_{q,j'} ((M_{m,j}^{q,j'}(z) + O_{m,j}^{q,j'}(z)) + i(N_{m,j}^{q,j'}(z) + P_{m,j}^{q,j'}(z))) \overline{\Phi}_{(m-qn,j')}(z) \end{aligned} \quad (5.28)$$

avec :

$$M_{m,j}^{q,j'}(z) = \frac{2m \int_0^R d\rho \rho (\overline{V}_{r q}(\rho, z) + \frac{e^2}{2m} \overline{A}_{\rho q}^2(\rho, z)) J_m(k_{m,j}\rho) J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)}{\hbar^2 \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \quad (5.29)$$

$$\begin{aligned} N_{m,j}^{q,j'}(z) &= \frac{2m \int_0^R d\rho \rho \overline{V}_{iq}(\rho, z) J_m(k_{m,j}\rho) J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)}{\hbar^2 \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \\ &+ \frac{(-e) \int_0^R d\rho \rho \overline{A}_{\rho q}(R, z) J_m(k_{m,j}R) J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}R)}{\hbar \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \end{aligned} \quad (5.30)$$

$$O_{m,j}^{q,j'}(z) = -\frac{(-e)}{\hbar}(m + (m - qn)) \frac{\int_0^R d\rho \overline{A_{\phi q}}(\rho, z) J_m(k_{m,j}\rho) J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)}{\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \quad (5.31)$$

$$P_{m,j}^{q,j'}(z) = \frac{(-e)}{\hbar} \frac{\int_0^R d\rho \rho \overline{A_{\rho q}}(\rho, z) \left(J_m(k_{m,j}\rho) \frac{d}{d\rho} J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho) - \frac{d}{d\rho} J_m(k_{m,j}\rho) J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho) \right)}{\sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2} \sqrt{\int_0^R d\rho \rho [J_{m-qn}(k_{m-qn,j'}\rho)]^2}} \quad (5.32)$$

qui s'écrit cette fois sous la forme compacte :

$$\frac{d^2}{dz^2} \overline{\Phi}(z) + \mathbf{G} \overline{\Phi}(z) = 0 \quad (5.33)$$

et que nous savons résoudre grâce aux techniques développées dans le chapitre précédent.

Les matrices \mathbf{M} , \mathbf{N} et \mathbf{O} sont hermitiennes. \mathbf{P} est anti-hermitienne. Nous pouvons ici aussi calculer et stocker seulement la moitié de chacune de ces matrices. Par contre \mathbf{G} doit être construite entièrement sur chaque palier Δz et diagonalisée par une sous-routine générale.

5.3 Construction du potentiel vecteur

Pour établir une équation de propagation utilisable, nous avons dû imposer au potentiel vecteur \mathbf{A} de vérifier deux conditions :

1. périodicité selon ϕ (période $2\pi/n$)
2. $A_z = 0$

Il nous reste maintenant à montrer comment, à partir d'une distribution du champ d'induction magnétique \mathbf{B} vérifiant uniquement la première condition, construire un potentiel vecteur \mathbf{A} qui satisfait les deux conditions.

Le potentiel vecteur \mathbf{A} est relié au champ d'induction magnétique \mathbf{B} par la relation :

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \quad (5.34)$$

qui permet de vérifier automatiquement la deuxième équation de Maxwell $\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$.

Si nous écrivons cette relation en coordonnées cylindriques et en tenant compte du fait que $A_z = 0$, nous obtenons les trois équations :

$$B_\rho = -\frac{\partial A_\phi}{\partial z} \quad (5.35)$$

$$B_\phi = \frac{\partial A_\rho}{\partial z} \quad (5.36)$$

$$B_z = \frac{1}{\rho} \frac{\partial(\rho A_\phi)}{\partial \rho} - \frac{1}{\rho} \frac{\partial A_\rho}{\partial \phi} \quad (5.37)$$

Les deux premières équations nous fournissent une forme générale pour les composantes A_ρ et A_ϕ :

$$A_\rho(\rho, \phi, z) = \int_{z_1}^z B_\phi(\rho, \phi, z') dz' + f_\rho(\rho, \phi) \quad (5.38)$$

$$A_\phi(\rho, \phi, z) = - \int_{z_1}^z B_\rho(\rho, \phi, z') dz' + f_\phi(\rho, \phi) \quad (5.39)$$

où z_1 est à ce stade une constante quelconque.

Si ces deux quantités sont remplacées dans la troisième équation, on trouve que f_ρ et f_ϕ doivent vérifier la relation :

$$\int_{z_1}^z \left(-\frac{1}{\rho} \frac{\partial(\rho B_\rho)}{\partial \rho} - \frac{1}{\rho} \frac{\partial B_\phi}{\partial \phi} \right) dz' + \frac{1}{\rho} \frac{\partial(\rho f_\phi)}{\partial \rho} - \frac{1}{\rho} \frac{\partial f_\rho}{\partial \phi} = B_z \quad (5.40)$$

En utilisant $\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$ dans l'intégrale, cette relation se met sous la forme :

$$\frac{1}{\rho} \frac{\partial(\rho f_\phi)}{\partial \rho} - \frac{1}{\rho} \frac{\partial f_\rho}{\partial \phi} = B_z(\rho, \phi, z_1) \quad (5.41)$$

Cette condition nous permet de déduire les expressions de f_ρ et f_ϕ :

$$f_\rho(\rho, \phi) = -\alpha \rho \int_{\phi_1}^{\phi} B_z(\rho, \phi', z_1) d\phi' \quad (5.42)$$

$$f_\phi(\rho, \phi) = (1 - \alpha) \frac{1}{\rho} \int_{\rho_1}^{\rho} \rho' B_z(\rho', \phi, z_1) d\rho' \quad (5.43)$$

où ϕ_1 , ρ_1 et α sont des constantes quelconques.

Seule la fonction f_ϕ est compatible avec un axe de symétrie d'ordre n , de sorte que nous devons exclure f_ρ en choisissant $\alpha = 0$.

Finalement, le potentiel vecteur qui satisfait les conditions que nous nous sommes imposées et qui décrit \mathbf{B} peut être construit par les relations :

$$A_\rho(\rho, \phi, z) = \int_{z_1}^z B_\phi(\rho, \phi, z') dz' \quad (5.44)$$

$$A_\phi(\rho, \phi, z) = - \int_{z_1}^z B_\rho(\rho, \phi, z') dz' + \frac{1}{\rho} \int_0^{\rho} \rho' B_z(\rho', \phi, z_1) d\rho' \quad (5.45)$$

$$A_z(\rho, \phi, z) = 0 \quad (5.46)$$

où nous avons choisi $\rho_1 = 0^1$.

1. Si B_z est régulier en $\rho = 0$, il peut se développer en série de Taylor autour de $\rho = 0$ et il est facile de constater que $f_\phi(0, \phi) = 0$ en utilisant ce développement et en faisant tendre ρ vers 0.

5.4 Traitement de la zone extérieure au champ magnétique

Il nous reste encore à préciser la valeur de z_1 . Le problème est le suivant : même si le champ d'induction magnétique \mathbf{B} est limité à une partie de la région II, le potentiel vecteur \mathbf{A} ne s'annule en général pas des deux côtés de cette région. Or l'expression des états incidents, les équations de propagations que l'on souhaite utiliser en dehors de la zone de champ et la technique de propagation par fonctions de Green sont basées sur une écriture de l'équation de Schrödinger où \mathbf{A} est nul.

Nous pouvons cependant relier les solutions Ψ_0 de cette équation incomplète

$$\left[\frac{1}{2m} \left(\frac{\hbar}{i} \nabla \right)^2 + V(\mathbf{r}) \right] \Psi_0(\mathbf{r}) = E\Psi_0(\mathbf{r}) \quad (5.47)$$

aux solutions Ψ de l'équation complète :

$$\left[\frac{1}{2m} \left(\frac{\hbar}{i} \nabla - (-e)\mathbf{A} \right)^2 + V(\mathbf{r}) \right] \Psi(\mathbf{r}) = E\Psi(\mathbf{r}) \quad (5.48)$$

simplement par [75] :

$$\Psi(\mathbf{r}) = e^{\frac{i(-e)}{\hbar} \int_{\mathbf{r}_1}^{\mathbf{r}} \mathbf{A}(\mathbf{r}') \cdot d\mathbf{r}'} \Psi_0(\mathbf{r}) \quad (5.49)$$

où \mathbf{r}_1 désigne une position quelconque².

Nous pouvons prendre $\mathbf{r}_1 = (0,0,z_1)$ avec

$$z_1 = D \quad (5.50)$$

et choisir un chemin (représenté à la figure 5.1) reliant \mathbf{r}_1 à $\mathbf{r} = (\rho, \phi, z)$ en faisant varier dans un premier temps uniquement z , de manière à atteindre le point $(0,0,z)$, et ρ ensuite pour atteindre \mathbf{r} .

Dans la région III ($z \geq D$), où nous supposons l'absence de champ, A_z et A_ρ sont nuls (grâce au choix particulier de z_1 pour A_ρ) de sorte que nous avons :

$$\Psi(\mathbf{r}) \stackrel{z \geq D}{=} \Psi_0(\mathbf{r}) \quad (5.51)$$

Nous pouvons donc utiliser les techniques développées précédemment pour traiter la propagation dans cette région.

2. On vérifie en effet que

$$\left(\frac{\hbar}{i} \nabla - (-e)\mathbf{A} \right) \Psi = e^{\frac{i(-e)}{\hbar} \int_{\mathbf{r}_1}^{\mathbf{r}} \mathbf{A}(\mathbf{r}') \cdot d\mathbf{r}'} \left(\frac{\hbar}{i} \nabla \Psi_0 - (-e)\mathbf{A} \Psi_0 + (-e)\mathbf{A} \Psi_0 \right) = e^{\frac{i(-e)}{\hbar} \int_{\mathbf{r}_1}^{\mathbf{r}} \mathbf{A}(\mathbf{r}') \cdot d\mathbf{r}'} \left(\frac{\hbar}{i} \nabla \Psi_0 \right)$$

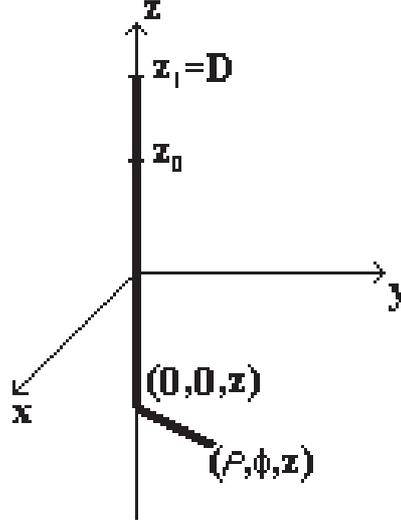


FIG. 5.1 – Chemin utilisé pour relier le point $(0,0,z_1)$ au point (ρ,ϕ,z) . La zone de champs magnétiques est comprise entre les plans $z = z_0$ et $z = z_1$.

Si nous supposons que la zone contenant le champ magnétique est limitée par $z_0 \leq z \leq z_1 = D$, A_ρ est indépendant de z pour $z \leq z_0$ et, comme A_z est nul, nous avons :

$$\Psi(\mathbf{r}) \stackrel{z \leq z_0}{\cong} e^{\frac{i(-e)}{\hbar} \int_0^\rho A_\rho(\rho', \phi, z_0) d\rho'} \Psi_0(\mathbf{r}) \quad (5.52)$$

Ce dernier résultat nous apprend que nous pouvons utiliser les techniques présentées dans les deux chapitres précédents pour résoudre l'équation de Schrödinger dans la région $z \leq z_0$. Il suffit ensuite de multiplier les solutions obtenues avec cette équation incomplète (\mathbf{A} étant absent) par $e^{\frac{i(-e)}{\hbar} \int_0^\rho A_\rho(\rho', \phi, z_0) d\rho'}$ pour obtenir celles que nous aurions trouvées par la technique (plus lourde) de ce chapitre.

Comme la fonction $e^{\frac{i(-e)}{\hbar} \int_0^\rho A_\rho(\rho', \phi, z_0) d\rho'}$ est indépendante de z , nous pouvons l'incorporer dans les fonctions de base utilisées pour décrire la dépendance selon ρ et ϕ des fonctions d'onde. Les coefficients $\Phi_{(m,j)}(z)$ obtenus dans la région $z \leq z_0$ par la méthode des deux chapitres précédents doivent donc être considérés comme se rapportant à cette nouvelle base, c'est-à-dire être ceux intervenant dans le développement :

$$\Psi(\mathbf{r}) \stackrel{z \leq z_0}{\cong} \sum_{m,j} \Phi_{(m,j)}(z) \frac{e^{\frac{i(-e)}{\hbar} \int_0^\rho A_\rho(\rho', \phi, z_0) d\rho'} J_m(k_{m,j}\rho) e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}} \quad (5.53)$$

On vérifie facilement que cette nouvelle base vérifie les mêmes conditions d'orthogonalité et de complétude que la base de départ.

Les coefficients $\Phi_{(m,j)}(z)$ obtenus dans la région $z \geq z_0$ se rapportent toujours à la base originale, c'est-à-dire sont ceux du développement :

$$\Psi(\mathbf{r}) \stackrel{z \geq z_0}{\equiv} \sum_{m,j} \Phi_{(m,j)}(z) \frac{J_m(k_{m,j}\rho) e^{im\phi}}{\sqrt{2\pi \int_0^R d\rho \rho [J_m(k_{m,j}\rho)]^2}} \quad (5.54)$$

puisque la présence de \mathbf{A} a été explicitement incorporée dans les équations de propagation, qui ont été écrites par rapport à cette base.

Il est donc nécessaire, lors de la combinaison des matrices de transfert associées à chaque tranche, de faire un changement de base approprié en z_0 , afin d'exprimer les résultats à cette interface dans une base identique. L'existence des n groupes indépendants est préservée dans cette opération.

Chapitre 6

Matrices de transfert rectangulaires et contrôle de stabilité

6.1 Introduction

Les trois chapitres précédents nous ont exposé toute la base théorique nécessaire à la simulation de la diffusion électronique par des potentiels réels, complexes et par des champs magnétiques. Certains aspects numériques ont été abordés. Comme nous l'avons vu, notre méthode repose essentiellement sur le calcul de matrices de transfert.

La technique des matrices de transfert, comme elle a été présentée jusqu'ici et comme elle est présentée dans la littérature, suppose une forme carrée, pratique à inverser. Comme nous allons le voir dans ce chapitre et dans les applications qui vont suivre, il est parfois pratique de travailler avec un nombre d'états de base différent de chaque côté de la barrière de potentiel associée aux matrices de transfert. Celles-ci prennent alors une forme rectangulaire et l'étape d'inversion nécessite un traitement particulier.

Par ailleurs, les matrices de transfert apparaissent en fin de compte comme les seuls éléments obtenus numériquement dans l'expression finale des solutions utilisées pour calculer les densités de courant. Leur précision dépend donc de celle des matrices de transfert elles-mêmes. Comme nous l'avons annoncé au chapitre 2, la technique des matrices de transfert est très instable. L'erreur relative sur le résultat augmente en effet de manière exponentielle avec la distance associée au calcul de diffusion. Pour une distance trop grande, les résultats perdent toute signification. Ce chapitre aborde aussi ces problèmes de stabilité et la manière de les contrôler.

6.2 Principe du calcul des matrices de transfert

Nous avons déjà expliqué plusieurs fois le principe du calcul des matrices de transfert. Nous le rappellerons brièvement ici pour des raisons de clarté et afin de fixer les notations utilisées dans ce chapitre.

Soient $\{\Psi_j^{I,+}, \Psi_j^{I,-}\}$ et $\{\Psi_j^{III,+}, \Psi_j^{III,-}\}$ deux ensembles d'états de base orthonormés

utilisés respectivement dans deux régions séparées I ($z \leq 0$) et III ($z \geq D$) pour la représentation des fonctions d'onde. Ces fonctions d'onde seront associées chacune à des conditions frontières données. Les symboles + et - indiquent le sens de propagation de chaque état de base (+ désigne une propagation de la région I vers la région III).

Les matrices de transfert contiennent les coefficients des solutions particulières correspondant à un seul état incident $\Psi_j^{I,+}$ ou $\Psi_j^{III,-}$:

$$\Psi_j^+ \stackrel{z \leq 0}{\cong} \Psi_j^{I,+} + \sum_i t_{i,j}^{-+} \Psi_i^{I,-} \stackrel{z \geq D}{\cong} \sum_i t_{i,j}^{++} \Psi_i^{III,+} \quad (6.1)$$

$$\Psi_j^- \stackrel{z \leq 0}{\cong} \sum_i t_{i,j}^{--} \Psi_i^{I,-} \stackrel{z \geq D}{\cong} \Psi_j^{III,-} + \sum_i t_{i,j}^{+-} \Psi_i^{III,+} \quad (6.2)$$

Ces matrices sont obtenues en deux étapes. La première consiste à établir un autre ensemble de solutions :

$$\bar{\Psi}_j^+ \stackrel{z \leq 0}{\cong} \sum_i A_{i,j}^+ \Psi_i^{I,+} + \sum_i B_{i,j}^+ \Psi_i^{I,-} \stackrel{z \geq D}{\cong} \Psi_j^{III,+} \quad (6.3)$$

$$\bar{\Psi}_j^- \stackrel{z \leq 0}{\cong} \Psi_j^{I,-} \stackrel{z \geq D}{\cong} \sum_i A_{i,j}^- \Psi_i^{III,-} + \sum_i B_{i,j}^- \Psi_i^{III,+} \quad (6.4)$$

Ces solutions particulières sont obtenues en propageant les états $\Psi_j^{III,+}$ et $\Psi_j^{I,-}$ à travers la région intermédiaire II ($0 < z < D$) et en décomposant la solution obtenue en états incidents et réfléchis.

Dans une deuxième étape, la linéarité des équations de propagation est utilisée pour obtenir les solutions 6.1 et 6.2 à partir des solutions 6.3 et 6.4 grâce aux relations :

$$\mathbf{t}^{++} = \mathbf{A}^{+-1} \quad (6.5)$$

$$\mathbf{t}^{-+} = \mathbf{B}^+ \mathbf{A}^{+-1} \quad (6.6)$$

$$\mathbf{t}^{--} = \mathbf{A}^{- -1} \quad (6.7)$$

$$\mathbf{t}^{+-} = \mathbf{B}^- \mathbf{A}^{- -1} \quad (6.8)$$

Les problèmes abordés dans ce chapitre concernent uniquement ces quatre dernières relations. En effet, d'une part elles supposent que les matrices \mathbf{A}^+ et \mathbf{A}^- à inverser sont carrées. Il faudra donc montrer comment généraliser ces relations pour traiter des matrices rectangulaires. D'autre part, ces matrices sont très mal conditionnées et tous les problèmes de stabilité proviennent de leur inversion. Nous devons donc remplacer ces relations par des opérations moins coûteuses en précision.

Avant de poursuivre, notons qu'à ce stade les inversions de matrice peuvent être remplacées par des résolutions de système, dans le cas où une partie seulement des solutions Ψ_j^\pm est souhaitée. Cette façon de faire permet d'une part de gagner du temps et d'autre part de réduire quelque peu les instabilités. Elle ne peut cependant pas se substituer à l'algorithme des tranches qui nous présenterons par la suite.

6.3 Matrices de transfert rectangulaires

6.3.1 Motivation

Considérons maintenant une situation où le nombre de fonctions de base utilisé pour représenter la fonction d'onde dans la région I diffère de celui utilisé dans la région III. Dans notre modèle de diffusion, cela peut arriver si nous considérons des régions de l'espace caractérisées par des cylindres de confinement de rayons R et R' différents.

De telles situations seront rencontrées par la suite, lorsque nous imaginerons la présence d'une ouverture circulaire sur la grille porte-objet (afin de réaliser des expériences de diffraction et tester la qualité du faisceau extrait des nanopointes).

Cette région intermédiaire (notre région III) entre la région II (contenant la nanopointe) et la région de propagation libre jusqu'à l'écran (que nous rebaptisons ici "région IV") peut être représentée très simplement par une région cylindrique dont le rayon R' est celui souhaité pour l'ouverture circulaire. Dans cette application, le rayon de confinement utilisé dans la région III sera plus petit que celui utilisé dans la région I. Le nombre d'états de base utilisé pour représenter la fonction d'onde sera donc plus petit dans la région III que dans la région I et les matrices de transfert seront rectangulaires.

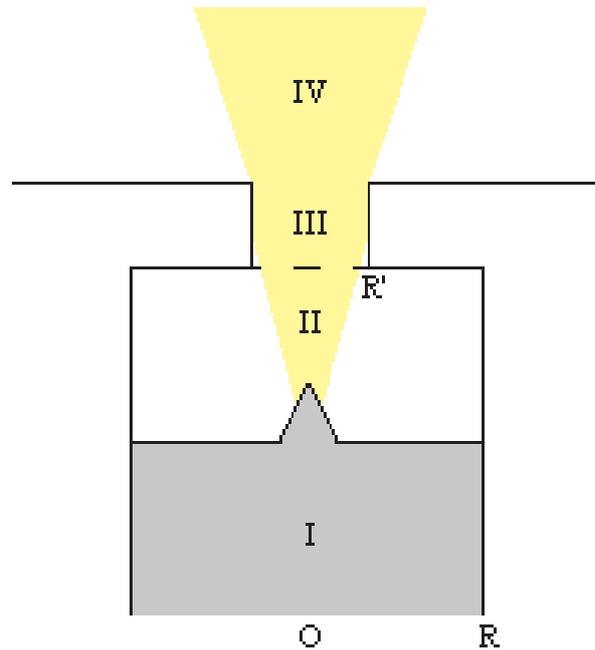


FIG. 6.1 – *Ouverture circulaire faisant apparaître deux régions caractérisées par des états de base en nombres différents.*

6.3.2 Implémentation par inverses généralisées

Considérons donc une telle situation, où le nombre d'états de base est plus petit dans la région III que dans la région I. Les conclusions que nous tirerons seront directement applicables au cas contraire, puisque les quatre matrices de transfert considèrent des états incidents depuis chaque région.

Le fait que les états de base dans les régions I et III ne soient pas en nombres identiques n'empêche pas d'établir les solutions :

$$\bar{\Psi}_j^+ \stackrel{z \leq 0}{\cong} \sum_i A_{i,j}^+ \Psi_i^{I,+} + \sum_i B_{i,j}^+ \Psi_i^{I,-} \stackrel{z \geq D}{\cong} \Psi_j^{III,+} \quad (6.9)$$

$$\bar{\Psi}_j^- \stackrel{z \leq 0}{\cong} \Psi_j^{I,-} \stackrel{z \geq D}{\cong} \sum_i A_{i,j}^- \Psi_i^{III,-} + \sum_i B_{i,j}^- \Psi_i^{III,+} \quad (6.10)$$

Dans ces relations, les matrices A^+ et B^+ ont plus de lignes que de colonnes, tandis que les matrices A^- et B^- ont moins de lignes que de colonnes.

Nous pouvons alors utiliser une inversion généralisée pour remplacer les opérations \mathbf{A}^{+-1} et \mathbf{A}^{-1} . En effet, toute application \mathbf{A} de \mathbf{C}^m dans \mathbf{C}^n de rang r (représentable par une matrice $n \times m$) peut s'écrire comme :

$$\mathbf{A} = \mathbf{W} \mathbf{H} \quad (6.11)$$

où \mathbf{H} est une application de \mathbf{C}^m dans \mathbf{C}^r de rang r (représentable par une matrice $r \times m$) et \mathbf{W} une application de \mathbf{C}^r dans \mathbf{C}^n de rang r aussi (représentable par une matrice $n \times r$). L'inverse généralisée de \mathbf{A} est alors donnée par :

$$\mathbf{A}^+ = \mathbf{H}^\dagger (\mathbf{H} \mathbf{H}^\dagger)^{-1} (\mathbf{W}^\dagger \mathbf{W})^{-1} \mathbf{W}^\dagger \quad (6.12)$$

où \dagger désigne l'opération associant à une matrice sa transposée complexe conjuguée. L'interprétation de \mathbf{A}^+ sera précisée dans un instant.

Etant donné que les états de base dans les régions I et III sont orthogonaux, nous pouvons nous attendre à ce que les solutions décrites en 6.9 et 6.10 soient linéairement indépendantes et donc que le rang des matrices \mathbf{A}^+ et \mathbf{A}^- soit donné par le nombre d'états de base le plus petit entre celui des régions I et III. Dans l'exemple que nous considérons, il s'agit du nombre d'états de base de la région III. Les deux matrices \mathbf{A}^+ et \mathbf{A}^- peuvent donc être mises sous la forme 6.11 en prenant $\mathbf{H} = \mathbf{I}$ pour \mathbf{A}^+ et $\mathbf{W} = \mathbf{I}$ pour \mathbf{A}^- . Les inverses généralisées de ces deux matrices sont alors données par les relations :

$$\mathbf{A}^{++} = (\mathbf{A}^{+\dagger} \mathbf{A}^+)^{-1} \mathbf{A}^{+\dagger} \quad (6.13)$$

$$\mathbf{A}^{-+} = \mathbf{A}^{-\dagger} (\mathbf{A}^- \mathbf{A}^{-\dagger})^{-1} \quad (6.14)$$

valables lorsque \mathbf{A}^+ possède plus de lignes que de colonnes et \mathbf{A}^- plus de colonnes que de lignes.

Avant de procéder au remplacement de ces définitions dans les relations 6.5 à 6.8, il est nécessaire de réfléchir aux propriétés particulières de l'inverse généralisée.

Dans le cas considéré, \mathbf{A}^+ définit une application dans un espace de dimension supérieure à celui de départ. Son inverse généralisée permet un retour dans cet espace de départ :

$$\mathbf{A}^{++}\mathbf{A}^+ = I \quad (6.15)$$

Une fois la matrice \mathbf{A}^{++} calculée, nous considérerons ses colonnes comme les coefficients dans la région III des solutions correspondant à l'arrivée d'états linéairement indépendants dans la région I. Ces états incidents indépendants sont cependant plus nombreux que le nombre maximum d'états transmis indépendants que la région III peut contenir. Afin de préserver la conservation du courant dans notre modèle, les états incidents dans la région I qui ne trouvent pas de place dans la région III devront être réfléchis à l'entrée de la région III par le formalisme. Ces inquiétudes sont justifiées mathématiquement par le fait qu'en général on a :

$$\mathbf{A}^+\mathbf{A}^{++} \neq I \quad (6.16)$$

Cette constatation justifie pour \mathbf{A}^{++} le qualificatif d'*inverse à gauche* de \mathbf{A}^+ .

Quant à la matrice \mathbf{A}^- , elle définit une application dans un espace de dimension inférieure à celui de départ. Un retour n'est plus complètement possible puisque l'espace d'arrivée associé à \mathbf{A}^- ne peut contenir autant de vecteurs linéairement indépendants que celui de départ. Ici aussi, une inégalité en général vérifiée confirme nos commentaires :

$$\mathbf{A}^{-+}\mathbf{A}^- \neq I \quad (6.17)$$

Par contre, l'inverse généralisée \mathbf{A}^{-+} contient dans ses colonnes les coefficients dans la région I des solutions correspondant à l'arrivée d'états linéairement indépendants dans la région III. Ces états incidents sont en nombre plus petit que la dimension de représentation dans la région I. La région I permet donc de les contenir en préservant leur indépendance et nous avons la relation :

$$\mathbf{A}^-\mathbf{A}^{-+} = I \quad (6.18)$$

Cette constatation justifie pour \mathbf{A}^{-+} le qualificatif d'*inverse à droite* de \mathbf{A}^- .

Ces commentaires et surtout les inégalités 6.16 et 6.17 montrent que l'inverse généralisée est une opération plus subtile que l'inversion utilisée sur des matrices carrées et surtout que certaines précautions doivent être prises pour réfléchir les états incidents qui ne trouvent pas de place dans l'espace d'arrivée.

Pour voir comment remplacer adéquatement les relations 6.5 à 6.8, écrivons les solutions 6.9 et 6.10 sous la forme compacte :

$$\begin{aligned} (\dots, \bar{\Psi}_j^+, \dots) & \stackrel{z \leq 0}{\cong} (\dots, \Psi_j^{I,+}, \dots) \mathbf{A}^+ + (\dots, \Psi_j^{I,-}, \dots) \mathbf{B}^+ \\ & \stackrel{z \geq D}{\cong} (\dots, \Psi_j^{III,+}, \dots) \end{aligned} \quad (6.19)$$

$$\begin{aligned} (\dots, \bar{\Psi}_j^-, \dots) & \stackrel{z \leq 0}{\cong} (\dots, \Psi_j^{I,-}, \dots) \\ & \stackrel{z \geq D}{\cong} (\dots, \Psi_j^{III,-}, \dots) \mathbf{A}^- + (\dots, \Psi_j^{III,+}, \dots) \mathbf{B}^- \end{aligned} \quad (6.20)$$

Multiplions par la droite la première relation par \mathbf{A}^{++} et la seconde par \mathbf{A}^{-+} :

$$\begin{aligned} (\dots, \Psi_j^+, \dots) & \stackrel{z \leq 0}{\cong} (\dots, \Psi_j^{I,+}, \dots) \mathbf{A}^+ \mathbf{A}^{++} + (\dots, \Psi_j^{I,-}, \dots) \mathbf{B}^+ \mathbf{A}^{++} \\ & \stackrel{z \geq D}{\cong} (\dots, \Psi_j^{III,+}, \dots) \mathbf{A}^{++} \end{aligned} \quad (6.21)$$

$$\begin{aligned} (\dots, \Psi_j^-, \dots) & \stackrel{z \leq 0}{\cong} (\dots, \Psi_j^{I,-}, \dots) \mathbf{A}^{-+} \\ & \stackrel{z \geq D}{\cong} (\dots, \Psi_j^{III,-}, \dots) \mathbf{A}^- \mathbf{A}^{-+} + (\dots, \Psi_j^{III,+}, \dots) \mathbf{B}^- \mathbf{A}^{-+} \end{aligned} \quad (6.22)$$

Etant donné l'inégalité 6.16, le terme $(\dots, \Psi_j^{I,+}, \dots) \mathbf{A}^+ \mathbf{A}^{++}$ dans la première équation ne se laisse pas simplifier comme : $(\dots, \Psi_j^{I,+}, \dots) \mathbf{I}$. Nous avons anticipé ce problème et nous savons qu'il est dû à des états de base incidents dans la région I qui ne trouvent pas de place dans la région III. Pour traiter adéquatement ces états $(\dots, \Psi_j^{I,+}, \dots) (\mathbf{I} - \mathbf{A}^+ \mathbf{A}^{++})$, il suffit de leur imposer une réflexion à l'entrée de la région III en posant une relation :

$$\begin{aligned} (\dots, \Psi_j^0, \dots) & \stackrel{z \leq 0}{\cong} (\dots, \Psi_j^{I,+}, \dots) (\mathbf{I} - \mathbf{A}^+ \mathbf{A}^{++}) + (\dots, \Psi_j^{I,-}, \dots) \mathbf{D}^{-+} (\mathbf{I} - \mathbf{A}^+ \mathbf{A}^{++}) \\ & \stackrel{z \geq D}{\cong} (\dots, \Psi_j^{III,+}, \dots) \mathbf{O} \end{aligned} \quad (6.23)$$

La matrice \mathbf{D}^{-+} permet d'assurer la continuité de la fonction d'onde lorsque les matrices de transfert rectangulaires raccordent deux développements applicables en un même point. Dans notre exemple, cette situation est rencontrée si $D = 0$. En général, on peut toujours, par l'algorithme des tranches présenté plus loin, utiliser des matrices de transfert carrées pour prolonger les développements à raccorder jusqu'à un point commun donné, où la technique des matrices de transfert rectangulaire est appliquée. Si $z = D$ ($= 0$ dans notre exemple) est ce point commun, \mathbf{D}^{-+} est choisi de telle sorte que :

$$(\dots, \Psi_j^{I,+}, \dots) + (\dots, \Psi_j^{I,-}, \dots) \mathbf{D}^{-+} \stackrel{z=D}{\cong} 0 \quad (6.24)$$

Par exemple, si les états $\Psi_j^{I,\pm}$ sont donnés par $\Psi_j^{I,\pm} = e^{\pm i k_{z,j} z}$, \mathbf{D}^{-+} s'exprimera comme :

$$D_{i,j}^{-+} = \begin{cases} -e^{i 2 k_{z,j} D} & \text{si } i = j \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (6.25)$$

On peut alors additionner les relations 6.21 et 6.23 pour obtenir :

$$\begin{aligned} (\dots, \Psi_j^+, \dots) &\stackrel{z \leq 0}{\cong} (\dots, \Psi_j^{I,+}, \dots) \mathbf{I} + (\dots, \Psi_j^{I,-}, \dots) (\mathbf{B}^+ \mathbf{A}^{++} + \mathbf{D}^{-+} (\mathbf{I} - \mathbf{A}^+ \mathbf{A}^{++})) \\ &\stackrel{z \geq D}{\cong} (\dots, \Psi_j^{III,+}, \dots) \mathbf{A}^{++} \end{aligned} \quad (6.26)$$

$$\begin{aligned} (\dots, \Psi_j^-, \dots) &\stackrel{z \leq 0}{\cong} (\dots, \Psi_j^{I,-}, \dots) \mathbf{A}^{-+} \\ &\stackrel{z \geq D}{\cong} (\dots, \Psi_j^{III,-}, \dots) \mathbf{I} + (\dots, \Psi_j^{III,+}, \dots) \mathbf{B}^- \mathbf{A}^{-+} \end{aligned} \quad (6.27)$$

En identifiant ces relations avec la forme souhaitée :

$$\begin{aligned} (\dots, \Psi_j^+, \dots) &\stackrel{z \leq 0}{\cong} (\dots, \Psi_j^{I,+}, \dots) \mathbf{I} + (\dots, \Psi_j^{I,-}, \dots) \mathbf{t}^{-+} \\ &\stackrel{z \geq D}{\cong} (\dots, \Psi_j^{III,+}, \dots) \mathbf{t}^{++} \end{aligned} \quad (6.28)$$

$$\begin{aligned} (\dots, \Psi_j^-, \dots) &\stackrel{z \leq 0}{\cong} (\dots, \Psi_j^{I,-}, \dots) \mathbf{t}^{--} \\ &\stackrel{z \geq D}{\cong} (\dots, \Psi_j^{III,-}, \dots) \mathbf{I} + (\dots, \Psi_j^{III,+}, \dots) \mathbf{t}^{+-} \end{aligned} \quad (6.29)$$

et en utilisant les expressions 6.13 et 6.14 pour les inverses généralisées, on obtient les expressions suivantes :

$$\mathbf{t}^{++} = (\mathbf{A}^{+\dagger} \mathbf{A}^+)^{-1} \mathbf{A}^{+\dagger} \quad (6.30)$$

$$\mathbf{t}^{-+} = \mathbf{B}^+ (\mathbf{A}^{+\dagger} \mathbf{A}^+)^{-1} \mathbf{A}^{+\dagger} + \mathbf{D}^{-+} (\mathbf{I} - \mathbf{A}^+ (\mathbf{A}^{+\dagger} \mathbf{A}^+)^{-1} \mathbf{A}^{+\dagger}) \quad (6.31)$$

$$\mathbf{t}^{--} = \mathbf{A}^{-\dagger} (\mathbf{A}^- \mathbf{A}^{-\dagger})^{-1} \quad (6.32)$$

$$\mathbf{t}^{+-} = \mathbf{B}^- \mathbf{A}^{-\dagger} (\mathbf{A}^- \mathbf{A}^{-\dagger})^{-1} \quad (6.33)$$

valables lorsque \mathbf{A}^+ possède plus de lignes que de colonnes et \mathbf{A}^- plus de colonnes que de lignes. On vérifie facilement qu'on retrouve les relations 6.5 à 6.8 lorsque les matrices \mathbf{A}^+ et \mathbf{A}^- sont carrées.

Les relations 6.5 à 6.8 se généralisent donc par :

$$\mathbf{t}^{++} = \mathbf{A}^{++} \quad (6.34)$$

$$\mathbf{t}^{-+} = \mathbf{B}^+ \mathbf{A}^{++} + \mathbf{D}^{-+} (\mathbf{I} - \mathbf{A}^+ \mathbf{A}^{++}) \quad (6.35)$$

$$\mathbf{t}^{--} = \mathbf{A}^{-+} \quad (6.36)$$

$$\mathbf{t}^{+-} = \mathbf{B}^- \mathbf{A}^{-+} + \mathbf{D}^{+-} (\mathbf{I} - \mathbf{A}^- \mathbf{A}^{-+}) \quad (6.37)$$

où les matrices \mathbf{D}^{-+} et \mathbf{D}^{+-} sont déterminées par la condition de continuité de la fonction d'onde au point de raccord des deux représentations et les inverses généralisées sont calculées par :

$$\mathbf{M}^+ = (\mathbf{M}^\dagger \mathbf{M})^{-1} \mathbf{M}^\dagger \quad (6.38)$$

lorsque les matrices \mathbf{M} concernées ont plus de lignes que de colonnes et par :

$$\mathbf{M}^+ = \mathbf{M}^\dagger (\mathbf{M} \mathbf{M}^\dagger)^{-1} \quad (6.39)$$

dans le cas contraire.

Les résolutions de système peuvent remplacer les inversions de matrice toujours dans le cas où une partie seulement des solutions est souhaitée, mais aussi à condition que l'inverse se situe comme dernier facteur à droite des relations concernées. Cette substitution n'est donc possible que lorsque l'inverse généralisée est calculée de la façon donnée en 6.39.

6.3.3 Interprétation des formules d'inversion

Pour nous convaincre de l'efficacité des relations 6.30 à 6.33 et mieux comprendre ce qui se cache derrière, nous allons considérer le cas simple où les régions I et III contiennent respectivement 2 et 1 états de base (pour chaque sens de propagation).

Interprétation des relations pour \mathbf{t}^{++} et \mathbf{t}^{-+}

Situation idéale Commençons par considérer une situation où les deux états de base dans la région I sont choisis de manière à ce que les états de base $\Psi_1^{I,\pm}$ soient les seuls pouvant être associés à une valeur non nulle de la fonction d'onde dans la région III. Dans l'exemple que nous avons considéré jusque maintenant, les états $\Psi_1^{I,\pm}$ sont ceux incidents et réfléchis sur l'ouverture circulaire tandis que les deux autres états de base $\Psi_2^{I,\pm}$ correspondent aux états incidents et réfléchis sur le bord de l'ouverture. Nous ajouterons un indice *ideal* pour marquer le caractère idéal du choix de la représentation dans la région I.

La solution que nous obtenons en considérant l'état sortant $\Psi_1^{III,+}$ est alors la suivante :

$$(\overline{\Psi}_1^+) \stackrel{z \leq 0}{\cong} (\Psi_{1,ideal}^{I,+}, \Psi_{2,ideal}^{I,+}) \begin{pmatrix} a_1 \\ 0 \end{pmatrix} + (\Psi_{1,ideal}^{I,-}, \Psi_{2,ideal}^{I,-}) \begin{pmatrix} b_1 \\ 0 \end{pmatrix} \stackrel{z \geq D}{\cong} (\Psi_1^{III,+})1 \quad (6.40)$$

Nous avons posé la relation :

$$(\overline{\Psi}_1^0) \stackrel{z \leq 0}{\cong} (\Psi_{1,ideal}^{I,+}, \Psi_{2,ideal}^{I,+}) \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} + (\Psi_{1,ideal}^{I,-}, \Psi_{2,ideal}^{I,-}) \begin{pmatrix} 0 \\ e^{i\lambda} \end{pmatrix} \stackrel{z \geq D}{\cong} (\Psi_1^{III,+})0 \quad (6.41)$$

où $e^{i\lambda}$ représente le facteur nécessaire à la continuité la fonction d'onde en un point de raccord commun.

Les matrices \mathbf{A}^+ , \mathbf{B}^+ , \mathbf{t}^{++} et \mathbf{t}^{-+} prennent alors les expressions suivantes :

$$\mathbf{A}^+ = \begin{pmatrix} a_1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (6.42)$$

$$\mathbf{B}^+ = \begin{pmatrix} b_1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (6.43)$$

$$\mathbf{t}^{++} = \frac{1}{|a_1|^2} \begin{pmatrix} a_1^* & 0 \end{pmatrix} \quad (6.44)$$

$$\mathbf{t}^{-+} = \frac{a_1^* b_1}{|a_1|^2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} + e^{i\lambda} \left(\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} a_1 \\ 0 \end{pmatrix} \frac{1}{|a_1|^2} \begin{pmatrix} a_1^* & 0 \end{pmatrix} \right) = \begin{pmatrix} a_1^* b_1 / |a_1|^2 & 0 \\ 0 & e^{i\lambda} \end{pmatrix} \quad (6.45)$$

L'application de notre méthode fournit donc le résultat suivant :

$$\begin{aligned} (\Psi_{1,ideal}^+, \Psi_{2,ideal}^+) &\stackrel{z \leq 0}{\cong} (\Psi_{1,ideal}^{I,+}, \Psi_{2,ideal}^{I,+}) \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} + (\Psi_{1,ideal}^{I,-}, \Psi_{2,ideal}^{I,-}) \begin{pmatrix} a_1^* b_1 / |a_1|^2 & 0 \\ 0 & e^{i\lambda} \end{pmatrix} \\ &\stackrel{z \geq D}{\cong} (\Psi_1^{III,+}) \frac{1}{|a_1|^2} (a_1^* \quad 0) \end{aligned} \quad (6.46)$$

où l'on reconnaît facilement nos solutions de départ $\bar{\Psi}_{1,ideal}^+ = a_1 \Psi_{1,ideal}^+$ et $\bar{\Psi}_{1,ideal}^0 = \Psi_{2,ideal}^+$. Notre méthode conserve donc les solutions physiques.

Situation réelle Dans le paragraphe précédent, nous avons utilisé une représentation particulière où seuls les états incidents avec un indice 1 pouvaient être transmis tandis que les états incidents avec un indice 2 étaient automatiquement réfléchis.

Considérons maintenant une représentation générale. Les nouveaux états de base (indiqués par *reel*) peuvent être considérés comme un mélange des états de base dans la représentation idéale. Nous pouvons relier les deux représentations de la façon suivante :

$$(\Psi_{1,reel}^{I,\pm}, \Psi_{2,reel}^{I,\pm}) = (\Psi_{1,ideal}^{I,\pm}, \Psi_{2,ideal}^{I,\pm}) \begin{pmatrix} U_{11} & U_{12} \\ U_{21} & U_{22} \end{pmatrix} \quad (6.47)$$

grâce à une matrice unitaire $\mathbf{U} = \begin{pmatrix} U_{11} & U_{12} \\ U_{21} & U_{22} \end{pmatrix}$.

Dans une situation réelle, \mathbf{U} est inconnue, mais nous pouvons utiliser cette relation pour suivre ce que deviennent les composantes de nos nouveaux états de base au cours du traitement.

La solution $\bar{\Psi}_1^+$ peut être réécrite dans la nouvelle représentation :

$$(\bar{\Psi}_1^+) \stackrel{z \leq 0}{\cong} (\Psi_{1,reel}^{I,+}, \Psi_{2,reel}^{I,+}) \begin{pmatrix} a_1 U_{11}^* \\ a_1 U_{12}^* \end{pmatrix} + (\Psi_{1,reel}^{I,-}, \Psi_{2,reel}^{I,-}) \begin{pmatrix} b_1 U_{11}^* \\ b_1 U_{12}^* \end{pmatrix} \stackrel{z \geq D}{\cong} (\Psi_1^{III,+}) 1 \quad (6.48)$$

Les matrices \mathbf{A}^+ , \mathbf{B}^+ , \mathbf{t}^{++} et \mathbf{t}^{-+} prennent cette fois les expressions suivantes :

$$\mathbf{A}^+ = \begin{pmatrix} a_1 U_{11}^* \\ a_1 U_{12}^* \end{pmatrix} \quad (6.49)$$

$$\mathbf{B}^+ = \begin{pmatrix} b_1 U_{11}^* \\ b_1 U_{12}^* \end{pmatrix} \quad (6.50)$$

$$\mathbf{t}^{++} = \frac{a_1^*}{|a_1|^2} (U_{11} \quad U_{12}) \quad (6.51)$$

$$\mathbf{t}^{-+} = \begin{pmatrix} e^{i\lambda} & 0 \\ 0 & e^{i\lambda} \end{pmatrix} + \left(\frac{a_1^* b_1}{|a_1|^2} - e^{i\lambda} \right) \begin{pmatrix} |U_{11}|^2 & U_{11}^* U_{12} \\ U_{11} U_{12}^* & |U_{12}|^2 \end{pmatrix} \quad (6.52)$$

On peut alors examiner le contenu des solutions données par notre méthode :

$$\begin{aligned}
(\Psi_{1,reel}^+, \Psi_{2,reel}^+) &\stackrel{z \leq 0}{\cong} (\Psi_{1,reel}^{I,+}, \Psi_{2,reel}^{I,+}) \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \\
&+ (\Psi_{1,reel}^{I,-}, \Psi_{2,reel}^{I,-}) \left(\begin{pmatrix} e^{i\lambda} & 0 \\ 0 & e^{i\lambda} \end{pmatrix} + \left(\frac{a_1^* b_1}{|a_1|^2} - e^{i\lambda} \right) \begin{pmatrix} |U_{11}|^2 & U_{11}^* U_{12} \\ U_{11} U_{12}^* & |U_{12}|^2 \end{pmatrix} \right) \\
&\stackrel{z \geq D}{\cong} (\Psi_1^{III,+}) \frac{a_1^*}{|a_1|^2} \begin{pmatrix} U_{11} & U_{12} \end{pmatrix}
\end{aligned} \tag{6.53}$$

En utilisant les relations $U_{i1}^* U_{j1} + U_{i2}^* U_{j2} = \delta_{ij}$ dues à l'unicité de la matrice \mathbf{U} , on constate après quelques manipulations algébriques que ces deux solutions sont simplement des combinaisons linéaires des solutions $\bar{\Psi}_1^+$ et $\bar{\Psi}_1^0$:

$$\Psi_{1,reel}^+ = \frac{1}{a_1} U_{11} \bar{\Psi}_1^+ + U_{21} \bar{\Psi}_1^0 \tag{6.54}$$

$$\Psi_{2,reel}^+ = \frac{1}{a_1} U_{12} \bar{\Psi}_1^+ + U_{22} \bar{\Psi}_1^0 \tag{6.55}$$

On voit donc que dans tous les cas, notre méthode traite de manière appropriée les parties partiellement transmises et purement réfléchies contenues dans la solution de départ, même lorsque cette décomposition n'est pas connue explicitement. Les solutions fournies sont donc correctes, puisqu'elles se ramènent à une combinaison linéaire de solutions du problème.

