

MICROSCOPE A EFFET TUNNEL (APPROCHE DOCUMENTAIRE)

Les microscopes dits « à *champ proche* » ont acquis une grande importance, notamment dans la caractérisation des matériaux. Ce succès est tout d'abord dû à leur capacité d'imager des propriétés de ceux-ci à des échelles moléculaires ou atomiques.

Le microscope à effet tunnel (« *Scanning Tunneling Microscope* » ou STM) fait partie de cette famille²². Il a été mis au point par deux chercheurs d'IBM, Binnig et Rohrer, en 1981 (prix Nobel²³ 1986) et repose sur un phénomène quantique découvert en 1928 : *l'effet tunnel*.

Si l'on approche une pointe métallique à une distance suffisamment faible d'un échantillon conducteur ou semi-conducteur et si on applique une différence de potentiel entre cette pointe (anode) et cet échantillon (cathode), un courant électronique d'intensité mesurable peut transiter entre eux par effet tunnel. On peut démontrer, par un modèle simplifié²⁴, que l'intensité tunnel mesurée est

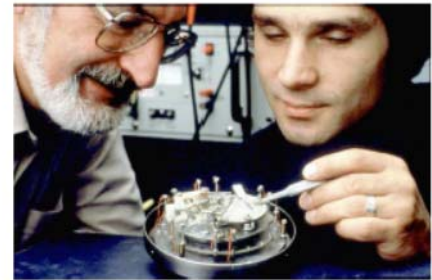
où z est la distance pointe-échantillon (quelques angströms), V_t est la différence de potentiel appliquée (quelques millivolts à quelques volts) et Φ est le travail d'extraction d'un électron de masse m_e ($\Phi \simeq 4$ eV pour un bon conducteur). La variation exponentielle avec z est la raison de l'extrême sensibilité verticale d'un STM, tandis que la résolution latérale dépend essentiellement de la forme de la pointe²⁵ (90% du courant tunnel circule entre l'atome à l'extrémité de la pointe et celui de l'échantillon le plus proche ; c'est même 99% en tenant compte seulement des premiers voisins...).

22. Les microscopes optiques à champ proche (à ondes électromagnétiques évanescentes ou STOM) et les microscopes à force atomique (AFM) sont aussi des microscopes à champ proche.

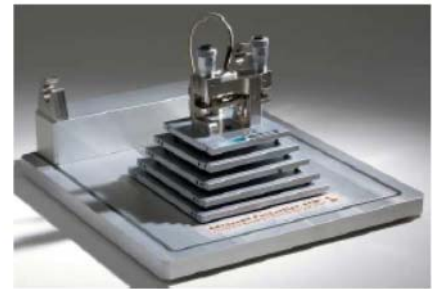
23. Il est rare qu'un prix Nobel soit décerné aussi rapidement ; c'est dire l'importance de l'instrument ainsi réalisé ! Binnig et Rohrer ont eu la moitié du prix Nobel, l'autre moitié étant attribuée à Ruska pour le microscope électronique en transmission conçu en... 1931 !

24. L'étude précise de l'intensité tunnel est en fait complexe. Par exemple, la théorie de Tersoff et Hamann (sur la base de travaux de Bardeen) fait intervenir simultanément les densités d'états électroniques de la pointe et de l'échantillon, tout en tenant compte de la géométrie de la pointe (modélisée par une sphère). Dans leur calcul intervient une onde évanescente à symétrie sphérique pour caractériser les électrons tunnels. Il en ressort qu'un STM sonde la densité locale d'états électroniques de l'échantillon, à l'énergie de Fermi et à la position du centre de courbure du bout de la pointe : il convient de prendre en compte l'influence de cette densité d'états dans l'interprétation des images...

25. Un modèle théorique, opérationnel dans un certain nombre de situations, montre que la résolution latérale est de l'ordre de $\sqrt{2z'/k}$ où z' est la distance entre la « surface » de l'échantillon et le centre de courbure de l'atome à l'extrémité de la pointe.



Rohrer, Binnig et un STM de première génération



Le schéma plus général du STM est présenté sur la figure ci-contre. Un dispositif mécanique (non représenté) permet une première approche de la pointe vers la surface à étudier²⁶ (« *coarse approach* »). Ensuite, des céramiques piézoélectriques permettent de réaliser un balayage de la surface de l'échantillon avec précision (de l'ordre du picomètre, voire mieux !). Un système électronique et informatique permet l'amplification des faibles signaux (intensités de quelques nanoampères, voire picoampères !), le pilotage avec asservissement, le traitement et la visualisation des données.

