

Détermination des facteurs de structure de diffraction électronique par une méthode d'analyse numérique des franges de pendelloesung

A. Lannes

► **To cite this version:**

A. Lannes. Détermination des facteurs de structure de diffraction électronique par une méthode d'analyse numérique des franges de pendelloesung. *Revue de Physique Appliquée, Société française de physique / EDP*, 1972, 7 (4), pp.261-265. 10.1051/rphysap:0197200704026100 . jpa-00243627

HAL Id: jpa-00243627

<https://hal.archives-ouvertes.fr/jpa-00243627>

Submitted on 1 Jan 1972

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Classification
 Physics Abstracts
 05.20, 13.30

DÉTERMINATION DES FACTEURS DE STRUCTURE DE DIFFRACTION ÉLECTRONIQUE PAR UNE MÉTHODE D'ANALYSE NUMÉRIQUE DES FRANGES DE PENDELLOESUNG

A. LANNES

Laboratoire d'Optique Electronique du CNRS
 29, rue Jeanne-Marvig, Toulouse

(Reçu le 19 mai 1972, révisé le 27 juin 1972)

Résumé. — Nous développons une méthode d'analyse numérique des profils d'intensité susceptible de préciser les coefficients du développement en série de Fourier du potentiel cristallin. Son application à l'étude des franges d'égale épaisseur, à celle des contours d'extinction comme à celle des défauts plans doit nous apporter des renseignements intéressants sur le degré de validité de la théorie, notamment en ce qui concerne l'absorption, et sur les limites de l'investigation expérimentale.

Abstract. — A method of numerical analysis of intensity profiles has been developed in order to determine the coefficients of the Fourier series of the crystalline potential. Its application to the study of equal thickness fringes, of rocking curves as well as to the study of plane defects must give interesting information about the degree of validity of the dynamical theory, especially as far as absorption is concerned, and about the limits of experimental investigation.

I. Introduction. — La théorie dynamique de la diffraction des électrons a permis d'interpréter un grand nombre d'observations expérimentales relatives aux échantillons cristallins. Toutefois, comme l'indiquent Howie et Basinski [2], si bien des difficultés ont été résolues tout au moins qualitativement, la restitution de la structure fine de l'objet à partir des données expérimentales pose des problèmes délicats. L'optique électronique quantitative suppose l'application de modèles théoriques très stricts ; il en résulte des difficultés techniques difficilement surmontables.

La détermination des paramètres qui caractérisent l'interaction d'un faisceau d'électrons avec un cristal parfait est d'un intérêt primordial en microscopie électronique. En effet, si les facteurs de structure nous renseignent directement sur la distribution des charges dans le cristal parfait, ils constituent par ailleurs l'outil indispensable à l'étude des défauts cristallins notamment dans la restitution de leurs champs de déformation (Head [1]). La recherche de ces paramètres donne lieu à des travaux importants ; les plus connus sont ceux qui utilisent le phénomène de potentiel critique [6]. Toutefois, compte tenu de l'apport de nouvelles techniques telles que celles de la « sonde à émission de champ » et du « filtrage en énergie », on peut envisager dès à présent des méthodes d'investigations expérimentales plus générales. Dans ce but et à titre indicatif, nous présentons une méthode d'analyse numérique des intensités de diffraction électronique.

La simulation des profils d'intensité s'effectue dans le cadre de l'interprétation dynamique de Yoshioka [7]. En première approximation nous admettons que l'effet de la diffusion inélastique sur la diffusion élastique se traduit au niveau de l'équation de Schrödinger par l'introduction d'un potentiel complexe. Cela dit, nous déterminons le meilleur accord entre les intensités mesurées et leurs simulations. Dans ce but nous utilisons une technique qui permet d'éviter les éventuelles erreurs systématiques qu'introduirait la méthode des perturbations dans le traitement de la partie imaginaire du potentiel.

La méthode que nous présentons est à rapprocher de celle utilisée par M. Kreutle et G. Meyer-Ehmsen [5] pour déterminer les facteurs de structure du silicium ; en réalité, elle s'en écarte sensiblement dans le principe du calcul de l'intensité et de la différentielle de l'écart quadratique moyen. En effet, la partie imaginaire du potentiel est ici traitée au même titre que sa partie réelle.