Interprétation des relations pour \mathbf{t}^{--} et \mathbf{t}^{+-}

Situation idéale Considérons maintenant la construction des deux autres matrices de transfert et commençons ici aussi par considérer une représentation idéale où les états dans la région I indicés par 1 sont les seuls à pouvoir être transmis dans la région III.

La première étape consiste à établir les deux solutions correspondant à chacun des états sortant $\Psi_{1,ideal}^{I,-}$ et $\Psi_{2,ideal}^{I,-}$. Etant donné le choix particulier de la représentation, les solutions prennent la forme suivante :

$$(\bar{\Psi}_{1,ideal}^-, \bar{\Psi}_{2,ideal}^-) \stackrel{z \leq 0}{\cong} (\Psi_{1,ideal}^{I,-}, \Psi_{2,ideal}^{I,-}) \stackrel{z \geq D}{\cong} (\Psi_1^{III,-}) \begin{pmatrix} a_1 & 0 \end{pmatrix} + (\Psi_1^{III,+}) \begin{pmatrix} b_1 & 0 \end{pmatrix} \tag{6.56}$$

Les matrices \mathbf{A}^- , \mathbf{B}^- , \mathbf{t}^{--} et \mathbf{t}^{+-} prennent alors les expressions suivantes :

$$\mathbf{A}^- = \begin{pmatrix} a_1 & 0 \end{pmatrix} \tag{6.57}$$

$$\mathbf{B}^- = \begin{pmatrix} b_1 & 0 \end{pmatrix} \tag{6.58}$$

$$\mathbf{t}^{--} = \frac{1}{|a_1|^2} \begin{pmatrix} a_1^* \\ 0 \end{pmatrix} \tag{6.59}$$

$$\mathbf{t}^{+-} = \begin{pmatrix} \frac{a_1^* b_1}{|a_1|^2} \end{pmatrix} \tag{6.60}$$

Notre méthode fournit donc une solution unique qui est la suivante :

$$(\Psi_{1,ideal}^-) \stackrel{z \leq 0}{\cong} (\Psi_{1,ideal}^{I,-}, \Psi_{2,ideal}^{I,-}) \frac{1}{|a_1|^2} \begin{pmatrix} a_1^* \\ 0 \end{pmatrix} \stackrel{z \geq D}{\cong} (\Psi_1^{III,-})(1) + (\Psi_1^{III,+}) \left(\frac{a_1^* b_1}{|a_1|^2} \right) \quad (6.61)$$

Cette solution correspond à la solution de départ $\bar{\Psi}_{1,ideal}^- = a_1 \Psi_{1,ideal}^-$ qui est la seule pertinente pour un état incident dans la région III, la deuxième solution $\bar{\Psi}_{2,ideal}^-$ restant nulle dans cette région.

Situation réelle Nous voyons donc que notre méthode sait trouver parmi les deux solutions de départ celle appropriée à un état incident dans la région III. Regardons maintenant ce qui arrive lorsque les deux solutions de départ sont mélangées dans une représentation quelconque. Les états de base de cette nouvelle représentation peuvent toujours être reliés aux états de base de la représentation idéale par l'expression :

$$(\Psi_{1,reel}^{I,\pm}, \Psi_{2,reel}^{I,\pm}) = (\Psi_{1,ideal}^{I,\pm}, \Psi_{2,ideal}^{I,\pm}) \begin{pmatrix} U_{11} & U_{12} \\ U_{21} & U_{22} \end{pmatrix} \quad (6.62)$$

grâce à la matrice unitaire $\mathbf{U} = \begin{pmatrix} U_{11} & U_{12} \\ U_{21} & U_{22} \end{pmatrix}$.

Nous pouvons alors reformuler les solutions de départ dans la nouvelle représentation par :

$$\begin{aligned} (\bar{\Psi}_{1,reel}^-, \bar{\Psi}_{2,reel}^-) &\stackrel{z \leq 0}{\cong} (\Psi_{1,reel}^{I,-}, \Psi_{2,reel}^{I,-}) \\ &\stackrel{z \geq D}{\cong} (\Psi_1^{III,-})(U_{11}a_1 \quad U_{12}a_1) + (\Psi_1^{III,+})(U_{11}b_1 \quad U_{12}b_1) \end{aligned} \quad (6.63)$$

Les matrices \mathbf{A}^- , \mathbf{B}^- , \mathbf{t}^{--} et \mathbf{t}^{+-} prennent cette fois les expressions suivantes :

$$\mathbf{A}^- = (U_{11}a_1 \quad U_{12}a_1) \quad (6.64)$$

$$\mathbf{B}^- = (U_{11}b_1 \quad U_{12}b_1) \quad (6.65)$$

$$\mathbf{t}^{--} = \frac{a_1^*}{|a_1|^2} \begin{pmatrix} U_{11}^* \\ U_{12}^* \end{pmatrix} \quad (6.66)$$

$$\mathbf{t}^{+-} = \left(\frac{a_1^* b_1}{|a_1|^2} \right) \quad (6.67)$$

La solution fournie par notre méthode est alors :

$$\begin{aligned} (\Psi_{1,reel}^-) &\stackrel{z \leq 0}{\cong} (\Psi_{1,reel}^{I,-}, \Psi_{2,reel}^{I,-}) \frac{a_1^*}{|a_1|^2} \begin{pmatrix} U_{11}^* \\ U_{12}^* \end{pmatrix} \\ &\stackrel{z \geq D}{\cong} (\Psi_1^{III,-})(1) + (\Psi_1^{III,+}) \left(\frac{a_1^* b_1}{|a_1|^2} \right) \end{aligned} \quad (6.68)$$

En notant que $(\Psi_{1,reel}^{I,-}, \Psi_{2,reel}^{I,-}) \begin{pmatrix} U_{11}^* \\ U_{12}^* \end{pmatrix} = \Psi_{1,ideal}^{I,-}$, on voit que la méthode fournit la même solution que lorsque la représentation est idéale. Notre méthode est donc capable d'extraire parmi les deux solutions qui lui sont proposées l'information nécessaire à la construction d'une solution appropriée à l'état incident dans la région III.

6.4 Contrôle de stabilité

6.4.1 Motivation

La technique des matrices de transfert, telle qu'elle a été présentée jusqu'ici, est parfaitement applicable au traitement de situations quelconques, pour autant que les matrices concernées puissent être calculées avec suffisamment de précision. Cette réserve est importante, car il s'avère en pratique que cette condition n'est pas toujours vérifiée.

En effet, l'application des formules 6.30 à 6.33 implique l'inversion de plusieurs matrices. Ces opérations s'accompagnent d'une perte de précision qui augmente de manière exponentielle avec la distance et limite donc la portée de la méthode.

L'algorithme des tranches apporte une solution efficace à ce problème de stabilité, en permettant le calcul de matrices de transfert associées à des distances plus petites et donc mieux conditionnées. Nous allons présenter ici cet algorithme ainsi qu'un modèle permettant de prédire la précision du calcul et de l'appliquer au mieux.

6.4.2 Représentation de l'erreur

Afin de mesurer l'erreur d'un résultat nous devons introduire une définition claire de cette notion ainsi qu'un moyen pratique de l'évaluer. Nous souhaitons pouvoir dire combien de chiffres sont significatifs dans le résultat d'un calcul. Il nous faut donc évaluer son erreur relative. On pourrait attacher un paramètre d'erreur à chaque élément de matrice, mais cela doublerait l'espace mémoire associé à chaque matrice et demanderait des efforts de calcul supplémentaires trop importants. Nous nous contenterons donc d'un paramètre donnant l'erreur relative globale sur le résultat, mais d'une façon qui n'accorde pas trop d'importance aux éléments de la matrice qui sont petits par rapport aux autres.

Dans un calcul numérique, la représentation d'une matrice $\bar{\mathbf{A}}$ sera différente de sa valeur idéale \mathbf{A} et nous pouvons relier leurs composantes de la façon suivante :

$$\bar{A}_{i,j} = (1 + \delta_{A;i,j})A_{i,j} \quad (6.69)$$

où le terme $\delta_{A;i,j}$ représente l'erreur relative sur la vraie valeur des composantes de \mathbf{A} . Nous définissons alors *l'erreur relative sur la matrice \mathbf{A}* par la relation suivante :

$$\epsilon_A = \frac{\sum_{i,j} |\delta_{A;i,j} A_{i,j}|}{\sum_{i,j} |A_{i,j}|} \quad (6.70)$$

Cette définition fournit donc l'erreur relative moyenne sur la matrice \mathbf{A} , pondérée par ses propres éléments. Chaque élément de la matrice contribue ainsi à la valeur de ϵ_A , avec un poids proportionnel à son importance par rapport aux autres éléments. En pratique il arrive souvent que certains éléments soient entachés d'une grande erreur relative mais soient négligeables par rapport au reste de la matrice. Cette définition apporte donc une solution à ce problème.

La meilleure précision que l'on puisse obtenir sur un résultat est celle où tous les chiffres représentés sont significatifs. Dans une représentation où n_{bit} chiffres binaires sont utilisés pour représenter la partie fractionnaire des nombres réels, cette erreur relative minimale est donnée par :

$$\epsilon_{comp} = 2^{-n_{bit}} \quad (6.71)$$

La quantité n_{bit} est reliée au nombre d'octets r utilisés pour représenter les réels et au nombre de chiffres binaires n_{exp} utilisés pour la représentation de l'exposant et du signe simplement par : $n_{bit} = 8 * r - n_{exp}$.

À l'autre extrême, la pire précision que l'on puisse obtenir sur un résultat est celle où aucun chiffre représenté n'est significatif. Cette situation est rencontrée lorsque $\epsilon_A > 1$.

On souhaite maintenant estimer la précision obtenue lorsque des opérations simples (multiplication, addition, inversion) sont effectuées sur des matrices \mathbf{A} et \mathbf{B} de précision ϵ_A et ϵ_B connue.

Multiplication Pour obtenir l'erreur relative sur le produit \mathbf{AB} , il suffit de considérer les composantes du produit :

$$\begin{aligned} (\overline{AB})_{i,j} &= \sum_k (1 + \delta_{A;i,k})(1 + \delta_{B;k,j})A_{i,k}B_{k,j} \\ &\simeq \sum_k (1 + (\delta_{A;i,k} + \delta_{B;k,j}))A_{i,k}B_{k,j} \\ &\simeq \left(1 + \frac{\sum_k (\delta_{A;i,k} + \delta_{B;k,j})A_{i,k}B_{k,j}}{\sum_k A_{i,k}B_{k,j}}\right) (AB)_{i,j} \end{aligned} \quad (6.72)$$

qui montrent que :

$$\epsilon_{AB} = \frac{\sum_{i,j} |\sum_k (\delta_{A;i,k} + \delta_{B;k,j})A_{i,k}B_{k,j}|}{\sum_{i,j} |(AB)_{i,j}|} \quad (6.73)$$

En pratique, cette expression sera évaluée simplement par :

$$\epsilon_{AB} = \epsilon_A + \epsilon_B \quad (6.74)$$

Addition Dans le cas de l'addition $\mathbf{A} + \mathbf{B}$, il faut considérer à nouveau chaque composante :

$$\begin{aligned} (\overline{A+B})_{i,j} &= (1 + \delta_{A;i,j})A_{i,j} + (1 + \delta_{B;i,j})B_{i,j} \\ &= \left(1 + \frac{(\delta_{A;i,j}A_{i,j} + \delta_{B;i,j}B_{i,j})}{A_{i,j} + B_{i,j}}\right) (A+B)_{i,j} \end{aligned} \quad (6.75)$$

L'erreur relative sur la somme est alors donnée par :

$$\epsilon_{A+B} = \frac{\sum_{i,j} \left| \frac{(\delta_{A;i,j}A_{i,j} + \delta_{B;i,j}B_{i,j})}{(A_{i,j} + B_{i,j})} (A+B)_{i,j} \right|}{\sum_{i,j} |(A+B)_{i,j}|} \quad (6.76)$$

et devra être estimée en pratique par :

$$\epsilon_{A+B} = \frac{\sum_{i,j} \frac{(\epsilon_A |\bar{A}_{i,j}| + \epsilon_B |\bar{B}_{i,j}|)}{(|\bar{A}_{i,j}| + |\bar{B}_{i,j}|)} |(\bar{A} + \bar{B})_{i,j}|}{\sum_{i,j} |(\bar{A} + \bar{B})_{i,j}|} \quad (6.77)$$

Dans cette formule, l'erreur relative de chaque élément est estimée par une moyenne pondérée avec les éléments correspondants dans les matrices \mathbf{A} et \mathbf{B} *avant* l'addition. On effectue ensuite une moyenne pondérée de toutes ces valeurs, en utilisant comme poids les éléments de la matrice obtenue *après* l'addition.

On démontre aisément à partir de cette relation la propriété suivante :

$$\min(\epsilon_A, \epsilon_B) \leq \epsilon_{A+B} \leq \max(\epsilon_A, \epsilon_B) \quad (6.78)$$

qui permet d'estimer rapidement les bornes de ϵ_{A+B} .

Inversion L'inversion d'une matrice \mathbf{A} revient à résoudre plusieurs fois un système du type $\mathbf{A}\bar{x} = \bar{b}$, où \bar{b} contient les colonnes de la matrice identité (que l'on définit avec une erreur relative ϵ_{comp}) et \bar{x} les colonnes de la matrice inverse.

Les incertitudes relatives sur les quantités présentes dans le système $\mathbf{A}\bar{x} = \bar{b}$ vérifient l'inégalité [101] :

$$\frac{|\delta\bar{x}|}{|\bar{x}|} \leq \frac{cond(A)}{1 - \frac{cond(A)\|\delta\mathbf{A}\|}{\|\mathbf{A}\|}} \left(\frac{|\delta\bar{b}|}{|\bar{b}|} + \frac{\|\delta\mathbf{A}\|}{\|\mathbf{A}\|} \right) \quad (6.79)$$

où $cond(A)$ est la condition de la matrice \mathbf{A} . Elle est définie par $cond(A) = \|\mathbf{A}\| \|\mathbf{A}^{-1}\|$.

Nous pouvons alors identifier dans cette relation $\frac{\|\delta\mathbf{A}\|}{\|\mathbf{A}\|} = \epsilon_A$ ainsi que $\frac{|\delta\bar{b}|}{|\bar{b}|} = \epsilon_{comp}$ et prendre le membre de droite de cette inégalité comme expression de $\epsilon_{A^{-1}}$. On obtient alors, avec une approximation valable tant que $\epsilon_{A^{-1}} < 1$, l'expression recherchée :

$$\epsilon_{A^{-1}} = cond(A) * \epsilon_A \quad (6.80)$$

La valeur de $cond(A)$ est majorée par le rapport :

$$cond(A) \leq \frac{\max_i |\lambda_i|}{\min_i |\lambda_i|} \quad (6.81)$$

où les λ_i sont les valeurs propres de \mathbf{A} . A condition de connaître les valeurs extrémales du spectre de \mathbf{A} , nous pouvons utiliser ce dernier rapport pour estimer $cond(A)$.

L'intérêt d'utiliser une résolution de système plutôt qu'une inversion de matrice quand cela est possible peut se comprendre ici, puisque cette façon de faire réduit la valeur de $cond(A)$. En effet, cette grandeur est donnée par l'expression $cond(A) = \|\mathbf{A}\| \|\mathbf{A}^{-1}\|$, dans laquelle la valeur effective de $\|\mathbf{A}^{-1}\|$ diminue lorsqu'une partie seulement de \mathbf{A}^{-1} peut être considérée. Exprimé d'une autre façon, une inversion de système permet de travailler avec une valeur effective de $\min_i |\lambda_i|$, qui est déterminée à partir d'un ensemble plus petit (dans lequel les λ_i restent cependant inchangés). L'algorithme des tranches que nous présenterons par la suite se révèle plus efficace puisqu'il diminue le rapport $\frac{\max_i |\lambda_i|}{\min_i |\lambda_i|}$ en agissant directement sur les λ_i .

6.4.3 Précision des matrices de transfert

Après avoir défini clairement la notion de précision et établi des règles pour la calculer, nous sommes en mesure d'évaluer l'algorithme de calcul des matrices de transfert tel que présenté jusqu'ici.

Reprenons les formules permettant le calcul des quatre matrices de transfert (que nous supposons ici carrées) :

$$\mathbf{t}^{++} = \mathbf{A}^{+-1} \quad (6.82)$$

$$\mathbf{t}^{-+} = \mathbf{B}^+ \mathbf{A}^{+-1} \quad (6.83)$$

$$\mathbf{t}^{--} = \mathbf{A}^{--1} \quad (6.84)$$

$$\mathbf{t}^{+-} = \mathbf{B}^- \mathbf{A}^{--1} \quad (6.85)$$

Les matrices \mathbf{A}^+ , \mathbf{B}^+ , \mathbf{A}^- et \mathbf{B}^- sont obtenues par un calcul de diffusion à travers la même barrière de potentiel. Nous pouvons donc raisonnablement supposer qu'elles sont calculées avec la même précision ϵ_A . En appliquant les règles que nous venons d'établir, l'erreur relative sur chacune des matrices de transfert est donnée par :

$$\epsilon_{\mathbf{t}^{++}} = \epsilon_A \text{cond}(A) \quad (6.86)$$

$$\epsilon_{\mathbf{t}^{-+}} = \epsilon_A + \epsilon_A \text{cond}(A) \simeq \epsilon_A \text{cond}(A) \quad (6.87)$$

$$\epsilon_{\mathbf{t}^{--}} = \epsilon_A \text{cond}(A) \quad (6.88)$$

$$\epsilon_{\mathbf{t}^{+-}} = \epsilon_A + \epsilon_A \text{cond}(A) \simeq \epsilon_A \text{cond}(A) \quad (6.89)$$

où nous avons anticipé le fait que $\text{cond}(A) \gg 1$.

Autrement dit, les quatre matrices de transfert ont une précision ϵ_1 donnée par :

$$\epsilon_1 = \epsilon_A \text{cond}(A) \quad (6.90)$$

où l'utilité de l'indice 1 apparaîtra par la suite. Il nous reste donc à évaluer les deux facteurs de cette expression.

Précision des solutions intermédiaires

Les matrices \mathbf{A}^+ et \mathbf{B}^- sont obtenues en considérant chaque état sortant $\Psi_j^{III,+}$ individuellement, en le propageant de $z = D$ jusque $z = 0$ et en mettant les coefficients du développement de la solution $\bar{\Psi}_j^+$ ainsi obtenue dans les matrices \mathbf{A}^+ et \mathbf{B}^+ . La solution est donc parfaitement définie en $z = D$ et nous allons montrer qu'elle garde une très bonne précision après le calcul de propagation en $z = 0$.

Considérons le cas où la région intermédiaire II est une barrière de potentiel de hauteur V . De manière générale, les solutions dans la région II sont constituées d'états propagatifs ou évanescents. Etant donné que les états propagatifs gardent une norme constante quel que soit le sens de propagation, leur traitement ne doit pas poser de problème. Par contre les états évanescents varient de manière exponentielle avec la distance et nous voulons savoir

si, compte tenu des erreurs numériques, notre méthode permet un traitement efficace de ces états.

Ecrivons donc la solution dans la région II comme la somme de paires d'états propagatifs ou évanescents :

$$\bar{\Psi}_j^+ \stackrel{0 \leq z \leq D}{=} \sum_i (M_i e^{K_i z} + N_i e^{-K_i z}) + \sum_{i'} (M_{i'} e^{ik_{z,i'} z} + N_{i'} e^{-ik_{z,i'} z}) \quad (6.91)$$

où pour une barrière de hauteur constante V et des états d'énergie E et de vecteur d'onde transverse k_i , nous avons $K_i = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(V - E) + k_i^2}$ pour les états évanescents (quand $k_i^2 > \frac{2m}{\hbar^2}(E - V)$) et $k_{z,i} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E - V) - k_i^2}$ pour les états propagatifs (sinon).

Lorsque nous définissons $\bar{\Psi}_j^+ = \Psi_j^{III,+}$ en $z = D$, nous fixons les poids M_i et N_i des états évanescents dans le développement précédent comme suit :

$$M_i = \frac{1}{2} \left(\psi_i^{III,+}(z = D) + \frac{1}{K_i} \frac{d\psi_i^{III,+}(z = D)}{dz} \right) e^{-K_i D} \quad (6.92)$$

$$N_i = \frac{1}{2} \left(\psi_i^{III,+}(z = D) - \frac{1}{K_i} \frac{d\psi_i^{III,+}(z = D)}{dz} \right) e^{+K_i D} \quad (6.93)$$

où $\psi_i^{III,+}(z = D)$ est la composante de $\Psi_j^{III,+}(z = D)$ associée au vecteur d'onde transverse k_i ¹.

Comme $\psi_i^{III,+}$ est propagatif, nous avons $\frac{d\psi_i^{III,+}(z=D)}{dz} = ik_{z,i} \psi_i^{III,+}(z = D)$ avec $k_{z,i} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}E - k_i^2}$ dans la région III. Il est facile alors de vérifier que :

$$\frac{|M_i e^{K_i D}|}{|N_i e^{-K_i D}|} = 1 \quad (6.94)$$

Cette relation nous apprend que les états évanescents de chaque paire contribuent à parts égales à la solution $\bar{\Psi}_j^+$ telle que définie en $z = D$. Après propagation jusqu'en $z = 0$, ce rapport est réduit à :

$$\frac{|M_i e^{K_i 0}|}{|N_i e^{-K_i 0}|} = e^{-2K_i D} \quad (6.95)$$

Cela signifie que physiquement les états évanescents $N_i e^{-K_i z}$ doivent dominer les autres états évanescents $M_i e^{K_i z}$ en $z = 0$. Quand nous propageons $\bar{\Psi}_j^+$ depuis $z = D$ jusque $z = 0$, les solutions $N_i e^{-K_i z}$ grandissent exponentiellement tandis que les autres solutions $M_i e^{K_i z}$ tendent à disparaître avec la même dépendance exponentielle. Les erreurs numériques qui consistent à attribuer une partie de chaque état évanescents à un autre sont donc amorties

1. En réalité, seul $\psi_j^{III,+}(z = D)$ est présent dans $\Psi_j^{III,+}(z = D)$ et les composantes associées à des valeurs de k_i différentes apparaissent progressivement à cause du couplage avec l'état associé à k_j lorsque le potentiel varie dans l'espace. Nous avons introduit ici ces composantes dans les conditions initiales pour simplifier la discussion.

en cours de propagation et la solution qui s'impose numériquement coïncide avec la solution physique.

La physique du problème nous apprend donc que les erreurs numériques en cours de propagation sont amorties de manière exponentielle. Les solutions $\bar{\Psi}_j$ en $z = 0$ peuvent donc être établies avec une précision comparable à celle en $z = D$. Les mêmes commentaires s'appliquent à la construction des solutions $\bar{\Psi}_j^-$ et nous pouvons considérer que :

$$\epsilon_A = \epsilon_{comp} \quad (6.96)$$

Conditionnement des solutions intermédiaires

La dépendance exponentielle des solutions physiques dans la région II nous a aidé à obtenir les solutions $\bar{\Psi}_j^\pm$ (et par conséquent les matrices \mathbf{A}^+ , \mathbf{B}^+ , \mathbf{A}^- et \mathbf{B}^- qui contiennent les coefficients de leur développement) avec une très grande précision.

Malheureusement, ces solutions ne sont que des intermédiaires de calcul et ne servent qu'à fournir les solutions Ψ_j^\pm par une combinaison appropriée. Les coefficients à considérer pour combiner ces solutions s'obtiennent en inversant les matrices \mathbf{A}^\pm et c'est ici que les problèmes commencent !

Reconsidérons la construction des deux premières matrices de transfert. Nous venons de voir que les solutions $\bar{\Psi}_j^+$ s'expriment en $z = 0$ comme une somme d'exponentielles et d'ondes planes :

$$\bar{\Psi}_j^+ \stackrel{z=0}{\simeq} \sum_i N_i e^{-K_i z} + \sum_{i'} \left(M_{i'}' e^{ik_{z,i'} z} + N_{i'}' e^{-ik_{z,i'} z} \right) \quad (6.97)$$

où nous avons laissé tomber les états évanescents qui contribuent pour une part négligeable à la solution.

Les coefficients de ces états, qui forment la matrice à inverser \mathbf{A}^+ , dépendent des conditions initiales en $z = D$. Autrement dit, l'information nécessaire à une utilisation correcte de la matrice \mathbf{A}^+ est contenue dans ces coefficients. Le rapport de force qui existait entre les états $M_i e^{K_i z}$ et $N_i e^{-K_i z}$ existe (dans une moindre mesure) entre les états $N_i e^{-K_i z}$ et (dans une plus grande mesure) avec les états $M_{i'}' e^{ik_{z,i'} z}$ et $N_{i'}' e^{-ik_{z,i'} z}$. Certains des états $N_i e^{-K_i z}$ tendent à dominer la solution, d'autant plus que la distance D est grande. L'information nécessaire à un traitement adéquat de \mathbf{A}^+ disparaît donc avec les états dominés.

On peut se rendre compte de la réalité du problème en notant que pour une distance D assez grande, un seul de ces états $N_i e^{-K_{max} z}$ domine entièrement la solution (les autres états contribuant à une partie plus petite que la dernière décimale représentée par le nombre fini de chiffres significatifs). Les colonnes de \mathbf{A}^+ sont donc identiques (à un facteur multiplicatif N_i près, qui dépend de la contribution de $N_i e^{-K_{max} z}$ à la valeur de $\bar{\Psi}_j^+$ en $z = D$) et la matrice à inverser \mathbf{A}^+ est singulière !

Nous nous trouvons donc dans une situation où le même processus nous aide à obtenir des solutions intermédiaires très précises mais nous empêche de les combiner de manière appropriée.

La condition $\text{cond}(A^+)$ de la matrice \mathbf{A}^+ exprime la perte de précision de cette matrice après inversion. On peut l'estimer par le rapport entre la transmission maximale de $\bar{\Psi}_j^+$ à travers la barrière de potentiel (qui est $e^{K_{max}D}$ lorsque $N_i e^{-K_{max}z}$ est seul) et la transmission minimale (qui est 1 lorsque les états propagatifs sont seuls). Nous obtenons donc :

$$\text{cond}(A^+) = \frac{e^{K_{max}D}}{1} = e^{K_{max}D} \quad (6.98)$$

avec $K_{max} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}V}$.

Le même raisonnement appliqué à la matrice \mathbf{A}^- fournit un résultat identique et nous pouvons donc écrire $\text{cond}(A) = e^{K_{max}D}$.

Nous avons donc déterminé les facteurs de ϵ_1 qui s'exprime comme :

$$\epsilon_1 = \epsilon_{comp} e^{K_{max}D} \quad (6.99)$$

On voit donc bien que l'erreur relative sur le résultat augmente de manière exponentielle avec la distance D . Le résultat perd toute signification lorsque $\epsilon_1 > 1$. Une solution à ce problème consiste à considérer des distances plus petites. C'est l'idée de l'algorithme des tranches que nous allons présenter maintenant.

6.4.4 L'algorithme des tranches

Au lieu de traiter le problème de diffusion sur la distance D en une fois, nous pouvons scinder cette distance en tranches adjacentes et traiter le problème de diffusion sur chacune d'elles séparément. Etant donné que la distance associée à chaque tranche n'est qu'une fraction de la distance totale D , les matrices de transfert correspondantes seront plus précises.

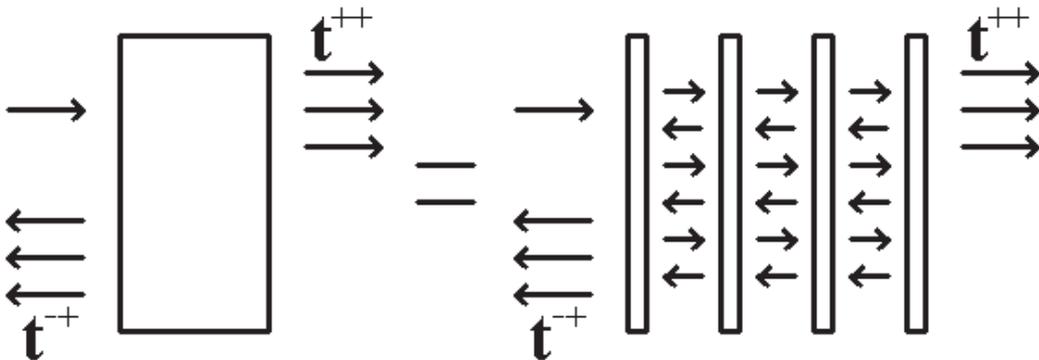


FIG. 6.2 – Principe de l'algorithme des tranches.

Nous pouvons ainsi choisir un ensemble de points z_i correspondant aux limites entre tranches adjacentes et classés de la façon suivante :

$$0 = z_0 < z_1 < z_2 < \dots < z_{n-1} < z_n = D \quad (6.100)$$

Les matrices de transfert associées à l'intervalle $[z_i, z_j]$ seront notées t_{z_i, z_j}^{++} , t_{z_i, z_j}^{-+} , t_{z_i, z_j}^{--} et t_{z_i, z_j}^{+-} .

Il suffit donc de calculer dans un premier temps les matrices de transfert correspondant à l'intervalle $[z_0, z_1]$ et à l'intervalle suivant $[z_1, z_2]$. Il faut ensuite combiner ces 8 matrices de transfert d'une façon appropriée pour obtenir les 4 matrices de transfert correspondant à l'intervalle $[z_0, z_2]$. On recommence alors l'opération avec les matrices de transfert correspondant à l'intervalle $[z_2, z_3]$ et ainsi de suite jusqu'à ce que les n intervalles aient été traités. Nous devons stocker à chaque étape seulement 4 matrices de transfert pour l'ensemble des tranches déjà traitées ainsi que 4 matrices de transfert pour la tranche en cours de traitement.

Il ne nous manque plus que les formules permettant de combiner les matrices de transfert associées à l'intervalle $[z_0, z_{i-1}]$ avec celles associées à $[z_{i-1}, z_i]$. Ces formules ont été établies par Pendry[96] pour des simulations de LEED.

On obtient les matrices de transfert exprimant la transmission à travers les 2 tranches considérées, en réalisant que cette transmission est due aux états qui ont tout d'abord été transmis à travers la première tranche et ensuite à travers la deuxième tranche, soit directement, soit après avoir subi 2 réflexions à l'interface entre les deux tranches, soit après avoir subi 4 réflexions, etc.

On peut donc écrire :

$$\begin{aligned} t_{z_0, z_i}^{++} &= t_{z_{i-1}, z_i}^{++} \left[1 + (t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+}) + (t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+})^2 + \dots \right] t_{z_0, z_{i-1}}^{++} \\ &= t_{z_{i-1}, z_i}^{++} \left[1 - t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} \right]^{-1} t_{z_0, z_{i-1}}^{++} \end{aligned} \quad (6.101)$$

$$\begin{aligned} t_{z_0, z_i}^{--} &= t_{z_0, z_{i-1}}^{--} \left[1 + (t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-}) + (t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-})^2 + \dots \right] t_{z_{i-1}, z_i}^{--} \\ &= t_{z_0, z_{i-1}}^{--} \left[1 - t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} \right]^{-1} t_{z_{i-1}, z_i}^{--} \end{aligned} \quad (6.102)$$

Les matrices de transfert exprimant la réflexion à travers les 2 tranches considérées sont obtenues en réalisant que cette réflexion est due d'une part aux états qui ont été directement réfléchis par la première tranche rencontrée et d'autre part aux états qui ont dû traverser la première tranche, être réfléchis à l'interface avec la deuxième tranche (soit après 1 seule réflexion, soit après 3 réflexions, etc) et finalement repasser à travers la première tranche.

On peut donc écrire :

$$\begin{aligned}
t_{z_0, z_i}^{-+} &= t_{z_0, z_{i-1}}^{-+} \\
&+ t_{z_0, z_{i-1}}^{--} \left[t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} + t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} (t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+}) + t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} (t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+})^2 + \dots \right] t_{z_0, z_{i-1}}^{++} \\
&= t_{z_0, z_{i-1}}^{-+} + t_{z_0, z_{i-1}}^{--} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} \left[1 - t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} \right]^{-1} t_{z_0, z_{i-1}}^{++} \tag{6.103}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
t_{z_0, z_i}^{+-} &= t_{z_{i-1}, z_i}^{+-} \\
&+ t_{z_{i-1}, z_i}^{++} \left[t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} + t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} (t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-}) + t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} (t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-})^2 + \dots \right] t_{z_{i-1}, z_i}^{--} \\
&= t_{z_{i-1}, z_i}^{+-} + t_{z_{i-1}, z_i}^{++} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} \left[1 - t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} \right]^{-1} t_{z_{i-1}, z_i}^{--} \tag{6.104}
\end{aligned}$$

Dans ces quatre formules, nous avons pu remplacer les séries infinies par une inversion de matrice grâce au fait que les valeurs propres des matrices exprimant les réflexions sont toutes comprises (en norme) entre 0 et 1. Les inversions de matrice ne peuvent pas être remplacées ici par une résolution de système puisque ces opérations interviennent à l'intérieur de chaque relation.

6.4.5 Précision des matrices de transfert implémentées avec l'algorithme des tranches

Les règles données à la section 6.4.2 permettent d'estimer l'erreur relative lors d'une simulation réelle. Il est toutefois intéressant d'établir un modèle permettant de prévoir le comportement de l'erreur relative en fonction du nombre de tranches utilisé.

Considérons donc la diffusion d'électrons d'énergie E à travers une barrière de potentiel de hauteur V et de longueur D . Nous appliquons l'algorithme des tranches en divisant cette distance en n segments égaux.

L'erreur relative sur le calcul des matrices de transfert associées à chaque tranche peut être estimée de la même façon qu'à la section 6.4.3. On trouve alors :

$$\epsilon_{slab} = 2^{-n_{bit}} e^{\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}} V \frac{D}{n}} \tag{6.105}$$

où nous avons estimé K_{max} en prenant la valeur maximale de la barrière de potentiel sur la distance D . On peut affiner le modèle en utilisant à chaque étape la valeur correspondant à la tranche considérée, mais ce raffinement n'apporte aucun renseignement qualitatif supplémentaire.

Dans les simulations qui nous intéressent, la valeur maximale V de la barrière se trouve au début de la distance D et les électrons considérés ont une énergie E inférieure à cette valeur. Tous les états incidents considérés sont donc essentiellement réfléchis par la première tranche et les tranches ultérieures qui résultent d'une fusion avec celle-ci.

Commençons par estimer l'erreur associée aux matrices t^{-+} qui expriment la réflexion des électrons incidents dans la région I. Ces matrices sont actualisées au fur et à mesure que les différentes tranches sont considérées par la relation :

$$t_{z_0, z_i}^{-+} = t_{z_0, z_{i-1}}^{-+} + t_{z_0, z_{i-1}}^{--} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} \left[1 - t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} \right]^{-1} t_{z_0, z_{i-1}}^{++} \quad (6.106)$$

La première contribution est due aux électrons qui sont directement réfléchis par la barrière. Comme nous venons de le remarquer, tous les états incidents sont concernés par cette réflexion. La deuxième contribution est due aux états qui ont traversé une première fois la barrière $[z_0, z_{i-1}]$, ont été réfléchis à l'interface avec la tranche suivante et ont traversé une seconde fois la première barrière. La deuxième contribution implique donc deux effets tunnel à travers une barrière qui augmente au fur et à mesure de la simulation. On peut donc la considérer comme négligeable par rapport au premier terme. La matrice t_{z_0, z_i}^{-+} garde donc la précision du premier terme, qui est celle avec laquelle la matrice t_{z_0, z_1}^{-+} correspondant à la première tranche a été calculée. Nous pouvons donc écrire :

$$\epsilon_{t_i^{-+}} = \epsilon_{slab} \quad (6.107)$$

La situation n'est pas tout à fait pareille pour les matrices t^{+-} qui expriment la réflexion des électrons incidents dans la région III et sont actualisées par la relation :

$$t_{z_0, z_i}^{+-} = t_{z_{i-1}, z_i}^{+-} + t_{z_{i-1}, z_i}^{++} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} \left[1 - t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} \right]^{-1} t_{z_{i-1}, z_i}^{--} \quad (6.108)$$

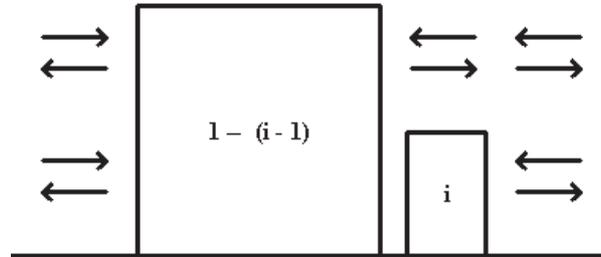


FIG. 6.3 – Barrières de potentiel avec hauteurs différentes et conséquences sur la réflexion des états incidents.

En effet comme représenté à la figure 6.3, la hauteur de la barrière de potentiel tend à diminuer sur la distance D et suivant la valeur de l'énergie normale $E_j = E - \frac{\hbar^2}{2m} k_j^2$ de chaque état incident par rapport à la hauteur locale V_i de la barrière dans la tranche i , ces états peuvent être réfléchis (quand $E_j < V_i$) ou transmis à travers la tranche i (lorsque $E_j > V_i$).

Dans le premier cas la situation est la même que celle rencontrée pour les matrices t^{-+} : les électrons incidents sont essentiellement réfléchis par la première couche rencontrée. Cette réflexion est décrite par la matrice t_{z_{i-1}, z_i}^{+-} dont l'erreur relative est ϵ_{slab} .

Dans le deuxième cas, les électrons “survolent” la tranche i , rencontrent la barrière $[z_0, z_{i-1}]$ qui est essentiellement réfléchissante et repassent au-dessus de la tranche i . Contrairement aux cas considérés jusqu’ici, ces états restent propagatifs dans la région i et ne sont donc pas amortis. L’erreur relative dépend par conséquent de la précision des matrices t^{--} et t^{++} associées à la tranche i (qui vaut ϵ_{slab}) et de la matrice t^{+-} associée au groupe constitué par les tranches précédentes. L’erreur relative sur les matrices t^{+-} obéit ainsi à une équation récursive qui est la suivante :

$$\begin{aligned}\epsilon_{t_i^{+-}} &= \max(\epsilon_{slab}, 2\epsilon_{slab} + \epsilon_{t_{i-1}^{+-}}) \\ &= 2\epsilon_{slab} + \epsilon_{t_{i-1}^{+-}}\end{aligned}\quad (6.109)$$

La solution de cette équation est donnée par :

$$\epsilon_{t_i^{+-}} = \epsilon_{slab}(2i - 1) \quad (6.110)$$

Les deux matrices t^{++} et t^{--} sont encore traitées d’une manière différente. Ces deux matrices sont actualisées au fur et à mesure que les tranches sont considérées par les relations :

$$t_{z_0, z_i}^{++} = t_{z_{i-1}, z_i}^{++} \left[1 - t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} \right]^{-1} t_{z_0, z_{i-1}}^{++} \quad (6.111)$$

$$t_{z_0, z_i}^{--} = t_{z_0, z_{i-1}}^{--} \left[1 - t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} \right]^{-1} t_{z_{i-1}, z_i}^{--} \quad (6.112)$$

Les états transmis doivent dans tous les cas traverser une tranche, subir un certain nombre de réflexions à l’interface et traverser la seconde. La transmission à travers la tranche i est décrite avec une erreur relative ϵ_{slab} . L’erreur relative sur les matrices qui expriment la transmission à travers la tranche $[z_0, z_{i-1}]$ dépend de la façon dont elles ont été traitées dans les $i - 1$ premières itérations.

Il reste à considérer les facteurs $\left[1 - t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} \right]^{-1}$ et $\left[1 - t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} \right]^{-1}$. Ces facteurs (que nous désignerons par P) impliquent une matrice associée à la tranche i (dont l’erreur relative est ϵ_{slab}) et la matrice $t_{z_0, z_{i-1}}^{+-}$ dont l’erreur relative $\epsilon_{t_i^{+-}}$ a été estimée. La matrice identité est définie avec une précision ϵ_{comp} . L’erreur relative des matrices à inverser est donc $\epsilon_{slab} + \epsilon_{t_i^{+-}}$. Après inversion, cette erreur est multipliée par la condition $cond(P)$ de ces matrices.

Étant donné que les matrices contribuant aux facteurs P ont des valeurs propres comprises (en norme) entre 0 et 1, les valeurs propres de P ont toutes le même ordre de grandeur et la condition des matrices P doit être relativement faible.

Une autre façon de s’en convaincre consiste à réaliser que $cond(P)$ correspond au nombre de termes dans les séries infinies $1 + (t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+}) + (t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+})^2 + (t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+})^3 + \dots$ et $1 + (t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-}) + (t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-})^2 + (t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-})^3 + \dots$ qui contribuent de manière significative aux valeurs de $\left[1 - t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} \right]^{-1}$ et $\left[1 - t_{z_{i-1}, z_i}^{-+} t_{z_0, z_{i-1}}^{+-} \right]^{-1}$. Ces termes se réduisent pratiquement à un seul pour les états qui sont propagatifs dans une des deux tranches (ils ne doivent alors traverser qu’une seule tranche par effet tunnel). Par contre, le

nombre de termes significatifs dans les séries infinies est très grand pour les états qui sont évanescents dans les deux tranches. Cependant, leur contribution est amortie par le fait qu'ils doivent traverser les deux tranches par effet tunnel. En pratique, $cond(P)$ prend des valeurs proches de 5 et augmente quelque peu au voisinage de discontinuités dans l'énergie potentielle.

Nous pouvons finalement écrire la même équation récurrente pour l'erreur relative des matrices t^{++} et t^{--} :

$$\epsilon_i = \epsilon_{slab} + \epsilon_{i-1} + cond(P)(\epsilon_{t_{i-1}^{+-}} + \epsilon_{slab}) \quad (6.113)$$

En remplaçant dans cette équation $\epsilon_{t_{i-1}^{+-}}$ par l'expression trouvée précédemment et en regroupant les termes, on obtient :

$$\epsilon_i = \epsilon_{i-1} + \epsilon_{slab}(1 + 2cond(P)i) \quad (6.114)$$

dont la solution est :

$$\epsilon_i = \epsilon_{slab}(i + 2cond(P)(1 + \frac{i}{2})(i - 1)) \quad (6.115)$$

En fin de compte, l'erreur relative sur le calcul des matrices de transfert associées à une barrière de potentiel de hauteur V et de longueur D dépend du nombre n de tranches utilisées de la façon suivante :

$$\epsilon_n = 2^{-n_{bit}} e^{\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} V} \frac{D}{n}} (cond(P)n^2 + (1 + cond(P))n - 2cond(P)) \quad (6.116)$$

6.4.6 Conséquences pratiques

On peut maintenant utiliser l'équation 6.116 pour représenter l'erreur relative sur le calcul des matrices de transfert en fonction du nombre de tranches utilisées. C'est ce qui a été fait à la figure 6.4, où nous avons représenté l'erreur relative en échelle logarithmique, avec des valeurs typiques de 25 eV pour la hauteur de la barrière, 4 nm pour la longueur et choisi $cond(P) = 10$ ainsi que $n_{bit} = 53$ (double précision).

On constate sur la figure que la précision du calcul s'améliore au fur et à mesure que l'on augmente le nombre de tranches et qu'un nombre minimum de 4 tranches est nécessaire pour obtenir une erreur relative acceptable. On perçoit donc bien l'utilité de l'algorithme des tranches qui permet un calcul correct, là où l'erreur relative obtenue par une implémentation classique serait de 10^{28} !

Bien que la figure montre une fonction d'erreur décroissante, celle-ci finit par remonter comme on peut le constater en laissant tendre n vers l'infini dans l'équation 6.116. Cependant, dans cet exemple, il faudrait de l'ordre de 10^7 tranches pour que l'erreur relative dépasse les 100 %. Il est fort probable que les hypothèses de notre modèle perdent leur validité avant d'atteindre un tel nombre de tranches et que les ondes évanescentes contribuent de manière non négligeable à augmenter l'erreur. Nous avons réalisé des simulations avec jusqu'à 400 tranches dans diverses situations sans constater le moindre changement dans les résultats.

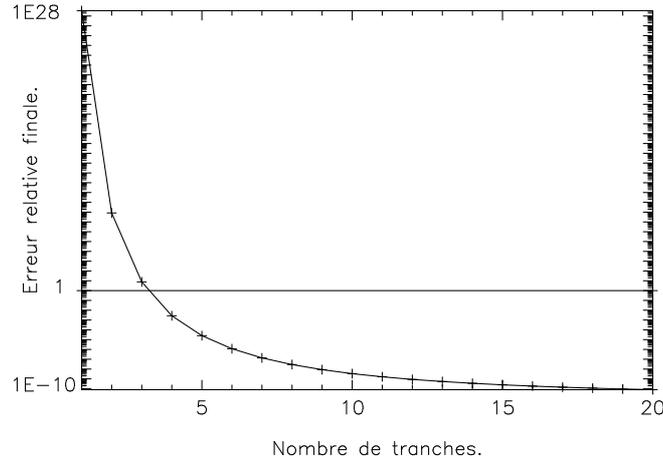


FIG. 6.4 – Erreur relative sur le calcul des matrices de transfert en fonction du nombre de tranches utilisées. Les valeurs suivantes ont été utilisées : $V = 25$ eV, $D = 4$ nm, $cond(P) = 10$, $n_{bit} = 53$ (double précision).