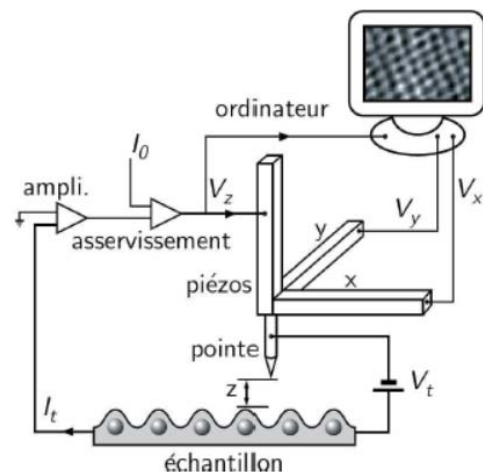


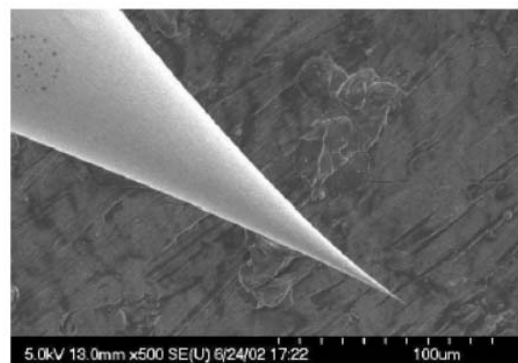
Schéma de fonctionnement d'un STM

Il y a deux modes de fonctionnement possibles :

- Dans le *mode à courant constant* (le plus fréquent), la position verticale de la pointe est asservie pour que le courant tunnel reste constant et on enregistre la hauteur Z de la pointe en fonction de ses coordonnées latérales X et Y . La vitesse de balayage est limitée par le besoin d'un déplacement asservi vertical de la sonde. Ce mode est utilisé pour des échantillons présentant des rugosités importantes ou si l'on veut balayer des aires étendues (supérieures à $10 \times 10 \text{ nm}^2$).
- Dans le *mode à hauteur constante*, la vitesse d'acquisition peut être accrue substantiellement en gardant constante la position verticale de la pointe et en enregistrant les variations d'intensité du courant tunnel. La vitesse de balayage est environ 100 fois plus rapide dans ce mode pour des surfaces de faibles rugosités et des aires beaucoup plus petites (moins de $10 \times 10 \text{ nm}^2$). De plus, il permet d'accéder à des résolutions verticales plus importantes.

La mise en œuvre expérimentale fait ressortir quelques points pratiques importants :

- Le microscope doit être construit avec des matériaux très rigides et isolé des vibrations extérieures (support avec système d'amortissement).
- Les pointes conductrices utilisées doivent être fines et stables dans le temps car elles jouent sur la résolution. Elles peuvent être en tungstène, platine iridié, or...



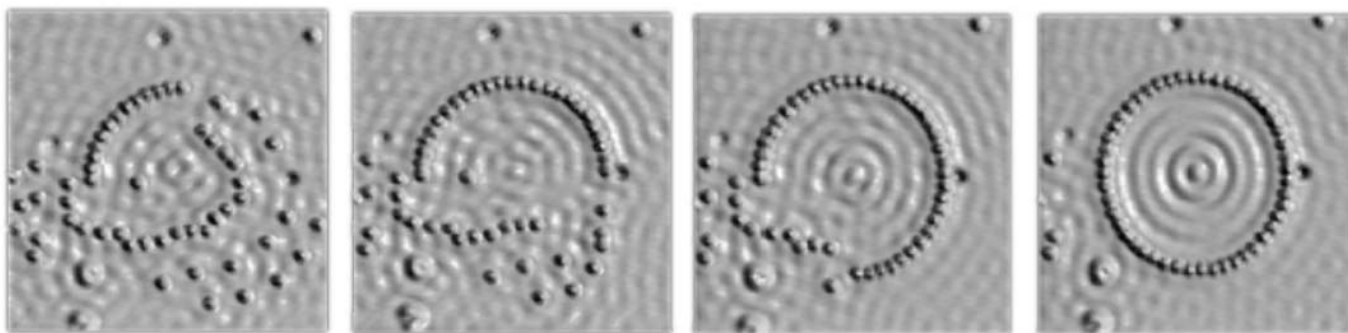
Pointe de tungstène vue au MEB

26. Il faut bien faire attention, lors de cette approche, à ne pas faire « toucher » la pointe sur l'échantillon car cela suffit généralement à la détériorer et il faut alors la remplacer !