II. Formalisme de la théorie dynamique relative au cristal parfait. — La formulation différentielle de l'interaction d'un faisceau parallèle d'électrons monocinétiques avec un cristal parfait est utilisée couramment en microscopie électronique. Nous nous limitons à en rappeler l'essentiel.

Soit L la face d'entrée d'une lame cristalline et Oz la normale à L orientée vers l'intérieur du cristal. En

désignant par \mathbf{K} le vecteur d'onde de l'onde plane incidente et par K_z sa composante normale, le système de Howie et Whelan [3] s'écrit :

$$\frac{\partial A}{\partial z}(z) = i\tau MA(z) \quad \text{avec} \quad \tau = \frac{\pi}{K_z}. \quad (1)$$

A est la matrice des amplitudes $\mathcal{A}_{\mathbf{g}}$ relatives aux réflexions qui se partagent l'intensité incidente. M est la « matrice de diffraction » ; ses éléments m_j^i sont définis par la relation (2) :

$$m_j^i = \varepsilon(\mathbf{g}_i) \delta_j^i + w(\mathbf{g}_i - \mathbf{g}_j) \quad (2)$$

où,

$$\varepsilon(\mathbf{g}) = \mathbf{K}^2 - (\mathbf{K} + \mathbf{g})^2, \quad (3)$$

$$w(\mathbf{g}) = w_{\mathbf{g}} = u(\mathbf{g}) + iu'(\mathbf{g}), \quad (4)$$

et

$$u(\mathbf{g}) = u_{\mathbf{g}} = \alpha v(\mathbf{g}), \quad u'(\mathbf{g}) = u'_{\mathbf{g}} = \alpha v'(\mathbf{g}), \quad (5)$$

avec

$$\alpha = \frac{2em}{h^2}.$$

Les coefficients diagonaux $\varepsilon(\mathbf{g}_i)$ caractérisent les positions relatives de la sphère d'Ewald et du réseau réciproque. Les coefficients $v(\mathbf{g})$ et $v'(\mathbf{g})$ sont respectivement les parties réelles et imaginaires des coefficients de Fourier du potentiel cristallin. Signalons enfin que m désigne la masse de l'électron au repos et e le module de sa charge.

Le système différentiel linéaire (1) s'intègre sans difficulté :

$$A(z) = X(z) A(0) \quad \text{avec} \quad X(z) = \exp(i\tau Mz). \quad (6)$$

Une des façons de calculer $A(z)$ consiste à diagonaliser la matrice M en vue de son exponentiation. L'intérêt de la méthode réside en ce qu'elle fournit une information sur la surface de dispersion et sur l'excitation des ondes de Bloch. Toutefois, si l'on ne porte son attention que sur la valeur des intensités, il est possible d'envisager une procédure différente en déterminant A par des processus exponentiels appropriés. Cette dernière technique développée dans le cours du paragraphe (III.2) nous semble préférable ; elle permet de se libérer d'éventuelles erreurs systématiques introduites par un traitement approché de la partie imaginaire du potentiel ou par les processus numériques de diagonalisation d'une matrice complexe de rang élevé.

Notons enfin qu'il est possible de présenter la matrice M suivant (7) :

$$M = 0 + \sum_{\mathbf{k}} w_{\mathbf{k}} H_{\mathbf{k}} \quad (7)$$

où 0 désigne la matrice diagonale des coefficients $\varepsilon(\mathbf{g})$ et $H_{\mathbf{k}}$ la matrice de base relative au coefficient $w(\mathbf{k})$ intervenant dans la relation de définition (2) des coefficients m_j^i .

III. Analyse numérique des profils d'intensité de diffraction électronique. — Dans un but de simplification qui n'enlève rien à la généralité de l'étude, nous limitons le contenu des deux premières parties de ce paragraphe à l'analyse numérique de profils relatifs à des franges d'égale épaisseur. Comme nous le verrons dans la troisième partie, l'extension aux contours d'extinction est immédiate.

III.1 PRINCIPE. — Imaginons que, par des techniques expérimentales, nous ayons obtenu pour un échantillon et une orientation donnés la valeur de l'intensité correspondant à une réflexion (\mathbf{g}) dans un intervalle D des épaisseurs. Par M , le profil d'intensité $I_{\mathbf{g}}(z)$ dépend d'un ensemble Y de variables y_i qui sont par exemple les coefficients $u(\mathbf{g})$ et $u'(\mathbf{g})$. Le problème qui nous préoccupe peut s'énoncer ainsi : un tel profil nous permet-il d'atteindre le jeu Y_0 des coefficients de Fourier du potentiel cristallin ?