On peut encore apprécier l'efficacité de l'algorithme en représentant l'erreur relative cumulée au cours du traitement lorsque 1 et 20 tranches sont utilisées. C'est ce que nous avons représenté à la figure 6.5 avec les mêmes paramètres que ceux utilisés pour la figure précédente.

On constate que le calcul des matrices de transfert est limité à 1.4 nm pour une barrière de 25 eV lorsqu'il est implémenté sans l'algorithme des tranches. On peut se demander alors quelles sont les limites de celui-ci.

A nouveau, en examinant l'équation 6.116, on constate que les instabilités dues à une grande valeur de D peuvent être maîtrisées en utilisant un grand nombre de tranches (pour garder le facteur $e^{\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}} V \frac{D}{n}}$ petit). Toutefois un nombre trop élevé de tranches fait grandir le facteur $(cond(P)n^2 + (1 + cond(P))n - 2cond(P))$, de sorte qu'il existe une limite aux valeurs possibles de D . Cette limite est atteinte lorsque $cond(P)n^2 \simeq 2^{n_{bit}}$, c'est-à-dire pour n de l'ordre de 10^7 en double précision. Ce nombre étant celui nécessaire pour garder le facteur $e^{\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}} V \frac{D}{n}}$ fini, on en conclut que D_{max} est de l'ordre de 10^7 fois la longueur d'onde associée à la hauteur de la barrière de potentiel V . Rappelons que nous sortons des limites de validité de notre modèle pour un nombre aussi élevé de tranches et retenons que la méthode a des limites lointaines.

Une question plus utile est celle du nombre de tranches minimum à considérer pour obtenir une précision de calcul suffisante. Un critère minimum consiste à exiger que l'erreur relative sur le calcul des matrices de transfert associées à une seule tranche soit inférieure à 100 %. Cette condition est satisfaite pour un nombre de tranches minimum n_{min} donné

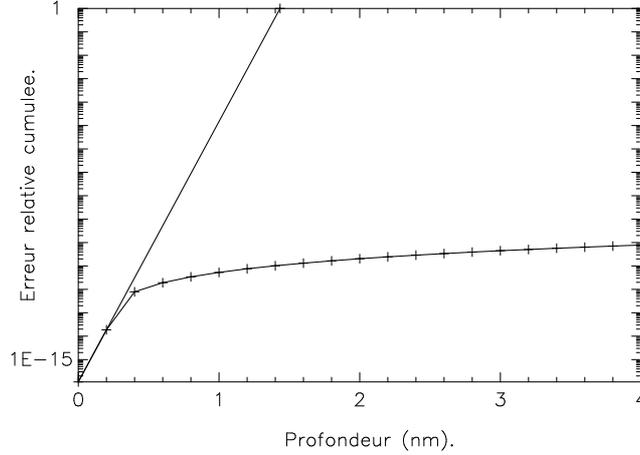


FIG. 6.5 – Erreur relative cumulée sur le calcul des matrices de transfert en fonction de la profondeur dans la barrière, pour 1 tranche (ligne supérieure) et 20 tranches (courbe inférieure). Les valeurs suivantes ont été utilisées : $V = 25$ eV, $D = 4$ nm, $\text{cond}(P) = 10$, $n_{\text{bit}} = 53$ (double précision).

par :

$$n_{\min} = \frac{K_{\max} D}{n_{\text{bit}} \ln(2)} \quad (6.117)$$

Notons que ce critère n'est pas suffisant à cause du facteur $(\text{cond}(P)n^2 + (1 + \text{cond}(P))n - 2\text{cond}(P))$. Par contre, pour des valeurs de n supérieures à n_{\min} l'accroissement de ce facteur est largement compensé par la diminution du facteur $e^{\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}} V}$ (en deçà de valeurs extrêmes). Etant donné que n_{\min} est tel que :

$$e^{K_{\max} \frac{D}{n_{\min}}} = 2^{n_{\text{bit}}} \quad (6.118)$$

on peut remarquer que $n = 2 n_{\min}$ fournit un résultat avec environ la moitié des chiffres significatifs et que le gain en chiffres significatifs, pour des accroissements supplémentaires de n_{\min} , diminue à chaque fois de moitié. Un bon choix consiste à prendre $n = 4 n_{\min}$.

Enfin nous terminerons ces commentaires en présentant une méthode alternative pour améliorer la précision des résultats. Plutôt qu'augmenter le nombre de couches, nous pouvons restreindre le nombre d'états considérés dans chaque tranche de manière à limiter la valeur locale de K_{\max} à une valeur fixée $\sqrt{\frac{\hbar^2}{2m}} \Delta E$. Les éléments diagonaux des matrices de transfert correspondant aux états négligés sont fixés à 1 lorsqu'elles expriment une réflexion et à 0 sinon. En plus de stabiliser les calculs, cette méthode les accélère et réduit l'espace mémoire, puisqu'un nombre plus petit d'états est considéré à certaines étapes du calcul. La précision de cette méthode alternative est donnée par la formule :

$$\epsilon_n = 2^{-n_{\text{bit}}} e^{\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}} \Delta E \frac{D}{n}} (\text{cond}(P)n^2 + (1 + \text{cond}(P))n - 2\text{cond}(P)) \quad (6.119)$$

et représentée à la figure 6.6, où nous avons choisi $\Delta E = 10$ eV et conservé les autres paramètres. On constate sur la figure que les calculs fournissent plus rapidement un résultat acceptable.

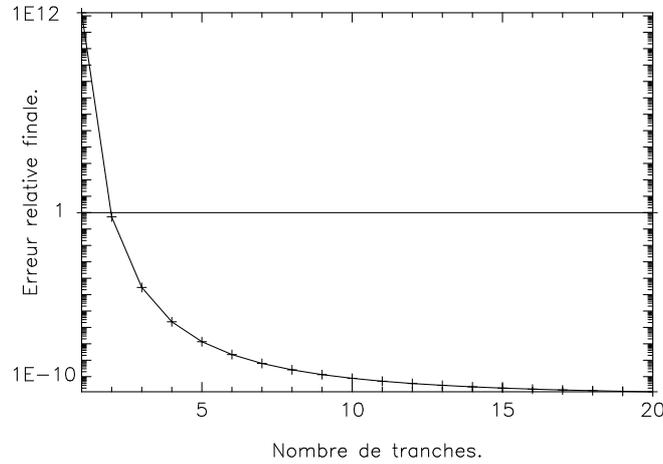


FIG. 6.6 – *Erreur relative sur le calcul des matrices de transfert en fonction du nombre de tranches utilisées, pour un nombre d'états restreints. Les valeurs suivantes ont été utilisées : $V = 25$ eV, $D = 4$ nm, $\Delta E = 10$ eV, $\text{cond}(P) = 10$, $n_{\text{bit}}=53$ (double précision).*

6.4.7 Confirmation par un exemple

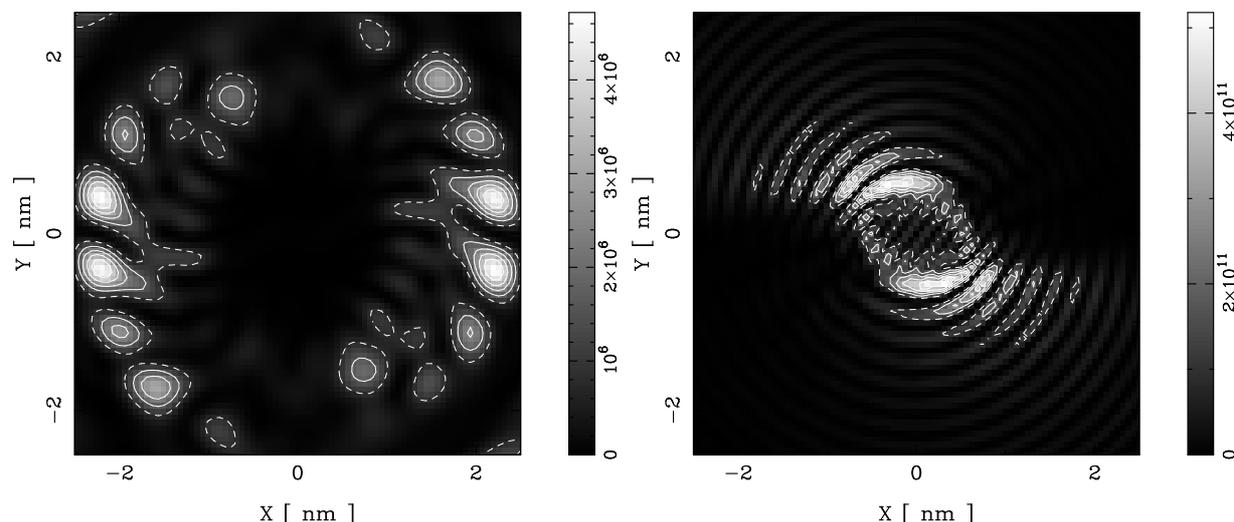
Afin de prouver la validité de l'analyse présentée, nous avons réalisé une simulation correspondant aux valeurs de 4 nm et 25 eV considérées jusqu'ici. La simulation correspond à l'observation d'une fibre de carbone de 0.8 nm de côté et suppose une pointe conique de 1 nm de haut. Les détails sur la modélisation de ce système seront donnés au chapitre 8. Nous nous intéressons ici uniquement à la stabilité du calcul. Les résultats pour des calculs réalisés avec respectivement 1, 2, 3 et 400 tranches sont présentés à la figure 6.7.

On perçoit bien dans ces figures les problèmes d'instabilités lorsque les calculs sont réalisés avec 1 ou 2 tranches. A partir de 3 tranches, le résultat est satisfaisant et le reste lorsque le nombre de tranches est augmenté. Les calculs réalisés avec 3 et 400 tranches fournissent un résultat absolument identique.

Les courbes d'erreurs théoriques présentées aux figures 6.4, 6.5 et 6.6 sont basées sur l'hypothèse que $K_{\text{max}} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}}V$ garde la même valeur sur l'ensemble des tranches. Nous pouvons affiner le modèle en utilisant des valeurs de K_{max} qui dépendent de la hauteur locale de la barrière de potentiel dans la tranche considérée. La courbe d'erreur théorique, donnée à la figure 6.8, est alors en bon accord avec les résultats présentés.

La formule 6.116 est donc qualitativement correcte. Une meilleure concordance avec la pratique peut être obtenue en considérant la hauteur de barrière associée à chaque tranche. Ce raffinement du modèle tend à diminuer l'erreur relative théorique. Cependant, à des fins pratiques, l'utilisation de la formule 6.116 offre plus de sécurité puisqu'elle exige un

Densité de courant (composante selon z) [A / cm²] Densité de courant (composante selon z) [A / cm²]



Densité de courant (composante selon z) [A / cm²] Densité de courant (composante selon z) [A / cm²]

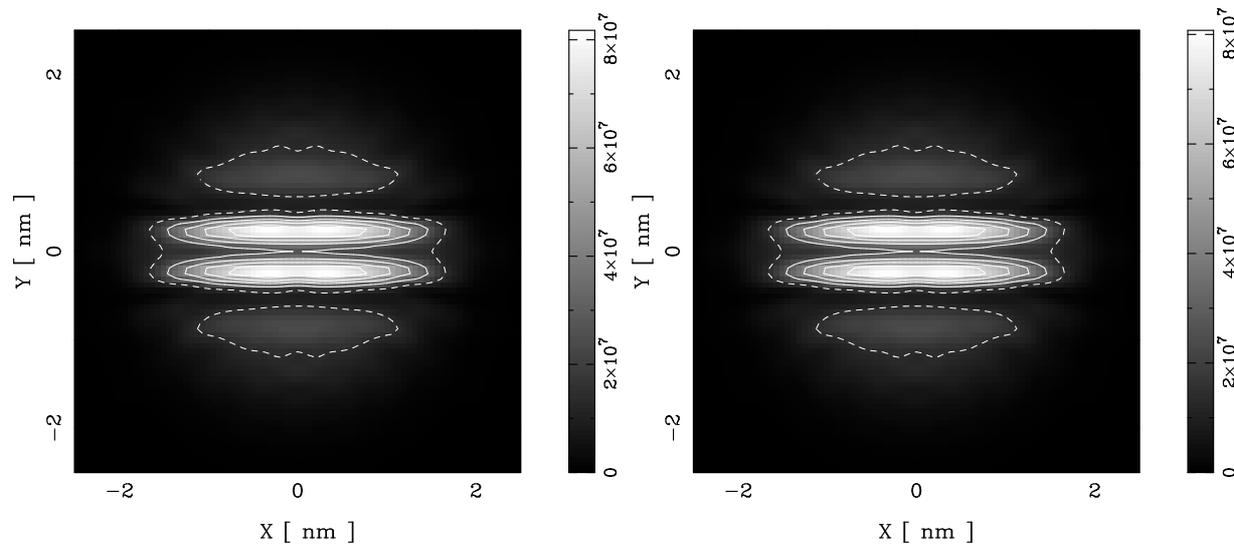


FIG. 6.7 – De gauche à droite et de haut en bas, calcul de la densité de courant sur la grille porte-objet supportant une fibre de carbone de 0.8 nm et située à 4 nm du support métallique de la pointe. La tension d'extraction est de 25 V. Les calculs sont réalisés respectivement sans subdivision en tranches, avec 2 tranches, 3 tranches et 400 tranches.

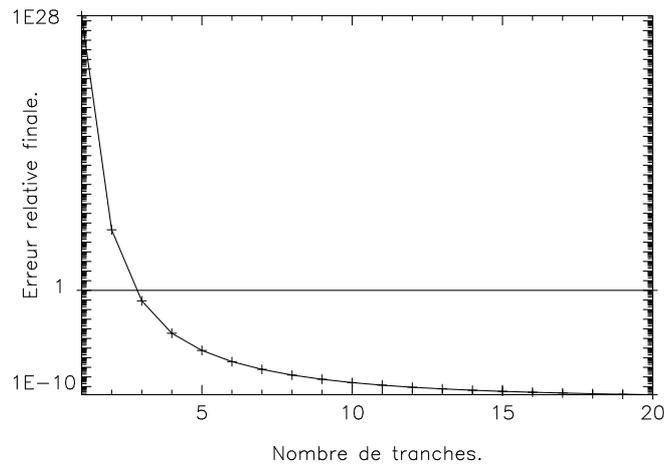


FIG. 6.8 – *Erreur relative sur le calcul des matrices de transfert en fonction du nombre de tranches utilisées obtenue en considérant la hauteur locale de la barrière de potentiel dans chaque tranche. Les valeurs suivantes ont été utilisées : $V = 25$ eV, $D = 4$ nm, $\text{cond}(P) = 10$, $n_{\text{bit}}=53$ (double précision).*

nombre de tranches minimum légèrement surestimé ... une erreur qui entraîne en fin de compte une meilleure précision du calcul de diffusion.

Pour conclure ce chapitre, signalons que l'analyse présentée ici n'a couvert que les problèmes d'instabilités liés à l'existence de solutions explosives et aux problèmes de conditionnement des matrices à inverser. Nous avons montré que les solutions intermédiaires ne sont pas affectées par la présence de ces solutions explosives mais nous n'avons pas abordé les problèmes d'ordre technique que l'on peut rencontrer lors du calcul de ces solutions par les équations présentées dans les chapitres 3, 4 et 5.

Chapitre 7

Emission de champ à partir de nanopointes

7.1 Introduction

Nous avons souligné au premier chapitre l'importance de travailler avec des pointes présentant certaines propriétés de cohérence afin d'obtenir des figures directement interprétables en microscopie à projection. Par propriétés de cohérence, nous entendons d'une part la cohérence spatiale (essentiellement l'aspect ponctuel de la source, qui est responsable de l'émission d'une onde sphérique) et d'autre part la cohérence énergétique (c'est-à-dire une faible dispersion énergétique des électrons émis).

Au cours de ce premier chapitre consacré aux applications, nous allons simuler l'émission de champ à partir de nanopointes en tungstène. Nous verrons que l'application d'une tension électrique entre le support de la nanopointe et une grille d'extraction induit l'émission d'un faisceau électronique à partir de son extrémité. Nous calculerons alors la distribution d'énergie totale (TED) du faisceau afin de démontrer la cohérence énergétique de celui-ci. Nous ferons ensuite un ensemble d'expériences de diffraction en plaçant une ouverture circulaire en face de la pointe. Ces expériences illustreront le concept de cohérence spatiale et montreront qu'une terminaison monoatomique est nécessaire pour obtenir des franges de diffraction bien contrastées. Dans l'immédiat, nous avons besoin de savoir comment calculer l'énergie potentielle au voisinage d'une nanopointe. Cette question fait l'objet du début de ce chapitre.

7.2 Modèle de pointe

Le tungstène cristallise en formant un réseau cubique centré (I). Le paramètre de réseau est $a = 0.316$ nm. Les nanopointes utilisées dans le Microscope à Projection de Fresnel sont orientées selon la direction $\langle 111 \rangle$. Nous ferons donc coïncider l'axe z de notre modèle avec cette direction cristallographique $\langle 111 \rangle$ et nous supposerons que les atomes dans la nanopointe occupent la même position que dans le cristal (à l'exception de l'atome terminal).

Les atomes constitutifs de la nanopointe seront délimités par un cône. Nous imposerons aux couches supérieures de la nanopointe (pour qu'elle soit complète) de contenir respectivement 1, 3 et 7 atomes. Les autres couches ne pourront jamais contenir moins de 7 atomes. L'écart entre ces plans atomiques sera celui imposé entre les couches à 1 et 3 atomes. Ces règles de construction se justifient par des considérations de bon sens et des observations en Field Ion Microscopy (FIM) de nanopointes, comme celle reproduite à la figure 7.1. Des désorptions successives font effectivement apparaître 1, 3 et un nombre plus élevé d'atomes sur les trois premières couches. Nous devrions en réalité considérer la relaxation de la pointe, mais ces calculs sortent de l'objectif principal de cette thèse. Nous invoquerons ce phénomène de relaxation pour justifier un déplacement de l'atome terminal, afin d'éviter certaines divergences dans nos calculs d'énergie potentielle.

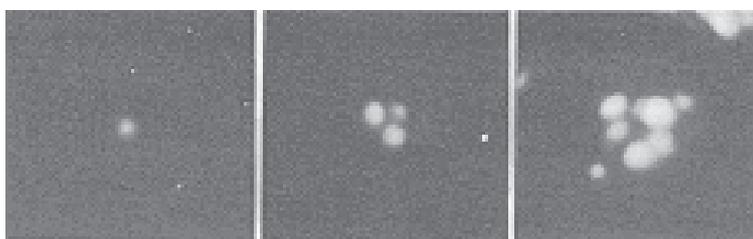


FIG. 7.1 – Observation par Field Ion Microscopy et désorption progressive des couches terminales d'une nanopointe.

Une question importante est celle de la position des atomes “extérieurs” de la nanopointe par rapport à la surface du jellium ($z = 0$ dans notre modèle) utilisé pour représenter les atomes “intérieurs” du support de la pointe. Ce problème se ramène à celui de la position d de la surface du jellium (appelée surface électrique) par rapport au centre du dernier plan atomique dans le cristal. Cette surface est celle d'où semble “commencer” le champ électrique à grande distance et coïncide en général avec le plan par rapport auquel on évalue les termes images. Le lecteur intéressé trouvera une comparaison critique de différentes réponses apportées à ce problème à la référence [102]. Une façon simple de calculer cette distance d consiste à prendre la moitié du rayon R_W attribué à chaque atome. Ce rayon est celui de la sphère dont le volume est celui associé à chaque atome dans le cristal. Etant donné que chaque élément de volume a^3 en contient deux, R_W est estimé à partir de $\frac{4}{3}\pi R_W^3 = \frac{a^3}{2}$. Avec les valeurs propres au tungstène on trouve $d = \frac{R_W}{2} = 77.8$ pm (1 Å = 100 pm). Ce résultat est en excellent accord avec la valeur $d = 79$ pm obtenue par des mesures [103] de Field-Ion Appearance Energy Spectroscopy (FIAES) effectuées avec de l'hélium adsorbé sur la face (111) du tungstène. Puisque la distance entre plans atomiques successifs dans la direction $\langle 111 \rangle$ est $\frac{a}{2\sqrt{3}} = 91$ pm, la première couche d'atomes de la nanopointe se situe en $z = \frac{a}{2\sqrt{3}} - d = 13.2$ pm.

Enfin, puisque l'axe z coïncide avec la direction $\langle 111 \rangle$ et passe par un atome du réseau (l'atome terminal), l'axe z est un axe d'ordre 3. La figure 7.2 représente la position des atomes dans une nanopointe à quatre couches.

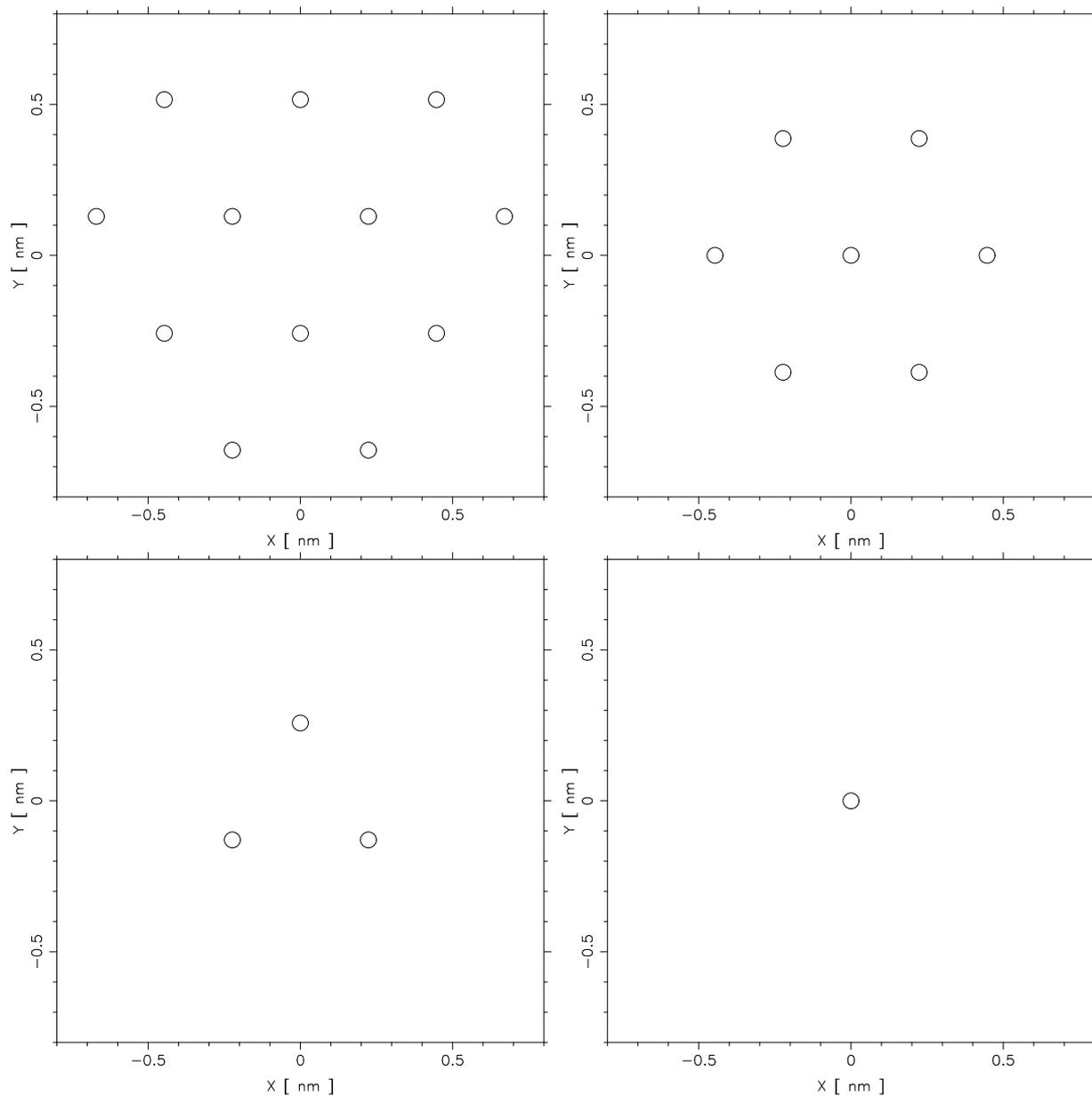


FIG. 7.2 – De gauche à droite et de haut en bas, position des atomes de tungstène dans une nanopointe à quatre couches. Les plans atomiques représentés sont situés respectivement en $z = 13$ pm, 104 pm, 195 pm et 287 pm.

7.3 Calcul de l'énergie potentielle par ajustement de dipôles

Nous connaissons maintenant la position de chaque atome de la pointe par rapport à la surface du jellium ($z = 0$). Le problème suivant consiste à calculer l'énergie potentielle de l'électron du problème de diffusion dans l'espace compris entre la surface du jellium et la grille (région II).

Pour y parvenir, nous modéliserons les atomes de la nanopointe par des dipôles. Chacun de ces dipôles \mathbf{p}_i est caractérisé par une polarisation α_i qui permet d'établir une relation linéaire avec le champ électrique total \mathbf{E}_i à l'emplacement du dipôle: $\mathbf{p}_i = \alpha_i \mathbf{E}_i$. La polarisabilité de chaque atome est déterminée par une moyenne pondérée par le nombre de voisins N_i entre la polarisabilité de l'atome isolé α_{iso} et celle de l'atome dans le cristal α_{bulk} de la manière suivante :

$$\alpha_i = \alpha_{iso} + N_i \frac{\alpha_{bulk} - \alpha_{iso}}{N_{bulk}} \quad (7.1)$$

où N_{bulk} est le nombre de voisins dans le cristal (8 pour une structure cubique centrée). Dans le cas du tungstène, nous prendrons $\frac{\alpha_{iso}}{4\pi\epsilon_0} = 7 \text{ \AA}^3$ [104] et $\frac{\alpha_{bulk}}{4\pi\epsilon_0} = 1.49 \text{ \AA}^3$ (que nous avons évalué à partir des données de la référence [105] correspondant à la fréquence de Fermi dans le métal). Nous avons considéré des valeurs de polarisabilité réelles afin d'éviter que les dipôles prennent une partie imaginaire. Celle-ci entraînerait en effet une absorption¹ non souhaitée ici de l'électron dans toutes les parties du problème où les valeurs des dipôles sont utilisées pour calculer l'énergie potentielle. Cette absorption "à distance" peut être attribuée à une excitation de la matière (plasmons,...), dans laquelle l'électron perd une partie de son énergie et disparaît donc de la fonction d'onde considérée dans notre problème de diffusion. La partie imaginaire de la polarisabilité est importante seulement au voisinage de résonances correspondant à une possibilité d'excitation de la matière. Les simulations que nous présenterons négligent donc ces excitations mais pourront les incorporer dans un travail ultérieur, grâce aux outils du chapitre 4.

Toute charge q située en \mathbf{r}_q dans la région II induit un champ électrique et un potentiel électrique donnés par :

$$\mathbf{E}_{(q,\mathbf{r}_q)}(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{q(\mathbf{r} - \mathbf{r}_q)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_q|^3} \quad (7.2)$$

$$\Phi_{(q,\mathbf{r}_q)}(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{q}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_q|} \quad (7.3)$$

Par ailleurs, tout dipôle \mathbf{p}_i situé en \mathbf{r}_i dans la région II induit un champ électrique et un potentiel électrique donnés par :

$$\mathbf{E}_{(\mathbf{p}_i,\mathbf{r}_i)}(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left[-\frac{\mathbf{p}_i}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|^3} + 3\mathbf{p}_i \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \frac{(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|^5} \right] \quad (7.4)$$

1. On aura une absorption lorsque l'énergie potentielle prend une partie imaginaire négative et une "création" dans le cas contraire. Nous ne discuterons pas de ce dernier cas qui trouve son origine dans un transfert d'énergie de la matière à l'électron considéré.

$$\Phi_{(\mathbf{p}_i, \mathbf{r}_i)}(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{\mathbf{p}_i \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_i)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|^3} \quad (7.5)$$

Ces relations s'accompagnent de la convention selon laquelle l'intégrale de l'expression 7.4 sur un volume contenant \mathbf{p}_i fournit le résultat $-\frac{\mathbf{p}_i}{3\epsilon_0}$. L'origine de cette convention ainsi que des expressions basées sur une convention différente pourront être trouvées à la référence [100].

À cause de la présence du métal, nous devons associer à toute charge q située en $\mathbf{r}_q = (x_q, y_q, z_q)$ une charge image $I(q) = -gq$ située en $I(\mathbf{r}_q) = (x_q, y_q, -z_q)$. De même à chaque dipôle $\mathbf{p}_i = (p_{x,i}, p_{y,i}, p_{z,i})$ situé en $\mathbf{r}_i = (x_i, y_i, z_i)$ est associé un dipôle image $I(\mathbf{p}_i) = g(-p_{x,i}, -p_{y,i}, p_{z,i})$ situé en $I(\mathbf{r}_i) = (x_i, y_i, -z_i)$. Le coefficient de réflexion g est relié à la constante diélectrique ϵ_{bulk} du cristal par la relation :

$$g = \frac{\epsilon_{bulk} - 1}{\epsilon_{bulk} + 1} \quad (7.6)$$

La constante diélectrique du cristal ϵ_{bulk} est reliée à la polarisabilité des atomes dans le cristal α_{bulk} par la relation de Clausius-Mosotti :

$$\frac{\epsilon_{bulk} - 1}{\epsilon_{bulk} + 2} = \frac{1}{3\epsilon_0} n \alpha_{bulk} \quad (7.7)$$

où $n = 2/a^3$ est la densité d'atomes par unité de volume. Cette relation peut être inversée et l'on obtient :

$$\epsilon_{bulk} = \frac{1 + 2 \left(\frac{\alpha_{bulk}}{4\pi\epsilon_0} \frac{8\pi}{3a^3} \right)}{1 - \left(\frac{\alpha_{bulk}}{4\pi\epsilon_0} \frac{8\pi}{3a^3} \right)} \quad (7.8)$$

Après ces longs préliminaires, nous sommes en mesure de calculer la valeur des N dipôles. Il suffit pour cela de remplacer dans les relations $\mathbf{p}_i = \alpha_i \mathbf{E}_i$ la valeur du champ local \mathbf{E}_i . Celui-ci est dû à la tension d'extraction, au champ exercé par l'électron et son image (nous noterons ces trois contributions par $\mathbf{E}_{ext}(\mathbf{r}_i)$) et à l'interaction avec les autres dipôles et les images de tous les dipôles. En notant $I(q, \mathbf{r}_q) = (I(q), I(\mathbf{r}_q))$ et $I(\mathbf{p}_j, \mathbf{r}_j) = (I(\mathbf{p}_j), I(\mathbf{r}_j))$, nous pouvons écrire un ensemble de N équations vectorielles :

$$\mathbf{p}_i = \alpha_i \left[\mathbf{E}_{ext}(\mathbf{r}_i) + \sum_{j \neq i} \mathbf{E}_{(\mathbf{p}_j, \mathbf{r}_j)}(\mathbf{r}_i) + \sum_j \mathbf{E}_{I(\mathbf{p}_j, \mathbf{r}_j)}(\mathbf{r}_i) \right] \quad (7.9)$$

dans lesquelles nous négligeons toute influence des densités de charges (représentées par les dipôles) sur elles-mêmes[87].

Etant donné que $\mathbf{E}_{(\mathbf{p}_j, \mathbf{r}_j)}(\mathbf{r}_i)$ et $\mathbf{E}_{I(\mathbf{p}_j, \mathbf{r}_j)}(\mathbf{r}_i)$ dépendent linéairement des composantes de \mathbf{p}_j , nous pouvons écrire ce système de N équations vectorielles sous la forme matricielle suivante :

$$\mathbf{M}\bar{\mathbf{p}} = \bar{\mathbf{E}} \quad (7.10)$$

où $\bar{\mathbf{p}}$ est un vecteur $(3N)$ qui contient les composantes des N dipôles \mathbf{p}_i , $\bar{\mathbf{E}}$ un vecteur $(3N)$ qui contient les composantes du champ extérieur $\mathbf{E}_{ext}(\mathbf{r}_i)$ et \mathbf{M} est une matrice $(3N) \times (3N)$. Cette matrice \mathbf{M} ne dépend que des coordonnées des différents atomes et est indépendante de la position de l'électron, qui est contenue dans $\bar{\mathbf{E}}$. On peut donc l'inverser et l'utiliser pour déterminer la valeur des dipôles pour chaque position de l'électron grâce à la relation :

$$\bar{\mathbf{p}} = \mathbf{M}^{-1}\bar{\mathbf{E}} \quad (7.11)$$

Nous sommes donc en mesure de calculer le potentiel électrique $\Phi_0(\mathbf{r}_q)$ que l'on aurait en un point \mathbf{r}_q si seul le champ d'extraction agissait sur les dipôles. Il suffit pour cela de prendre :

$$\mathbf{E}_{ext}(\mathbf{r}_i) = -\frac{V}{D}\mathbf{e}_z \quad (7.12)$$

et d'utiliser l'équation 7.11 pour déterminer la valeur des dipôles \mathbf{p}_i . On obtient alors $\Phi_0(\mathbf{r}_q)$ par :

$$\Phi_0(\mathbf{r}_q) = \sum_j \Phi_{(\mathbf{p}_j, \mathbf{r}_j)}(\mathbf{r}_q) + \sum_j \Phi_{I(\mathbf{p}_j, \mathbf{r}_j)}(\mathbf{r}_q) \quad (7.13)$$

Dans une deuxième étape, nous pouvons calculer le potentiel électrique $\Phi_q(\mathbf{r}_q)$ au point \mathbf{r}_q en tenant compte de l'influence de la charge q et de son image sur les dipôles. On utilise pour cela :

$$\mathbf{E}_{ext}(\mathbf{r}_i) = -\frac{V}{D}\mathbf{e}_z + \mathbf{E}_{(q, \mathbf{r}_q)}(\mathbf{r}_i) + \mathbf{E}_{I(q, \mathbf{r}_q)}(\mathbf{r}_i) \quad (7.14)$$

dans l'équation 7.11 afin de déterminer la valeur des dipôles compte tenu de la présence de l'électron de charge $q = -e$ en \mathbf{r}_q . Le potentiel $\Phi_q(\mathbf{r}_q)$ est alors donné par :

$$\Phi_q(\mathbf{r}_q) = \sum_j \Phi_{(\mathbf{p}_j, \mathbf{r}_j)}(\mathbf{r}_q) + \sum_j \Phi_{I(\mathbf{p}_j, \mathbf{r}_j)}(\mathbf{r}_q) + \Phi_{I(q, \mathbf{r}_q)}(\mathbf{r}_q) \quad (7.15)$$

où nous devons ajouter ici le potentiel dû à la charge image de l'électron.

Finalement, l'énergie potentielle $V(\mathbf{r}_q)$ de l'électron est donnée par :

$$V(\mathbf{r}_q) = q \left[\Phi_0(\mathbf{r}_q) + \frac{1}{2}(\Phi_q(\mathbf{r}_q) - \Phi_0(\mathbf{r}_q)) \right] \quad (7.16)$$

Il est nécessaire de recommencer le calcul de Φ_q et l'évaluation de l'expression précédente pour chaque nouvelle position de l'électron considérée.

Dans l'équation 7.16, nous avons mis un facteur $\frac{1}{2}$ pour la partie de l'énergie potentielle induite par l'électron lui-même. Ce facteur provient du fait que l'énergie potentielle lorsque l'électron est en \mathbf{r}_q correspond au travail qu'il a fallu réaliser pour l'amener depuis l'infini jusqu'en \mathbf{r}_q . Les dipôles ne sont pas restés figés au cours de ce trajet, mais se sont progressivement adaptés au cours de celui-ci. On retrouve ce facteur analytiquement

dans des situations plus simples, comme celle correspondant à l'absence de dipôle ou celle correspondant à une interaction avec un seul dipôle sans surface.

Les divergences qui peuvent apparaître à l'emplacement des atomes doivent être tronquées. Nous avons choisi dans ce chapitre de couper les valeurs de l'énergie potentielle qui descendent en dessous de 0 eV (valeur dans la région III). Une méthode plus raffinée consisterait à associer à chaque atome une valeur de coupure choisie en fonction de l'énergie potentielle dans son voisinage immédiat et des puits utilisés dans des représentations par pseudo-potentiels. Par ailleurs, les valeurs de l'énergie potentielle à proximité de la surface $z = 0$ sont limitées de manière à assurer le raccord avec l'énergie potentielle à l'intérieur du métal $V_{met} = eV - W - E_F$.

7.4 Emission de champ à partir d'une nanopointe

Pour commencer les applications, nous avons choisi d'illustrer le phénomène d'émission de champ à partir d'une nanopointe. Nous avons choisi une nanopointe à quatre couches, comme celle représentée à la figure 7.2, et calculé l'énergie potentielle d'après la méthode décrite à la section précédente. Le dernier atome a été déplacé de $z = 287$ pm à $z = 292$ pm pour éviter un caractère répulsif (divergence vers des valeurs positives de l'énergie potentielle) du dernier atome. Ce comportement démontre la nécessité d'une modélisation plus approfondie de la structure des nanopointes et de l'énergie potentielle dans leur voisinage immédiat. Ce déplacement représente 5 % de l'écart entre plans adjacents dans le cristal et peut être attribué à une relaxation au niveau du dernier atome.

Le résultat du calcul de l'énergie potentielle est illustré à la figure 7.3. Cette figure représente une coupe de l'énergie potentielle dans le plan xz . Ce plan passe à travers les atomes des couches 2 et 4. Il passe à proximité de 2 atomes de la couche 3 qui apparaissent également sur la figure.

Le résultat du calcul de la densité de courant est représenté à la figure 7.4. La partie gauche de la figure représente la composante selon z de la densité de courant sur la grille ($z = D$) et la partie droite représente la composante selon r de la densité de courant sur l'écran à 10 cm.

La largeur à mi-hauteur du faisceau à l'écran vu de la pointe est d'environ 13.5 degrés. Cette valeur est supérieure à la valeur expérimentale qui se situe autour de 5 degrés. Cette constatation ne surprend pas puisque le confinement du faisceau électronique observé expérimentalement est dû à l'influence du support de la pointe sur une grande distance. Cette influence n'est pas présente dans notre modèle puisque nous avons posé une énergie potentielle constante dans la région au-delà de la grille. Cette valeur de 13.5 degrés est par contre très proche de l'estimation de l'ouverture initiale du faisceau électronique (15 degrés). Les simulations révèlent que la dispersion angulaire initiale tend à diminuer lorsque le rapport V/D ou le rapport hauteur/base de la pointe diminue.

La figure 7.5 est une représentation en échelle logarithmique de la densité de courant selon z au niveau de la grille. On remarque que le faisceau électronique se détache par rapport à un fond qui représente le courant extrait de la surface du métal. Dans cette

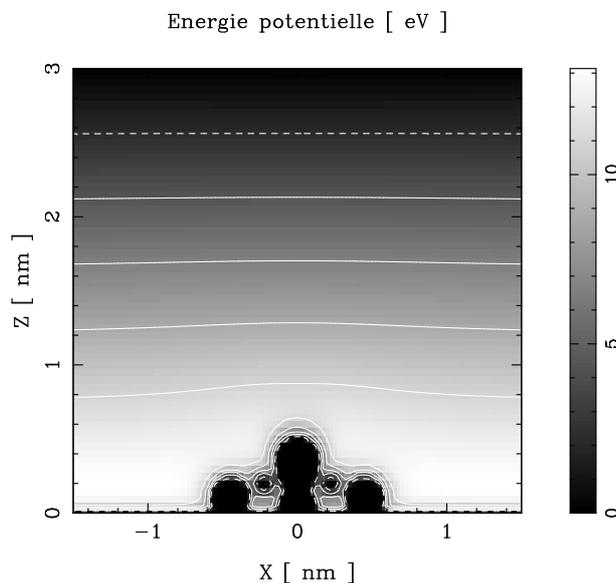


FIG. 7.3 – *Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 15 V est appliquée entre le support métallique d'une nanopointe à quatre couches et une grille située à 3 nm.*

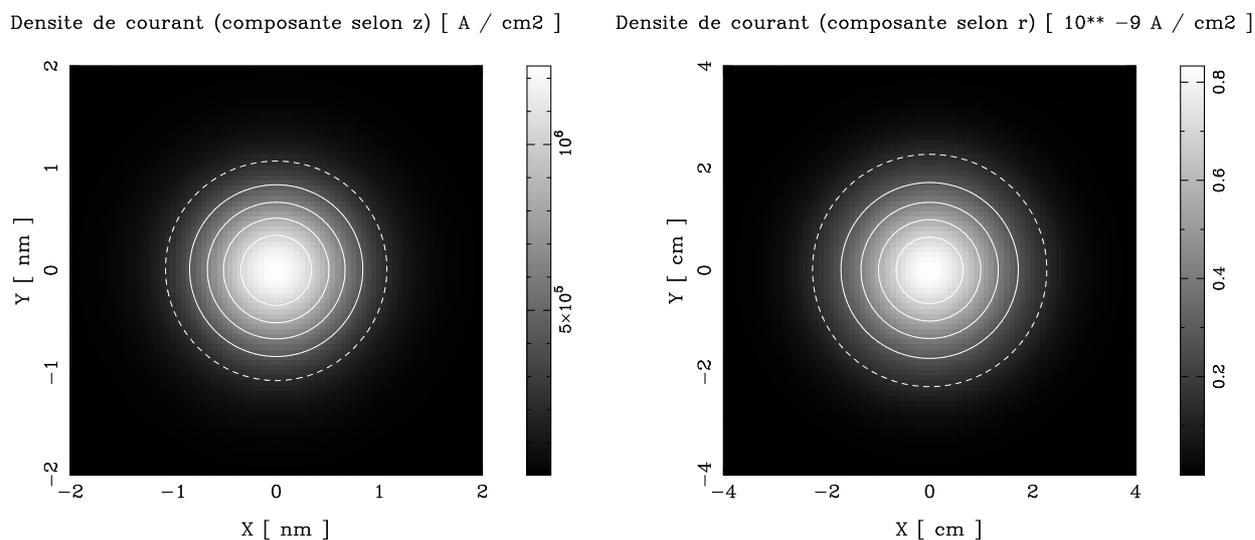


FIG. 7.4 – *Densité de courant obtenue par application d'une tension de 15 V entre le support métallique d'une nanopointe à 4 couches et une grille à 3 nm. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.*

simulation, la densité de courant en face de la pointe dépasse de plus de deux ordres de grandeur la densité de courant que l'on obtiendrait sans pointe.

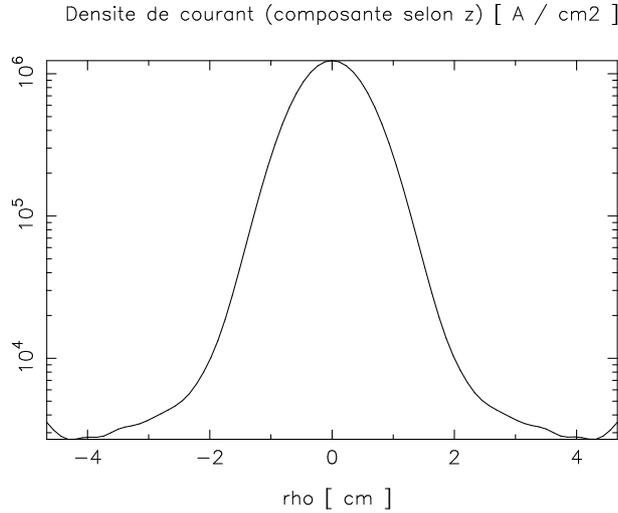


FIG. 7.5 – Densité de courant (composante selon z) sur la grille d'extraction. Elle résulte de l'application d'une tension de 15 V sur les 3 nm qui séparent cette grille du support métallique d'une nanopointe à 4 couches.

7.5 Cohérence énergétique

Notre théorie de diffusion permet le calcul de distributions d'énergie totale (TED). Nous avons calculé une telle distribution pour la situation considérée jusqu'ici et représenté celle-ci à la figure 7.6.

Cette distribution se présente sous la forme d'un pic dont le maximum est au niveau de Fermi dans le métal. La distribution diminue rapidement pour des énergies inférieures. Ce comportement s'explique par le fait que la barrière de potentiel est d'autant plus difficile à traverser que l'énergie de l'électron incident est petite.

La largeur à mi-hauteur de cette distribution est d'environ 0.25 eV. Cette valeur est supérieure à celle rencontrée expérimentalement pour des nanopointes de 2 nm (0.15 eV). Les résultats obtenus avec notre nanopointe à quatre couches sont par contre en bon accord avec les valeurs expérimentales obtenues pour des nanopointes plus petites. La figure 7.7 montre des distributions d'énergie totale mesurées avec des nanopointes de hauteur croissante. La courbe 2 sur cette figure présente des caractéristiques similaires à celles de notre figure 7.6.