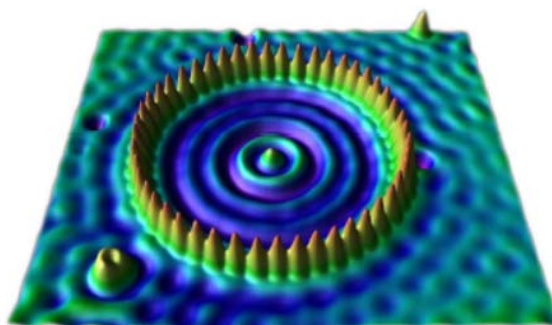
Les images obtenues avec un STM donnent des renseignements sur la topographie et la densité électronique à la surface de l'échantillon. La mesure de différences de conductivité sur celle-ci est aussi accessible. Le STM est ainsi devenu un outil incontournable de la physique des matériaux ²⁷.

De plus, le STM est à présent utilisé industriellement pour le contrôle de certaines réalisations (réseaux de diffraction, têtes de lecture magnétiques, CD, DVD...) et les biologistes y font appel pour observer des macromolécules et virus adsorbés sur des surfaces (un intérêt du STM étant qu'il fonctionne aussi avec du liquide, comme l'eau, entre la pointe et l'échantillon!). . .

La pointe du STM peut être utilisée pour déplacer des atomes et construire des structures atomiques particulières. Par exemple, les images suivantes montrent des étapes de construction d'un « nano-enclos » circulaire (rayon 7,13 nm) constitué de 48 atomes de fer à la surface d'un échantillon de cuivre. Les vaguelettes concentriques observées dans ce « nano-enclos » montrent le caractère ondulatoire des électrons dans le puits quantique où ils se trouvent !

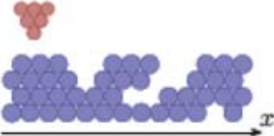


*Étapes de réalisation, avec la pointe d'un STM,
d'un « nano-enclos » d'atomes de fer sur un plan de cuivre
(vu au STM ; IBM Almaden)*



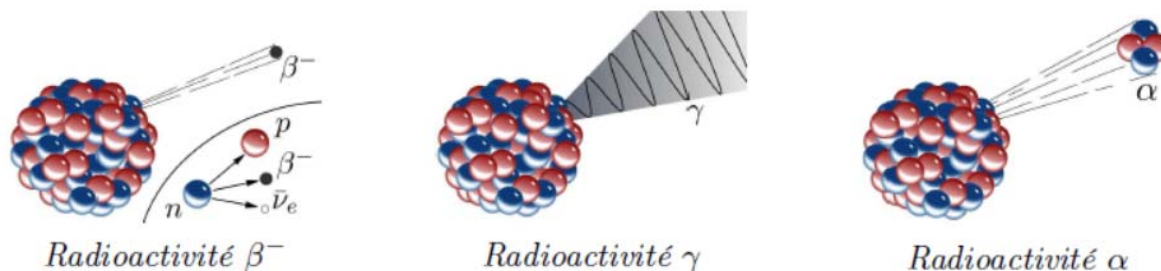
« Nano-enclos » vu au STM en couleurs artificielles

QUESTIONS :