Désignons par $\varepsilon_{\mathbf{g}}(Y)$ le carré de l'écart quadratique moyen de l'intensité $I_{\mathbf{g}}(Y, z)$ à $I_{\mathbf{g}}(Y_0, z)$ dans l'intervalle D des épaisseurs :

$$\varepsilon_{\mathbf{g}}(Y) = \frac{1}{d} \int_D \Delta_{\mathbf{g}}^2(Y, z) dz \quad (8)$$

avec

$$\Delta_{\mathbf{g}}(Y, z) = I_{\mathbf{g}}(Y, z) - I_{\mathbf{g}}(Y_0, z);$$

d désigne la largeur de l'intervalle D .

La méthode utilisée consiste à minimiser la fonction $\varepsilon_{\mathbf{g}}$. En effet, en excluant u_0 , on peut montrer que la forme quadratique associée à la différentielle seconde en Y_0 de $\varepsilon_{\mathbf{g}}$ est définie positive (les dérivées partielles de $I_{\mathbf{g}}$ par rapport aux variables $u_{\mathbf{k}}$ et $u'_{\mathbf{k}}$ sont linéairement indépendantes). Il en résulte que le minimum est atteint pour un seul jeu de variables y_i , Y_0 . Notons que ce raisonnement s'étend sans difficulté au carré de l'écart quadratique moyen relatif.

Dans la pratique, nous procédons en deux étapes : la première consiste à localiser le plus petit des minimums et la seconde à le déterminer plus précisément par une étude locale de la fonction $\varepsilon_{\mathbf{g}}$.

III.1.1 Localisation du minimum. — Cette localisation utilise les propriétés globales de la fonction $\varepsilon_{\mathbf{g}}(Y)$. Dans ce but, nous utilisons un algorithme dû à Nelder et Mead (« méthode du simplexe non linéaire ») repris par D. Taupin et amélioré par M. Klaspisch [4]. Nous obtenons ainsi une valeur approchée Y_1 de la solution.

III.1.2 Recherche locale du minimum. — Elle consiste à chercher le jeu de variables Y_0 qui annule la différentielle $\varepsilon'_{\mathbf{g}}$ de $\varepsilon_{\mathbf{g}}$. Y_0 est la limite de la suite de Newton (9) (« méthode du gradient »),

$$Y_1, Y_{p+1} = Y_p - [\varepsilon''_{\mathbf{g}}(Y_p)]^{-1} \varepsilon'_{\mathbf{g}}(Y_p) \quad (9)$$

où $\varepsilon''_{\mathbf{g}}(Y)$ désigne la matrice de la différentielle de $\varepsilon'_{\mathbf{g}}$.

Dans la pratique, si $\varepsilon''_{\mathbf{g}}$ peut être estimé par interpo-

lation linéaire de δ'_g , la détermination précise de $\delta'_g(Y)$ est indispensable. Comme nous allons le montrer, le calcul correspondant peut se mener de front avec celui de l'écart quadratique.

III.2 DÉTERMINATION DU CARRÉ DE L'ÉCART QUADRATIQUE ET DE SA DIFFÉRENTIELLE. — III.2.1 *Principe*. — Quel que soit le jeu de variables choisies, nous devons calculer les dérivées partielles de δ_g par rapport aux variables réelles u_k et u'_k .

En dérivant la relation (8) par rapport à u_k , nous obtenons :

$$\frac{\partial \delta_g}{\partial u_k} = \frac{4}{d} \int_D \Delta_g(Y, z) \operatorname{Re} \left\{ \overline{\mathcal{A}_g} \frac{\partial \mathcal{A}_g}{\partial u_k} \right\} dz. \quad (10)$$

Comme, compte tenu des relations (6) et (7),

$$\frac{\partial \mathcal{A}_g}{\partial u'_k} = i \frac{\partial \mathcal{A}_g}{\partial u_k}, \quad (11)$$

les calculs des dérivées par rapport à u_k et u'_k peuvent être effectués conjointement :

$$\frac{\partial \delta_g}{\partial u_k} + i \frac{\partial \delta_g}{\partial u'_k} = \frac{4}{d} \int_D \Delta_g(Y, z) \mathcal{A}_g \frac{\partial \overline{\mathcal{A}_g}}{\partial u_k} dz. \quad (12)$$

Ainsi, dans la mesure où l'on sait trouver une relation de récurrence pour déterminer les matrices A et $[\partial A / \partial u_k]$, la détermination des intégrales (8) et (12) ne présente aucune difficulté.