Les distributions d'énergie totale que nous avons calculées tendent à s'élargir lorsque le champ électrique appliqué (le rapport V/D) augmente. Cette tendance s'explique par le fait que, dans ce modèle, l'épaisseur de la barrière de potentiel à traverser diminue (quelle que soit la direction de sortie) lorsque ce rapport augmente et que les électrons de plus

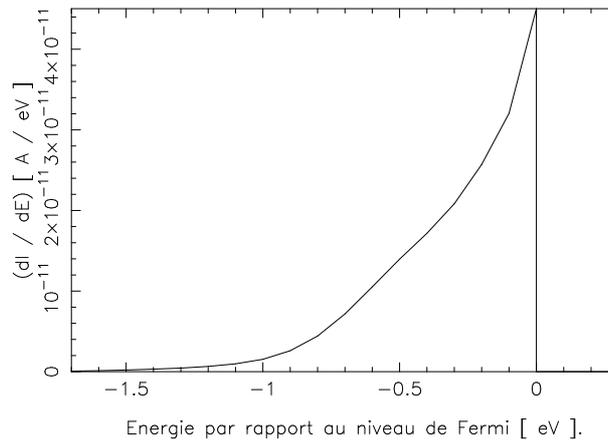


FIG. 7.6 – Distribution d'énergie totale des électrons extraits d'une nanopointe à quatre couches. Une tension de 15 V est appliquée entre le support de la nanopointe et une grille d'extraction à 3 nm.

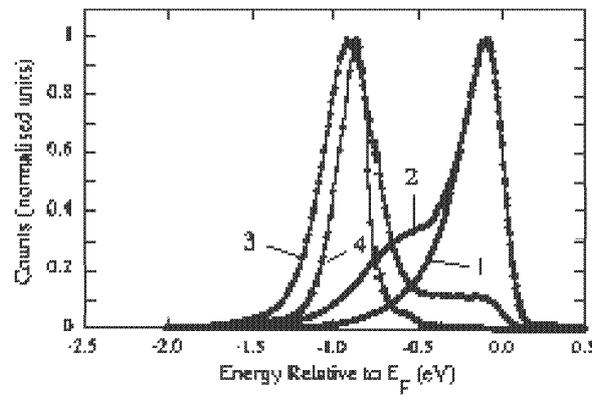


FIG. 7.7 – Distribution d'énergie totale des électrons extraits d'une pointe build-up (1) et de nanopointes de hauteur croissante (2-4).

faible énergie ont moins de difficultés à la traverser. Nous avons illustré cette tendance à la figure 7.8 en montrant les distributions d'énergie totale qui résultent respectivement de l'application d'une tension de 10, 15 et 20 V sur les 3 nm qui séparent le support métallique de la pointe et la grille d'extraction.

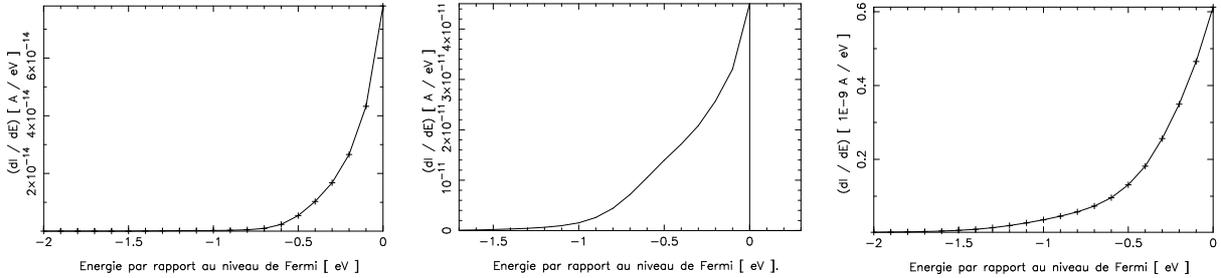


FIG. 7.8 – *Distribution d'énergie totale des électrons extraits d'une nanopointe à quatre couches, décrite par un ensemble de dipôles. Des tensions (de gauche à droite) de 10, 15 et 20 V sont appliquées entre le support de la nanopointe et une grille d'extraction à 3 nm.*

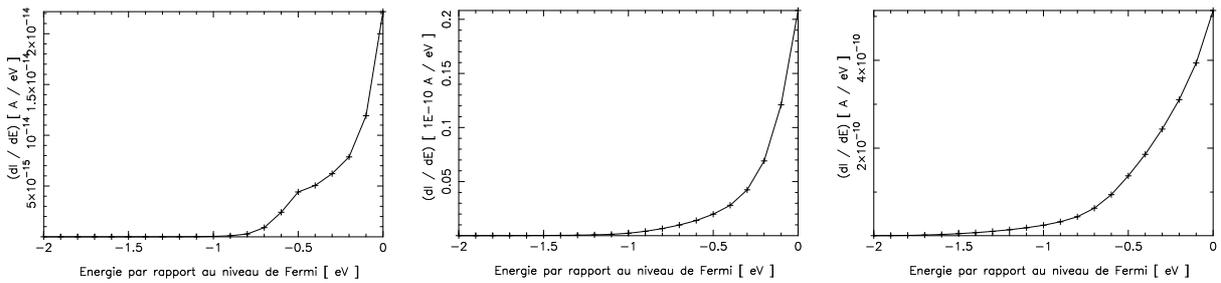


FIG. 7.9 – *Distribution d'énergie totale des électrons extraits d'une nanopointe à quatre couches, décrite par un ensemble de charges et de dipôles. Des tensions (de gauche à droite) de 10, 15 et 20 V sont appliquées entre le support de la nanopointe et une grille d'extraction à 3 nm.*

Nous avons réalisé des simulations avec des pointes constituées par un nombre plus élevé de couches. Les distributions d'énergie totale présentent plus de variations (par rapport à une forme monotone) lorsque la taille de la pointe augmente. Ces variations dépendent de la structure précise de la nanopointe et en particulier des caractéristiques de l'atome terminal. Il serait nécessaire de disposer de données précises sur la structure complète des nanopointes (par une étude théorique et/ou par des mesures) et d'une méthode plus raffinée pour le calcul de l'énergie potentielle pour examiner les propriétés singulières des nanopointes (structure en pics des TED, déplacement avec la tension d'extraction, ...).

Pour illustrer l'importance de la méthode de calcul de l'énergie potentielle, nous avons représenté à la figure 7.9 les distributions d'énergie totale que l'on obtient avec une autre méthode pour des tensions d'extraction de 10, 15 et 20 V.

Cette deuxième méthode considère la présence de charges électriques ponctuelles à l'emplacement de chaque atome. Ces charges sont déterminées de telle manière que le

potentiel ressenti par chaque atome (c'est-à-dire un dipôle et une charge donnés), à cause de la présence de la tension d'extraction, des autres charges et dipôles, de l'électron et de toutes les images, soit égal au potentiel dans le support métallique. Les dipôles sont déterminés comme précédemment en considérant en plus l'existence des nouvelles charges et de leur image. Les équations fournissent un système linéaire dont les inconnues sont les valeurs des dipôles et des charges. Dans ce modèle, nous forçons donc le caractère métallique de la nanopointe, d'une manière quelque peu arbitraire.

Si nous comparons les figures 7.8 et 7.9, nous constatons que les nanopointes "métalliques" tendent à conserver une dispersion en énergie constante lorsqu'on varie la tension d'extraction. La largeur à mi-hauteur de ces distributions en énergie totale (0.15 eV) est en meilleur accord avec celle observée pour les nanopointes utilisées dans le Microscope à Projection de Fresnel. Ces différences par rapport au modèle purement dipolaire s'expliquent par le fait que les charges présentes sur les sites atomiques tendent à maintenir dans leur voisinage immédiat une barrière de potentiel qui varie beaucoup moins que dans le cas précédent lorsqu'on modifie la tension. Cette comparaison nous montre l'importance du modèle utilisé pour calculer l'énergie potentielle.

7.6 Cohérence spatiale et caractère ponctuel de la source

Pour continuer l'étude des caractéristiques des nanopointes, nous allons montrer qu'une terminaison monoatomique est souhaitable afin d'obtenir des franges de diffraction bien contrastées. Une telle terminaison est en effet nécessaire pour que l'onde électronique incidente au niveau de l'objet puisse avoir un aspect sphérique, semblant provenir d'une source ponctuelle. En général, lorsque la pointe est dégradée, l'onde incidente perd cet aspect sphérique et le contraste des franges de diffraction diminue. A partir d'un certain niveau de dégradation, la source est délocalisée au point que l'onde incidente devient essentiellement plane. Il n'est alors plus possible d'observer des figures de diffraction de type Fresnel, mais uniquement de type Fraunhofer si la longueur de cohérence transverse est suffisante.

Pour illustrer cette influence de la structure de la pointe sur la qualité des figures obtenues, nous avons réalisé une série d'expériences de diffraction en disposant en face de la pointe une ouverture circulaire. De telles expériences ont été réalisées en utilisant les trous de la membrane de carbone qui recouvrent la grille porte-objet[69]. Nous avons reproduit à la figure 7.10 des images obtenues avec une nanopointe respectivement complète et dégradée, ainsi que des simulations réalisées d'après la théorie de Fresnel-Kirchhoff présentée au chapitre 2. Elles montrent clairement l'importance d'une terminaison monoatomique.

Dans nos simulations, cette ouverture circulaire est représentée par une région intermédiaire cylindrique insérée entre le plan $z = D$ et la région III dans laquelle se trouve l'écran à 10 cm. Etant donné que le nombre d'états de base nécessaires à la représentation

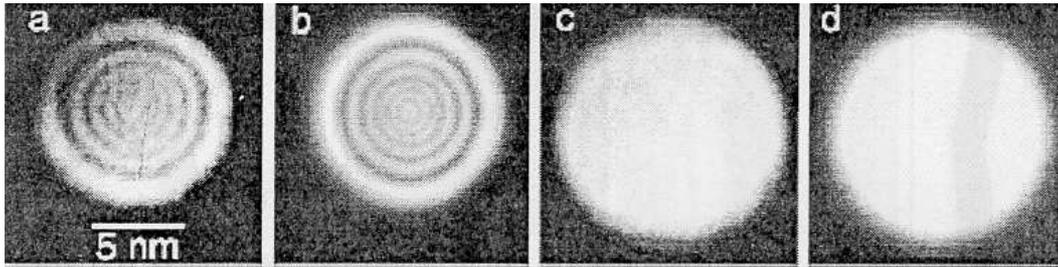


FIG. 7.10 – *Figures dues à la diffraction à travers un trou de la membrane de carbone. En a et c : images expérimentales pour une nanopointe respectivement à terminaison monoatomique et dégradée. En b et d : simulation par intégrales de Kirchhoff avec des longueurs de cohérence transverses sur la fente respectivement de 10 et 2 nm.*

des fonctions d'onde dans cette ouverture circulaire diffère de celui nécessaire dans la région II (puisque les valeurs respectives du rayon du cylindre de confinement sont différentes), ces simulations font intervenir les techniques de matrices de transfert rectangulaires.

A cause du fait que notre méthode repose sur une équation qui conserve la densité de courant (lorsque le potentiel est réel), les électrons qui rencontrent le bord de l'ouverture circulaire ne disparaissent pas de la simulation. Ils rebondissent successivement entre le bord de l'ouverture et la barrière de potentiel qu'ils ont peu de chance de traverser une seconde fois. Ils finissent par rencontrer le bord du cylindre qui les renvoie vers l'ouverture circulaire où ces électrons interfèrent avec ceux qui sont arrivés directement sur celle-ci. Pour limiter l'influence de ce phénomène (qui n'est lié qu'à notre méthode de simulation et ne correspond pas à ce qui se passe en réalité), nous devons prendre une ouverture suffisamment grande afin que les électrons qui rencontrent le bord de l'ouverture représentent une faible partie du nombre total d'électrons extraits du métal. La figure 7.4 permet de nous assurer qu'un rayon de 1.2 nm convient. Nous donnerons à l'ouverture une épaisseur de 0.1 nm.

7.6.1 Nanopointe complète

Nous avons conservé dans ces simulations une tension de 15 V et une distance métal-grille de 3 nm. Le modèle purement dipolaire présenté à la section 7.3 a été utilisé pour calculer l'énergie potentielle. Une coupe de celle-ci est représentée avec l'ouverture circulaire à la figure 7.11.

Une représentation en échelle logarithmique de la densité de courant calculée sur l'écran à 10 cm ainsi qu'une coupe en diagonale sont présentées à la figure 7.12. Conformément à ce qui est attendu, les franges de diffraction apparaissent bien contrastées. Nos résultats diffèrent cependant de ceux représentés à la figure 7.10. Nous avons en effet dû travailler dans une situation où l'onde incidente est presque entièrement comprise dans l'ouverture circulaire. Nos simulations ne correspondent donc pas aux conditions expérimentales à l'origine de la figure 7.10. Elles nous permettent cependant d'étudier la perte de contraste

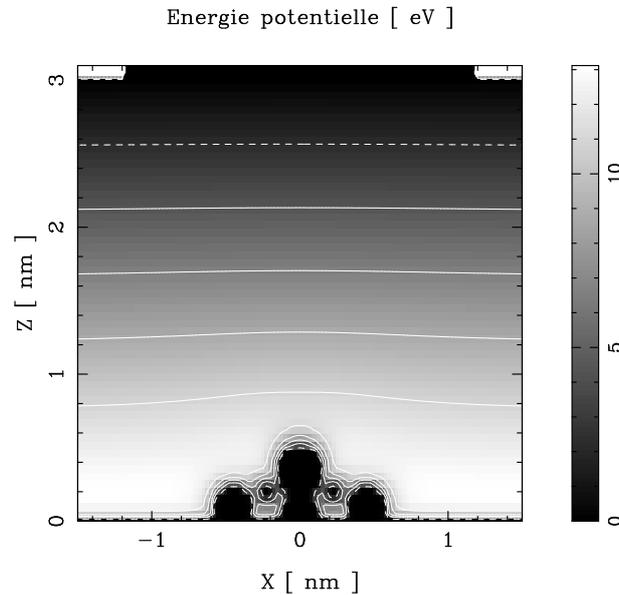
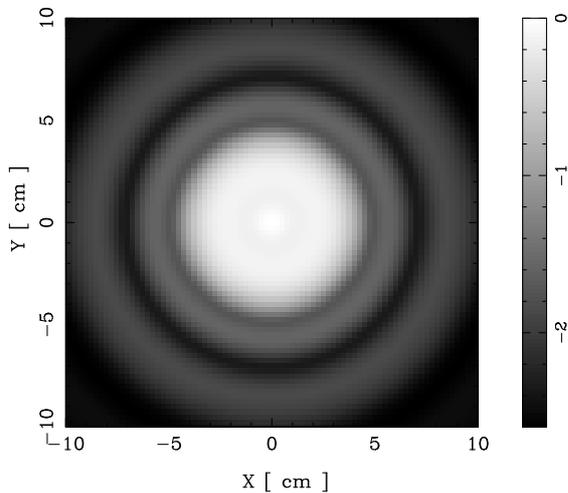


FIG. 7.11 – *Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 15 V est appliquée entre le support métallique d'une nanopointe à terminaison monoatomique et une grille située à 3 nm. La grille est suivie par une ouverture circulaire de 1.2 nm de rayon et 0.1 nm d'épaisseur.*

Densité de courant normalisée (composante selon r)



Densité de courant (composante selon r) [$10^{** -8}$ A / cm²]

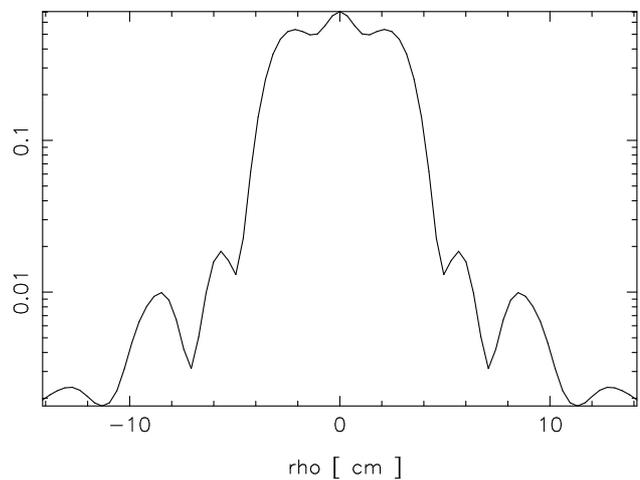


FIG. 7.12 – *Densité de courant (composante selon r sur un écran à 10 cm et coupe diagonale) obtenue par application d'une tension de 15 V entre le support métallique d'une nanopointe à terminaison monoatomique et une grille à 3 nm. La grille est suivie d'une ouverture circulaire de 1.2 nm de rayon et 0.1 nm d'épaisseur.*

qu'entraîne une dégradation de la nanopointe.

7.6.2 Nanopointe avec une terminaison à trois atomes

Dans la simulation suivante, nous avons retiré l'atome terminal de la nanopointe. L'énergie potentielle correspondant à cette nouvelle situation et l'ouverture circulaire sont représentées à la figure 7.13.

Une représentation en échelle logarithmique de la densité de courant calculée sur l'écran à 10 cm ainsi qu'une coupe en diagonale sont présentées à la figure 7.14.

La figure de diffraction présente moins de contraste par rapport à celle obtenue avec une nanopointe complète. Cette perte de contraste n'est pas due à une perte de cohérence à proprement parler mais plutôt au fait que l'onde incidente au niveau de la fente ne présente plus les caractéristiques d'une onde sphérique bien définie. Cela provient du fait que la dernière structure rencontrée par les électrons avant le vide est un triangle d'atomes et que ce dernier ne présente pas le même degré de symétrie que l'atome terminal rencontré dans les simulations précédentes.

Cette interprétation est confirmée par des simulations réalisées en prenant une énergie potentielle moyennée selon ϕ (et donc constante dans cette direction). Le triangle terminal d'atomes moyenné retrouve une symétrie axiale et la figure de diffraction est identique à celle obtenue avec une pointe complète, malgré l'étalement (encore restreint) de la source. Cela s'explique par le fait que l'onde extraite de cette structure présente les mêmes caractéristiques que l'onde essentiellement sphérique que l'on obtient avec une nanopointe complète, car nous avons imposé à l'extrémité la même symétrie.

Cette situation où nous avons moyenné l'énergie potentielle ne correspond à rien de concret, puisqu'en réalité on ne peut forcer artificiellement la symétrie d'une structure atomique donnée, mais permet de comprendre l'origine de la perte de contraste. Dans une expérience réelle, les électrons seront extraits d'une région de plus en plus accidentée au fur et à mesure de la dégradation de la nanopointe. Ce manque de symétrie et d'uniformité de la zone d'émission est responsable en fin de compte de la perte de contraste des figures observées.

7.6.3 Pointe macroscopique

Pour simuler les figures de diffraction que l'on obtiendrait avec une pointe macroscopique, nous avons retiré complètement la nanopointe. Les densités de courant obtenues proviennent alors de la surface plane du support métallique. Nous avons représenté à la figure 7.15 une section de l'énergie potentielle correspondante.

Une représentation en échelle logarithmique de la densité de courant calculée sur l'écran à 10 cm ainsi qu'une coupe en diagonale sont présentées à la figure 7.16. Le contraste par rapport à la figure de diffraction précédente est encore diminué. On peut s'étonner de la présence, même atténuée, de structures dans la figure. Celles-ci s'expliquent par le fait que même si la source est maintenant complètement délocalisée, elle possède un degré maximum de symétrie. Par ailleurs, cette situation de source délocalisée correspond à une diffraction

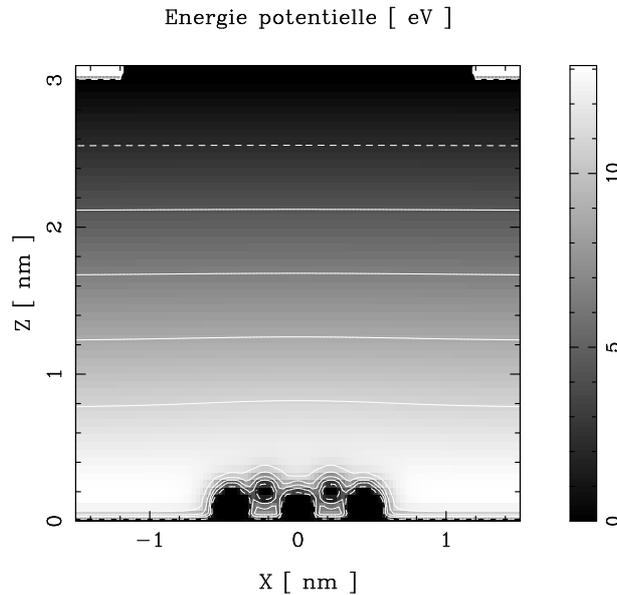


FIG. 7.13 – *Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 15 V est appliquée entre le support métallique d'une nanopointe à terminaison triatomique et une grille située à 3 nm. La grille est suivie par une ouverture circulaire de 1.2 nm de rayon et 0.1 nm d'épaisseur.*

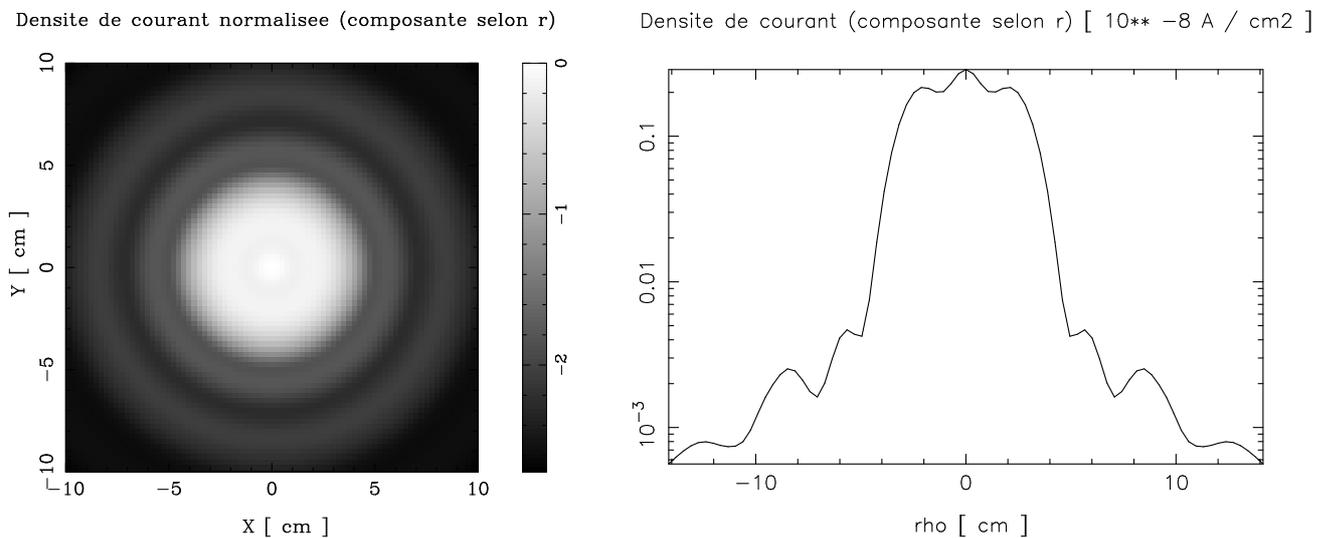


FIG. 7.14 – *Densité de courant (composante selon r sur un écran à 10 cm et coupe diagonale) obtenue par application d'une tension de 15 V entre le support métallique d'une nanopointe à terminaison triatomique et une grille à 3 nm. La grille est suivie d'une ouverture circulaire de 1.2 nm de rayon et 0.1 nm d'épaisseur.*

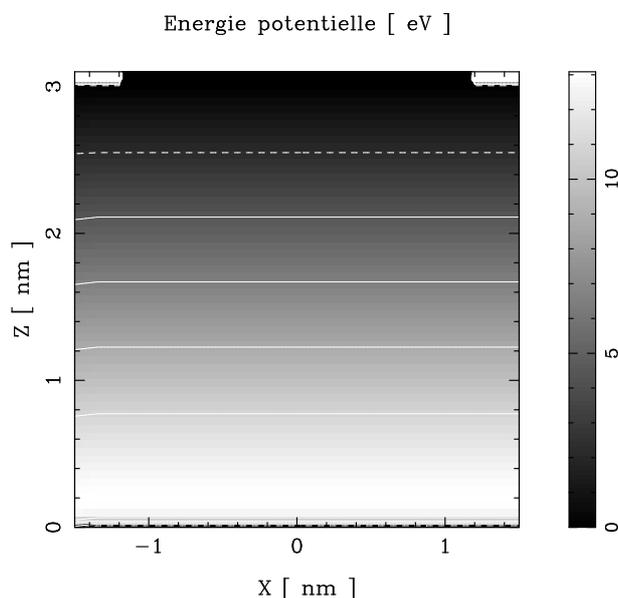


FIG. 7.15 – *Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 15 V est appliquée entre une surface métallique plane et une grille située à 3 nm. La grille est suivie par une ouverture circulaire de 1.2 nm de rayon et 0.1 nm d'épaisseur.*

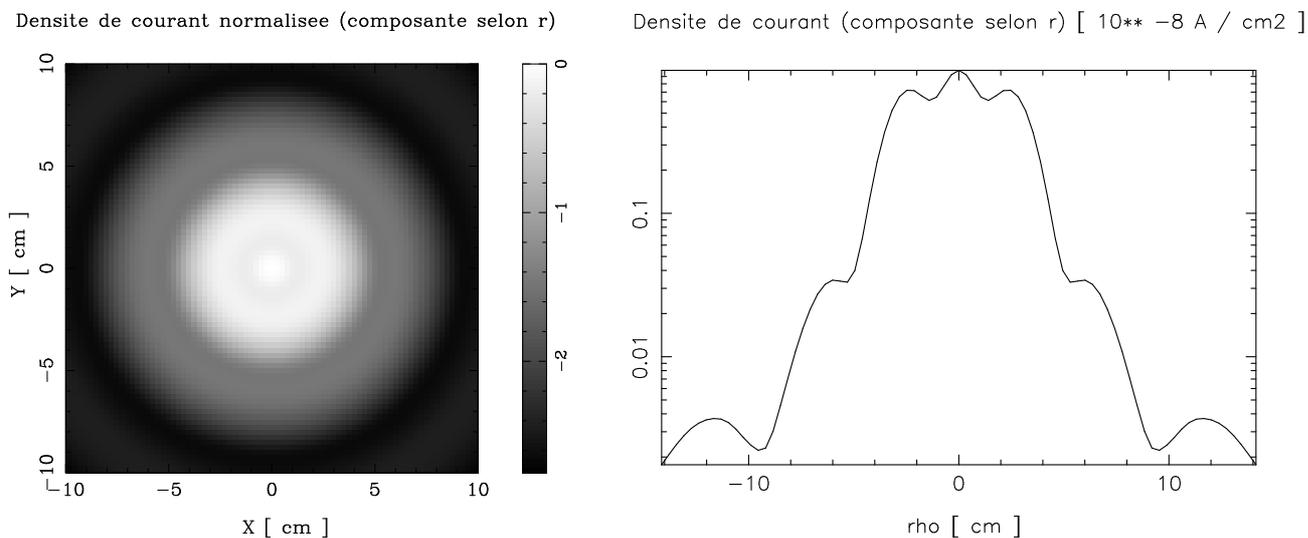


FIG. 7.16 – *Densité de courant (composante selon r sur un écran à 10 cm et coupe diagonale) obtenue par application d'une tension de 15 V entre une surface métallique plane et une grille à 3 nm. La grille est suivie d'une ouverture circulaire de 1.2 nm de rayon et 0.1 nm d'épaisseur.*

de type Fraunhofer (l'onde incidente étant ici essentiellement plane) pour laquelle des franges existent.

7.7 Conclusion

Dans ce premier chapitre consacré aux applications de notre méthode de diffusion, nous avons simulé l'émission de champ à partir de nanopointes en tungstène. Nous nous sommes attachés à mettre en évidence, parmi les caractéristiques du faisceau extrait, celles qui sont importantes pour des applications en microscopie à projection.

La dispersion angulaire du faisceau obtenu dans nos simulations est en bon accord avec les valeurs de la dispersion angulaire initiale trouvées dans la littérature. Le confinement du faisceau dû à l'influence du support de la nanopointe n'est pas présent dans notre modèle, à cause de la proximité de la grille d'extraction et de l'absence de champ dans la région III. Modifier cette dernière hypothèse remettrait en question la méthode utilisée pour propager les solutions jusqu'à l'écran. Une manière (non triviale) de traiter ce problème pourrait consister à utiliser dans la région III une expression des fonctions de Green qui corresponde à la forme asymptotique de l'énergie potentielle obtenue lorsque le support est hémisphérique. Le raccord avec les solutions calculées par matrices de transfert se ferait là où l'énergie potentielle due au support hémisphérique, à la nanopointe et à un éventuel objet coïncide (à une différence négligeable près) avec la forme asymptotique due au support uniquement.

Nous avons calculé des distributions d'énergie totale qui montrent que le faisceau électronique présente une faible dispersion énergétique. Ces distributions présentent des caractéristiques similaires à celles mesurées avec des petites nanopointes.

Enfin, nous avons montré comment le contraste des figures de diffraction se détériore au fur et à mesure que les couches supérieures des nanopointes sont retirées. Cette perte de contraste est davantage due à une perte de symétrie au niveau terminal de la pointe qu'à un étalement de la source.

La validité des résultats présentés est limitée essentiellement par la méthode utilisée pour calculer l'énergie potentielle dans le voisinage des nanopointes. Nous avons utilisé un modèle de dipôles pour représenter chaque atome. Nous avons comparé certains résultats avec ceux obtenus en ajoutant la présence de charges électriques pour reproduire le caractère métallique de la pointe. Ces méthodes simples ne peuvent se substituer à des techniques plus sophistiquées (comme celles de Density Functional Theory) et ne fournissent que des résultats qualitatifs. Le développement de ces méthodes raffinées pour le calcul de l'énergie potentielle constitue un projet relativement ambitieux qui ne pouvait être abordé en même temps que le problème de diffusion dans le cadre de cette thèse.

Chapitre 8

Observation de fibres de carbone

8.1 Introduction

Nous avons mis en évidence dans le chapitre précédent les caractéristiques des nanopointes qui se révèlent utiles pour des applications en microscopie à projection. Ces caractéristiques étaient essentiellement la faible dispersion énergétique et la possibilité d'émettre une onde électronique d'aspect essentiellement sphérique. Nous avons souligné le fait qu'une simulation exacte de ces caractéristiques exige des modèles plus élaborés aussi bien pour établir la structure des nanopointes que l'énergie potentielle.

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser à l'utilisation de ces nanopointes pour l'observation de fibres de carbonées. Travailler avec des pointes présentant de bonnes caractéristiques (celles rappelées précédemment) est indispensable pour obtenir des images de bonne qualité. Nous avons confirmé par nos simulations que les nanopointes présentent effectivement ces caractéristiques. Elles ne suffisent cependant pas pour obtenir des images assimilables à une projection géométrique dans tous les cas. Le but de ce chapitre est de montrer dans quelles conditions une expérience fournira de telles images. Nous nous intéresserons aussi à l'influence des caractéristiques de l'objet sur l'image obtenue. Ces caractéristiques sont évidemment la taille, mais aussi la polarisation, le travail d'extraction et l'absorption. Notre technique de simulation permet de reproduire les images à grande distance (les "ombres") et de voir, contrairement à ce qui est possible expérimentalement, "ce qui se passe" au niveau de l'objet lui-même. Nous verrons ainsi qu'un objet absorbant ne donne pas nécessairement lieu à une image opaque.

Il n'est pas utile dans ce chapitre de recourir à une description atomique de la matière. Ce niveau de description compliquerait l'interprétation des images que nous obtiendrons et n'est par ailleurs pas utile ici puisque les images expérimentales de fibres de carbone ne présentent aucune caractéristique qui justifie un modèle atomique. La raison provient du fait que les images sont insensibles aux détails dans l'objet observé qui varient sur une échelle inférieure au pouvoir de résolution. Pour une fibre de carbone de composition homogène, les variations dans l'énergie potentielle qui accompagnent la structure atomique sont ainsi moyennées dans l'image et n'apparaissent donc pas. Comme le montre la coupe

dans l'énergie potentielle présentée en couverture (qui correspond à l'observation d'une molécule de C_{540} sous une tension de 40 V), la structure atomique peut entraîner des variations dans l'énergie potentielle sur une échelle supérieure au pouvoir de résolution et donc observables (comme les oscillations à l'intérieur de la molécule). Une description atomique doit donc être envisagée pour tenir compte de ces effets et lorsque l'objet étudié présente une structure plus complexe. Nous passerons à ce niveau de description dans le chapitre suivant.

La matière sera décrite ici de manière macroscopique par un milieu homogène où la capacité de polarisation est reproduite par une constante diélectrique. La nanopointe sera décrite dans ce contexte par un cône homogène. Cette description suffit en effet pour reproduire les caractéristiques importantes des nanopointes et offre l'avantage de présenter une invariance de rotation complète. La symétrie du problème sera alors déterminée par celle de l'objet (qui est $n = 2$ pour des formes parallélépipédiques centrées sur l'axe z).

8.2 Modèle de pointe et de fibre

Comme nous l'avons dit, la pointe est décrite par un cône. Nous lui donnerons une constante diélectrique ϵ_r élevée pour reproduire son caractère métallique. La fibre de carbone est représentée simplement par un barreau homogène parallélépipédique, caractérisé par une constante diélectrique ϵ_r de 16.5 (valeur statique pour le diamant[106]).

Par la méthode que nous décrirons à la section suivante, il est possible de calculer le potentiel électrique (et donc l'énergie potentielle) dans toute la région II. Il faut ensuite ajouter à cette énergie potentielle les puits de potentiel (auxquels contribuent les interactions coulombiennes avec les autres électrons et les noyaux ainsi que l'énergie d'échange). Dans la pointe, nous imposons la même énergie $V_{met} = eV - W - E_F$ que dans le support métallique et nous abaissons dans la fibre l'énergie potentielle de 4.82 eV (qui est le travail d'extraction dans les matériaux de carbone [106]).

Nous travaillerons avec une pointe de 1 nm de haut et 0.5 nm de rayon à la base. Le barreau sera disposé selon l'axe x et infini dans cette direction. La section du barreau dans le plan yz sera un carré de 1 nm de côté.

Ces paramètres sont ceux qui nous ont semblé adéquats pour représenter correctement la pointe et la fibre. Nous les modifierons au cours de nos simulations afin d'étudier leur influence sur l'aspect de l'image.

8.3 Calcul de l'énergie potentielle par sur-relaxation

8.3.1 Equation différentielle pour le calcul du potentiel électrique

Dans le cadre d'une description macroscopique de la matière, les équations à considérer pour le calcul des champs électromagnétiques sont celles de Maxwell. Les deux équations

qui concernent les champs électriques sont les suivantes :

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho \quad (8.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (8.2)$$

Nous allons nous servir de ces équations pour déterminer la distribution du potentiel dans la région II lorsque l'électron de notre problème de diffusion est absent. La correction à apporter sera le terme image que nous déterminerons par la suite.

Dans la première équation, \mathbf{D} est le *déplacement électrique*. Il contient à la fois le *champ électrique* \mathbf{E} et la *polarisation* de la matière \mathbf{P} (densité volumique des dipôles microscopiques), les trois grandeurs étant reliées par $\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$, où ϵ_0 est la *permittivité du vide* ($8.85 \cdot 10^{-12}$ F/m).

Dans un matériau isotrope et pour des valeurs de champ faibles, on relie de manière linéaire la polarisation et le champ électrique par l'expression

$$\mathbf{P} = \chi \epsilon_0 \mathbf{E} \quad (8.3)$$

où χ est la *susceptibilité électrique*. On peut alors écrire $\mathbf{D} = \epsilon_0(1 + \chi)\mathbf{E} = \epsilon \mathbf{E}$, avec $\epsilon = \epsilon_0(1 + \chi)$ la *permittivité diélectrique* et $\epsilon_r = 1 + \chi$ la *constante diélectrique*.

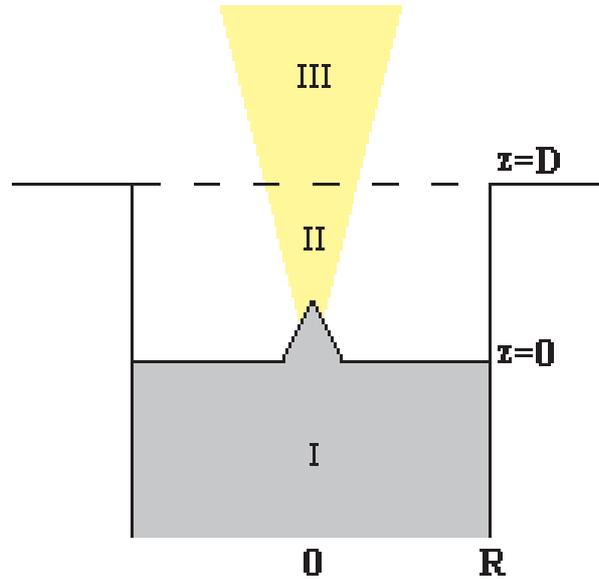


FIG. 8.1 – Disposition des régions I ($z \leq 0$), II ($0 \leq z \leq D$, qui contient la pointe et éventuellement un objet) et III ($z \geq D$). Il est nécessaire de calculer la distribution d'énergie potentielle dans la région II à l'intérieur du cylindre de confinement.

La région II (dont la position est rappelée à la figure 8.1) ne contient aucune charge nette. En effet, l'électron du problème de diffusion est pour l'instant absent, nous supposons

que le barreau est neutre (il est soutenu par une grille conductrice) et les charges présentes sur la pointe et le support métallique, qui contribuent à la différence de potentiel V , seront considérées dans nos conditions limites. La densité volumique de charge ρ est donc nulle et l'équation 8.1 prend la forme suivante :

$$\nabla \cdot (\epsilon \mathbf{E}) = 0 \quad (8.4)$$

Puisque nous traitons un problème statique, l'équation 8.2 se simplifie comme :

$$\nabla \times \mathbf{E} = 0 \quad (8.5)$$

qui admet une solution du type :

$$\mathbf{E} = -\nabla \Phi \quad (8.6)$$

avec Φ le *potentiel électrique*.

En insérant cette expression dans l'équation 8.4, on obtient l'équation à résoudre :

$$\nabla \cdot (\epsilon \nabla \Phi) = 0 \quad (8.7)$$

où ϵ et Φ varient avec la position \mathbf{r} . Elle peut encore se mettre sous la forme :

$$\nabla \epsilon \cdot \nabla \Phi + \epsilon \Delta \Phi = 0 \quad (8.8)$$

ou en coordonnées cylindriques :

$$\left(\frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \quad \frac{1}{\rho} \frac{\partial \epsilon}{\partial \phi} \quad \frac{\partial \epsilon}{\partial z} \right) \cdot \begin{pmatrix} \frac{\partial \Phi}{\partial \rho} \\ \frac{1}{\rho} \frac{\partial \Phi}{\partial \phi} \\ \frac{\partial \Phi}{\partial z} \end{pmatrix} + \epsilon \left(\frac{\partial^2 \Phi}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial \Phi}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2 \Phi}{\partial z^2} \right) = 0 \quad (8.9)$$

8.3.2 Expression numérique de la dérivée première et seconde

Pour résoudre l'équation 8.9, nous allons considérer un ensemble discret de points $(i\Delta\rho, j\Delta\phi, k\Delta z)$ et chercher les valeurs de Φ sur cette grille uniquement. Nous pourrions par la suite obtenir des valeurs de Φ sur une grille quelconque par une interpolation. Dans l'immédiat, il est nécessaire de remplacer l'équation aux dérivées 8.9 par une équation aux différences qui ne fait intervenir que les points de la grille $(i\Delta\rho, j\Delta\phi, k\Delta z)$.

Pour y parvenir, il est nécessaire de remplacer les dérivées premières et secondes par des expressions aux différences. Considérons les développements en série suivants d'une fonction f :

$$f(x + \Delta x) = f(x) + \Delta x f'(x) + O(\Delta x^2) \quad (8.10)$$

$$f(x - \Delta x) = f(x) - \Delta x f'(x) + O(\Delta x^2) \quad (8.11)$$

Ces deux expressions fournissent chacune une expression possible pour l'évaluation de la dérivée première :

$$f'(x) = \frac{f(x + \Delta x) - f(x)}{\Delta x} + O(\Delta x) \quad (8.12)$$

$$f'(x) = \frac{f(x) - f(x - \Delta x)}{\Delta x} + O(\Delta x) \quad (8.13)$$

Elles sont chacune du premier ordre.

Nous pouvons établir une expression du deuxième ordre ainsi qu'une expression de la dérivée seconde à partir des développements suivants :

$$f(x + \Delta x) = f(x) + \Delta x f'(x) + \frac{\Delta x^2}{2} f''(x) + O(\Delta x^3) \quad (8.14)$$

$$f(x) = f(x) \quad (8.15)$$

$$f(x - \Delta x) = f(x) - \Delta x f'(x) + \frac{\Delta x^2}{2} f''(x) + O(\Delta x^3) \quad (8.16)$$

En soustrayant la troisième équation de la première, on trouve :

$$f'(x) = \frac{f(x + \Delta x) - f(x - \Delta x)}{2\Delta x} + O(\Delta x^2) \quad (8.17)$$

qui est du deuxième ordre.

En additionnant la première et la troisième équation et en soustrayant deux fois la seconde, on trouve une expression pour la dérivée seconde :

$$f''(x) = \frac{f(x + \Delta x) - 2f(x) + f(x - \Delta x)}{\Delta x^2} + O(\Delta x) \quad (8.18)$$

qui est du premier ordre.

8.3.3 Equation aux différences pour le calcul des potentiels électriques

Pour mettre l'équation 8.9 sous une forme utilisable, il suffit donc de remplacer toutes les dérivées premières et secondes par les expressions trouvées précédemment.

On remplace ainsi les dérivées premières de ϵ en utilisant l'expression du deuxième ordre 8.17. On remplace ensuite les dérivées premières de Φ par une des expressions du premier ordre 8.12 ou 8.13. On choisit dans chaque terme celle qui fait intervenir le point où la valeur de ϵ est considérée. Le Laplacien $\Delta\Phi$ est évalué en prenant l'expression 8.17 d'ordre 2 pour les dérivées premières ainsi que l'expression 8.18 pour les dérivées secondes.

En indiquant par i, j, k les valeurs estimées en $(i\Delta\rho, j\Delta\phi, k\Delta z)$, on trouve :

$$\Phi_{i,j,k}^{new} = \frac{\begin{aligned} & \left[\frac{\epsilon_{i+1,j,k}}{2\Delta\rho^2} + \frac{\epsilon_{i,j,k}}{\Delta\rho^2} \left(1 + \frac{1}{2i}\right) \right] \Phi_{i+1,j,k}^{old} + \left[\frac{\epsilon_{i-1,j,k}}{2\Delta\rho^2} + \frac{\epsilon_{i,j,k}}{\Delta\rho^2} \left(1 - \frac{1}{2i}\right) \right] \Phi_{i-1,j,k}^{old} \\ & + \left[\frac{\epsilon_{i,j+1,k}}{2(i\Delta\rho\Delta\phi)^2} + \frac{\epsilon_{i,j,k}}{(i\Delta\rho\Delta\phi)^2} \right] \Phi_{i,j+1,k}^{old} + \left[\frac{\epsilon_{i,j-1,k}}{2(i\Delta\rho\Delta\phi)^2} + \frac{\epsilon_{i,j,k}}{(i\Delta\rho\Delta\phi)^2} \right] \Phi_{i,j-1,k}^{old} \\ & + \left[\frac{\epsilon_{i,j,k+1}}{2\Delta z^2} + \frac{\epsilon_{i,j,k}}{\Delta z^2} \right] \Phi_{i,j,k+1}^{old} + \left[\frac{\epsilon_{i,j,k-1}}{2\Delta z^2} + \frac{\epsilon_{i,j,k}}{\Delta z^2} \right] \Phi_{i,j,k-1}^{old} \end{aligned}}{\begin{aligned} & \frac{1}{2\Delta\rho^2} (\epsilon_{i+1,j,k} + \epsilon_{i-1,j,k}) + \frac{1}{2(i\Delta\rho\Delta\phi)^2} (\epsilon_{i,j+1,k} + \epsilon_{i,j-1,k}) \\ & + \frac{1}{2\Delta z^2} (\epsilon_{i,j,k+1} + \epsilon_{i,j,k-1}) + 2 \left(\frac{1}{\Delta z^2} + \frac{1}{\Delta\rho^2} + \frac{1}{(i\Delta\rho\Delta\phi)^2} \right) \epsilon_{i,j,k} \end{aligned}} \quad (8.19)$$

où nous avons ajouté les notations “new” et “old” respectivement au point d'indices i, j, k et ses 6 voisins. On peut multiplier le numérateur et le dénominateur par $2\Delta\rho^2/\epsilon_0$ pour réduire le nombre d'opérations et ramener les différents facteurs de pondération à des valeurs proches de l'unité.

Le cas $i = 0$ rencontré pour tous les points de la grille situés sur l'axe z nécessite un traitement particulier. Puisque toutes les dérivées selon ϕ sont nulles en $\rho = 0$ (car le point $(0, \phi, z)$ reste le même si ϕ varie), nous pouvons supprimer dans l'équation 8.19 les termes provenant de ces dérivées. Il est clair, pour les mêmes raisons, que $\Phi_{0,j,k}$ ne doit pas dépendre de j . Il en va par contre différemment pour $\Phi_{1,j,k}$. Afin de tenir compte de toutes ces valeurs, $\Phi_{0,..,k}$ est évalué par une moyenne des résultats obtenus en considérant chaque valeur particulière de $\Phi_{1,j,k}$. Dans cette moyenne, les termes en $\frac{1}{2i}$ se simplifient avec ceux en $\frac{-1}{2i}$ ¹. L'expression à utiliser est alors :

$$\Phi_{0,..,k}^{new} = \frac{1}{N_{phi}} \sum_{j=1}^{N_{phi}} \frac{\begin{aligned} & \Phi_{1,j,k}^{old} \left[\frac{1}{\Delta\rho^2} (\epsilon_{1,j,k} + 2\epsilon_{0,j,k}) \right] \\ & + \Phi_{0,j,k+1}^{old} \left[\frac{\epsilon_{0,j,k+1}}{2\Delta z^2} + \frac{\epsilon_{0,j,k}}{\Delta z^2} \right] + \Phi_{0,j,k-1}^{old} \left[\frac{\epsilon_{0,j,k-1}}{2\Delta z^2} + \frac{\epsilon_{0,j,k}}{\Delta z^2} \right] \end{aligned}}{\frac{\epsilon_{1,j,k}}{\Delta\rho^2} + \frac{\epsilon_{0,j,k+1} + \epsilon_{0,j,k-1}}{2\Delta z^2} + 2 \left(\frac{1}{\Delta\rho^2} + \frac{1}{\Delta z^2} \right) \epsilon_{0,j,k}} \quad (8.20)$$

On peut ici aussi multiplier le numérateur et le dénominateur par $2\Delta\rho^2/\epsilon_0$ pour réduire le nombre d'opérations et ramener les différents facteurs de pondération à des valeurs proches de l'unité.