1. Donner au moins quatre facteurs essentiels dans l'obtention d'une image à la résolution atomique avec un microscope à effet tunnel (STM).
2. Le STM permet-il de voir, au sens strict du terme, les atomes ? Que voit-on précisément dans le « nano-enclos » d'atomes de fer ?
3. Pourquoi faut-il, *a priori*, utiliser une pointe en platine iridié plutôt qu'en fer ? Pourquoi est-il parfois recommandé de travailler sous vide ?
4. Comment peut-on faire pour approcher la pointe à moins de 1 nm de la surface de l'échantillon sans l'abîmer (phase « *coarse approach* ») ?
5. Le texte dit que le STM fonctionne aussi avec un liquide comme de l'eau présent entre la pointe et l'échantillon. Pourtant, l'eau est conductrice ! Cela ne pose-t-il pas un problème ?
6. On considère un échantillon dont le profil est donné sur la figure ci-contre, ainsi que celui de la pointe (les sphères symbolisant des atomes). Préciser sur un schéma l'allure de la trajectoire $z(x)$ de déplacement de cette pointe au-dessus de celui-ci en *mode à hauteur constante*, ainsi que celle de l'intensité tunnel I en fonction de x .
7. Reprendre la question précédente dans le cas du *mode à courant constant*. Quelle signification peut-on donner dans ce mode à deux zones de l'image de même luminosité ?
8. Pourquoi existe-t-il des limites pour les résolutions verticale et latérale du STM ? Est-ce la même chose pour un microscope optique classique ?
9. Estimer la résolution verticale d'un STM utilisé sur un bon conducteur en *mode à hauteur constante*, en supposant que la sensibilité sur l'intensité tunnel est de 2%. Conclure.
10. Estimer la résolution latérale d'un STM utilisé sur un bon conducteur. Conclure.

RADIOACTIVITE α (APPROCHE DOCUMENTAIRE)

Les atomes possèdent un noyau constitué de neutrons et de protons et certains d'entre eux peuvent être l'objet d'un processus radioactif. On peut par exemple citer la radioactivité β^- , dans laquelle l'interaction faible permet la conversion d'un neutron en proton en éjectant un électron et un antineutrino, la radioactivité γ , où le noyau dans un état initialement excité se désexcite par un rayonnement γ et la désintégration α qui nous intéresse ici²⁸.



La désintégration d'éléments radioactifs comme le radium, le thorium ou l'uranium avec émission de particules α (noyau d'hélium composé de deux protons et de deux neutrons) a été bien documentée dès 1900. Toutefois, certains aspects de cette désintégration sont restés un mystère jusqu'à ce que Gamow²⁹ propose en 1928 un modèle s'appuyant sur un effet quantique tout juste découvert : l'*effet tunnel*. Sa contribution élucide un aspect mystérieux de la radioactivité α ...

Les particules α émises par diverses sources radioactives ont à peu près la même énergie cinétique E (gamme étroite de valeurs, d'environ 4 à 10 MeV). Cependant, les demi-vies (ou périodes) des sources (durée nécessaire pour que la moitié de leur matière soit désintégrée) varient sur une très large gamme de valeurs suivant l'élément en jeu (plus de 20 ordres de grandeur de magnitude!). On constate même de fortes variations des demi-vies pour des isotopes voisins³⁰.



G. Gamow
(1904-1968)

Élément	Énergie α	Demi-vie
${}^{212}_{84}\text{Po}$	8,95 MeV	$3,0 \cdot 10^{-7}$ secondes
${}^{240}_{96}\text{Cm}$	6,40 MeV	27 jours
${}^{226}_{88}\text{Ra}$	4,90 MeV	$1,6 \cdot 10^3$ années
${}^{232}_{90}\text{Th}$	4,05 MeV	$1,4 \cdot 10^{10}$ années

Élément	Énergie α	Demi-vie
${}^{228}_{92}\text{U}$	6,59 MeV	9,3 minutes
${}^{230}_{92}\text{U}$	5,60 MeV	21 jours
${}^{232}_{92}\text{U}$	5,21 MeV	73 années
${}^{234}_{92}\text{U}$	4,70 MeV	$2,4 \cdot 10^5$ années
${}^{236}_{92}\text{U}$	4,45 MeV	$2,3 \cdot 10^7$ années
${}^{238}_{92}\text{U}$	4,19 MeV	$4,4 \cdot 10^9$ années

Dès 1911, Geiger et Nuttall proposent une loi empirique reliant les demi-vies $t_{1/2}$ aux énergies cinétiques E des particules α émises :

$$t_{1/2}(E) = C_1 e^{C_2/\sqrt{E}}$$

avec des valeurs de C_1 et C_2 indépendantes de E mais dépendantes du numéro atomique Z du noyau restant après la désintégration (noyau fils).

Gamow propose une approche théorique visant à expliquer et à préciser cette loi. Pour cela, il suppose que préexiste au moins une particule α au sein du noyau de l'élément radioactif (noyau père) constituant la source, celle-ci pouvant s'échapper par effet tunnel à travers une barrière de potentiel³¹. Tant que la particule α est à l'intérieur du noyau père, elle est virtuellement libre mais tend à être confinée dans le puits de potentiel formé par l'interaction nucléaire. Une fois en dehors du noyau, elle subit uniquement³² la force de répulsion coulombienne de la part du noyau fils.