III.2.2 *Calcul de l'amplitude et de sa différentielle*. — Désignons par Λ le pas d'intégration et posons successivement les relations de définition (13) et (14) :

$$A_p = A(p\Lambda), \quad a_p^k = a^k(p\Lambda) = \frac{\partial A}{\partial u_k}(p\Lambda), \quad (13)$$

$$X_p = X(p\Lambda), \quad x_p^k = x^k(p\Lambda) = \frac{\partial X}{\partial u_k}(p\Lambda). \quad (14)$$

Considérons l'identité (15) :

$$A_{p+1} = X_1 A_p = X_1 X_p A_0 \quad (15)$$

et dérivons-la par rapport à u_k ; nous obtenons :

$$a_{p+1}^k = x_1^k A_p + X_1 a_p^k. \quad (16)$$

Les relations de récurrence (15) et (16) permettent le calcul de l'amplitude comme celui de sa différentielle. Toutefois, la détermination des matrices x_1^k et X_1 peut nécessiter un fractionnement préliminaire de Λ . Dans ces conditions nous sommes conduits à utiliser une relation de récurrence annexe.

III.2.3 *Calcul des matrices x_1^k et X_1* . — Posons successivement,

$$A = 2^\mu \lambda \quad \text{avec } \mu \text{ entier}, \quad (17)$$

$$s_p^k = x^k(2^p \lambda), \quad (18)$$

$$S_p = X(2^p \lambda). \quad (19)$$

D'une façon analogue à celle utilisée pour les relations (15) et (16), nous obtenons :

$$s_{p+1}^k = s_p^k S_p + S_p s_p^k \quad (20)$$

$$S_{p+1} = S_p^2. \quad (21)$$

Les relations (20) et (21) permettent le calcul des matrices x_1^k et X_1 . Compte tenu des relations (6) et (7), les matrices s_0^k et S_0 s'obtiennent à partir des développements limités (22) et (23) :

$$s_0^k = \sum_{p=1}^N W_p \quad (22)$$

avec

$$W_p = \frac{\eta^p}{p!} \sum_{q=1}^p M^{p-q} H_k M^{q-1} \quad \text{et} \quad \eta = i\tau\lambda,$$

$$S_0 = \sum_{p=1}^N T_p \quad (23)$$

avec

$$T_p = \frac{(\eta M)^p}{p!}.$$

Dans la pratique, nous obtenons les matrices s_0^k et S_0 en formant les suites matricielles (24), (25), (26) et (27) :

$$U_1 = M', \quad U_p = \frac{M'}{p} \quad \text{où} \quad M' = \eta M, \quad (24)$$

$$T_1 = I, \quad T_p = T_{p-1} U_{p-1} \quad \text{où} \quad I \text{ est la matrice unité}, \quad (25)$$

$$V_1^k = H'_k, \quad V_p^k = V_{p-1}^k U_{p-1} \quad \text{où} \quad H'_k = \eta H_k, \quad (26)$$

$$W_1^k = H'_k, \quad W_p^k = U_p W_{p-1}^k + V_p^k. \quad (27)$$

Dès lors, compte tenu de la nullité des matrices a_0^k , les relations de récurrence (15) et (16) permettent de calculer les intégrales (8) et (12).

III.2.4 *Remarques*. — Comme la matrice H_0 relative aux coefficients u_0 et u'_0 est la matrice unité, l'intégrale (12) correspondante se simplifie :

$$\frac{\partial \delta_g}{\partial u_0} + i \frac{\partial \delta_g}{\partial u'_0} = -4i \frac{\tau}{d} \int_D z I_g(Y, z) \Delta_g(Y, z) dz. \quad (28)$$

Il en résulte que l'écart quadratique moyen ne dépend pas de u_0 ; cela est bien connu. Dans les calculs, nous poserons $u_0 = 0$.