Pour un axe de symétrie d'ordre n , les points de la grille ne doivent couvrir qu'un angle de $2\pi/n$, de telle manière que $(N_\phi + 1)\Delta\phi = 2\pi/n$. Afin de pouvoir évaluer l'expression 8.19 pour $j = 0$ et $j = N_\phi$, il est nécessaire de poser les conditions de périodicité :

$$\Phi_{i,N_\phi+1,k} = \Phi_{i,0,k} \quad (8.21)$$

$$\epsilon_{i,N_\phi+1,k} = \epsilon_{i,0,k} \quad (8.22)$$

$$\Phi_{i,-1,k} = \Phi_{i,N_\phi,k} \quad (8.23)$$

$$\epsilon_{i,-1,k} = \epsilon_{i,N_\phi,k} \quad (8.24)$$

1. Un raisonnement simplifié qui aboutit à la même conclusion consiste à dire que $\Phi_{1,j,k} = \Phi_{-1,j,k}$ et $\epsilon_{1,j,k} = \epsilon_{-1,j,k}$. L'indice -1 doit être interprété comme désignant la valeur en $(1\Delta\rho, j\Delta\phi + \pi, k\Delta z)$. Il est raisonnable (dans notre problème) de dire qu'elle sera la même qu'en $(1\Delta\rho, j\Delta\phi, k\Delta z)$.

Ces équations indiquent la façon de calculer le potentiel en chaque point de la grille. D'après ces expressions, le potentiel en un point de la grille s'exprime comme une moyenne des valeurs sur les points voisins, la moyenne étant pondérée par des coefficients faisant intervenir les valeurs de ϵ . Pour calculer le potentiel sur une grille dans un volume donné, il faut donc poser les valeurs sur tous les points extérieurs et appliquer les formules 8.19 et 8.20 en chaque point intérieur, en tenant compte des relations de périodicité, jusqu'à ce que la différence dans le potentiel entre deux itérations successives soit en dessous d'un certain seuil. Les conditions limites à prendre ici sont d'une part les potentiels que l'on applique au support métallique ($z = 0$) et à la grille ($z = D$). Nous poserons d'autre part comme condition limite aux points en $\rho = N_\rho \Delta \rho$ que le potentiel varie linéairement de $z = 0$ à $z = D$. Cette condition influence de façon négligeable les valeurs calculées au centre de la région d'intérêt si $\rho = N_\rho \Delta \rho$ est assez grand.

Les formules 8.19 et 8.20 peuvent être appliquées de la manière suggérée par les notations "new" et "old" en définissant les valeurs au cours de chaque itération uniquement à partir des valeurs obtenues au cours de l'itération précédente. On peut également utiliser les valeurs obtenues au cours de la même itération, ce qui évite de stocker deux ensembles de valeurs.

Une façon efficace d'accélérer la convergence de la méthode consiste à amplifier la différence entre la valeur calculée par les expressions 8.19 ou 8.20 et l'ancienne valeur. On calcule alors les nouvelles valeurs de la façon suivante :

$$\Phi_{i,j,k}^{new-acc} = \Phi_{i,j,k}^{old} + \alpha \left(\Phi_{i,j,k}^{new} - \Phi_{i,j,k}^{old} \right) \quad (8.25)$$

Le paramètre α doit être déterminé une seule fois. Le cas particulier $\alpha = 1$ correspond à la méthode classique (dite de relaxation). On parle de sur-relaxation lorsque $\alpha > 1$. Les essais montrent qu'un optimum dans le choix de α existe. Cet optimum dépend de la précision relative que l'on souhaite obtenir et du système de coordonnées utilisé pour résoudre le problème. Un bon choix de α peut réduire le nombre d'itérations nécessaires à la convergence d'un facteur 10. Des valeurs trop grandes font diverger le calcul. Nous avons utilisé une valeur de $\alpha=1.45$.

Il est possible de tester la qualité du calcul en comparant les résultats fournis avec ceux obtenus de manière analytique. Un test rapide consiste à comparer la solution en $\rho = R \simeq \frac{1}{2} N_\rho \Delta \rho$ (où en général la pointe et l'objet influencent de façon négligeable l'énergie potentielle) avec le résultat analytique correspondant à la surface métallique seule.

Le lecteur trouvera au chapitre 19 de la référence [99] des méthodes alternatives pour traiter les équations 8.19 et 8.20. Il est par exemple possible de formuler le problème sous une forme matricielle. La matrice possède autant de lignes et de colonnes qu'il y a de points où l'énergie potentielle doit être calculée. Elle est cependant pratiquement vide puisque le système à résoudre présente 9 bandes (1 pour chaque point, 6 pour ses voisins et 2 à cause des relations de périodicité selon ϕ). Ces bandes se répartissent dans la matrice sur une distance égale à deux fois le nombre de points dans chaque plan horizontal. Pour un nombre de points élevé, les ressources nécessaires à ces traitements alternatifs deviennent

vite importantes, par rapport à la méthode présentée ici qui demande seulement l'espace nécessaire au stockage des données.

Le calcul de l'énergie potentielle, une fois le potentiel électrique calculé, se fait simplement par : $V(\mathbf{r}) = q\Phi(\mathbf{r}) - q\Phi(\dots, D)$, avec $q = -e$ la charge de l'électron. Nous avons ajouté la constante $-q\Phi(\dots, D)$ pour respecter notre convention selon laquelle l'énergie potentielle est nulle pour $z \geq D$.

8.3.4 Extension pour le calcul du potentiel image

Lorsque nous considérons la présence de l'électron dans la région II, l'équation à résoudre est la suivante :

$$\nabla \cdot [\epsilon \nabla \Phi_{tot}] = -q\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_q) \quad (8.26)$$

Nous pouvons décomposer Φ_{tot} comme $\Phi_{tot} = \Phi_{bias} + \Phi_q + \Phi_{pol}$, où Φ_{bias} est la partie due à la tension électrique uniquement, Φ_q le potentiel dû à la présence de la charge q en \mathbf{r}_q et Φ_{pol} la réponse du métal à la présence de Φ_q . L'équation précédente peut alors être scindée en trois équations associées chacune à une des composantes de Φ_{tot} et devant vérifier des conditions limites spécifiques à leur signification. On peut ainsi écrire :

$$\nabla \cdot [\epsilon \nabla \Phi_{bias}] = 0 \quad (8.27)$$

$$\nabla \cdot [\epsilon \nabla \Phi_q] = -q\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_q) \quad (8.28)$$

$$\nabla \cdot [\epsilon \nabla \Phi_{pol}] = 0 \quad (8.29)$$

La première équation à résoudre est celle qui fournit le potentiel résultant de la tension d'extraction. Les conditions limites sont donc le potentiel appliqué au métal, à la grille et un comportement supposé linéaire sur les côtés à grande distance. Cette équation avec ces conditions limites ont été considérées précédemment.

La deuxième équation fournit le potentiel dû à la seule présence d'une charge q en \mathbf{r}_q . Cette équation se résout analytiquement et fournit le résultat suivant, tant que nous restons dans le vide ($\epsilon(\mathbf{r}) = \epsilon_0$) :

$$\Phi_q(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{q}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_q|} \quad (8.30)$$

Enfin, la dernière équation est celle à résoudre pour calculer la réponse du métal à la présence de l'électron. Elle est identique à la première, de sorte que les mêmes techniques peuvent être employées. Seules les conditions frontières changent. Nous savons que le métal réagit de manière à annuler le champ dû à l'électron. Cela signifie qu'à la surface du métal et de tout objet dans la région II supposé métallique : $\Phi_{pol}(\mathbf{r}) = -\Phi_q(\mathbf{r})$. Il s'agit d'une partie des conditions limites. Nous les complétons en imposant à Φ_{pol} de s'annuler en $z = D$ et en $\rho = N_\rho \Delta\rho$. Etant donné que les conditions limites changent pour chaque nouvelle valeur de \mathbf{r}_q , il est nécessaire de refaire les calculs de relaxation un très grand nombre de fois. Par ailleurs, toute symétrie de rotation dans ces calculs intermédiaires est brisée par la présence de la charge q .

Finalement, l'énergie potentielle ressentie par la charge q en \mathbf{r}_q est obtenue à partir de :

$$V(\mathbf{r}_q) = q\Phi_{bias}(\mathbf{r}_q) + \frac{1}{2}q\Phi_{pol}(\mathbf{r}_q) - q\Phi_{bias}(\dots, D) \quad (8.31)$$

où nous avons mis un facteur $1/2$ pour la partie induite par l'électron et ajouté une constante pour assurer que l'énergie potentielle s'annule lorsque $z \geq D$.

Afin que ce potentiel s'accorde avec celui dans le métal, il est nécessaire de le tronquer lorsqu'il descend en dessous de $V_{met} = eV - W - E_F$ dans le voisinage immédiat du métal. Cela se fait en imposant à la région adjacente au plan $z = 0$ et caractérisée par des valeurs (initiales) d'énergie potentielle inférieures à V_{met} cette nouvelle valeur de V_{met} . On impose également cette valeur dans la pointe et on diminue celles calculées dans la fibre de 4.82 eV.

8.3.5 Possibilités d'amélioration

La méthode que nous avons présentée suppose une grille de points dont l'écart suivant ρ , ϕ et z ne dépend pas de la position dans l'espace. Il est possible d'adapter la méthode pour traiter des grilles caractérisées par des valeurs de $\Delta\rho$, $\Delta\phi$ et Δz variables dans l'espace. Il suffit pour cela de remplacer les formules utilisées pour évaluer les dérivées premières et secondes par des expressions appropriées à ce type de grille et données à la référence [77].

Il est par ailleurs possible de réaliser un premier calcul de relaxation sur une grille large et de faire ensuite un calcul sur une grille plus fine (associée éventuellement à une région particulière de l'espace) en définissant les conditions limites à partir des résultats obtenus lors du premier calcul. Cette méthode est intéressante lorsque les régions importantes de la distribution d'énergie potentielle (essentiellement autour de la pointe et de l'objet) occupent une petite partie de l'espace entre le support métallique et la grille.

Les itérations nécessaires à l'application de la méthode peuvent être répétées jusqu'à ce que la convergence soit jugée satisfaisante, c'est-à-dire lorsque la différence entre les valeurs obtenues entre deux itérations successives se situe en dessous d'un certain seuil. Les valeurs calculées vérifient alors la version numérique des équations de l'électrostatique. Leur aptitude à représenter la solution physique dépend de la qualité des expressions numériques utilisées pour représenter les dérivées premières et secondes. Les expressions utilisées conviennent à condition que la grille de discrétisation soit suffisamment fine (par rapport à l'échelle de longueur sur laquelle l'énergie potentielle s'écarte de manière significative d'un comportement linéaire).

Les techniques par éléments finis offrent une plus grande liberté dans le choix de la grille de discrétisation. Elles dépendent en général elles aussi d'expressions numériques pour l'évaluation des dérivées premières et secondes et requièrent le choix de fonctions de base pour représenter la solution. Par rapport à ces techniques plus sophistiquées, la méthode de relaxation offre surtout l'avantage de la simplicité, tout en fournissant des solutions de précision suffisante pour les situations à considérer ici.

8.4 Modes Fraunhofer - Fresnel

Les modèles présentés aux chapitres 1 et 2 nous ont fourni une expression simple pour le pouvoir de résolution ainsi qu'une condition permettant de déterminer si la figure de diffraction sera de type Fresnel ou Fraunhofer.

Pour rappel, la limite de résolution due au phénomène de diffraction est donnée par:

$$\Delta_d = \frac{1}{2}\sqrt{\lambda d} \quad (8.32)$$

où λ est la longueur d'onde électronique (au niveau de l'objet) et d la distance entre l'objet et le point d'où semble provenir l'onde électronique.

Lorsque la section caractéristique a de l'objet observé vérifie la relation $a < 2\Delta_d$, l'onde incidente apparaît plane par rapport aux dimensions de l'objet et la diffraction est de type Fraunhofer. Lorsque $a > 2\Delta_d$, l'onde incidente apparaît sphérique et la diffraction est de type Fresnel, produisant une image corrélée avec une projection géométrique.

Ces conclusions sont celles obtenues en réduisant l'objet à un masque en 2 dimensions. Dans ce modèle fortement simplifié, les effets dûs à la distribution spatiale de l'objet ne sont pas considérés. Notre technique de simulation permet de remédier à cette situation et de vérifier la validité des critères obtenus avec ces modèles.

Nous allons réaliser une série de simulations en considérant une fibre de carbone de 1 nm de côté. Elle sera soutenue par une grille d'extraction disposée à une distance de 3.5 nm du support métallique de la pointe. Cette dernière aura une hauteur de 1 nm. Nous augmenterons progressivement la tension. Ceci aura pour effet de réduire progressivement la longueur d'onde λ et d'explorer les différents régimes de diffraction.

8.4.1 Mode Fraunhofer

Commençons ces simulations en considérant une tension d'extraction de 10 V. Nous avons calculé l'énergie potentielle en donnant à la fibre une constante diélectrique $\epsilon_r=1$, afin d'éviter dans un premier temps tout effet dû à la polarisation. Dans ces simulations où la fibre ne se polarise pas, nous la représentons en imposant une valeur d'énergie potentielle de -4.82 eV dans toute son étendue. Nous n'avons pas inclus le potentiel image afin d'accentuer le caractère ponctuel de la pointe. Le potentiel électrique et l'énergie potentielle correspondant à cette situation sont représentés par une coupe dans le plan yz à la figure 8.2.

La longueur d'onde sur la grille (où l'énergie cinétique prend la valeur de l'énergie totale) vaut ici $\lambda=0.51$ nm. La distance pointe-objet moyenne est $d=2$ nm et la limite de résolution $\Delta_d = 0.51$ nm. Nous nous situons aux limites du régime caractérisé par la condition $a < 2\Delta_d$ et la figure devrait être de type Fraunhofer.

Les densités de courant calculées sur la grille d'extraction et sur l'écran à 10 cm sont représentées à la figure 8.3. Nous avons représenté pour comparaison les densités de courant que l'on obtiendrait sans la fibre à la figure 8.4. La densité de courant locale (à gauche) se répartit dans la partie centrale de la fibre, à l'intérieur de la portion éclairée par le

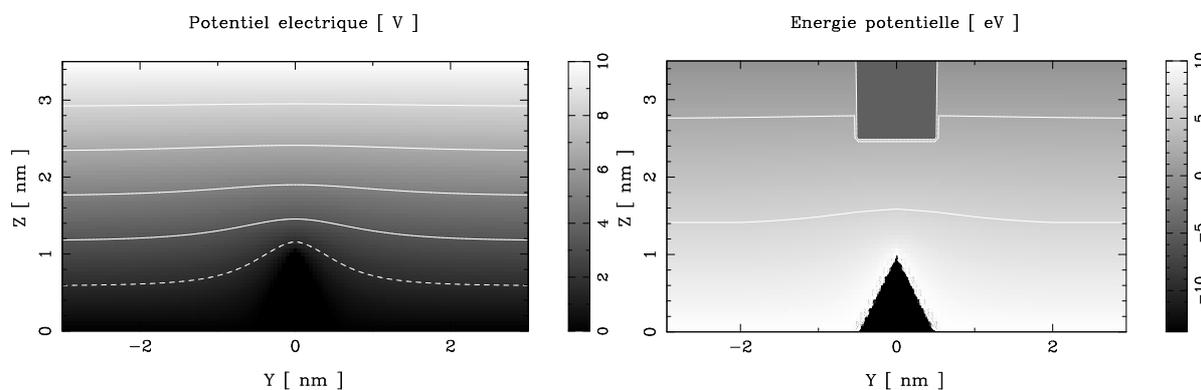


FIG. 8.2 – *A gauche : Potentiel électrique dans le plan yz . Une tension d'extraction de 10 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. A droite : Energie potentielle associée lorsque la grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté.*

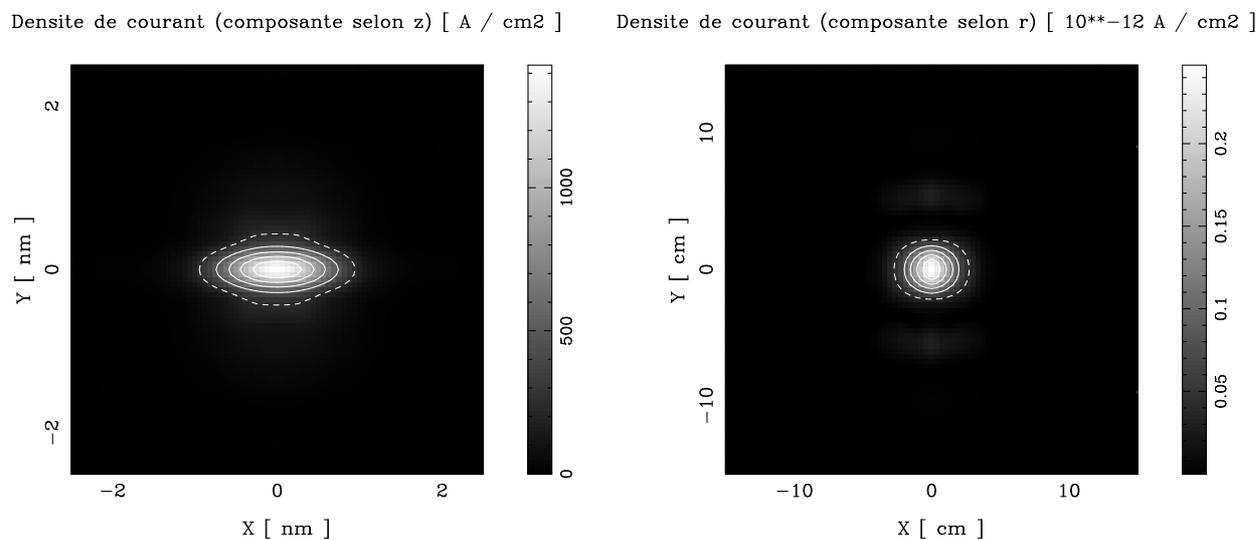


FIG. 8.3 – *Densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.*

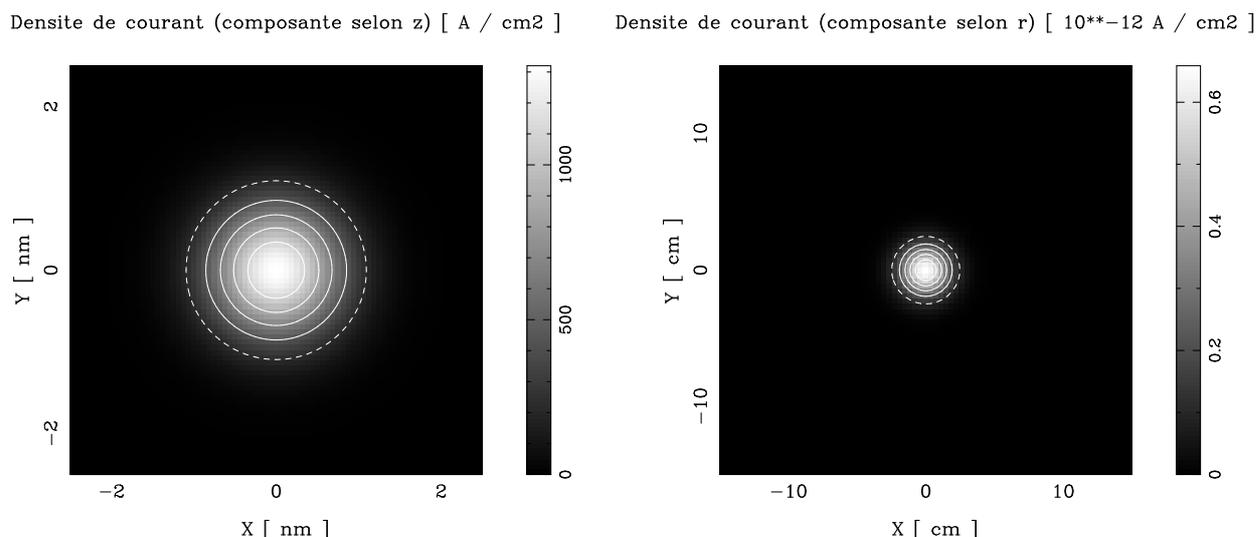


FIG. 8.4 – Densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. La grille ne supporte aucun objet. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.

faisceau électronique. La comparaison avec le résultat sans fibre permet de constater que le puits de potentiel associé à celle-ci suffit déjà à attirer de manière importante les électrons extraits de la pointe. La figure de diffraction à grande distance (à droite) est à première vue de type Fraunhofer. Elle correspond à la transformée de Fourier de la densité de courant locale. Conformément à ce qui est attendu, cette figure présente une dilatation maximale dans la direction y qui est celle pour laquelle l'extension de la densité de courant locale est minimale.

Un examen plus attentif révèle que la figure de diffraction à grande distance n'est pas seulement reliée aux caractéristiques de la fibre mais dépend aussi du faisceau en dehors de celle-ci. Les électrons qui correspondent à cette partie du faisceau ont en effet la possibilité d'interférer avec ceux qui passent à travers la fibre et ainsi de modifier la figure de diffraction lointaine.

Pour mettre en évidence cette influence, nous avons comparé à la figure 8.5 une coupe verticale de la densité de courant à grande distance avec celle obtenue lorsque l'on introduit une partie imaginaire de -4 eV dans l'énergie potentielle sur le côté de la fibre de manière à éliminer les électrons qui passent à l'extérieur de celle-ci. La partie de droite présente un résultat obtenu à partir de l'expression $\frac{1}{R^2} \left(\frac{\sin \beta}{\beta} \right)^2$, où $\beta = \frac{\pi a \sin \theta}{\lambda}$. Cette dernière expression donne l'intensité pour une diffraction de type Fraunhofer à travers une ouverture a . Nous avons pris $a=1$ nm.

On constate que le faisceau extérieur à la fibre tend à moduler la figure de diffraction que l'on aurait si tous les électrons passaient à travers la fibre. Le résultat obtenu en supprimant l'influence du faisceau extérieur est en bon accord avec celui que l'on obtient à

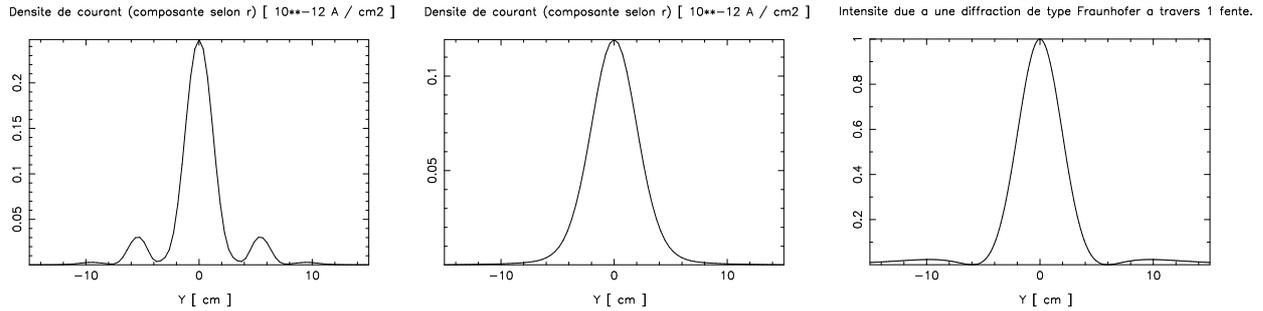


FIG. 8.5 – *A gauche* : coupe selon y de la densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté. Au centre : le faisceau extérieur à la fibre est supprimé grâce à une partie imaginaire dans le potentiel. *A droite* : intensité normalisée pour une diffraction de Fraunhofer à travers une ouverture de 1 nm.

partir d'un modèle de fente simple. Les différences (faibles) peuvent s'attribuer au fait que le modèle de fente suppose une onde incidente plane d'amplitude *uniforme* sur l'ouverture. Cette uniformité n'apparaît pas dans le résultat de nos simulations. La perte d'intensité constatée entre la figure de gauche et la figure centrale est due à l'absorption des électrons à côté de la fibre. Elle est relativement faible puisque la plupart des électrons passent à travers la fibre, où l'absorption n'a pas été introduite.

Les figures de type Fraunhofer tendent à s'élargir lorsque la largeur de la fente (l'objet) est réduite ou lorsque la longueur d'onde augmente. Etant donné que les phénomènes d'interférence avec le faisceau extérieur compliquent l'interprétation des résultats et qu'ils s'accroissent en diminuant les dimensions de la fibre, nous avons choisi d'augmenter la longueur d'onde en diminuant la tension à 6 V. L'énergie potentielle correspondant à cette situation est représentée par une coupe dans le plan yz à la figure 8.6.

Etant donné que la longueur d'onde est augmentée, la condition $a < 2\Delta_d$ est toujours vérifiée et la figure de diffraction à grande distance doit être du type Fraunhofer. Les densités de courant calculées sur la grille d'extraction et sur l'écran à 10 cm sont représentées à la figure 8.7. La perte d'intensité par rapport à la simulation précédente avec 10 V est due au fait que les électrons restent évanescents sur une plus grande distance avant de sortir de la pointe. Le nombre d'électrons parvenant à traverser la barrière de potentiel est donc réduit.

Conformément à ce qui est attendu, la figure de diffraction à grande distance est agrandie. Nous pouvons ici aussi comparer le résultat obtenu dans la direction y avec celui obtenu par un modèle de fente simple. C'est ce que nous avons fait à la figure 8.8. L'accord rencontré dans ce cas-ci est excellent, sans qu'il n'ait été nécessaire de retirer artificiellement la contribution du faisceau extérieur à la fibre. Ce meilleur accord est dû au fait que les électrons sont plus influencés par la fibre, étant donné que leur énergie (et donc

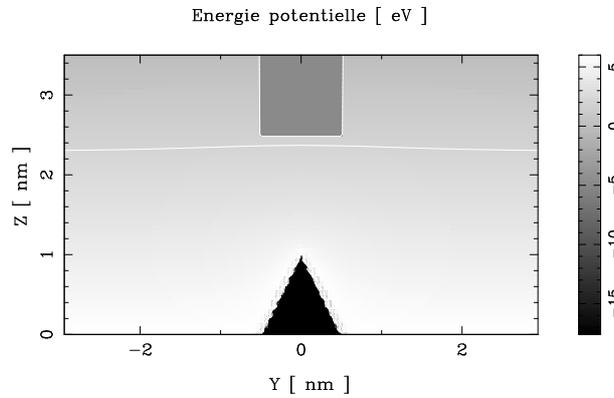


FIG. 8.6 – *Energie potentielle dans le plan yz . Une tension d'extraction de 6 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté.*

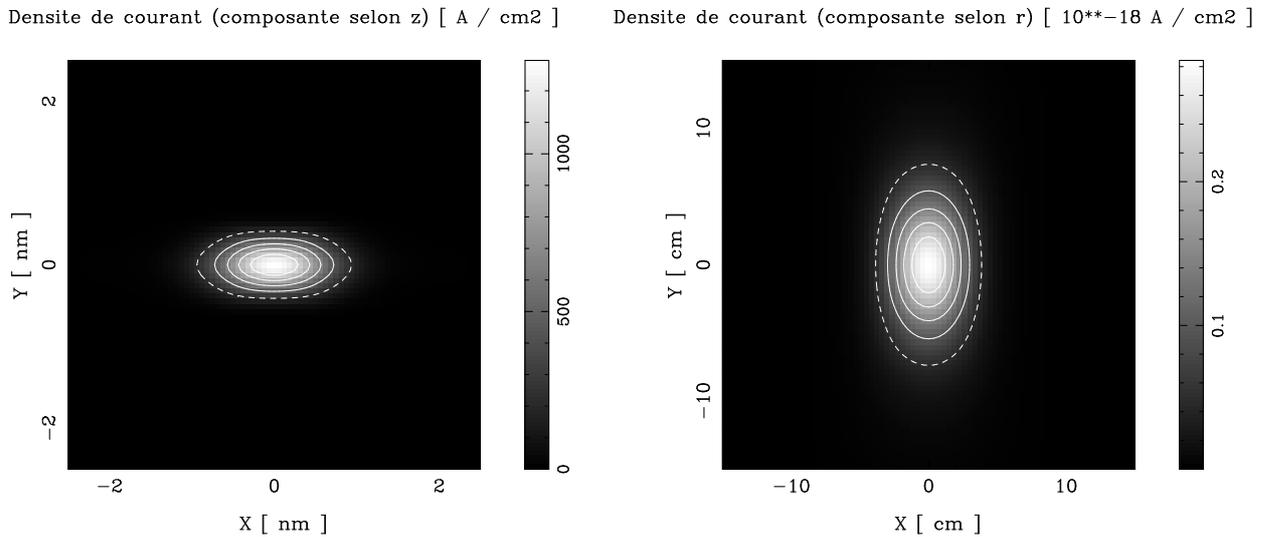


FIG. 8.7 – *Densité de courant obtenue par application d'une tension de 6 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.*

leur vitesse) est réduite. Comme illustré à la figure 8.9, la partie extérieure du faisceau est moins importante, sans qu'il ne soit nécessaire de forcer ce comportement.

Densité de courant (composante selon r) [$10^{**}-18$ A / cm^2] Intensité due a une diffraction de type Fraunhofer a travers 1 fente.

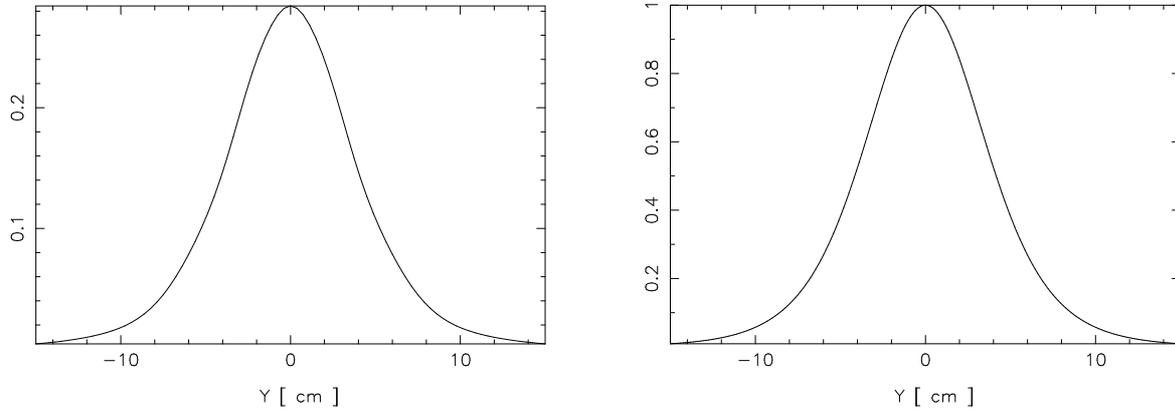


FIG. 8.8 – *A gauche : coupe selon y de la densité de courant obtenue à 10 cm par application d'une tension de 6 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté. A droite : intensité normalisée pour une diffraction de Fraunhofer à travers une ouverture de 1 nm.*

Enfin, nous avons calculé les images dues uniquement à la partie du faisceau qui passe à côté de la fibre. Afin d'éliminer la contribution de la partie passant à travers la fibre, nous avons introduit dans son énergie potentielle une partie imaginaire de -4 eV.

La première simulation de cette série reprend la situation présentée à la figure 8.2 (fibre suivant x de 1 nm observée sous une tension de 10 V). Les densités de courant calculées sur la grille d'extraction et sur l'écran à 10 cm sont représentées à la figure 8.10. La diminution de l'intensité par rapport à la simulation sans absorption est plus marquée que lorsque l'absorption est introduite à l'extérieur de la fibre (cf. figure 8.5), puisqu'elle se trouve maintenant dans la région où devrait passer la plus grande partie du faisceau.

L'absorption de la fibre est visible dans la partie gauche de la figure. Nous avons représenté une section verticale de la partie droite à la figure 8.11 et comparé celle-ci avec le résultat obtenu à partir de l'expression $\frac{1}{R^2} \left(\frac{\sin \beta}{\beta} \right)^2 \left(\frac{\sin N\alpha}{\sin \alpha} \right)^2$, où $\alpha = \frac{\pi d \sin \theta}{\lambda}$ et $\beta = \frac{\pi a \sin \theta}{\lambda}$. Cette dernière expression fournit l'intensité correspondant à une diffraction de type Fraunhofer à travers N fentes d'ouverture a dont les centres sont séparés par une distance d . Nous avons choisi $N=2$ fentes de $a=0.6$ nm avec $d=2$ nm.

Nous constatons donc un assez bon accord entre les résultats de nos simulations et une interférence de Young correspondant à deux fentes dont les paramètres sont déterminés par la densité de courant locale. Les différences (plus importantes) se justifient à nouveau par le fait que le modèle d'interférence de Young suppose deux fentes éclairées par des ondes planes d'amplitude uniforme. Cette hypothèse n'est vérifiée que très approximativement par la densité de courant sur la grille.

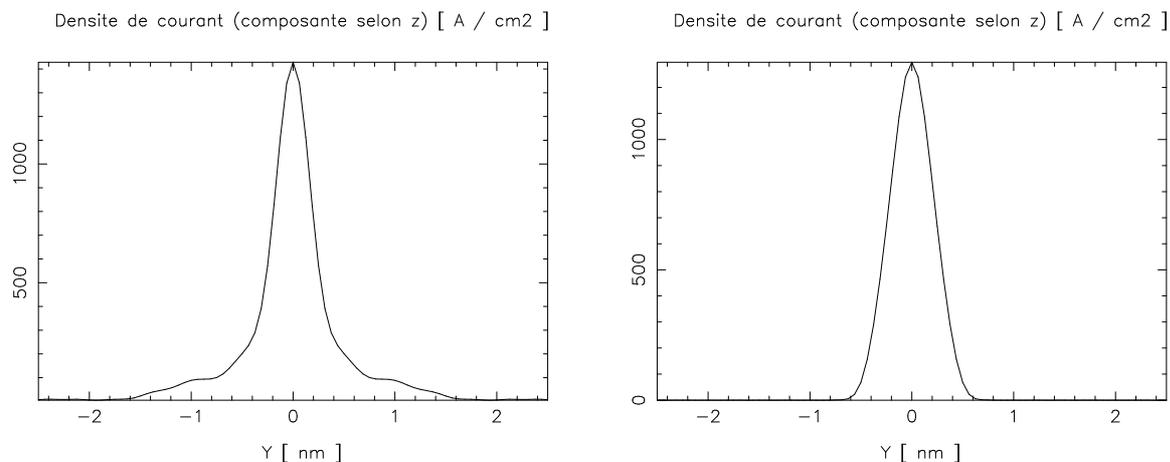


FIG. 8.9 – Coupes selon y de la densité de courant (composante selon z) obtenue sur la grille d'extraction par application d'une tension respectivement de 10 V (à gauche) et 6 V (à droite) entre cette grille et le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut. L'écart entre le support métallique et la grille est de 3.5 nm. Elle supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté.

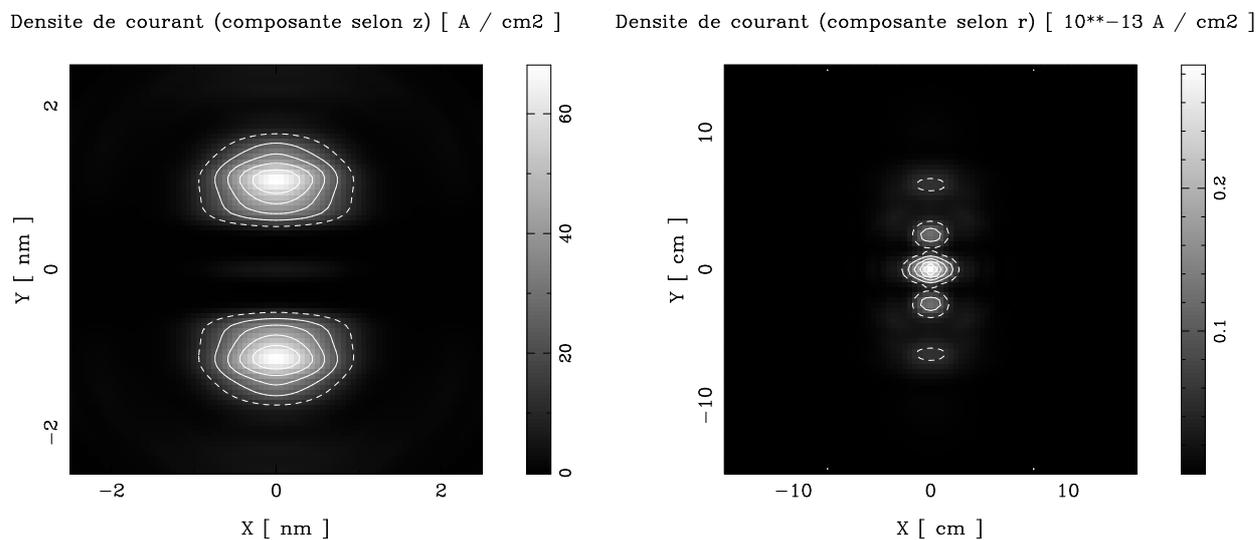


FIG. 8.10 – Densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée absorbante de 1 nm de côté. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.

Densité de courant (composante selon r) [10^{13} A / cm²]

Intensité due a une diffraction de type Fraunhofer a travers 2 fentes.

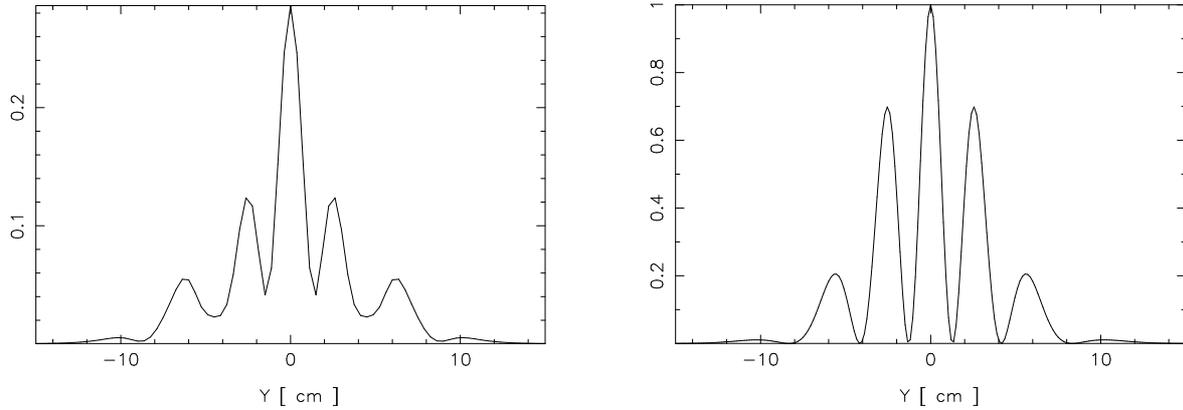


FIG. 8.11 – A gauche : coupe selon y de la densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée absorbante de 1 nm de côté. A droite : intensité normalisée pour une diffraction de Fraunhofer à travers deux ouvertures de 0.6 nm dont les centres sont écartés de 2 nm.

Afin d'illustrer le caractère Fraunhofer de ces résultats, nous avons réalisé une autre simulation en réduisant la section de la fibre à 0.5 nm. L'énergie potentielle et les résultats du calcul de diffusion sont représentés aux figures 8.12 et 8.13.

Le résultat est a priori surprenant puisqu'une réduction de la section de la fibre s'accompagne d'une contraction de la figure de diffraction. Il s'explique cependant par le fait que la figure de diffraction est due aux électrons qui passent à côté de la fibre. Réduire la section de cette dernière a pour effet d'élargir l'espace attribué au faisceau extérieur (a prend une valeur de 0.725 nm au lieu de 0.6 nm) et à rapprocher les centres des deux parties du faisceau (d prend une valeur de 1.6 nm au lieu de 2 nm). L'augmentation de a s'accompagne d'une contraction de l'enveloppe $\frac{1}{R^2} \left(\frac{\sin \beta}{\beta} \right)^2$ de la figure, tandis que la réduction de d entraîne une dilatation de la modulation $\left(\frac{\sin N\alpha}{\sin \alpha} \right)^2$, où N reste égal à 2. Une coupe verticale de la densité de courant sur l'écran ainsi qu'une simulation de la diffraction à travers deux fentes de paramètres $a=0.725$ nm et $d=1.6$ nm sont représentées à la figure 8.14.

Nous avons donc montré d'une part que les figures obtenues en observant la fibre de carbone sous une tension de 10 V sont dues à la contribution du faisceau passant à l'intérieur de la fibre et à celle du faisceau passant à l'extérieur. Nous avons démontré d'autre part que chacune de ces contributions réalise une diffraction de type Fraunhofer. Il est intéressant de revoir simultanément le résultat des simulations où les deux contributions sont présentes, celui dû uniquement à la contribution du faisceau passant par l'intérieur de la fibre et enfin celui dû uniquement à la contribution du faisceau passant à l'extérieur de la fibre. Nous avons rassemblé ces trois résultats à la figure 8.15.

On constate une bonne concordance dans la position des pics dus à chaque contribution.

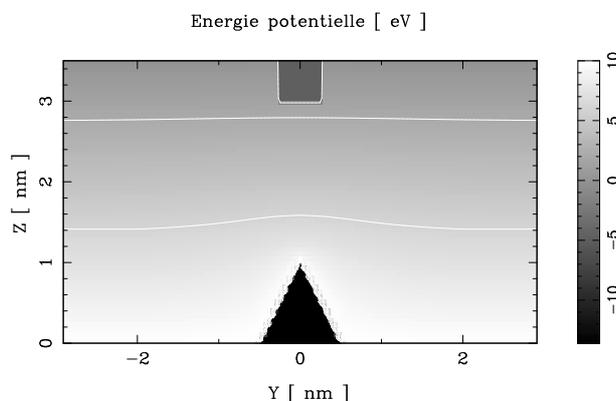


FIG. 8.12 – *Energie potentielle dans le plan yz . Une tension d'extraction de 10 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée absorbante de 0.5 nm de côté.*

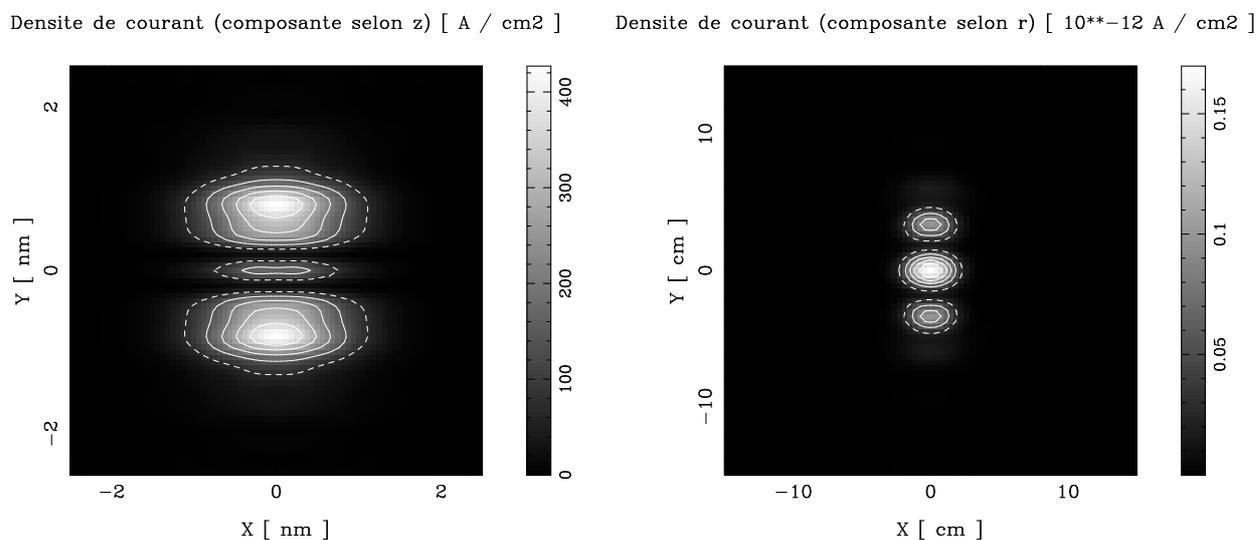


FIG. 8.13 – *Densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée absorbante de 0.5 nm de côté. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.*

Densité de courant (composante selon r) [$10^{**}-12$ A / cm 2] Intensité due a une diffraction de type Fraunhofer a travers 2 fentes.

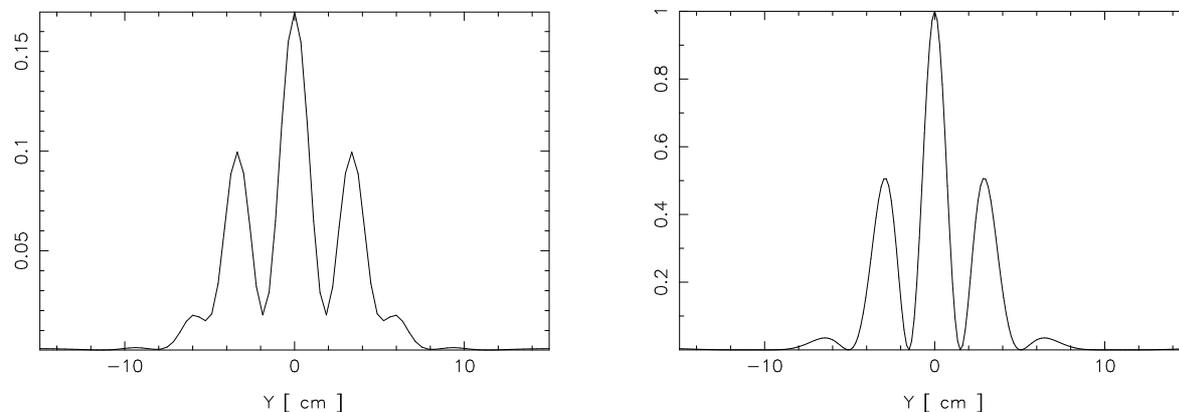


FIG. 8.14 – *A gauche : coupe selon y de la densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée absorbante de 0.5 nm de côté. A droite : intensité normalisée pour une diffraction de Fraunhofer à travers deux ouvertures de 0.725 nm dont les centres sont écartés de 1.6 nm.*

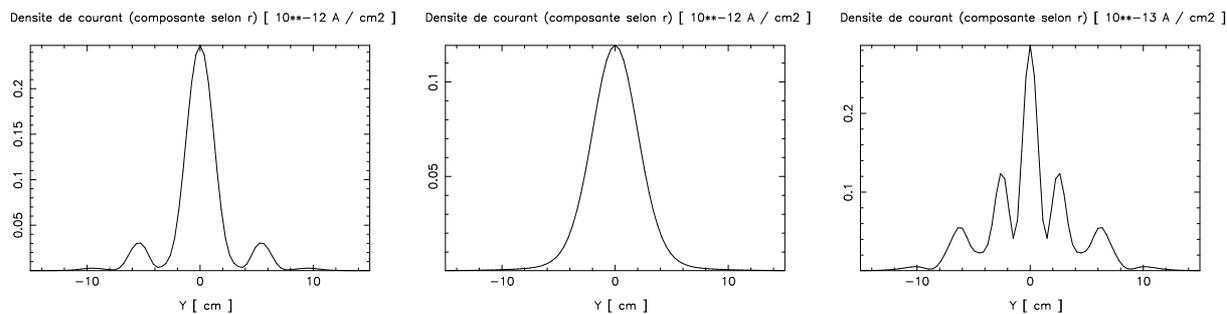


FIG. 8.15 – *A gauche : coupe selon y de la densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté. Au centre : le faisceau extérieur à la fibre est supprimé grâce à une partie imaginaire dans le potentiel. A droite : le faisceau passant à l'intérieur de la fibre est supprimé grâce à une partie imaginaire dans le potentiel.*

Les pics latéraux de la figure de gauche se retrouvent dans la figure de droite. La diminution progressive de l'intensité (de gauche à droite) est due à l'introduction de l'absorption dans des régions de l'espace occupées par une partie de plus en plus importante du faisceau. Si nous renormalisons les deux figures où l'absorption a été introduite, de manière à mettre au même niveau les valeurs de la densité de courant locale associée à chaque figure, nous trouvons également une bonne concordance entre l'amplitude des pics latéraux de la figure de gauche et celle de leurs équivalents dans la figure de droite. Cette concordance entre pics est réalisée là où une seule des deux contributions prend des valeurs significatives tandis que l'autre est pratiquement nulle. Il n'en est pas de même pour les autres pics de la figure de droite qui disparaissent en interférant avec le faisceau passant à l'intérieur de la fibre.

Ces quelques simulations nous ont donc montré la possibilité d'obtenir des figures de types Fraunhofer dans des conditions en bon accord avec celles prédites par des modèles simples. L'explication des figures obtenues est compliquée par l'interférence entre les électrons passant à travers la fibre et ceux passant à l'extérieur. Les résultats présentés montrent qu'ils s'expliquent très bien à partir de modèles élémentaires à 1 ou 2 fentes. Ces modèles élémentaires reposent sur l'hypothèse d'une onde incidente plane, c'est-à-dire une hypothèse propre à une diffraction de type Fraunhofer.

Il semble dans les expériences que le faisceau extérieur influence de façon moins critique la figure de diffraction. Une première explication de cette observation fait intervenir l'effet de sucking-in (attraction du faisceau électronique par la fibre à cause du champ électrique qu'elle exerce à l'extérieur). Cet effet tend à accroître le courant passant par la fibre et à diminuer l'importance du courant extérieur. Une deuxième explication, qui ne s'applique qu'aux fibres opaques, repose sur le principe de Babinet. Selon ce dernier, une bande opaque dans un fond transparent fournit la même figure de diffraction qu'une bande transparente dans un fond opaque (ce principe ne s'applique pas à l'image de la source).

8.4.2 Mode Fresnel

Afin de passer à un mode de diffraction de type Fresnel, nous allons reconsidérer notre première simulation (fibre non polarisable de 1 nm de côté) et monter la tension d'extraction de 10 V à 25 V. La distribution de l'énergie potentielle ainsi que les densités de courant locales et à grande distance correspondantes sont représentées aux figures 8.16 et 8.17.

La densité de courant locale se présente sous forme de deux bandes parallèles situées dans la partie de la fibre qui est éclairée par le faisceau électronique. Ces bandes sont attribuées aux ondes stationnaires qui peuvent s'établir à l'intérieur de la fibre. Les possibilités d'ondes stationnaires sont d'autant plus nombreuses que la longueur d'onde est petite par rapport aux dimensions de la fibre. Leur nombre augmente donc avec la tension et les dimensions de la fibre. L'utilité d'une simulation tridimensionnelle apparaît bien ici puisque ces ondes stationnaires ne peuvent être reproduites par un modèle qui réduit l'objet à un plan.

La figure de diffraction sur l'écran présente des caractéristiques différentes de celles rencontrées précédemment. Elle est constituée en effet de franges parallèles à la longueur

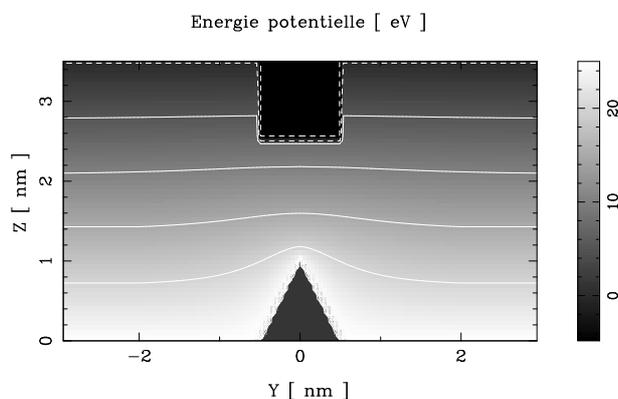


FIG. 8.16 – *Energie potentielle dans le plan yz. Une tension d'extraction de 25 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté.*

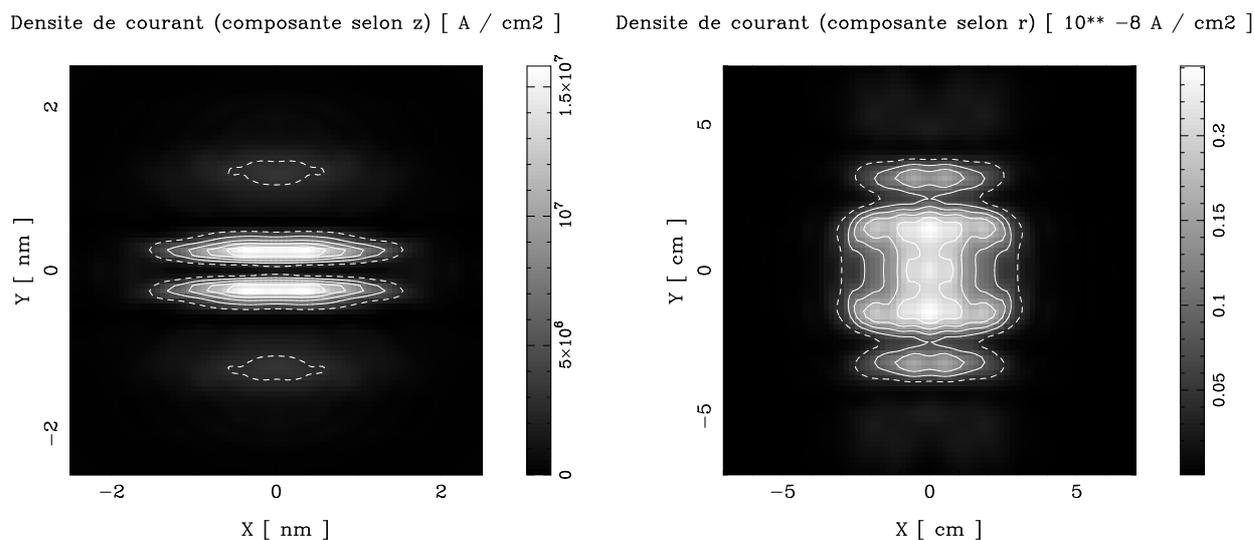


FIG. 8.17 – *Densité de courant obtenue par application d'une tension de 25 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.*

de la fibre. Ces franges ont leur extension maximale dans la direction suivant laquelle l'objet présente lui aussi son maximum d'extension. Cette caractéristique est incompatible avec une diffraction de type Fraunhofer. Cette nouvelle figure est du type Fresnel et fournit une première image à grande distance de la portion de fibre éclairée par le faisceau électronique. Cette image présente certaines variations d'intensité dans la partie centrale qui ne peuvent être dues qu'au phénomène ondulatoire produisant cette image, puisque l'objet lui-même est homogène.

L'apparition d'une figure de type Fresnel est en accord avec le critère $a > 2\Delta_d$ établi par un modèle plus simple. Avec les valeurs propres à cette simulation, nous vérifions bien l'inégalité $1 > 2 * 0.36$.

Pour confirmer le caractère Fresnel de la figure obtenue, nous pouvons observer les changements dus à une modification de la taille de la fibre ou de la longueur d'onde, à condition de respecter la condition $a > 2\Delta_d$. Nous avons pour cela gardé le même objet et monté la tension de 25 V à 40 V. Cet accroissement de la tension entraîne une diminution de la longueur d'onde et donc de la valeur de Δ_d . L'énergie potentielle correspondant à cette situation est représentée à la figure 8.18 et la densité de courant à la figure 8.19.

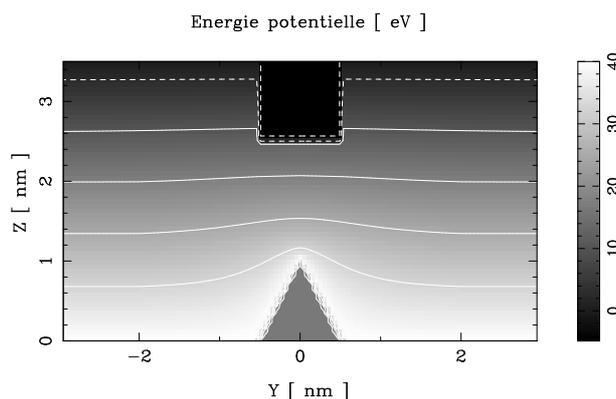


FIG. 8.18 – *Energie potentielle dans le plan yz. Une tension d'extraction de 40 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté.*

Les deux bandes dans la densité de courant locale sont plus écartées que dans la simulation précédente. Une troisième bande tend à apparaître au centre. Ces observations sont dues à la diminution de la longueur d'onde. La figure de diffraction à l'écran ne présente pas de contraction particulière, comme on devrait l'observer si la diffraction était de type Fraunhofer. La partie brillante centrale correspond à ce que l'on pourrait désigner par "faisceau non diffracté". On la retrouve en effet dans la densité de courant obtenue sans fibre et présentée à la figure 8.20. Avec une tension d'accélération de 40 V, les électrons sont en effet moins affectés par leur passage à travers la fibre qu'ils ne l'étaient avec une tension de 25 V. La figure tend donc vers celle qu'on aurait sans la fibre. Cette interprétation est

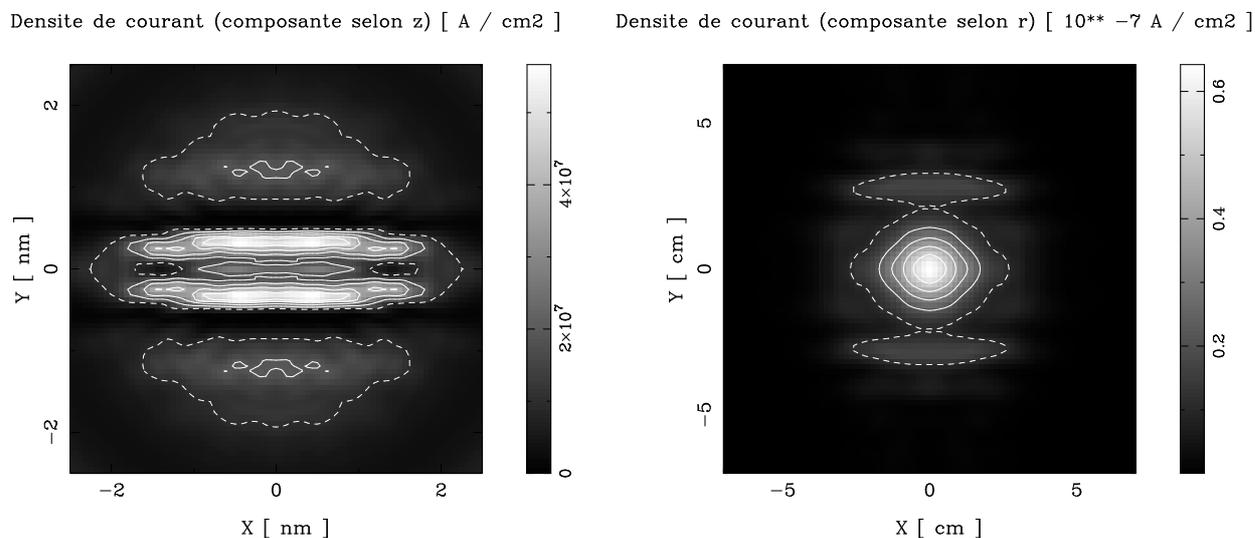


FIG. 8.19 – Densité de courant obtenue par application d'une tension de 40 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.

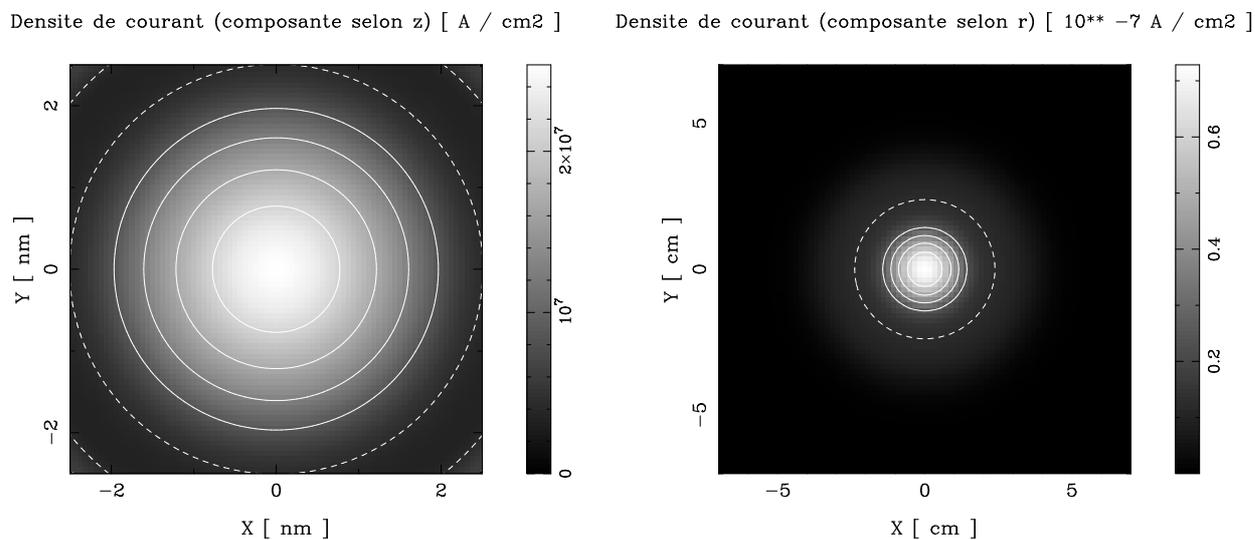


FIG. 8.20 – Densité de courant obtenue par application d'une tension de 40 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. La grille ne supporte pas d'objet. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.

confirmée par la densité de courant locale qui présente des contributions plus importantes en dehors de la fibre. Notons qu'à ce stade nous n'avons pas encore tenu compte de la polarisation et de l'absorption dans la fibre. Ces deux facteurs tendent en effet à réduire le phénomène constaté ici.

Si nous supposons que le point de projection virtuel se situe au sommet de la pointe et que nous considérons la distance moyenne entre ce point et la fibre (2 nm), le bord de la fibre (qui se situe à 0.5 nm du centre) devrait se trouver projeté à 2.5 cm de l'axe x sur l'écran. Les simulations montrent une bande sombre sur ce lieu de projection, en accord avec les interprétations proposées dans la littérature et la figure 1.8 du chapitre 1. On constate par ailleurs un rétrécissement des franges qui entourent cette bande sombre lorsque la tension augmente. Ce rétrécissement trouve probablement son origine dans la diminution de la longueur d'onde.

8.5 Effet de la polarisation - Sucking-in

Nous venons de montrer la possibilité d'obtenir des images de type Fraunhofer ou Fresnel selon les conditions d'observation. Nous allons maintenant nous intéresser à l'influence des caractéristiques de la fibre sur la figure de diffraction, lorsque nous sommes en mode Fresnel.

Nous avons pour commencer repris la situation illustrée à la figure 8.16 (observation d'une fibre de 1 nm de côté sous une tension de 25 V) et introduit dans la fibre une constante diélectrique ϵ_r de 16.5 afin de simuler le phénomène de polarisation.

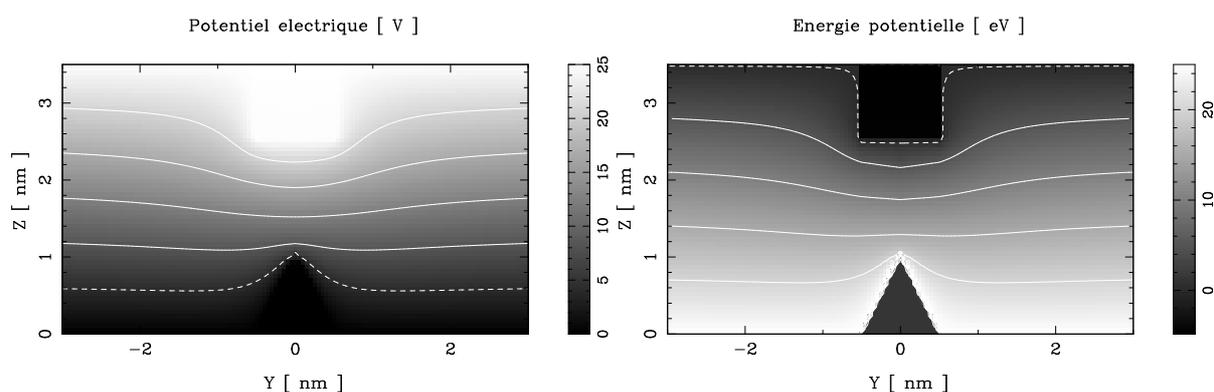


FIG. 8.21 – *A gauche : Potentiel électrique dans le plan yz . Une tension d'extraction de 25 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre de 1 nm de côté caractérisée par une constante diélectrique de 16.5. A droite : Energie potentielle associée*

Le potentiel électrique correspondant à la situation envisagée et l'énergie potentielle associée sont illustrés à la figure 8.21. La polarisation de la fibre est responsable d'une déformation des équipotentielles, qui la contournent au lieu de la traverser comme précédemment. Elles révèlent l'existence d'un champ électrique dans le voisinage immédiat de la fibre qui tend à attirer les électrons vers elle.

Cet effet d'attraction des électrons (sucking-in) apparaît dans les résultats de la simulation, présentés à la figure 8.22. La densité de courant au niveau de la grille est sensiblement rapprochée de l'axe central x de la fibre. Les valeurs 10 fois plus élevées peuvent provenir du raccourcissement de la barrière de potentiel à traverser pour sortir de la pointe. La figure de diffraction à l'écran renforce les parties qui correspondent à l'intérieur de la fibre. Ces effets sont en général plus prononcés pour des fibres de section plus petites[107], puisque la zone de champ attractif extérieure à la fibre correspond à une partie relativement plus importante de la distribution d'énergie potentielle.

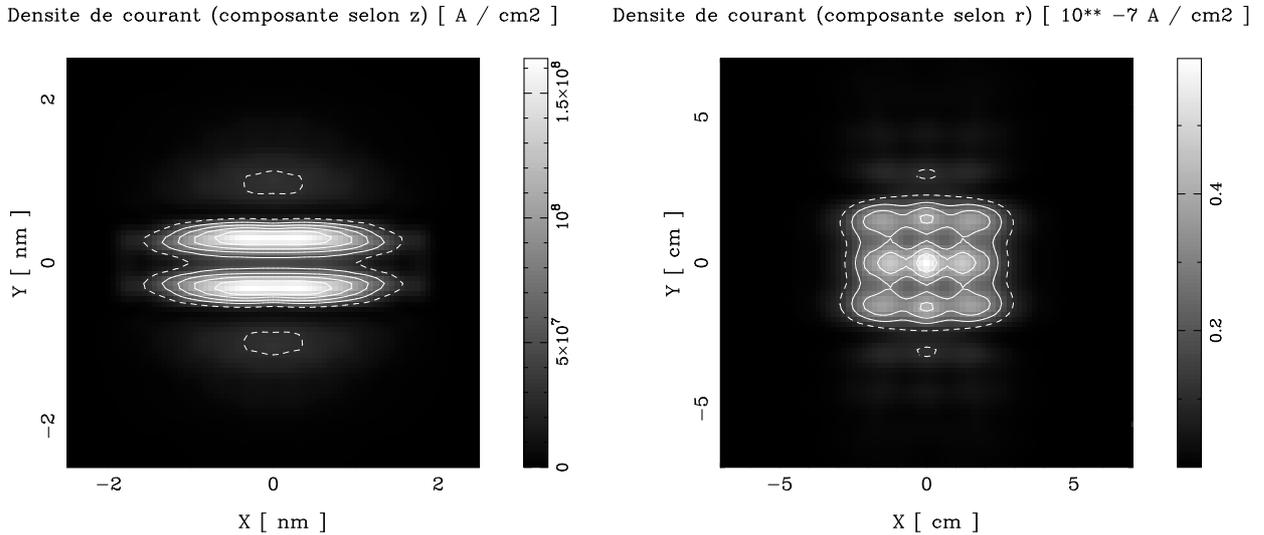


FIG. 8.22 – Densité de courant obtenue par application d'une tension de 25 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre de 1 nm de côté caractérisée par une constante diélectrique de 16.5. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.

Il est intéressant de noter la présence d'oscillations latérales sur l'image de la fibre. De telles oscillations sont en général observées, comme sur la figure 1.10 du chapitre 1. Elles ne sont pas présentes dans la densité de courant locale, ni dans les caractéristiques de l'objet. Elles semblent donc provenir uniquement du processus de diffraction qui génère l'image à grande distance.

Enfin, nous aurions pu considérer des valeurs de ϵ_r intermédiaires entre 1 et 16.5. Ces simulations auraient révélé un effet de sucking-in plus ou moins prononcé suivant le choix de ϵ_r . Dans les simulations que nous avons présentées, des valeurs plus élevées n'auraient

pas eu d'effet observable puisque la valeur de 16.5 suffit à mettre (pratiquement) toute la fibre au même potentiel. La gamme des valeurs de ϵ_r pour lesquelles une modification induit des effets observables dépend de la tension appliquée et de la proximité de la pointe, puisque ces deux facteurs déterminent le champ électrique à annuler dans la fibre.

8.6 Effet du travail d'extraction - Résonances

Les images présentées jusque maintenant correspondent à ce que les expérimentateurs appellent "fibres transparentes". Elles se présentent sous la forme d'une projection brillante qui semble ainsi suggérer une certaine transparence de la fibre elle-même.

Les "fibres opaques" quant à elles se présentent sous la forme d'une projection noire, entourée de franges. Ce comportement est attribué à une absorption électronique dans la fibre, qui devient importante à partir de sections de l'ordre de 2 nm.

Nous avons la possibilité d'introduire cette absorption dans nos simulations et ainsi de vérifier si elle est automatiquement associée à la formation des figures propres aux fibres dites opaques ou si d'autres facteurs peuvent produire le même effet.

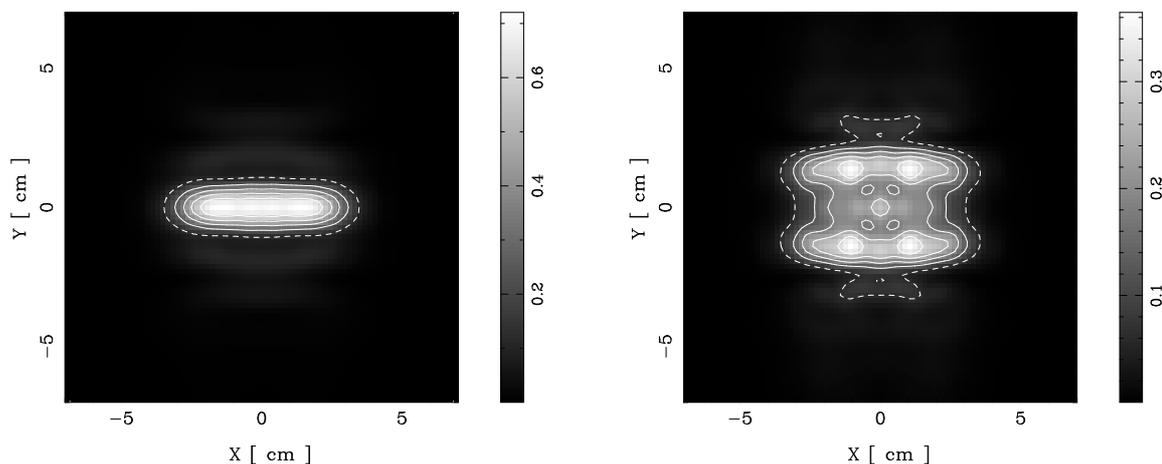
Nous avons repris la situation traitée à la section précédente (fibre polarisable de 1 nm de côté observée sous une tension de 25 V) et commencé nos investigations en montrant l'influence que peut avoir la profondeur du puits de potentiel sur l'image à grande distance. Modifier la valeur du puits de potentiel correspond à modifier la capacité de la fibre à conserver l'électron dans un état lié, la liaison étant d'autant plus forte que le puits est profond. Signalons qu'une telle liaison n'est pas permise dans notre modèle puisque l'électron possède suffisamment d'énergie pour échapper à l'attraction de la fibre et qu'il ne peut la perdre. Tout au plus, une partie de la fonction d'onde peut stationner au-dessus du puits de potentiel.

Nous avons illustré à la figure 8.23 les images obtenues à grande distance lorsque la profondeur du puits de potentiel est choisie de manière à ce que la largeur L de la fibre soit reliée à la longueur d'onde électronique λ dans celle-ci par $L = 4\lambda$, $L = (4 + \frac{1}{4})\lambda$, $L = (4 + \frac{1}{2})\lambda$ et $L = (4 + \frac{3}{4})\lambda$.

Ces résultats tendent à se répéter lorsque la série est poursuivie en prenant $L = 5\lambda$, $L = (5 + \frac{1}{4})\lambda$, ... Ils montrent que les régimes stationnaires dans la fibre influencent les images obtenues avec des fibres de petite section. Les images obtenues apparaissent brillantes lorsque la largeur de la fibre correspond à un nombre entier de longueurs d'onde et opaques pour certains multiples du quart de la longueur d'onde. La densité de courant locale présente peu de variations par rapport au résultat de la figure 8.22.

Il apparaît donc ici aussi qu'une modélisation plus approfondie de l'énergie potentielle dans la matière est nécessaire, puisque la valeur particulière de celle-ci est capable de modifier de façon importante les images obtenues.

Densite de courant (composante selon r) [$10^{** -7}$ A / cm2] Densite de courant (composante selon r) [$10^{** -7}$ A / cm2]



Densite de courant (composante selon r) [$10^{** -7}$ A / cm2] Densite de courant (composante selon r) [$10^{** -7}$ A / cm2]

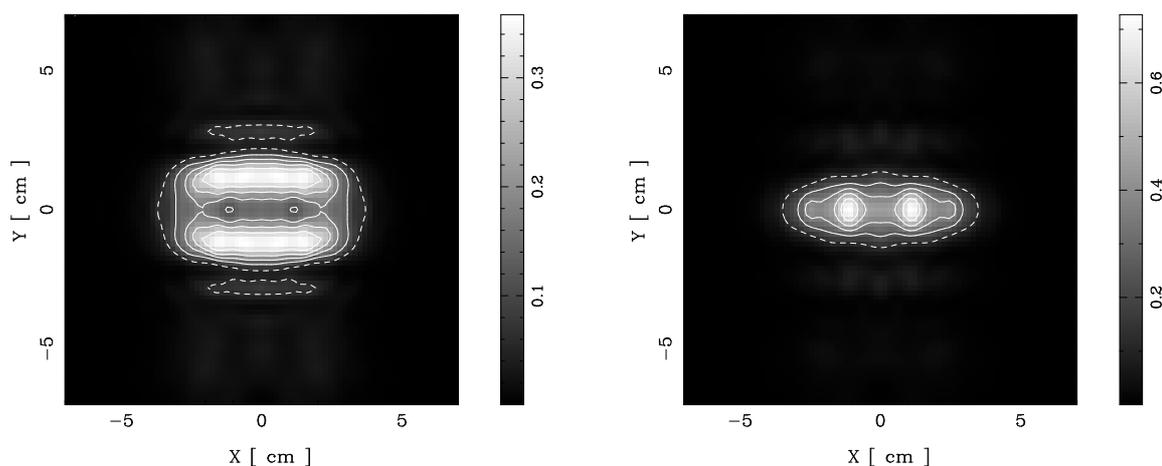


FIG. 8.23 – De gauche à droite et de haut en bas, densité de courant sur un écran à 10 cm obtenue par application d'une tension de 25 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre de $L=1$ nm de côté caractérisée par une constante diélectrique de 16.5. Le puits de potentiel est choisi de manière à relier la longueur d'onde électronique locale λ à L respectivement par $L = 4\lambda$, $L = (4 + \frac{1}{4})\lambda$, $L = (4 + \frac{1}{2})\lambda$ et $L = (4 + \frac{3}{4})\lambda$.

8.7 Effet de l'absorption

Pour montrer que l'absorption ne permet pas de forcer une projection noire dans cette situation, nous avons ajouté au puits de la fibre une partie imaginaire de -4 eV. Cette partie imaginaire a d'abord été introduite dans la partie centrale de la fibre (dans un parallélépipède intérieur de 0.5 nm de côté) et dans la fibre entière ensuite. Les résultats sont présentés à la figure 8.24. L'absorption dans la densité de courant locale apparaît clairement dans la figure du bas (la seule pour laquelle l'absorption est maintenue jusqu'en $z = D$). L'image à grande distance reste cependant brillante.

La figure de diffraction à grande distance ne dépend plus de la partie réelle de l'énergie potentielle dans la fibre lorsque l'absorption est introduite dans son entièreté. Cette constatation est logique puisque les électrons doivent passer à l'intérieur de la fibre pour ressentir ce potentiel. Cependant à cause de la partie imaginaire, ils disparaissent de la simulation.

Une comparaison avec un modèle d'onde incidente collimatée sphérique révèle qu'une projection noire ne peut simplement pas apparaître avec un objet complètement opaque dans cette situation. Le confinement du faisceau incident à un angle d'environ 15 degrés est principalement responsable. Une valeur de tension ou un angle d'ouverture plus grands permettraient d'obtenir une projection noire.

Enfin, la figure du haut est relativement similaire aux images obtenues avec des fibres de petite taille, comme celle reproduite à la figure 1.9 du chapitre 1. Il est probable qu'un meilleur accord puisse être obtenu en améliorant la description de l'énergie potentielle dans la fibre ainsi qu'à l'extérieur (nous avons montré en effet l'importance que peuvent avoir l'aspect et la partie extérieure du faisceau incident).

8.8 Conclusion

Nous avons simulé l'observation de fibres de carbone. Nous les avons représentées par un milieu continu, caractérisé par un puits de potentiel (représentatif du caractère liant), une constante diélectrique (pour la polarisabilité) et une partie imaginaire dans l'énergie potentielle (pour l'absorption). Ce modèle simple offre l'avantage de pouvoir contrôler toutes les propriétés de l'objet et ainsi d'attribuer l'origine des caractéristiques de la figure de diffraction.

Les modes Fraunhofer et Fresnel apparaissent lorsque les conditions d'observation vérifient le critère établi grâce à un modèle d'objet plan. Les simulations en mode Fraunhofer ont fourni des résultats que nous avons pu interpréter par un modèle simple d'onde incidente plane dans une ou deux fentes. Cette interprétation confirme le caractère essentiellement plan de l'onde incidente dans ces conditions propres à un mode Fraunhofer. Les simulations ont montré aussi que le faisceau extérieur à la fibre peut influencer de façon importante la figure de diffraction. Un modèle en trois dimensions est donc bien nécessaire pour reproduire correctement l'aspect de ce faisceau extérieur, les états stationnaires à l'intérieur de l'objet et en fin de compte les interférences entre toutes ces parties de la fonction d'onde.

Les simulations en mode Fresnel ont montré l'existence d'oscillations liées au processus

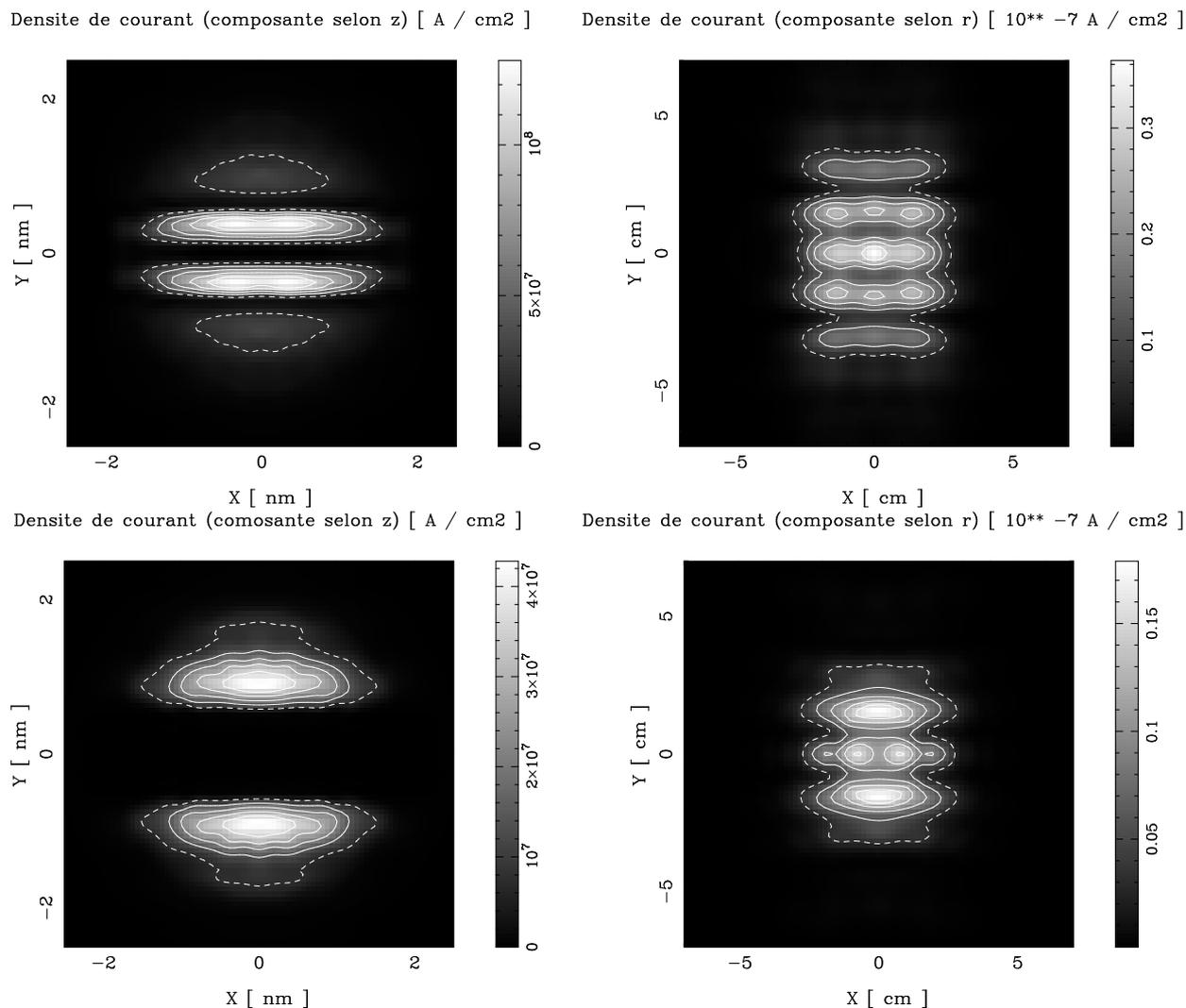


FIG. 8.24 – Densité de courant obtenue par application d'une tension de 25 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre de 1 nm de côté caractérisée par une constante diélectrique de 16.5, un puits de potentiel de -4.82 eV avec une partie imaginaire de -4 eV (en haut dans la partie centrale de la fibre; en bas dans toute la fibre). A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.

de propagation de l'objet jusqu'à l'écran. Nous avons montré que des phénomènes de résonance dans les fibres de petite section peuvent, comme l'absorption dans les fibres de section plus grande, être à l'origine des projections noires.

Enfin, nous rencontrons ici aussi la nécessité d'une modélisation plus approfondie de l'énergie potentielle. Cette modélisation devrait préciser la valeur des parties réelles et imaginaires à considérer.

Chapitre 9

Observation de molécules de carbone

9.1 Introduction

Au cours des deux chapitres précédents, nous avons rencontré la nécessité d'une théorie permettant de calculer de manière plus précise l'énergie potentielle à considérer pour l'électron du problème de diffusion. Une telle théorie nous fournirait d'une part une distribution d'énergie potentielle plus réaliste et lèverait d'autre part l'incertitude sur les valeurs à donner à certains paramètres (puits de potentiel, partie imaginaire, polarisabilité,...).

Plusieurs années de recherches seraient nécessaires pour approcher de manière satisfaisante cette théorie. Nous présenterons dans ce chapitre les prémices d'une telle théorie, en espérant qu'elles suffisent à reproduire les caractéristiques essentielles de l'énergie potentielle et ainsi nous permettre une simulation réaliste de la diffusion.

Après avoir exposé notre méthode, nous présenterons quelques simulations de l'observation d'une molécule de C_{60} . Nous illustrerons ici aussi les modes Fraunhofer et Fresnel, les phénomènes de sucking-in et tenterons de comprendre comment les réactions de la matière peuvent produire des effets observables.

9.2 Théorie élémentaire du problème à $N + 1$ électrons

9.2.1 Formulation du problème et équations à résoudre

Considérons donc un système constitué de $N + 1$ électrons, les N premiers appartenant à une molécule et le dernier étant celui de notre problème de diffusion. La fonction d'onde à $N + 1$ électrons peut s'écrire sous la forme d'un déterminant de Slater :

$$\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_{N+1}) = \frac{1}{\sqrt{(N+1)!}} \begin{vmatrix} \Psi_1(\mathbf{r}_1) & \Psi_1(\mathbf{r}_2) & \cdots & \Psi_1(\mathbf{r}_{N+1}) \\ \Psi_2(\mathbf{r}_1) & \Psi_2(\mathbf{r}_2) & & \Psi_2(\mathbf{r}_{N+1}) \\ \vdots & & \ddots & \\ \Psi_{N+1}(\mathbf{r}_1) & & & \Psi_{N+1}(\mathbf{r}_{N+1}) \end{vmatrix} \quad (9.1)$$

où nous avons caché les variables de spin.

Cette écriture n'est que l'antisymétrisation du produit de $N + 1$ états Ψ_i attribués à chacun des $N + 1$ électrons. Cette antisymétrisation a pour but de respecter la règle de changement de signe imposée à la fonction d'onde de plusieurs fermions lors de l'échange des indices \mathbf{r}_i propres à chacun d'eux. On respecte ainsi implicitement le principe d'exclusion de Pauli. On perd par contre la corrélation en séparant sous forme de produit la dépendance de la fonction d'onde vis-à-vis de chaque électron.

Lorsque cette expression de la fonction d'onde est introduite dans l'équation de Schrödinger stationnaire à $N + 1$ électrons, on obtient l'équation suivante pour chaque état Ψ_i :

$$-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2\Psi_i(\mathbf{r}) + [V_{ext}(\mathbf{r}) + V_{ion}(\mathbf{r}) + V_{rep}(\mathbf{r}) + V_{ech}(\mathbf{r})]\Psi_i(\mathbf{r}) = E_i\Psi_i(\mathbf{r}) \quad (9.2)$$

Dans cette équation, $V_{ext}(\mathbf{r})$ est l'énergie potentielle due à la tension d'extraction (qui tient compte de la présence éventuelle d'une pointe),

$$V_{ion}(\mathbf{r}) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_j \frac{Z_j}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}_j|} \quad (9.3)$$

est la contribution due à l'attraction des noyaux de charge Z_j situés en \mathbf{R}_j ,

$$V_{rep}(\mathbf{r}) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \iiint \frac{(\rho(\mathbf{r}') - |\Psi_i(\mathbf{r}')|^2)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} dV' \quad (9.4)$$

est due à la répulsion des autres électrons. Elle est estimée en retirant à la densité électronique totale $\rho(\mathbf{r}) = \sum_{j=1}^{N+1} |\Psi_j(\mathbf{r})|^2$ la contribution due à l'état Ψ_i lui-même. Enfin,

$$V_{ech}(\mathbf{r}) = -\alpha \frac{3}{2} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sqrt{\frac{3}{\pi}} (\rho(\mathbf{r}) - |\Psi_i(\mathbf{r})|^2)^{1/3} \quad (9.5)$$

est le terme d'échange. Ce dernier terme provient de l'antisymétrisation de la fonction d'onde et est évalué par l'expression locale du potentiel d'échange proposé par Slater. Nous avons retiré ici aussi la contribution due à l'état Ψ_i lui-même. Le coefficient α est un paramètre utilisé pour ajuster les résultats théoriques à l'expérience (en général de manière empirique). Il prend typiquement des valeurs comprises entre $\frac{1}{2}$ et 1. En l'absence de donnée précise, nous prendrons $\alpha = 1$.

Nous avons donc un système de $N + 1$ équations couplées (à cause de ρ) à résoudre de manière autoconsistante. Les solutions Ψ_i seront orthogonales, puisqu'elles sont solutions du même hamiltonien hermitien. La fonction Ψ_{N+1} que nous construirons correspond à un état propre de cet hamiltonien, dont l'énergie appartient au continuum. Elle sera donc orthogonale aux états Ψ_i de la molécule.

9.2.2 Réduction des N électrons de la molécule à une densité

Nous pouvons simplifier le problème en décrivant les N électrons de la molécule par une densité électronique $\rho^{molec}(\mathbf{r}) = \sum_{j=1}^N |\Psi_j(\mathbf{r})|^2$ et en utilisant un modèle pour ρ^{molec} . Le $(N+1)^{i\text{ème}}$ électron peut être considéré comme une perturbation du système à N électrons, qui en son absence avaient trouvé une configuration d'équilibre ρ_0^{molec} . Pour chaque position \mathbf{r} de l'électron de diffusion, on peut calculer une densité ρ^{molec} qui en tient compte. Il est important ici aussi de réaliser que l'énergie potentielle de l'électron en \mathbf{r} correspond au travail nécessaire pour amener cet électron depuis l'infini et que la densité électronique ρ^{molec} s'est adaptée en chaque pas de ce trajet. Si nous renonçons à résoudre les $N+1$ équations 9.2 de manière autoconsistante, il est nécessaire de remplacer l'expression 9.4 de $V_{rep}(\mathbf{r})$ par une expression qui tienne compte de l'adaptation progressive de la densité ρ^{molec} durant le trajet depuis l'infini.