Par ailleurs, s'il est nécessaire d'ajuster les paramètres d'orientation, la détermination des dérivées partielles correspondantes peut s'effectuer dans le même esprit.

Notons enfin que le calcul de l'amplitude est indépendant de celui de sa différentielle. Il peut donc être utilisé dans toutes les simulations relatives aux cristaux parfaits ou aux défauts plans.

III.3 ANALYSE NUMÉRIQUE DES CONTOURS D'EXTINCTION. — Les relations équivalentes à celles du

type (8), (10), (12) et (28) s'en déduisent par simple permutation des variables d'épaisseur et d'orientation. Cette permutation apparaît également dans le choix des inconnues mais dans ce cas, la dérivée partielle de l'écart quadratique par rapport à z est d'accès facile. Avec des notations évidentes, elle s'écrit :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_g}{\partial z} = \frac{4}{\omega} \int_{\Omega} \Delta_g(Y, \theta) \operatorname{Re} \left\{ \overline{\mathcal{A}_g} \frac{\partial \mathcal{A}_g}{\partial z} \right\} d\theta. \quad (29)$$

La méthode proposée peut fournir en outre une mesure très précise de l'épaisseur moyenne z de l'échantillon.

Signalons que les relations de récurrence (20), (21) et (15), (16) laissent apparemment libre le choix des entiers p et q qui fixent le fractionnement de z . Il suffit qu'ils vérifient la relation (30) :

$$z = p(2^q \lambda) \quad \text{avec} \quad \lambda < \lambda_0, \quad (30)$$

où λ_0 désigne un pas de référence pour lequel une dizaine de termes assure la convergence des développements (22) et (23).

En réalité, si l'on cherche à minimiser le temps de calcul, il est facile de voir que la valeur de p optimale est de l'ordre de la partie entière de $(n/\log 2)$.

Cette dernière remarque concerne évidemment toutes les simulations de contours d'extinction qui utiliseraient l'exponentiation directe de M (simulation de lignes de Kikuchi par exemple).

III.4 RÉSULTATS THÉORIQUES. — *A priori*, l'ordre n de la matrice M est une inconnue ; il y aurait là une difficulté majeure. En fait, la différentielle \mathcal{E}'_g nous renseigne sur la participation des faisceaux que l'on considère. Il est donc possible d'éliminer ceux qui n'interviennent pas efficacement au niveau des intensités. Dans la pratique, la procédure adéquate consiste à les prendre en considération sans pour autant chercher à ajuster les paramètres correspondants (généralisation de la notion de potentiel dynamique).

Les résultats numériques que nous avons obtenus sont satisfaisants ; ils montrent que la matrice M est définie de façon unique.

Les calculs ont été effectués sur l'ordinateur CII-10070 de l'Institut de Calcul Numérique de la Faculté des Sciences de Toulouse. A titre indicatif, nous avons résumé sur la figure 1 un exemple d'ajustement de paramètres dans le cas de franges d'égale épaisseur. Le profil pseudo-expérimental est atteint au terme d'un calcul dont le temps d'exécution est de l'ordre de 10 s. Au cours de ce processus d'ajustement, l'écart quadratique relatif moyen e_g varie de la valeur 57×10^{-2} à 1×10^{-3} . Comme nous le disions plus haut, une façon d'apprécier la sensibilité de la méthode consiste à suivre le comportement de la différentielle dans le voisinage du minimum. Dans l'exemple présenté et pour une valeur de $6,5 \times 10^{-2}$ de e_g , les dérivées partielles $(\partial e_g / \partial v_g)$, $(\partial e_g / \partial v'_g)$, $(\partial e_g / \partial v'_0)$ sont respectivement de l'ordre de $4 \times 10^{-5}/\text{mV}$, $1,2 \times 10^{-3}/\text{mV}$ et $0,8 \times 10^{-3}/\text{mV}$.