Une façon d'y parvenir consiste à développer le terme $V_{rep}(\mathbf{r})$ en série par rapport à la perturbation $\mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}') = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 |\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}$ due à l'électron :

$$\begin{aligned} V_{rep}(\mathbf{r}) \simeq & V_{rep}(\mathbf{r})|_{\mathcal{V}_{pert}=0} + \iiint \frac{\partial V_{rep}(\mathbf{r})}{\partial \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}')}\bigg|_{\mathcal{V}_{pert}=0} \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}') dV' \\ & + \frac{1}{2} \iiint \iiint \frac{\partial^2 V_{rep}(\mathbf{r})}{\partial \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}') \partial \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}'')}\bigg|_{\mathcal{V}_{pert}=0} \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}') \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}'') dV' dV'' \quad (9.6) \end{aligned}$$

En identifiant $\frac{\partial V_{rep}(\mathbf{r})}{\partial \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}')} = \rho^{molec}(\mathbf{r}')$ et $\frac{\partial V_{rep}(\mathbf{r})}{\partial \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}'')}\bigg|_{\mathcal{V}_{pert}=0} = \rho_0^{molec}(\mathbf{r}'')$, cette équation devient :

$$\begin{aligned} V_{rep}(\mathbf{r}) \simeq & 0 + \iiint \rho_0^{molec}(\mathbf{r}') \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}') dV' \\ & + \frac{1}{2} \iiint \left(\iiint \frac{\partial \rho^{molec}(\mathbf{r}')}{\partial \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}'')}\bigg|_{\mathcal{V}_{pert}=0} \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}'') dV'' \right) \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}') dV' \quad (9.7) \end{aligned}$$

Si nous considérons l'écriture :

$$\rho^{molec}(\mathbf{r}') = \rho_0^{molec}(\mathbf{r}') + \iiint \frac{\partial \rho^{molec}(\mathbf{r}')}{\partial \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}'')}\bigg|_{\mathcal{V}_{pert}=0} \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}'') dV'' + \dots \quad (9.8)$$

qui peut être considérée comme un développement en série de $\rho^{molec}(\mathbf{r}')$ par rapport à des variables qui seraient les valeurs de $\mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}'')$ pour tous les points \mathbf{r}'' de l'espace, l'expression précédente devient :

$$V_{rep}(\mathbf{r}) \simeq \iiint \rho_0^{molec}(\mathbf{r}') \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}') dV' + \frac{1}{2} \iiint (\rho^{molec}(\mathbf{r}') - \rho_0^{molec}(\mathbf{r}')) \mathcal{V}_{pert}(\mathbf{r}') dV' \quad (9.9)$$

c'est-à-dire :

$$V_{rep}(\mathbf{r}) \simeq \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \iiint \frac{\rho_0^{molec}(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} dV' + \frac{1}{2} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \iiint \frac{(\rho^{molec}(\mathbf{r}') - \rho_0^{molec}(\mathbf{r}'))}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} dV' \quad (9.10)$$

Ce résultat signifie qu'en première approximation nous pouvons utiliser l'expression 9.4 à condition de mettre un facteur $1/2$ dans la partie de l'énergie potentielle induite par l'électron de diffusion lui-même. Ceci permet de tenir compte de l'adaptation progressive de la densité électronique dans la molécule lors de son arrivée.

Nous appliquerons ce principe ainsi que l'expression suivante :

$$V_{ech}(\mathbf{r}) = -\frac{3}{2} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sqrt[3]{\frac{3}{\pi} \rho^{molec}(\mathbf{r})}^{1/3} \quad (9.11)$$

pour définir l'énergie potentielle dans l'équation 9.2 propre au $(N + 1)^{ième}$ électron de notre problème de diffusion.

9.2.3 Modèle de densité électronique gaussien

Nous avons donc simplifié le problème à $N + 1$ électrons en remplaçant la détermination précise des N premiers états Ψ_i par l'utilisation d'une densité de charges représentative de ces N premiers électrons. Cette approche se justifie par le fait que notre intérêt se porte uniquement sur le dernier électron.

Il nous reste donc à déterminer par une autre méthode cette densité électronique, d'une façon qui tienne compte de la présence du $(N + 1)^{ième}$ électron. Nous avons choisi de représenter l'ensemble des électrons de valence et de conduction de chaque atome par une distribution gaussienne rigide pouvant se déplacer par rapport à l'ensemble constitué du noyau et des électrons de coeur. Nous supposons par la suite que ces derniers restent localisés sur le noyau et que leur seul effet consiste à réduire la valeur effective de Z_j qui devient donc le nombre d'électrons de valence et de conduction associés au noyau j .

L'étude du puits harmonique plongé dans un champ électrique d'amplitude E montre que les fonctions propres du problème sont déplacées [108] de :

$$\Delta x = \frac{eE}{m\omega_j^2} \quad (9.12)$$

où ω_j la pulsation caractéristique du puits harmonique associé à l'atome j . En considérant les Z_j électrons de l'atome j , sa polarisation suite à l'application du champ électrique est alors :

$$\begin{aligned} p_j &= (Z_j e) \Delta x = \frac{Z_j e^2 E}{m\omega_j^2} \\ &= \alpha_j E \end{aligned} \quad (9.13)$$

Nous pouvons donc déterminer la valeur de ω_j qui correspond à la polarisabilité α_j de l'atome :

$$\omega_j = e \sqrt{\frac{Z_j}{m\alpha_j}} \quad (9.14)$$

Par ailleurs, les fonctions propres de ce problème ont toutes une dépendance proportionnelle à :

$$\Psi_j(\mathbf{r}) \sim e^{-\frac{m\omega_j}{2\hbar}r^2} \quad (9.15)$$

Comme la densité électronique $\rho_j^{atom}(\mathbf{r})$ associée à chaque atome j est proportionnelle à $|\Psi_j(\mathbf{r})|^2$, nous associerons à chaque atome une densité électronique gaussienne :

$$\rho_j^{atom}(\mathbf{r}) = \frac{Z_j}{\pi^{3/2}\bar{R}_j^3} e^{-|\mathbf{r}-\mathbf{r}_j|^2/\bar{R}_j^2} \quad (9.16)$$

dont le rayon \bar{R}_j est fixé par :

$$\bar{R}_j = \sqrt{\frac{\hbar}{m\omega_j}} = \sqrt{\frac{\hbar}{e}} \left(\frac{\alpha_j}{mZ_j} \right)^{1/4} \quad (9.17)$$

La position du centre \mathbf{r}_j de la densité électronique associée à chaque atome est obtenue en déterminant dans un premier temps la polarisation \mathbf{p}_j de chaque atome (par la méthode donnée au chapitre 7) et en se servant ensuite de la relation :

$$\mathbf{p}_j = Z_j e(\mathbf{R}_j - \mathbf{r}_j) \quad (9.18)$$

La densité électronique ρ^{molec} est finalement donnée par :

$$\rho^{molec}(\mathbf{r}) = \sum_j \rho_j^{atom}(\mathbf{r}) \quad (9.19)$$

et les intégrales rencontrées dans le calcul de $V_{rep}(\mathbf{r})$ se résolvent comme :

$$\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \iiint \frac{\rho^{molec}(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} dV' = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_j Z_j \frac{erf(|\mathbf{r}-\mathbf{r}_j|/\bar{R}_j)}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}_j|} \quad (9.20)$$

9.2.4 Polarisabilités statique et dynamique

Nous avons jusque maintenant considéré une valeur unique pour la polarisabilité de chaque atome. Or l'énergie potentielle contient une partie statique (due à la tension d'extraction) et une partie dynamique (due à l'électron en mouvement). La valeur de la polarisabilité à considérer n'est pas la même pour ces deux contributions.

Nous devons considérer la polarisabilité statique α_{stat} de l'atome lorsque nous calculons la contribution à l'énergie potentielle due à la tension d'extraction et la polarisabilité dynamique $\alpha_{dyn}(\omega)$ pour la partie due à l'électron en mouvement. Dans un modèle Lorentzien, ces grandeurs sont liées par la relation :

$$\alpha_{dyn}(\omega) = \frac{\alpha_{stat}}{1 - \frac{\omega^2}{\omega_c^2}} \quad (9.21)$$

où la polarisabilité volumique statique $\frac{\alpha_{stat}}{4\pi\epsilon_0}$ prend la valeur de 1.100 \AA^3 et l'énergie caractéristique $\hbar\omega_c$ la valeur de 18.15 eV . Ces valeurs sont celles recommandées pour des atomes de carbone dans un fullerène à la référence [109]. La description pourra être améliorée dans un travail ultérieur en prenant une expression anisotrope pour la polarisabilité (c'est ce qui a été fait pour l'image de C_{540} en couverture) et en complétant son expression par une partie imaginaire afin de tenir compte des transferts d'énergie entre l'électron du problème de diffusion et la matière.

Dans notre situation la valeur de ω à considérer est donnée par :

$$\hbar\omega = E = eV - W \quad (9.22)$$

puisque l'électron de notre problème de diffusion, qui est à l'origine de cette perturbation, est décrit par l'expression :

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \Psi(\mathbf{r})e^{-i(\frac{E}{\hbar})t} \quad (9.23)$$

La démarche à suivre pour obtenir l'énergie potentielle V_{tot} à considérer dans notre problème de diffusion est alors la suivante. Dans un premier temps, on calcule l'énergie potentielle en un point \mathbf{r} donné due à la tension d'extraction uniquement. On utilise donc la polarisabilité statique α_{stat} . L'énergie potentielle extérieure V_{ext} et le champ électrique associé tiennent compte ici de la tension d'extraction et de la présence de la pointe. On obtient ces valeurs initiales de l'énergie potentielle et du champ associé en utilisant la méthode donnée au chapitre 8 si on souhaite décrire la pointe par un modèle continu. On calcule ensuite la valeur des dipôles associés à chaque atome de la molécule en utilisant la méthode donnée au chapitre 7 et on en déduit le déplacement de chaque nuage gaussien par 9.18. On obtient ainsi la première contribution à l'énergie potentielle :

$$V_0(\mathbf{r}) = V_{ext}(\mathbf{r}) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_j \frac{Z_j}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}_j|} + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_j Z_j \frac{erf(|\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|/\bar{R}_j)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|} \quad (9.24)$$

Dans un deuxième temps, on calcule l'énergie potentielle due à la réaction de la molécule suite à la présence de l'électron uniquement au point \mathbf{r} . On utilise ici la polarisabilité dynamique $\alpha_{dyn}(\frac{E}{\hbar})$, à laquelle on associe \bar{R}'_j . On calcule à nouveau la valeur du dipôle associé à chaque atome de la molécule, en prenant comme champ extérieur sur chaque site atomique celui exercé par l'électron au point \mathbf{r} . On en déduit le nouveau déplacement \mathbf{r}'_j de chaque nuage gaussien. On obtient ainsi la seconde contribution à l'énergie potentielle :

$$\Delta V(\mathbf{r}) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_j \frac{Z_j}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}_j|} + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_j Z_j \frac{erf(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'_j|/\bar{R}'_j)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'_j|} \quad (9.25)$$

Le terme d'échange est évalué par :

$$V_{ech}(\mathbf{r}) = -\frac{3}{2} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sqrt[3]{\frac{3}{\pi}} \left(\sum_j \frac{Z_j}{\pi^{3/2} \bar{R}_j'^3} e^{-|\mathbf{r} - \mathbf{r}'_j|^2/\bar{R}_j'^2} \right)^{1/3} \quad (9.26)$$

où les positions \mathbf{r}_j'' sont obtenues en additionnant les déplacements calculés pour V_0 et ΔV par rapport à la position des noyaux \mathbf{R}_j et les rayons gaussiens \overline{R}_j'' sont reliés à \overline{R}_j et \overline{R}_j' par la relation $\frac{|\mathbf{r}_j - \mathbf{R}_j|^2}{\overline{R}_j^4} + \frac{|\mathbf{r}_j' - \mathbf{R}_j|^2}{\overline{R}_j'^4} = \frac{|\mathbf{r}_j'' - \mathbf{R}_j|^2}{\overline{R}_j''^4}$, de manière à ce que l'énergie pouvant être attribuée aux déplacements associés à \mathbf{r}_j et \mathbf{r}_j' soit égale à celle correspondant au déplacement associé à \mathbf{r}_j'' .

Compte tenu des commentaires faits en 9.2.2, l'énergie potentielle totale V_{tot} à considérer dans notre problème de diffusion est alors donnée par :

$$V_{tot}(\mathbf{r}) = V_0(\mathbf{r}) + \frac{1}{2}\Delta V(\mathbf{r}) + V_{ech}(\mathbf{r}) \quad (9.27)$$

9.2.5 Critique

L'idée de séparer le $(N + 1)^{\text{ième}}$ électron des autres et de représenter ceux-ci par une densité de charges est relativement intéressante. Nous avons également formulé le problème d'une façon apte à tenir compte des polarisabilités statique et dynamique.

Le modèle gaussien que nous avons utilisé pour représenter la densité de charges électroniques est par contre très simplifié. Pour commencer, il représente tous les électrons par une distribution à symétrie sphérique. Ce modèle de gaussiennes rigides n'est certainement pas réaliste lorsque l'électron est très proche du centre de l'un des atomes. Ensuite, leur caractère relativement lié au noyau ne permet pas une description adéquate des électrons de conduction.

Le fait de déterminer le déplacement des gaussiennes en passant par un modèle dipolaire est ici justifié par le fait que la distance entre atomes voisins est telle qu'une partie négligeable (de l'ordre du pourcent) de la distribution associée à chaque noyau atteint les sites voisins.

En conclusion, ce modèle offre surtout l'avantage d'être simple et de fournir les caractéristiques essentielles de la distribution d'énergie potentielle à utiliser dans nos simulations. Il pourra être amélioré dans un travail ultérieur en représentant les électrons des molécules par des orbitales atomiques comme celles utilisées en LCAO et en déterminant leurs coefficients pour chaque position de l'électron dans notre problème de diffusion.

9.3 Modèle de pointe et de molécule

La pointe est représentée comme au chapitre précédent par un cône continu, afin de pouvoir exploiter toute symétrie présente dans la molécule. Nous avons repris une hauteur de 1 nm et un rayon à la base de 0.5 nm.

Les coordonnées des atomes de carbone constituant la molécule examinée dans ce chapitre résultent de considérations géométriques. Nous avons associé à chaque atome 4 électrons de valence et utilisé l'expression de la polarisabilité isotrope donnée à la section précédente.

9.4 Observation d'une molécule de C_{60}

Les molécules de C_{60} examinées ici sont déposées sur un pentagone, afin de profiter de l'axe de symétrie le plus élevé présent dans la molécule ($n=5$). Nous allons illustrer les diffractions de type Fraunhofer et Fresnel que l'on obtient avec une telle molécule en fonction des conditions d'observation.

9.4.1 Mode Fraunhofer - Effet de sucking-in

Nous avons réalisé la première simulation en prenant une tension d'extraction de 10 V et une distance entre le support métallique et la grille de 3.5 nm. L'énergie potentielle correspondant à cette situation est représentée à la figure 9.1.

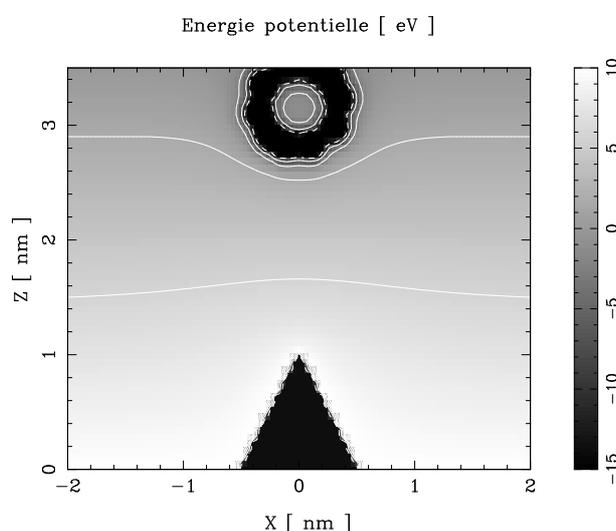


FIG. 9.1 – *Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 10 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. Cette grille supporte une molécule de C_{60} .*

On perçoit dans le résultat du calcul que la molécule tend à repousser les équipotentiels et à créer ainsi une zone intérieure dépourvue de champ électrique. Ces équipotentiels extérieures sont associées à un champ électrique qui tend à attirer les électrons à l'intérieur de la molécule. Ce comportement s'explique par le fait que les électrons de la molécule s'éloignent de l'électron incident (d'autant plus que la polarisabilité dynamique est élevée) tandis que les ions positifs restent sur place. Cette configuration électronique de la molécule tend à attirer l'électron incident puisqu'il ressent avant tout l'attraction des ions positifs.

Les résultats du calcul de diffusion sont représentés à la figure 9.2. La densité de courant à grande distance est de type Fraunhofer. Elle se présente sous la forme d'anneaux typiques d'une diffraction à travers un objet circulaire. La symétrie d'ordre 5 de la molécule est perceptible dans les dernières franges. Une représentation en échelle linéaire ne ferait apparaître que le pic central.

Densité de courant (composante selon z) [A / cm²] Densité de courant normalisée (échelle logarithmique)

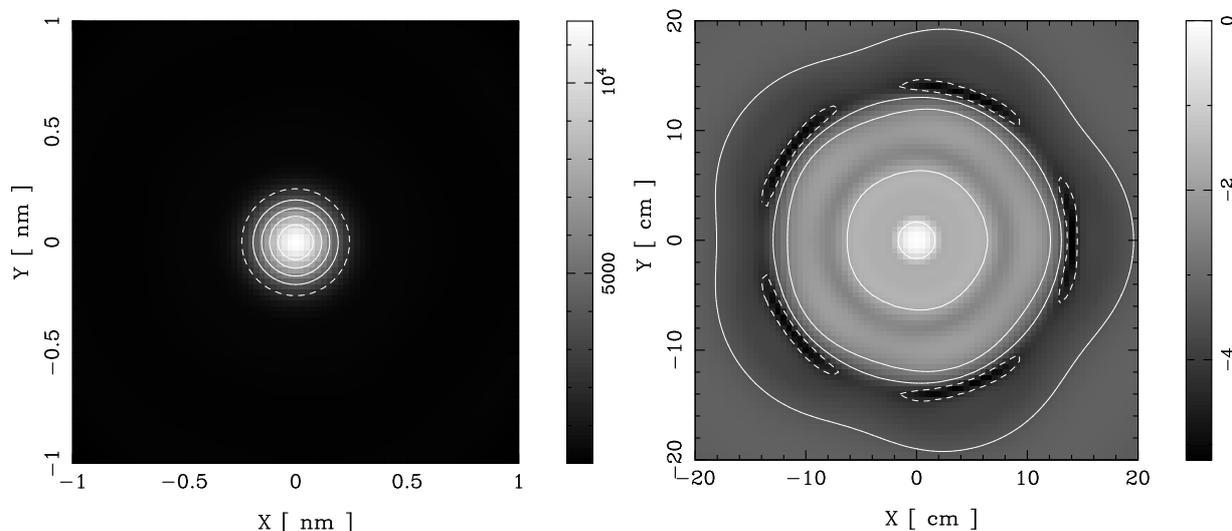


FIG. 9.2 – Densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une molécule de C_{60} . A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm en échelle logarithmique (base 10).

La densité de courant locale révèle un très fort effet de sucking-in. Il est mis en évidence à la figure 9.3 où nous avons comparé une coupe horizontale de la densité de courant locale avec celle obtenue lorsque la molécule de C_{60} est retirée. Cette figure ne contient aucune information sur la structure atomique traversée. La raison est due au fait que la distribution d'énergie potentielle présente elle-même très peu d'information sur la structure atomique sous-jacente à cause de la polarisabilité volumique dynamique encore importante (1.2 \AA^3) de chaque atome dans la molécule.

9.4.2 Mode Fresnel

Afin d'obtenir une figure de type Fresnel, nous avons monté la tension à 25 V et rapproché la grille d'extraction à seulement 2.5 nm du support métallique de la pointe. Cette situation est illustrée à la figure 9.4 par une coupe dans l'énergie potentielle. On perçoit à nouveau très bien l'effet d'attraction exercé par la molécule.

Les résultats du calcul de diffusion sont représentés à la figure 9.5. La densité de courant locale se présente sous la forme d'un anneau dont la dimension correspond assez bien à celle de la molécule. La figure de diffraction à grande distance est de type Fresnel. L'image, en échelle linéaire, fournit une image assimilable à la projection géométrique d'une sphère transparente. Cette projection est accompagnée d'une frange latérale et d'oscillations typiques à l'intérieur de la projection. Cette projection est simplement réduite lorsque la grille d'extraction est reculée jusqu'à une distance de 3.5 nm du support métallique de la

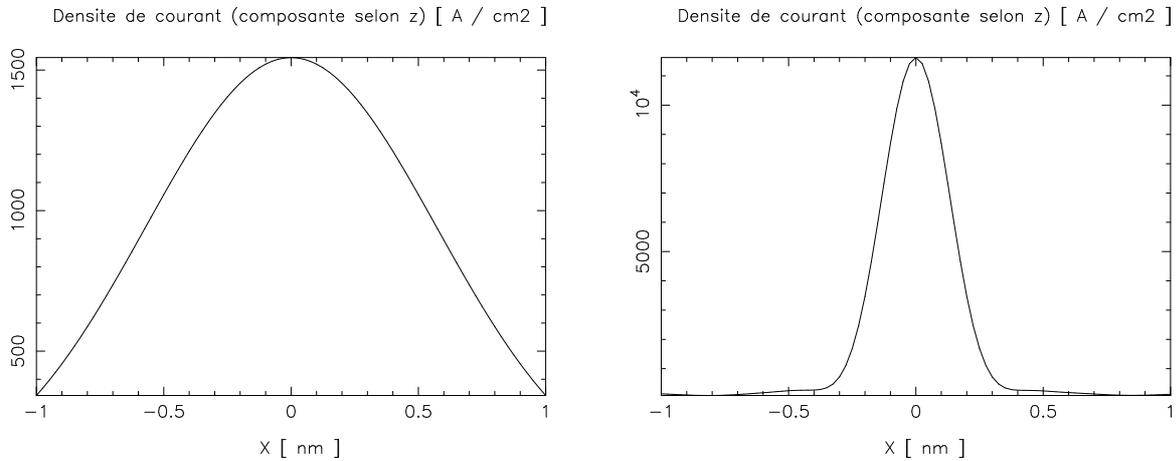


FIG. 9.3 – *A gauche : coupe selon x de la densité de courant obtenue sur une grille située à 3.5 nm du support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut. La tension d'extraction est de 10 V. A droite : même coupe lorsqu'une molécule de C_{60} est déposée sur la grille.*

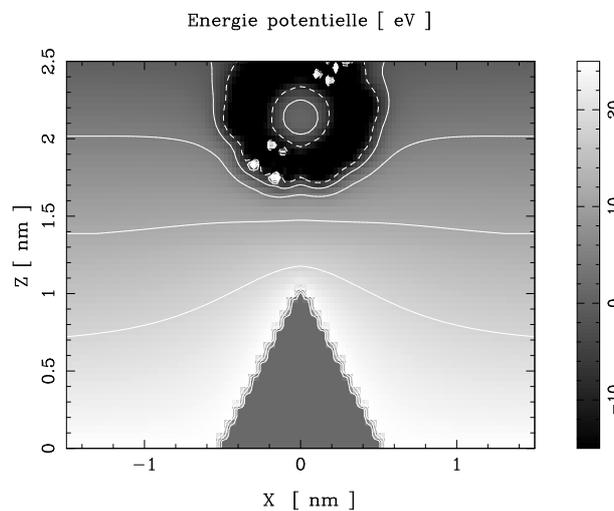


FIG. 9.4 – *Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 25 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 2.5 nm. Cette grille supporte une molécule de C_{60} .*

pointe.

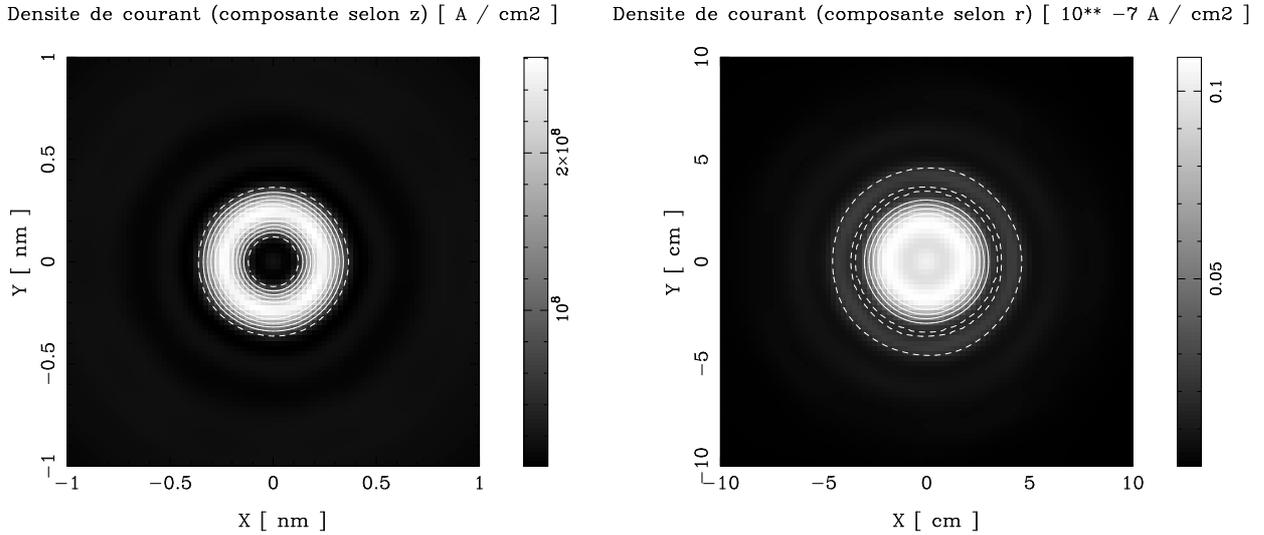


FIG. 9.5 – Densité de courant obtenue par application d'une tension de 25 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 2.5 nm. Cette grille supporte une molécule de C_{60} . A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.

L'image obtenue est donc celle d'une sphère et ne contient aucune information sur la structure atomique de la molécule. Cette constatation ne surprend pas puisque d'une part les détails de cette structure atomique sont plus petits que le pouvoir de résolution (0.28 nm) et que d'autre part ces détails sont peu apparents dans l'énergie potentielle elle-même (la polarisabilité volumique dynamique des atomes de carbone prend ici une valeur élevée de -17.5 \AA^3).

Il est intéressant de montrer les résultats obtenus avec une tension d'extraction de 40 V. Nous avons repris pour cela une distance de 3.5 nm entre la grille et le support métallique de la pointe, afin de travailler avec des valeurs de champ réalistes (nous sommes à la limite des valeurs pouvant entraîner en pratique une destruction de la pointe).

L'énergie potentielle est représentée à la figure 9.6. Nous avons représenté à gauche le terme $V_0(\mathbf{r})$ de l'énergie potentielle (qui ne tient pas compte de l'électron) et à droite l'expression complète $V_{tot}(\mathbf{r})$. Les atomes de carbone se distinguent cette fois dans l'enveloppe de la molécule. Par ailleurs, celle-ci ne parvient plus à écranter le champ électrique extérieur. Cette différence de comportement par rapport aux cas précédents est due à la polarisabilité volumique dynamique qui prend ici une valeur réduite de -0.39 \AA^3 . Cette faible polarisabilité dynamique explique aussi le peu de différences entre les deux figures. Pour des tensions plus élevées (et donc des valeurs de ω plus grandes), les deux figures finissent par se distinguer uniquement par le terme d'échange puisque la polarisabilité dynamique tend vers 0.

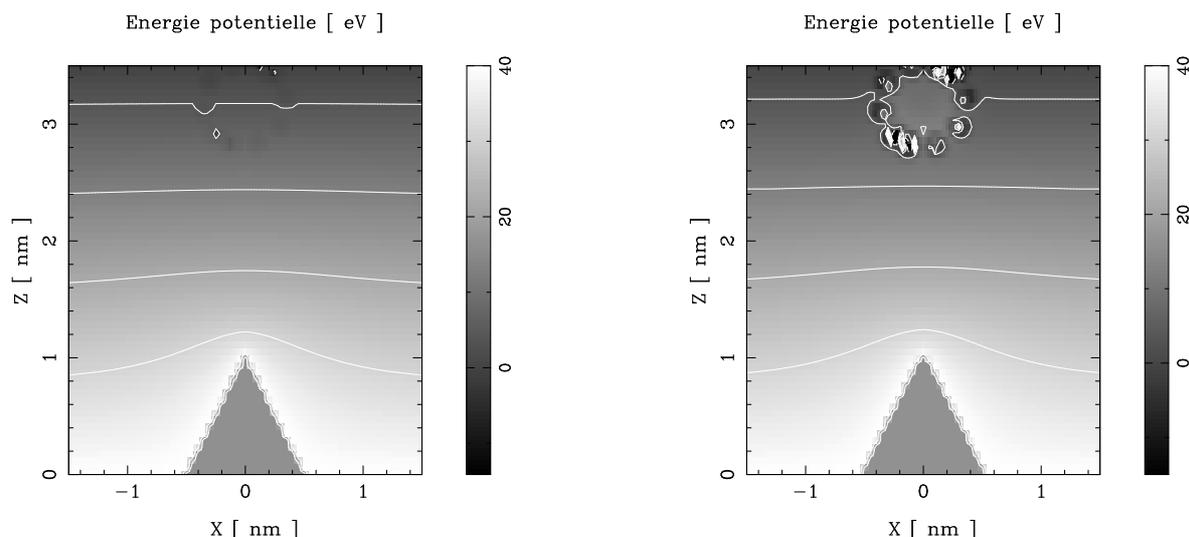


FIG. 9.6 – *Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 40 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. Cette grille supporte une molécule de C_{60} . A gauche: énergie potentielle sans électron ($V_0(\mathbf{r})$). A droite: énergie potentielle avec électron ($V_{tot}(\mathbf{r})$).*

L'énergie potentielle contient donc dans cette simulation une information liée à la structure atomique de la matière observée. Comme on le voit à la figure 9.7, cette information ressort dans la densité de courant locale mais reste absente de l'image obtenue à grande distance. Bien que présents dans l'énergie potentielle, les détails de la structure atomique varient sur une échelle inférieure au pouvoir de résolution et ne peuvent être observés.

On peut aussi constater que la densité de courant locale prend des valeurs importantes à côté de la molécule. Ceci est dû au fait que le champ électrique à l'extérieur de la molécule n'attire plus les électrons vers celle-ci.

La densité de courant à grande distance fait apparaître de façon moins évidente la projection d'une sphère. L'absence de sucking-in (qui fait moins ressortir l'objet) et un éventuel recul du point de projection virtuel avec la tension peuvent expliquer cela.

9.5 Conclusion

Les résultats obtenus confirment la nécessité d'une bonne modélisation de l'énergie potentielle dans la matière. Notre modèle de gaussiennes rigides semble montrer que l'information liée à la structure atomique ressort d'autant mieux que l'énergie de l'électron utilisé pour l'observation est élevée. Cette constatation ne contredit pas les résultats expérimentaux puisque la taille des détails observés diminue avec la tension (pour des raisons liées à la longueur d'onde des électrons servant à l'observation).

Les simulations avec une molécule de C_{60} ont illustré l'effet de sucking-in ainsi que les diffractions de type Fraunhofer et Fresnel. Ces dernières simulations n'ont permis de

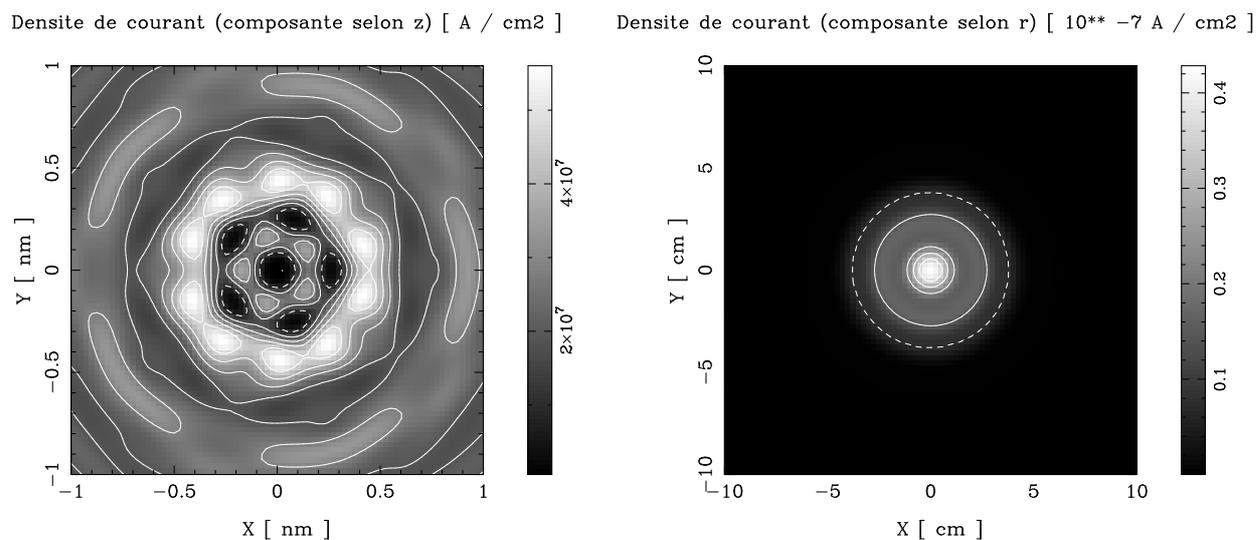


FIG. 9.7 – Densité de courant obtenue par application d'une tension de 40 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une molécule de C_{60} . A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.

montrer que l'aspect global de la molécule. Révéler la structure atomique de la molécule aurait impliqué un pouvoir de résolution inférieur à la valeur expérimentale de 0.5 nm.

Chapitre 10

Observation de champs magnétiques

10.1 Introduction

Dans ce dernier chapitre, nous allons considérer la diffusion électronique en présence d'un champ d'induction magnétique. Nous savons par les modèles présentés au chapitre 2 que les franges induites dans la figure de diffraction sont orientées parallèlement aux lignes de champ et présentent un espacement régulier (dans un champ homogène) d'autant plus resserré que celui-ci est fort.

Le but de ce chapitre est simplement d'illustrer ces observations. Nous appliquerons pour cela un champ d'induction \mathbf{B} constant dans une couche de 1 nm d'épaisseur située juste devant la grille d'extraction. La pointe sera représentée par un cône.

10.2 Observation d'un champ magnétique uniforme

Considérons donc une pointe conique de 1 nm de haut ainsi qu'une grille d'extraction située à une distance de 2 nm du support métallique. La tension d'extraction sera de 8 V. L'énergie potentielle correspondant à cette situation est représentée à la figure 10.1.

Le champ d'induction magnétique est supposé uniforme entre les plans $z_0=1$ nm et $z_1=2$ nm. Il commence donc juste à l'extrémité de la pointe. Nous supposons le champ d'induction magnétique dirigé suivant les valeurs négatives de l'axe y . La symétrie de rotation, qui caractérise la pointe, est perdue à cause du champ d'induction magnétique de sorte que les simulations doivent être réalisées en prenant $n=1$. Sous l'action de la force de Lorentz, les électrons sortant de la pointe doivent donc être déviés vers la droite (c'est-à-dire dans notre repère gaucher vers les valeurs de x positives).

Lorsque les électrons extraits de la pointe arrivent à la grille, leur énergie cinétique est de $8 - 4.5 = 3.5$ eV (quand ils proviennent du niveau de Fermi dans le métal). Pour dévier ces électrons de façon significative sur une distance aussi petite que 1 nm, il faut une valeur de champ énorme. Nous avons pris un champ de 2000 Tesla. En effet, si l'énergie cinétique des électrons était partout de 3.5 eV, ils tendraient, sous l'action de ce champ, à suivre une trajectoire circulaire de 0.8 nm de rayon.

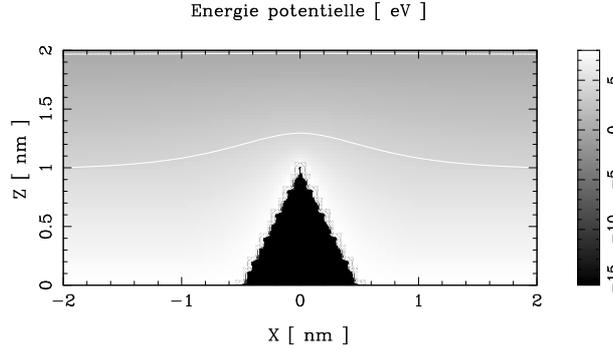


FIG. 10.1 – *Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 8 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 2 nm.*

Les simulations que nous allons réaliser avec une telle valeur de champ se situent donc en dehors de toute réalité expérimentale. Les valeurs accessibles se situent en effet autour de 30 Tesla en régime continu et 60 Tesla en régime pulsé. Des valeurs de quelques centaines de Tesla sont accessibles en comprimant le flux magnétique à l'aide d'une explosion. Ces simulations servent donc à appliquer la théorie développée au chapitre 5, dans des conditions qui ne sont pas celles rencontrées dans le Microscope à Projection de Fresnel. Ce dernier permet en effet de détecter des champs d'une valeur de 0.5 Tesla. La différence avec l'exemple présenté ici provient du fait que les champs observés s'exercent sur un espace plus grand et présentent des variations qui aident à leur détection.

Nous avons représenté à la figure 10.2 les résultats du calcul de diffusion. On constate très bien le déplacement du faisceau électronique dû à la force de Lorentz. La densité de courant locale présente en général certaines oscillations, qui ne sont pas aussi marquées que dans la densité de courant à grande distance. Les franges observées sont bien dirigées selon y , qui est la direction du champ.

Enfin il est intéressant de suivre l'évolution des densités de courant locale et à grande distance lorsque la valeur du champ est modifiée. C'est ce que nous avons illustré à la figure 10.3 où nous avons considéré des valeurs de champ de 1000, 1500 et 2000 Tesla.

On constate bien sur les figures que l'enveloppe du faisceau se déplace d'autant plus que le champ d'induction magnétique est fort. Les franges, visibles surtout dans la figure à grande distance, deviennent de plus en plus nombreuses au fur et à mesure que le champ augmente.

En utilisant le formalisme de Kirchhoff présenté au chapitre 2, il est possible d'associer à deux trajectoires traversant une zone de champ d'induction magnétique \mathbf{B} une différence de phase donnée par :

$$\Delta\xi = -\frac{e}{\hbar} \iint \mathbf{B} \cdot d\mathbf{S} \quad (10.1)$$

où l'intégrale est réalisée sur une surface s'appuyant sur les deux trajectoires.

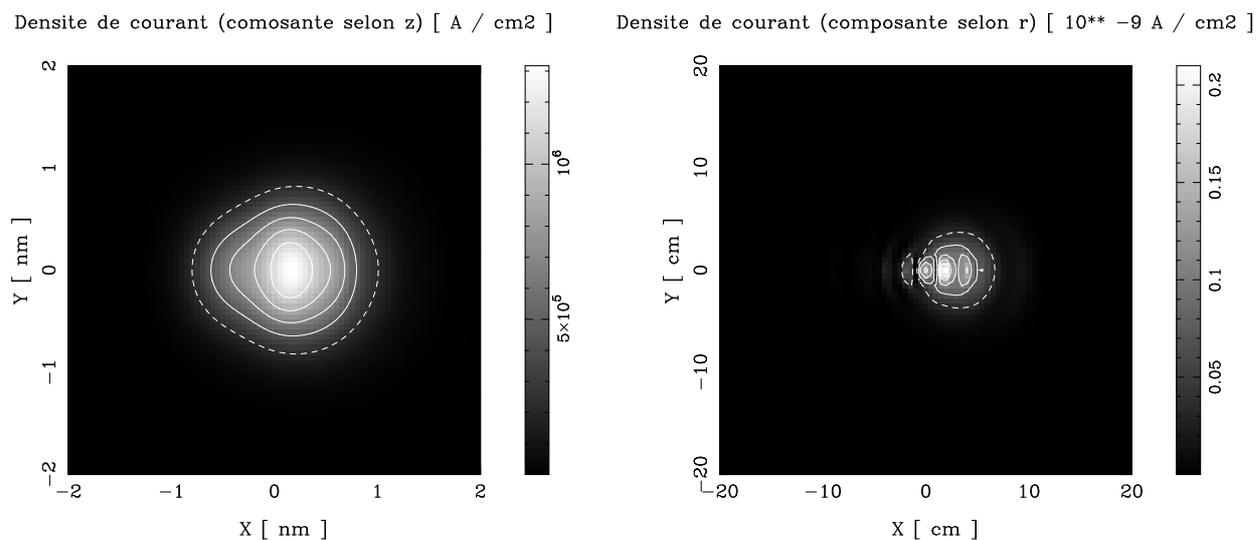


FIG. 10.2 – Densité de courant obtenue par application d'une tension de 8 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 2 nm. Un champ d'induction magnétique de 2000 Tesla orienté vers les valeurs négatives de y est présent entre les plans $z_0=1$ nm et $z_1=2$ nm. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.

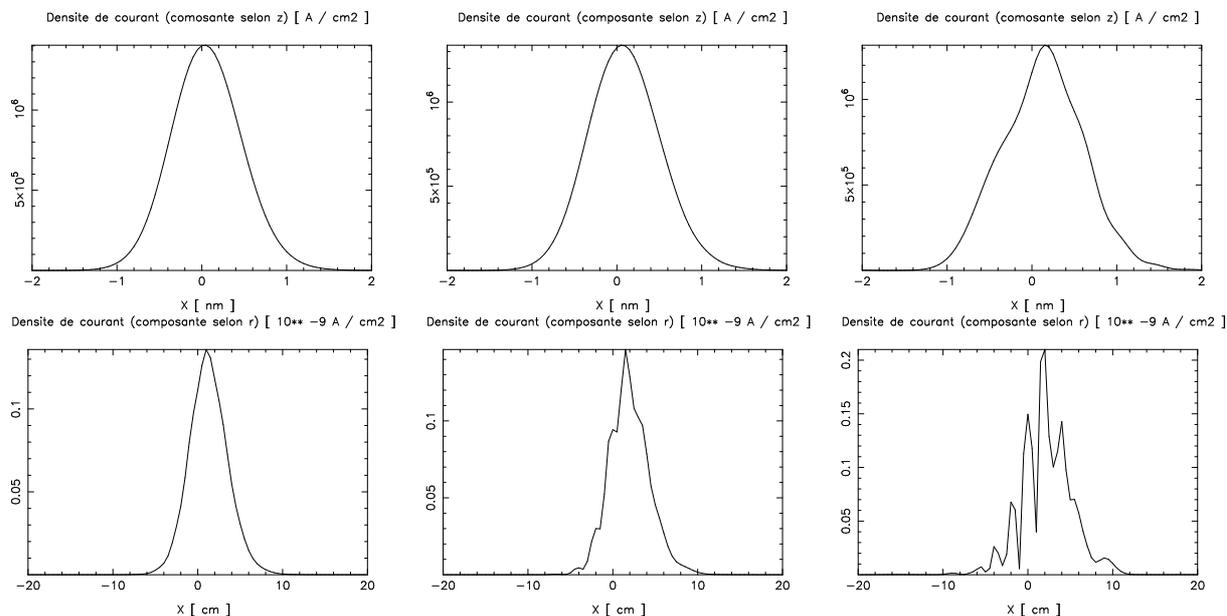


FIG. 10.3 – De gauche à droite : densité de courant obtenue sur l'axe x par application d'une tension de 8 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 2 nm. Le champ d'induction magnétique est présent entre les plans $z_0=1$ nm et $z_1=2$ nm et orienté vers les valeurs négatives de y . Il prend des valeurs respectives de 1000, 1500 et 2000 Tesla. En haut : densité de courant en $z = D$. En bas : densité de courant à l'écran.

Dans nos simulations, on peut considérer que les franges deviennent visibles à partir de 1500 Tesla. Leur écart à 10 cm est de 1.5 cm. Si nous considérons deux trajectoires hypothétiques rejoignant de manière rectiligne l'extrémité de la pointe à deux franges successives sur l'écran, elles définissent dans la zone de champ une surface de $7.5 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^2$. La différence de phase que nous pouvons leur associer prend alors la valeur de $\Delta\xi=0.17$ radian.

Nous pouvons faire ici un lien intéressant avec le Microscope à Projection de Fresnel, puisque son seuil de détection se situe autour de $\frac{2\pi}{50} = 0.13$ radian. La valeur de 0.17 radian obtenue dans nos simulations est donc relativement proche. Ce lien peut être exprimé d'une autre façon en reconsidérant les valeurs données au chapitre 1 (détection de 0.5 Tesla sur une particule magnétique de 10 nm de côté). Nous pouvons raisonnablement attribuer au champ d'induction magnétique une surface de $(15 \text{ nm})^2$. On constate alors que le produit entre la valeur du champ et la surface qui lui est associée ne change pas suivant que l'on prenne les valeurs expérimentales ou celles de notre simulation, puisque nous avons : $0.5 \times 15^2 = 1500 \times 7.5 \cdot 10^{-2}$. Ce commentaire justifie la nécessité rencontrée dans nos simulations de compenser les dimensions réduites de la zone de champ par des valeurs plus élevées.

10.3 Conclusion

Nous avons donc confirmé par un exemple académique la présence de franges de diffraction orientées suivant la direction du champ. Ces franges tendent à s'affiner et devenir plus nombreuses au fur et à mesure que son intensité augmente.

Les simulations réalisées correspondent à une situation relativement simple (champ uniforme) qui n'utilise pas toutes les possibilités offertes par les techniques développées au chapitre 5. Comme les simulations de diffraction sur barreaux, elles offrent l'avantage d'une interprétation plus aisée.

Conclusion

Le Microscope à Projection de Fresnel résulte de l'application de techniques récentes au principe d'observation par projection. Elle offre un pouvoir de résolution intéressant et la possibilité d'observer sans dégradation et sans le support perturbatif d'une surface des macromolécules biologiques. Comme toutes les techniques qui touchent au domaine quantique, un support théorique est nécessaire pour aider à comprendre les images obtenues. La possibilité d'observer des figures de type Fraunhofer et Fresnel a été bien expliquée par des modèles simples (intégrales de Kirchhoff, modèles de diffraction élémentaires, ...). Ces modèles ne tiennent cependant pas compte de l'aspect tridimensionnel des objets observés. Cet aspect est important pour justifier la différence entre les fibres dites opaques et transparentes. L'observation de ces dernières est fortement influencée par les champs électriques extérieurs, qui sont responsables du phénomène de sucking-in. L'origine des oscillations observées dans les projections de macromolécules et l'interprétation des nouvelles franges obtenues en présence de champs magnétiques sont autant de points qui nécessitent une modélisation théorique.

En principe, les méthodes développées pour la simulation du STM devraient s'appliquer à ce problème, étant donné la similarité de configuration entre les deux instruments. Même si notre problème réclame le calcul de la distribution spatiale d'une densité de courant plutôt qu'un courant total, il pourrait sembler a priori qu'une adaptation permettant la propagation des états électroniques sur une distance de plusieurs centimètres suffise.

Nous avons montré au chapitre 2 que les problèmes sont essentiellement numériques et trouvent leur origine dans les valeurs plus élevées de la tension et de la distance pointe-objet. Ces problèmes se manifestent par des exigences inacceptables en taille mémoire et en temps de calcul et surtout par une perte complète des chiffres significatifs à cause des instabilités. Il était donc nécessaire de développer une nouvelle théorie qui prenne en compte les aspects quantiques du problème et permette de gérer ces contraintes numériques. Cette théorie ne peut être appliquée sans une programmation optimale, qui gère automatiquement l'espace mémoire disponible et utilise toutes les astuces possibles pour réduire le nombre d'opérations.

Nous avons choisi d'utiliser la méthode des matrices de transfert pour décrire le plus économiquement possible la diffusion électronique entre le support de la pointe et la grille-porte-objet. L'efficacité de notre méthode est encore améliorée par l'utilisation d'une base bien adaptée à la symétrie essentiellement cylindrique du problème. Même si cette

base complique l'évaluation de certains coefficients, elle permet de profiter de la présence éventuelle d'un axe de rotation. L'avantage d'exploiter toute symétrie présente dans le problème provient de la séparation des états de base nécessaires à la représentation de la fonction d'onde en groupes indépendants. Cette séparation réduit d'une part considérablement les coefficients de couplage à calculer et d'autre part le nombre de coefficients restant à stocker simultanément. Dans le problème considéré, la symétrie de rotation était celle permettant de scinder les états de base en un nombre maximum de groupes indépendants. On pourrait envisager pour d'autres problèmes d'exploiter d'autres symétries (plans de symétrie,...). Notre base de représentation étant complète, il suffirait d'utiliser la théorie des groupes pour déterminer à l'avance les groupes ou associations d'états de base qui fourniraient des ensembles indépendants. Les problèmes d'instabilités liés à la technique des matrices de transfert sont contrôlés par un estimateur d'erreur qui permet de suivre la précision des grandeurs tout au long du calcul et de l'estimer à l'avance. Par ailleurs, la stabilité de l'étape de propagation des états de base est assurée par une technique nouvelle, dont la précision repose sur le calcul (très fiable) de valeurs et vecteurs propres. Enfin, la propagation à grande distance des fonctions d'onde est réalisée en combinant la méthodologie des matrices de transfert avec celle des fonctions de Green. Cette combinaison de deux formalismes est un progrès majeur, car elle permet d'exploiter simultanément les avantages spécifiques de deux théories jusqu'ici indépendantes.

Notre théorie de diffusion a été appliquée à une situation caractérisée par un métal séparé d'une grille conductrice, elle-même suivie d'un écran à 10 cm. Le métal est supposé ici être un métal d'électrons libres, caractérisé par des valeurs à fournir de l'énergie de Fermi et du travail d'extraction. Ces deux valeurs peuvent être modifiées pour représenter différents matériaux. L'espace entre ce métal et la grille d'extraction peut contenir une distribution d'énergie potentielle et de champs magnétiques quelconque. Il suffit d'en préciser les valeurs sur une grille discrète. Nous avons supposé l'absence de champ entre la grille d'extraction et l'écran à 10 cm. Cela permet une propagation analytique aisée dans le formalisme de Green. Mettre une tension entre la grille et l'écran nécessiterait d'exprimer les fonctions de Green sous la forme d'une combinaison de fonctions d'Airy. Cela compliquerait la méthode pour fournir en fin de compte des résultats qualitativement identiques.

Notre méthode permet donc un calcul de diffusion quantique, pour chaque état incident dans le métal, à travers l'espace compris entre ce métal et un écran à 10 cm. Les équations de propagation sont écrites de manière à tenir compte d'une distribution d'énergie potentielle quelconque. Nous l'avons calculée de manière à tenir compte de la présence de l'électron. La méthode gère également les parties imaginaires du potentiel, que nous avons introduites pour représenter le phénomène d'absorption électronique. Cette nouveauté par rapport aux travaux précédents est complétée par la possibilité de traiter des distributions quelconques de champs magnétiques. Cette interaction entre l'électron et le champ magnétique n'inclut ici que la force de Lorentz. Le spin de l'électron pourra être introduit dans un travail ultérieur. Cela devrait nous aider à comprendre la division du faisceau électronique lors de l'utilisation de pointes magnétiques. Nous devons pour y parvenir doubler les états de base pour représenter les deux états de spin possibles et introduire un terme supplémentaire dans l'hamiltonien. Les changements dans la méthode que cela représente semblent tout à

fait abordables. Les résultats s'expriment en fin de compte par des distributions en valeurs absolues de la densité de présence et de la densité de courant dans la région proche de la grille d'extraction et sur un écran éloigné.

En plus de l'incorporation du spin de l'électron, notre méthode pourra être améliorée sur plusieurs points. Bien qu'elle ne requiert que des valeurs de l'énergie potentielle et des champs magnétiques sur des grilles représentatives des parties où elles varient de manière significative et traite les parties intermédiaires (où l'énergie potentielle est supposée linéaire) de façon analytique, le nombre d'états de base nécessaires augmente avec la distance entre le support métallique de la pointe et la grille d'extraction. La raison provient du fait que le faisceau extrait doit être contenu dans le cylindre de confinement et qu'il grandit au fur et à mesure de sa propagation vers la grille. Ceci est un inconvénient par rapport au formalisme de Green, dont l'application n'est en rien affectée par la distance entre les parties significatives. Une possibilité de traiter cette situation pourrait consister à conserver uniquement les états de base qui prennent des valeurs significatives sur l'objet et à propager les autres (qui ne verraient qu'une barrière essentiellement triangulaire) analytiquement. Enfin, notre méthode est bien adaptée aux techniques de programmation en parallèle, puisque les groupes d'états de base caractérisés par des valeurs d'énergie E et d'indices m qui ne sont pas séparés par un multiple de n se propagent de façon indépendante. Par ailleurs, il est possible de traiter séparément la propagation à travers les différentes tranches utilisées pour diviser l'espace entre le métal et la grille.

Dans sa forme actuelle, notre théorie peut contribuer à améliorer les techniques que nous avons jugées mal adaptées à la simulation du Microscope à Projection de Fresnel. La technique des matrices de transfert peut profiter surtout des méthodes de contrôle de stabilité développées dans cette dissertation et de notre généralisation aux formes rectangulaires. La combinaison avec le formalisme de Green utilisée ici pourra être employée dans d'autres situations où un prolongement des solutions est nécessaire. Dans les simulations de STM, nos techniques permettront de traiter des distances pointe-échantillon plus élevées, d'introduire de l'absorption dans le système et éventuellement de simuler l'observation de particules magnétiques. Même si les symétries sont en général perdues au cours du balayage de la pointe, notre formulation du problème en coordonnées cylindriques permet un traitement qui demande moins d'espace mémoire et un temps de calcul réduit¹. Le temps total de ce traitement est proportionnel à $DR^2E^{3/2}$, si une inversion de système est utilisée

1. En effet, pour un traitement en coordonnées cartésiennes de la diffusion de particules d'énergie E dans une boîte de côté $2R$ et de longueur D , le nombre d'états de base $n_{x,y}$ et le temps $t_{x,y}$ nécessaire au calcul des coefficients de couplage par transformées de Fourier rapides (pour une position donnée suivant D) sont respectivement proportionnels à ER^2 et $n_{x,y} \ln n_{x,y}$. Une description en coordonnées cylindriques du même problème dans un cylindre de rayon R demande le même nombre d'états de base si toutes les valeurs possibles de m et $k_{//}$ sont retenues. En pratique, il est possible de travailler avec un ensemble de valeurs de m restreint (typiquement de -10 à +10). Le nombre d'états de base $n_{\rho,\phi}$ nécessaires et le temps $t_{\rho,\phi}$ nécessaire au calcul des coefficients de couplage (pour une position donnée suivant D) se réduisent alors respectivement à des valeurs proportionnelles à $RE^{1/2}$ et $n_{\rho,\phi}^2$. Cette méthode est asymptotiquement plus rapide puisque $t_{x,y} \sim n_{\rho,\phi}^2 \ln(n_{\rho,\phi}^2) \sim t_{\rho,\phi} \ln t_{\rho,\phi}$.

pour calculer la diffusion d'un seul état incident, et à DR^3E^2 si une inversion de matrice est nécessaire.

La technique des fonctions de Green peut être améliorée en remplaçant le calcul de la fonction d'onde dans le diffuseur par celui de matrices de transfert, lorsque les conditions limites le permettent. Si nous considérons le calcul de diffusion précédent et si tout le volume doit être discrétisé pour l'application de la méthode des fonctions de Green, le nombre de cellules à considérer varie comme $DR^2E^{3/2}$. La taille de la matrice à créer ainsi que le temps nécessaire pour la créer et résoudre le système correspondant à un seul état incident auront une dépendance en $D^2R^4E^3$. Lorsqu'il est nécessaire d'inverser la matrice, le temps de calcul devient proportionnel à $D^3R^6E^{9/2}$. Utiliser la méthodologie des matrices de transfert pour remplacer le calcul de la fonction d'onde dans le diffuseur est donc intéressant. Signalons enfin que même si la méthode des matrices de transfert ne fournit en général aucune valeur de la fonction d'onde dans le diffuseur, il est possible de compléter la méthode pour obtenir ces valeurs.

Les théories d'émission de champ et l'étude des solides peuvent également tirer parti du caractère tridimensionnel de notre description et de la possibilité de traiter facilement la périodicité dans une direction grâce à l'algorithme des tranches. On peut par ailleurs envisager d'appliquer notre technique à l'étude de la conductivité de molécules, qui seraient placées suivant l'axe du cylindre de confinement.

La géométrie et l'énergie potentielle utilisées dans nos simulations appellent quelques commentaires. Nous avons utilisé essentiellement une pointe conique de 1 nm de haut posée sur un support plat. La hauteur de 1 nm suffit pour représenter la dernière région rencontrée par l'électron avant son passage tunnel à travers la barrière de potentiel. La forme conique permet de restituer les caractéristiques essentielles d'un faisceau extrait d'une nanopointe. La géométrie plane du support métallique détermine l'énergie potentielle et donc la diffusion électronique à partir de quelques nanomètres. Nous pouvons cependant remédier à cette situation en prenant comme distribution d'énergie potentielle entre le support métallique et la grille d'extraction celle que l'on aurait pour un support métallique sphérique.

Nous avons présenté plusieurs méthodes pour calculer l'énergie potentielle. La méthode de sur-relaxation convient très bien pour une description macroscopique de la matière. La méthode dipolaire est une première approche pour représenter la structure atomique. Enfin, nous avons présenté un modèle de nuages électroniques gaussiens qui s'appuie sur ces deux premières méthodes et améliore la représentation de la matière. Le développement de ces méthodes doit cependant être poursuivi, en particulier pour tenir compte de la mobilité des électrons de conduction, qui dans notre modèle restent attachés aux noyaux. La structure de bandes observée dans la distribution d'énergie totale des électrons extraits d'une nanopointe n'a pas été mise en évidence clairement dans nos simulations. Même si un tel résultat n'est pas indispensable pour une modélisation du Microscope à Projection de Fresnel, il semble qu'il nécessite une meilleure modélisation de l'énergie potentielle.

Des simulations d'émission de champ à partir de pointes atomiques ont été réalisées. Nous avons reproduit des valeurs d'angle d'ouverture en accord avec les valeurs estimées avant l'influence du support métallique. Nous avons montré la faible dispersion énergétique des électrons extraits et obtenu des distributions d'énergie totale similaires à celles obtenues avec des nanopointes de petite taille. L'importance de la terminaison monoatomique des nanopointes a été établie en étudiant les modifications induites par une dégradation de la source électronique sur les figures de diffraction obtenues avec une ouverture circulaire.

Des simulations de diffraction sur fibres de carbone ont été réalisées. Elles confirment la possibilité d'obtenir des figures de type Fraunhofer ou Fresnel selon les conditions d'observation, en accord avec les conclusions obtenues avec des modèles plus simples. Le faisceau extérieur à la fibre joue un rôle important dans la formation de l'image. Nous avons mis cela en évidence lors de l'interprétation des images de type Fraunhofer obtenues avec des fibres transparentes. Cette constatation est triviale lorsque la fibre est opaque. Nous avons montré comment les propriétés de la matière peuvent influencer l'image à grande distance. La polarisation est responsable de l'effet de sucking-in, qui influence d'autant plus l'image que la fibre est petite. La valeur du travail d'extraction dans la fibre peut être associée à des résonances qui modifient de manière importante la figure de diffraction. Nous avons montré que l'absorption dans la fibre n'entraîne pas obligatoirement une projection noire. Il est intéressant de constater que des oscillations peuvent apparaître dans les images à grande distance sans qu'elles ne soient présentes dans l'énergie potentielle ou la densité de courant locale.

Les simulations réalisées en considérant la structure atomique de la matière illustrent également les modes Fraunhofer et Fresnel ainsi que l'effet de sucking-in. Même si la densité de courant locale présente des informations sur la structure atomique de la molécule étudiée, la densité de courant à grande distance dans les simulations réalisées ne décrit que l'aspect global de la molécule. Les calculs semblent montrer que l'information sur la structure atomique ressort d'autant plus dans l'énergie potentielle que l'énergie des électrons incidents est élevée. Il semblerait donc que la taille des détails observables diminue en même temps que le pouvoir de résolution lorsque la tension d'extraction augmente.

Les simulations avec champs magnétiques montrent bien l'existence de franges orientées suivant les lignes de champ et espacées de manière régulière lorsqu'il est uniforme. Leur nombre tend à augmenter avec son intensité.

A part les possibilités d'amélioration de la méthode de diffusion déjà mentionnées, il semble que les progrès à réaliser se situent momentanément surtout dans le calcul de l'énergie potentielle.

La technique expérimentale pourrait évoluer vers l'utilisation de nouvelles structures émettrices (pointes super-conductrices, émission à partir de tubules de carbones, ...). A la lumière de nos simulations, il nous semble que ces nouvelles pointes ne feront qu'accroître l'intensité du faisceau extrait sans pour autant améliorer la résolution de l'instrument. Les longueurs de cohérence et le degré de symétrie de l'extrémité de la nanopointe sont en effet déjà suffisantes pour laisser uniquement la diffraction limiter la résolution.

Si la séparation du faisceau constatée lors de l'utilisation de pointes magnétiques s'avérait liée au spin, on aurait la possibilité d'observer le même objet avec deux faisceaux préparés dans un état de spin différent. Il est probable que de nouvelles informations puissent être déduites de la comparaison des images ainsi obtenues. L'utilisation simultanée des deux faisceaux pourrait s'avérer intéressante aussi. On peut imaginer qu'un certain degré de cohérence entre ces faisceaux puisse être atteint grâce à l'utilisation de nanopointes supra-conductrices (et d'une particule extérieure pour produire le champ magnétique nécessaire à la séparation du faisceau).

Les trous dans la membrane de carbone opèrent une certaine sélection sur la taille des molécules observables, puisqu'elles doivent être grandes assez pour les enjamber. Par ailleurs, leur orientation n'est pas nécessairement perpendiculaire au faisceau. On pourrait envisager l'utilisation de supports carbonés transparents au faisceau électronique et qui permettent de manipuler des molécules plus petites, dans une orientation déterminée.

On peut enfin imaginer des applications basées sur les possibilités de manipuler et d'exciter un échantillon durant son observation. Ces évolutions possibles de la technique laissent de nombreuses portes ouvertes à de futurs développements. Une technique d'inversion qui reconstituerait l'objet observé à partir des images à grande distance constitue un fameux défi.

Malgré ce que l'on pourrait penser a priori, une méthode de simulation comme celle présentée dans cette dissertation ne fournit pas de réponse simple à la question "Que se passe-t-il?". Les détails de la diffusion sont noyés dans des calculs qui durent parfois des heures. L'ordinateur fournit finalement une image qui laisse certainement aussi perplexe que celles fournies par l'instrument lui-même. Les doutes concernant un éventuel artefact expérimental et les parasites extérieurs trouvent leur équivalent dans les artefacts liés à la méthode, les erreurs de programmation, les erreurs d'arrondis, l'importance des facteurs négligés. Notre avantage devant tout résultat est de savoir exactement quelle situation en est à l'origine. Pour nous aider à les comprendre, la méthode peut nous fournir des informations en des lieux inaccessibles expérimentalement. En dernier ressort, un modèle plus simple peut nous aider et vérifier l'exactitude de nos interprétations. Même si la théorie précède parfois l'expérience, l'utilité de notre méthode est surtout de nous aider à comprendre les résultats expérimentaux en les comparant à ceux obtenus dans une situation idéale, où nous avons mis les éléments que nous croyons nécessaires à l'explication.

Comme dans le mythe de Sisyphe, notre tâche de compréhension reprend là où elle croyait trouver une fin. Chaque réponse ouvre la porte à une série de nouvelles questions. Sans doute est-ce bon signe si cette dissertation ouvre notre esprit à de nouvelles questions et nous pousse à explorer de nouvelles pistes. Nous espérons que ce travail contienne certaines réponses et puisse nous aider à avancer vers de nouvelles voies.

Bibliographie

- [1] G.L. Trigg, *Encyclopedia of Applied Physics* (5), 453
- [2] S.Leisegang, *Handbuch der Physik* (PH XXXIII: Optics of Corpuscles) 397
- [3] C.J. Chen, *Introduction to Scanning Tunneling Microscopy*, Oxford Series in Optical and Imaging Sciences (Oxford Univ. Press, New York, 1993)
- [4] G. Binnig and H. Rohrer, *Helv. Phys. Acta* **55**, 726 (1982)
- [5] H.J. Juretschke, *Phys. Rev* **92** (5), 1140 (1953)
- [6] D.J. BenDaniel and C.B. Duke, *Phys. Rev.* **152** (2), 693 (1966)
- [7] G.A. Morton and E.G. Ramberg, *Phys. Rev.* **56**, 705 (1939)
- [8] H. Boersch, *Z. techn. Phys.* **20**, 346 (1939)
- [9] A.J. Melmed, *Appl. Phys. Lett.* **12**, 100 (1968)
- [10] A. Piquet, H. Roux, V.T. Binh, R. Uzan and M. Drechsler, *Revue de Physique Appliquée* **105** (1970)
- [11] E.W. Muller, 15th Field Emission Symposium Bonn 1968; E.W. Muller and T.T. Tsong, *Field Ion Microscopy: Principle and Applications* (Elsevier Pub. Co., New York, 1969)
- [12] H.W. Fink, *Phys. Scr.* **38**, 260 (1988)
- [13] H.W. Fink, H. Schmid, H.J. Kreuzer and Andrzej Wierzbicki, *Phys. Rev. Lett.* **67** (12) (1991)
- [14] H.W. Fink, W. Stocker and H. Schmid, *Phys. Rev. Lett.* **65** (10) 1204 (1990); H.W. Fink, *La Recherche* **22** (234), 964 (1991)
- [15] H. Schmid, H.W. Fink and J. Kreuzer, *J. Vac. Sci. Technol. B* **13** (6), 2428 (1995)
- [16] H.J. Kreuzer, A. Wierzbicki, M.G.A. Crawford and C.B. Roald *Nanosources and Manipulation of Atoms under High Fields and Temperatures: Applications.* (V.T. Binh et al.) 35 (Kluwer Academic Publishers, Netherlands, 1993).
- [17] V.T. Binh and Garcia, *J. Phys. I* **1**, 605 (1991)
- [18] V.T. Binh, N. Garcia, S.T. Purcell and V. Semet, *Nanosources and Manipulation of Atoms Under High Fields and Temperatures: Applications* (Kluwer Academic Publishers, Netherlands, 1993)
- [19] V.T. Binh, *J. Microsc.* **152**, 355 (1988)
- [20] V.T. Binh and N. Garcia, *Ultramicroscopy* **42-44** 80 (1992); H.W. Fink, *Ultramicroscopy* **50**, 101 (1993); V.T. Binh and N. Garcia, *Ultramicroscopy* **50**, 103 (1993)

- [21] V.T. Binh and S.T. Purcell, Appl. Surf. Sc. **111**, 157 (1997)
- [22] N. Garcia, J.J. Saenz and H. De Raedt, J. Phys.: Condens. Matter **1**, 9931 (1989)
- [23] H. De Raedt and K. Michielsen, *Nanosources and Manipulation of Atoms Under High Fields and Temperatures: Applications* 45 (V.T. Binh, Kluwer Academic Publishers, Netherlands, 1993)
- [24] V.T. Binh, S.T. Purcell, N. Garcia and J. Dogliani, Phys. Rev. Lett. **69** (17), 2527 (1992)
- [25] V.T. Binh, S.T. Purcell and N. Garcia, Phys. Rev. Lett. **70** (16) (1993)
- [26] N. Garcia, V.T. Binh and S.T. Purcell, Surf. Sc. Lett. **293**, L884 (1993)
- [27] R.D. Young, Phys. Rev. **113**, 110 (1959)
- [28] J.W. Gadzuk, Phys. Rev. B **1**, 2110 (1970)
- [29] M.E. Lin, R. Reifengerger, A. Ramachandra and R.P. Andres, Phys.Rev. B **46**, 15468 (1992)
- [30] M.E. Lin, R.P. Andres, R. Reifengerger and D.R. Huffman, Phys.Rev. B **47**, 7546 (1993)
- [31] F. Gautier, H. Ness and D. Stoeffler, Ultramicroscopy **42-44**, 91 (1992)
- [32] W.B. Nottingham, Phys. Rev. **59**, 908 (1941)
- [33] N.M. Miskovsky, S.H. Park, J. He and P.H. Cutler, J. Vac. Sci. Technol. B **11** (2), 366 (1993)
- [34] V.T. Binh, S.T. Purcell, G. Gardet and N. Garcia, Surf. Sc. Lett. **279**, 197 (1992)
- [35] V.T. Binh, S.T. Purcell, G. Gardet and N. Garcia, *Atomic and Nanometer-Scale Modification of Materials: Fundamentals and Applications*. (P. Avouris, Kluwer Academic Publishers, Netherlands,1993) 121
- [36] D. Atlan, G. Gardet, V.T. Binh, N. Garcia and J.J. Saenz, Ultramicroscopy **42-44**, 154 (1992)
- [37] S.T. Purcell, V.T. Binh, N. Garcia, M.E. Lin, R.P. Andres and R. Reifengerger, Phys. Rev. B **49** (24), 17259 (1994)
- [38] V.T. Binh and N. Garcia, Surf. Sc. Lett. **320**, L69 (1994)
- [39] V.T. Binh and V. Semet, Ultramicroscopy (1998)
- [40] S.T. Purcell, V.T. Binh and N. Garcia, Appl. Phys. Lett. **67**, 436 (1995)
- [41] M.R. Scheinfein, W. Qian and J.C.H. Spence, J. Appl. Phys. **73** (5), 2057 (1993)
- [42] N. Garcia and H. Rohrer, J. Phys.: Condens. Mat. **1**, 3737 (1989)
- [43] V.T. Binh, V. Semet and N. Garcia, NATO-ARW on "Scanning Probe Microscopies and Molecular Materials (J.P. Babe, Kluwer Eds, 1994)
- [44] V.T. Binh, N. Garcia and V. Semet, Phil. Trans. R. Soc. Lond. 1 **353**, 281 (1995)
- [45] V.T. Binh, S.T. Purcell and V. Semet, Sciences et Techniques **282** (1996)
- [46] D.J. Rose, J. Appl. Phys. **27**, 215 (1956)
- [47] V.T. Binh, V. Semet, S.T. Purcell and F. Feschet, Scanning Microscopy (Bethesda-USA, 1996)

- [48] A. Rose, *Adv Electronics and Electron Physics* **1**, 131 (1948)
- [49] M.P. Silverman, W. Strange and J.C.H. Spence, *Am. J. Phys.* **63** (9), 800 (1995)
- [50] J.B. Pendry *Low Energy Electron Diffraction* (Academic Press, London and New York, 1974)
- [51] M.P Seah and W.A. Dench, NPL Report Chem **82** (April 1978), Quantitative electron spectroscopy of surfaces - a standard data base for electron inelastic mean free paths in solids
- [52] C. Kittel, *Physique de l'état solide* 5ième édition (Dunod Université, 1990)
- [53] V.T. Binh, S.T. Purcell, V. Semet and F. Feschet, *Nanotips and Nanomagnetism* (ASCI-4, Tokyo, 1997)
- [54] V.T. Binh, S.T. Purcell, V. Semet and F. Feschet, *Appl. Phys. Lett.* **72** (8) (1998)
- [55] M. Devel, C. Girard, C. Joachim and O.J.F. Martin, *Appl. Sur. Sci.* **87/88**, 360 (1995)
- [56] M. Devel, C. Girard and C. Joachim, *Phys. Rev. B* **53** (19), 13159 (1996)
- [57] R.H. Fowler and L. Nordheim, *Proc. Roy. Soc. (London)* **A119**, 173 (1928)
- [58] R.E. Burgess, H. Kroemer and J.M. Houston, *Phys. Rev. B* **90** (4), 515 (1953)
- [59] R.H. Good and E.W. Müller, *Handbuch der Physik* **21**, 176 (1956)
- [60] E.L. Murphy and R.H. Good, *Phys. Rev.* **102** (6), 1464 (1956)
- [61] R.D. Young, *Phys. Rev.* **113** (1), 110 (1959)
- [62] R. Stratton, *Phys. Rev.* **153** (3A), 794 (1964)
- [63] L.W. Swanson and L.C. Crouser, *Phys. Rev.* **163** (3), 622 (1967)
- [64] D. Nagy and P.H. Cutler, *Phys. Rev.* **186** (3), 651 (1969)
- [65] J.W. Gadzuk and E.W. Plummer, *Rev. Mod. Phys.* **45** (3), 487 (1973)
- [66] P.H. Cutler, J. He, N.M. Miskovsky, T.E. Sullivan and B. Weiss, *J. Vac. Sci. Techn. B* **11** (2), 387 (1993)
- [67] K.L. Jensen and E.G. Zaidman, *J. Vac. Sci. Technol. B* **12** (2), 776 (1994)
- [68] V.T. Binh, V. Semet and N. Garcia, *Ultramicroscopy* **58**, 307 (1995)
- [69] V.T. Binh, V. Semet, N. Garcia and L. Bitar *M. Nieto-Vesperinas and N. Garcia (eds.), Optics at the Nanometer Scale.*, 277 (IBM, Netherlands, 1996)
- [70] P. Morin, M. Pitaval and E. Vicario, *Phys. Rev. Lett.* **76** (21), 3979 (1996)
- [71] J.W Goodman, *Introduction to Fourier Optics* McGraw-Hill Physical and Quantum Electronics Series (McGraw-Hill, New-York, 1968)
- [72] Y. Aharonov and D. Bohm, *Phys. Rev.* **115**, 485 (1959)
- [73] E. de Prunele, *J. Phys. A* **30**, 7831 (1997)
- [74] L. Rodberg and R. Thaler, *Introduction to the Quantum Theory of Scattering* (Academic Press, New York, 1967), ch. 5
- [75] G.B. Arfken and H.J. Weber, *Mathematical Methods for Physicists*, 4th ed. (Academic Press, New York, 1995), ch. 16; pp 74, 649
- [76] C. Adessi, *Courant tunnel et effets d'émission de champ dans des systèmes mésoscopiques de basse symétrie.* (mémoire de DEA, Université de Franche-Comté-Besançon, 1997)

- [77] A. Mayer, *Etude de la diffraction de Fresnel électronique appliquée au microscope à ombre*. (mémoire de licence, Facultés Universitaires Notre-Dame de la Paix, Namur, 1995)
- [78] H.J. Kreuzer, K. Nakamura, A. Wierzbicki, H.W. Fink and H. Schmid, *Ultramicroscopy* (1993)
- [79] Ch. Girard, A. Dereux and O.J.F. Martin, *Surf. Sci.* **295**, 445 (1993)
- [80] O. J.F. Martin, C. Girard and A. Dereux, *Phys. Rev. Lett.* **74** (4), 526 (1995)
- [81] J. Schiotz and A.E. Carlsson, *Phys. Rev. B* **56** (5), 2292 (1997)
- [82] C. Bracher, M. Riza and M. Kleber, *Phys. Rev. B* **56** (12), 7704 (1997)
- [83] J. Cerda, M.A. Van Hove, P. Sautet and M. Salmeron, *Phys. Rev. B* **56** (24), 15885 (1997)
- [84] A. Mayer, A. Castiaux and J.-P. Vigneron, *Comp. Phys. Comm.* **109**, 81 (1998)
- [85] G.H. Golub and C.F. Van Loan *Matrix Computation.*, 3rd ed. (The Johns Hopkins University Press, 1996)
- [86] Van Loan CF *Computational Frameworks for the Fast Fourier Transform* (SIAM, Philadelphia, PA, 1992)
- [87] A.A. Lucas, H. Morawitz, G.R. Henry, J.P. Vigneron, P. Lambin, P.H. Cutler and T.E. Feuchtwang, *Phys. Rev. B* **37** (18), 10708 (1988)
- [88] T. Laloyaux, A.A. Lucas, J.-P. Vigneron, P. Lambin and H. Morawitz, *J. of Micr.* **152** (1), 53 (1988)
- [89] T. Laloyaux, J.-P. Vigneron, P. Lambin, I. Derycke and A.A. Lucas, *Int. J. of Quant. Chem.* **45**, 637 (1993)
- [90] T. Laloyaux, I. Derycke, J.-P. Vigneron, P. Lambin and A.A. Lucas, *Phys. Rev. B* **47** (12), 7508 (1993)
- [91] J.P. Vigneron, I. Derycke, T. Laloyaux, P. Lambin and A.A. Lucas, *Scann. Micr. Supp.* **7**, 261 (1993)
- [92] I. Derycke, *Application de la Diffusion élastique Tridimensionnelle au Calcul des images obtenues par Microscopie à Effet Tunnel* (thèse de doctorat, Facultés Universitaires Notre-Dame de la Paix, Namur, 1993)
- [93] A. Mayer and J.-P. Vigneron, *J. Phys. : Cond. Mat.* **10** (4), 869 (1998)
- [94] A. Mayer and J.-P. Vigneron, *Phys. Rev. B* **56** (19), 12599 (1997)
- [95] J.B. Pendry and A. MacKinnon, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2272 (1992)
- [96] J.B. Pendry, *J. of Modern Optics* **41** (2), 209 (1994)
- [97] G.N. Watson *Theory of Bessel Functions* 2nd edn (Cambridge University Press, Cambridge, 1966)
- [98] G.B. Arfken and H.J. Weber, *Mathematical Methods for Physicists*, 4th ed. (Academic Press, New York, 1995)
- [99] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling and B.P. Flannery, *Numerical Recipes in Fortran* (Cambridge University Press, 1992), p. 99

-
- [100] J.D. Jackson *Classical Electrodynamics* Second Edition (John Wiley & Sons, New York, 1962) p. 427 ; p. 141
- [101] M. Schatzman *Analyse Numerique. Cours et exercices pour la licence.* (InterEditions, Paris, 1991)
- [102] R.G. Forbes, Z. für Phys. Chemie **202**, 139 (1997)
- [103] R.G. Forbes, Appl. Phys. Lett. **36**, 739 (1980)
- [104] R. Rodney and T.P. Russel, At. Data **3**, 195 (1971)
- [105] E.D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic, London, 1985)
- [106] W.E. Forsythe, *Smithsonian Physical Tables* (9th edn) (Smithsonian Institution, Washington, 1954) pp 427, 635
- [107] A. Mayer, *Diffusion élastique tridimensionnelle par matrices de transfert appliquée à la simulation du Microscope à Projection de Fresnel.* (mémoire de DEA, Facultés Universitaires Notre-Dame de la Paix, Namur, 1998)
- [108] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu and F. Laloë, *Mécanique quantique* (Hermann, Paris, 1973)
- [109] P.A. Graviil, M. Devel, P. Lambin, X. Bouju, C. Girard, A.A. Lucas, Phys. Rev. B **53** (3), 1622 (1996).

Table des figures

1.1	Principe de la microscopie à projection.	8
1.2	Distribution d'énergie totale à deux pics caractérisant l'émission de champ à partir d'une nanopointe. Cette figure illustre le décalage en énergie induit par une modification de la tension appliquée entre le support de la nanopointe et une anode sphérique à 3 cm.	11
1.3	Modèle simplifié de l'émission de champ par une nanopointe, résultant d'un effet tunnel résonnant à travers les bandes localisées dans la région terminale de la pointe, illustré pour deux valeurs différentes de la tension.	12
1.4	Modification de la température d'une nanopointe en fonction du courant extrait.	13
1.5	Modification de la température de la nanopointe en fonction de la tension appliquée entre son support et une anode sphérique à 3 cm.	14
1.6	Effet du confinement électronique résultant en un point de projection virtuel V différent du centre de courbure C de l'extrémité de la nanopointe.	18
1.7	Limite de résolution due à la diffraction pour un champ électrique proche de sa valeur critique ($1 \text{ V}/\text{Å}$).	20
1.8	De haut en bas : figure de diffraction de type Fresnel obtenue avec une fibre de carbone de 1.4 nm de diamètre ; une simulation par le formalisme de Kirchhoff ; la projection géométrique, à partir de la source virtuelle, du modèle servant à la simulation. La tension est de 300 V.	22
1.9	Séparation d'une fibre de carbone épaisse (opaque) en deux fibres fines (transparentes).	23
1.10	Diffractogramme d'une superstructure formée par des polymères provenant d'un mélange de polysulfone de bis-phenol-A (95 %) et de polyvinylpyrrolidone (5 %).	24
1.11	Image d'un agrégat de particules magnétiques.	25
2.1	Géométrie du système source-objet-écran.	28
3.1	Disposition des trois régions intervenant dans notre modèle.	39
3.2	Energie potentielle dans les trois régions du modèle.	40
3.3	Hypothèse de confinement dans les régions I et II.	43

5.1	Chemin utilisé pour relier le point $(0,0,z_1)$ au point (ρ,ϕ,z) . La zone de champs magnétiques est comprise entre les plans $z = z_0$ et $z = z_1$	85
6.1	Ouverture circulaire faisant apparaître deux régions caractérisées par des états de base en nombres différents.	89
6.2	Principe de l'algorithme des tranches.	104
6.3	Barrières de potentiel avec hauteurs différentes et conséquences sur la réflexion des états incidents.	107
6.4	Erreur relative sur le calcul des matrices de transfert en fonction du nombre de tranches utilisées. Les valeurs suivantes ont été utilisées : $V = 25$ eV, $D = 4$ nm, $cond(P) = 10$, $n_{bit}=53$ (double précision).	110
6.5	Erreur relative cumulée sur le calcul des matrices de transfert en fonction de la profondeur dans la barrière, pour 1 tranche (ligne supérieure) et 20 tranches (courbe inférieure). Les valeurs suivantes ont été utilisées : $V = 25$ eV, $D = 4$ nm, $cond(P) = 10$, $n_{bit}=53$ (double précision).	111
6.6	Erreur relative sur le calcul des matrices de transfert en fonction du nombre de tranches utilisées, pour un nombre d'états restreints. Les valeurs suivantes ont été utilisées : $V = 25$ eV, $D = 4$ nm, $\Delta E = 10$ eV, $cond(P) = 10$, $n_{bit}=53$ (double précision).	112
6.7	De gauche à droite et de haut en bas, calcul de la densité de courant sur la grille porte-objet supportant une fibre de carbone de 0.8 nm et située à 4 nm du support métallique de la pointe. La tension d'extraction est de 25 V. Les calculs sont réalisés respectivement sans subdivision en tranches, avec 2 tranches, 3 tranches et 400 tranches.	113
6.8	Erreur relative sur le calcul des matrices de transfert en fonction du nombre de tranches utilisées obtenue en considérant la hauteur locale de la barrière de potentiel dans chaque tranche. Les valeurs suivantes ont été utilisées : $V = 25$ eV, $D = 4$ nm, $cond(P) = 10$, $n_{bit}=53$ (double précision).	114
7.1	Observation par Field Ion Microscopy et désorption progressive des couches terminales d'une nanopointe.	116
7.2	De gauche à droite et de haut en bas, position des atomes de tungstène dans une nanopointe à quatre couches. Les plans atomiques représentés sont situés respectivement en $z = 13$ pm, 104 pm, 195 pm et 287 pm.	117
7.3	Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 15 V est appliquée entre le support métallique d'une nanopointe à quatre couches et une grille située à 3 nm.	122
7.4	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 15 V entre le support métallique d'une nanopointe à 4 couches et une grille à 3 nm. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.	122

7.5	Densité de courant (composante selon z) sur la grille d'extraction. Elle résulte de l'application d'une tension de 15 V sur les 3 nm qui séparent cette grille du support métallique d'une nanopointe à 4 couches.	123
7.6	Distribution d'énergie totale des électrons extraits d'une nanopointe à quatre couches. Une tension de 15 V est appliquée entre le support de la nanopointe et une grille d'extraction à 3 nm.	124
7.7	Distribution d'énergie totale des électrons extraits d'une pointe build-up (1) et de nanopointes de hauteur croissante (2-4).	124
7.8	Distribution d'énergie totale des électrons extraits d'une nanopointe à quatre couches, décrite par un ensemble de dipôles. Des tensions (de gauche à droite) de 10, 15 et 20 V sont appliquées entre le support de la nanopointe et une grille d'extraction à 3 nm.	125
7.9	Distribution d'énergie totale des électrons extraits d'une nanopointe à quatre couches, décrite par un ensemble de charges et de dipôles. Des tensions (de gauche à droite) de 10, 15 et 20 V sont appliquées entre le support de la nanopointe et une grille d'extraction à 3 nm.	125
7.10	Figures dues à la diffraction à travers un trou de la membrane de carbone. En a et c : images expérimentales pour une nanopointe respectivement à terminaison monoatomique et dégradée. En b et d : simulation par intégrales de Kirchhoff avec des longueurs de cohérence transverses sur la fente respectivement de 10 et 2 nm.	127
7.11	Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 15 V est appliquée entre le support métallique d'une nanopointe à terminaison monoatomique et une grille située à 3 nm. La grille est suivie par une ouverture circulaire de 1.2 nm de rayon et 0.1 nm d'épaisseur.	128
7.12	Densité de courant (composante selon r sur un écran à 10 cm et coupe diagonale) obtenue par application d'une tension de 15 V entre le support métallique d'une nanopointe à terminaison monoatomique et une grille à 3 nm. La grille est suivie d'une ouverture circulaire de 1.2 nm de rayon et 0.1 nm d'épaisseur.	128
7.13	Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 15 V est appliquée entre le support métallique d'une nanopointe à terminaison triatomique et une grille située à 3 nm. La grille est suivie par une ouverture circulaire de 1.2 nm de rayon et 0.1 nm d'épaisseur.	130
7.14	Densité de courant (composante selon r sur un écran à 10 cm et coupe diagonale) obtenue par application d'une tension de 15 V entre le support métallique d'une nanopointe à terminaison triatomique et une grille à 3 nm. La grille est suivie d'une ouverture circulaire de 1.2 nm de rayon et 0.1 nm d'épaisseur.	130
7.15	Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 15 V est appliquée entre une surface métallique plane et une grille située à 3 nm. La grille est suivie par une ouverture circulaire de 1.2 nm de rayon et 0.1 nm d'épaisseur.	131

7.16	Densité de courant (composante selon r sur un écran à 10 cm et coupe diagonale) obtenue par application d'une tension de 15 V entre une surface métallique plane et une grille à 3 nm. La grille est suivie d'une ouverture circulaire de 1.2 nm de rayon et 0.1 nm d'épaisseur.	131
8.1	Disposition des régions I ($z \leq 0$), II ($0 \leq z \leq D$, qui contient la pointe et éventuellement un objet) et III ($z \geq D$). Il est nécessaire de calculer la distribution d'énergie potentielle dans la région II à l'intérieur du cylindre de confinement.	135
8.2	A gauche: Potentiel électrique dans le plan yz . Une tension d'extraction de 10 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. A droite: Energie potentielle associée lorsque la grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté.	143
8.3	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté. A gauche: composante selon z sur la grille d'extraction. A droite: composante selon r sur l'écran à 10 cm.	143
8.4	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. La grille ne supporte aucun objet. A gauche: composante selon z sur la grille d'extraction. A droite: composante selon r sur l'écran à 10 cm.	144
8.5	A gauche: coupe selon y de la densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté. Au centre: le faisceau extérieur à la fibre est supprimé grâce à une partie imaginaire dans le potentiel. A droite: intensité normalisée pour une diffraction de Fraunhofer à travers une ouverture de 1 nm.	145
8.6	Energie potentielle dans le plan yz . Une tension d'extraction de 6 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté.	146
8.7	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 6 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté. A gauche: composante selon z sur la grille d'extraction. A droite: composante selon r sur l'écran à 10 cm.	146
8.8	A gauche: coupe selon y de la densité de courant obtenue à 10 cm par application d'une tension de 6 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté. A droite: intensité normalisée pour une diffraction de Fraunhofer à travers une ouverture de 1 nm.	147

8.9	Coupes selon y de la densité de courant (composante selon z) obtenue sur la grille d'extraction par application d'une tension respectivement de 10 V (à gauche) et 6 V (à droite) entre cette grille et le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut. L'écart entre le support métallique et la grille est de 3.5 nm. Elle supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté.	148
8.10	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée absorbante de 1 nm de côté. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.	148
8.11	A gauche : coupe selon y de la densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée absorbante de 1 nm de côté. A droite : intensité normalisée pour une diffraction de Fraunhofer à travers deux ouvertures de 0.6 nm dont les centres sont écartés de 2 nm.	149
8.12	Energie potentielle dans le plan yz . Une tension d'extraction de 10 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée absorbante de 0.5 nm de côté.	150
8.13	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée absorbante de 0.5 nm de côté. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.	150
8.14	A gauche : coupe selon y de la densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée absorbante de 0.5 nm de côté. A droite : intensité normalisée pour une diffraction de Fraunhofer à travers deux ouvertures de 0.725 nm dont les centres sont écartés de 1.6 nm.	151
8.15	A gauche : coupe selon y de la densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté. Au centre : le faisceau extérieur à la fibre est supprimé grâce à une partie imaginaire dans le potentiel. A droite : le faisceau passant à l'intérieur de la fibre est supprimé grâce à une partie imaginaire dans le potentiel.	151
8.16	Energie potentielle dans le plan yz . Une tension d'extraction de 25 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté.	153

8.17	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 25 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.	153
8.18	Energie potentielle dans le plan yz . Une tension d'extraction de 40 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté.	154
8.19	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 40 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre non polarisée de 1 nm de côté. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.	155
8.20	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 40 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. La grille ne supporte pas d'objet. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm. . . .	155
8.21	A gauche : Potentiel électrique dans le plan yz . Une tension d'extraction de 25 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre de 1 nm de côté caractérisée par une constante diélectrique de 16.5. A droite : Energie potentielle associée	156
8.22	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 25 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre de 1 nm de côté caractérisée par une constante diélectrique de 16.5. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.	157
8.23	De gauche à droite et de haut en bas, densité de courant sur un écran à 10 cm obtenue par application d'une tension de 25 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre de $L=1$ nm de côté caractérisée par une constante diélectrique de 16.5. Le puits de potentiel est choisi de manière à relier la longueur d'onde électronique locale λ à L respectivement par $L = 4\lambda$, $L = (4 + \frac{1}{4})\lambda$, $L = (4 + \frac{1}{2})\lambda$ et $L = (4 + \frac{3}{4})\lambda$	159
8.24	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 25 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une fibre de 1 nm de côté caractérisée par une constante diélectrique de 16.5, un puits de potentiel de -4.82 eV avec une partie imaginaire de -4 eV (en haut dans la partie centrale de la fibre ; en bas dans toute la fibre). A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.	161

9.1	Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 10 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. Cette grille supporte une molécule de C_{60} . . .	170
9.2	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 10 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une molécule de C_{60} . A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm en échelle logarithmique (base 10).	171
9.3	A gauche : coupe selon x de la densité de courant obtenue sur une grille située à 3.5 nm du support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut. La tension d'extraction est de 10 V. A droite : même coupe lorsqu'une molécule de C_{60} est déposée sur la grille.	172
9.4	Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 25 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 2.5 nm. Cette grille supporte une molécule de C_{60} . . .	172
9.5	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 25 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 2.5 nm. Cette grille supporte une molécule de C_{60} . A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.	173
9.6	Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 40 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 3.5 nm. Cette grille supporte une molécule de C_{60} . A gauche : énergie potentielle sans électron ($V_0(\mathbf{r})$). A droite : énergie potentielle avec électron ($V_{tot}(\mathbf{r})$).	174
9.7	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 40 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 3.5 nm. Cette grille supporte une molécule de C_{60} . A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.	175
10.1	Energie potentielle dans le plan xz . Une tension d'extraction de 8 V est appliquée entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille située à 2 nm.	178
10.2	Densité de courant obtenue par application d'une tension de 8 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 2 nm. Un champ d'induction magnétique de 2000 Tesla orienté vers les valeurs négatives de y est présent entre les plans $z_0=1$ nm et $z_1=2$ nm. A gauche : composante selon z sur la grille d'extraction. A droite : composante selon r sur l'écran à 10 cm.	179

- 10.3 De gauche à droite : densité de courant obtenue sur l'axe x par application d'une tension de 8 V entre le support métallique d'une pointe conique de 1 nm de haut et une grille à 2 nm. Le champ d'induction magnétique est présent entre les plans $z_0=1$ nm et $z_1=2$ nm et orienté vers les valeurs négatives de y . Il prend des valeurs respectives de 1000, 1500 et 2000 Tesla. En haut : densité de courant en $z = D$. En bas : densité de courant à l'écran. 179