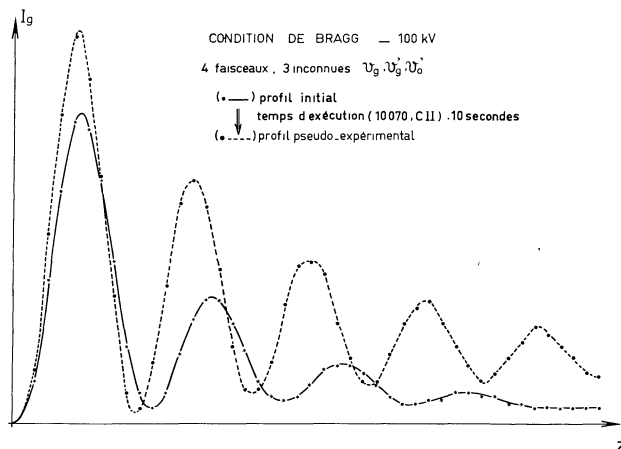


FIG. 1.

IV. Remarques concernant l'analyse numérique des profils expérimentaux. — Comme nous le faisons remarquer dans l'introduction, de telles méthodes ne doivent leurs succès qu'à la réalisation des conditions expérimentales exigées par les modèles théoriques.

Dans le cas qui nous préoccupe, trois facteurs semblent jouer un rôle déterminant : les deux premiers concernent l'intensité et le troisième les conditions d'ouverture.

Les intensités calculées dans le cadre de la théorie dynamique de l'absorption ne concernent que celles relatives aux électrons diffusés élastiquement. L'utilisation d'un dispositif de filtrage en énergie est donc indispensable. Par ailleurs, la contribution des électrons quasi-élastiques diffusés sous petits angles par processus thermiques est à l'origine d'un terme correctif ; sa contribution ne doit pas être négligée.

La détermination des parties imaginaires v'_g suppose une mesure précise et absolue des intensités. Il faut donc s'assurer de la qualité des dispositifs de détection et d'amplification ; de leur fidélité dépend en grande partie le succès de la méthode présentée.

Enfin, conformément aux conditions d'application de la théorie dynamique, telle que nous l'utilisons, l'ouverture du faisceau incident doit être aussi faible que possible (orientation bien définie).

Cela dit, on peut envisager plusieurs variantes. Certaines peuvent s'avérer d'un usage très efficace lors de la synthèse des résultats expérimentaux obtenus. Citons, par exemple, celle qui consiste à minimiser la somme des écarts quadratiques relatifs à des réflexions différentes.

Dans cet esprit, les résultats que nous avons obtenus sont encourageants : ils généralisent la notion de potentiel dynamique équivalent et permettent d'espérer une information intéressante sur le degré de validité de la théorie et sur les limites de l'investigation expérimentale.

V. Conclusion. — La recherche des coefficients du développement en série de Fourier du potentiel cristallin à partir de l'analyse de profils d'intensité pose un problème numérique soluble. La difficulté majeure

concerne donc les précautions expérimentales dont il faut s'entourer. Par ailleurs, les observations au microscope électronique présentent des aléas inévitables. Une technique qui s'inspire de la vieille méthode des moindres carrés peut donc nous apporter des renseignements intéressants. Ainsi, quelles que soient les difficultés rencontrées pour obtenir des profils d'intensité dont l'analyse numérique soit pleinement

significative, la méthode que nous avons développée s'avère d'un usage bien adapté à la maîtrise de l'information expérimentale.

Remerciements. — Je remercie M. Bernard Jouffrey d'avoir bien voulu annoter le manuscrit que je lui ai présenté. Je lui sais gré de ses remarques judicieuses.

Bibliographie

- [1] HEAD, The reconstruction of displacement fields of defects in crystals from electron micrographs, *Aust. J. Phys.*, 1969, **22**, 345-50.
 - [2] HOWIE et BASINSKI, Approximations of the Dynamical theory of diffraction contrast, *Phil. Mag.*, 1968, **17**, 1039.
 - [3] HOWIE, WHELAN et coll., Electron microscopy of thin crystals 1965, Proc. Melbourne Conf. on Electron Diffraction (Australian Academy of Sciences).
 - [4] KLASPISCH (M.), Thèse, Orsay (Paris), 1969.
 - [5] KREUTLE (M.) and MEYER-EHMSEN, Determination of structure potentials and absorption potentials of Silicon from electron diffraction intensities, *Phys. stat. Sol. (a)*, 1971, **8**, 111.
 - [6] UYEDA et coll., *Acta Cryst.*, 1968, **A 24**, 249.
 - [7] YOSHIOKA, Effect of inelastic waves on electron diffraction, *J. Phys. Soc. Japan*, 1957, **12**, 618.
-