La figure ci-contre précise le diagramme d'énergie potentielle associé à la particule α en fonction de sa distance r au centre du noyau. Le rayon nucléaire R d'un noyau père lourd est donné en bonne approximation par la loi $R = r_0 A^{1/3}$ où $r_0 = 1,2$ fm et A est le nombre de masse (R est de l'ordre de 10 fm pour un noyau lourd). La particule α doit traverser la barrière de potentiel de $r = R$ à $r = R_e$ pour s'échapper de celui-ci et être détectée comme le produit d'une désintégration radioactive.

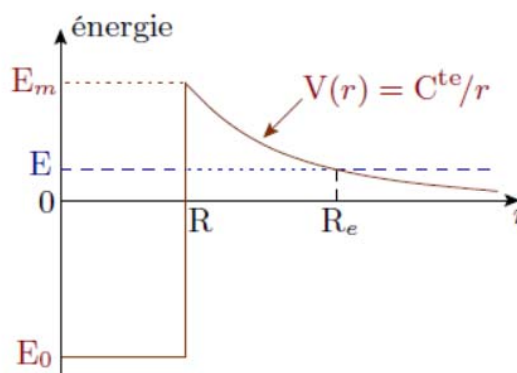


Diagramme énergétique modèle

L'énergie E_0 est typiquement de l'ordre de -40 MeV et la hauteur de barrière E_m de l'ordre de 30 MeV. Classiquement, même une particule α d'énergie $E = 10$ MeV initialement liée au noyau a une énergie insuffisante pour franchir la barrière de potentiel coulombienne. Toutefois, grâce à son comportement ondulatoire, elle peut quand

même s'échapper par effet tunnel. L'énergie totale E de la particule α dans le noyau père devient l'énergie cinétique observée pour la particule α une fois qu'elle s'est échappée.

C'est la grande sensibilité de la probabilité $T(E)$ de transmission d'une particule α à travers la barrière en fonction de son énergie E qui explique la large gamme de valeurs de demi-vies observées pour les émetteurs α . On peut préciser concrètement ce point en recherchant l'expression de $T(E)$ et en déduisant ensuite une loi théorique $t_{1/2}(E)$.

Une première méthode consiste à modéliser la barrière coulombienne par une barrière rectangulaire unidimensionnelle de largeur $R_e - R$ et de hauteur E_m . On en déduit alors le coefficient de transmission dont la décroissance avec E est essentiellement exponentielle³³ :

$$T_0(E) \simeq e^{-2K(R_e - R)} \quad \text{avec} \quad K = \sqrt{\frac{2m_\alpha(E_m - E)}{\hbar^2}}$$

où m_α est la masse de la particule α . Toutefois, ce modèle conduit à des résultats s'adaptant mal aux données expérimentales et doit être amélioré.

Gamow s'appuie sur une méthode approchée semi-classique de Wentzel, Kramers et Brillouin (WKB). Dans la région de la barrière, il pose une fonction d'onde spatiale de la forme

$$\varphi(r) = C e^{-\gamma(r)} + D e^{\gamma(r)}$$

et l'approximation WKB permet de supposer que $\varphi(r)$ varie suffisamment lentement pour que l'on puisse négliger le terme en $d^2\gamma/dr^2$ dans l'écriture de $d^2\varphi/dr^2$. Alors, l'écriture de l'équation de Schrödinger indépendante du temps unidimensionnelle conduit à l'expression intégrale de $\gamma(r)$ et on déduit le coefficient de transmission grâce à³⁴

$$T(E) = \exp(-2[\gamma(R_e) - \gamma(R)])$$

Ainsi,

$$T(E) = \exp \left[-2 \int_R^{R_e} \sqrt{\frac{2m_\alpha(V(r) - E)}{\hbar^2}} dr \right]$$

La suite du raisonnement ne pose pas de difficulté de principe. Il s'agit d'un calcul supposant que $R \ll R_e$ et on aboutit à l'expression

$$T(E) = \exp \left[-4\pi Z \sqrt{\frac{E_\ell}{E}} + 8 \sqrt{\frac{ZR}{r_\ell}} \right] \quad \text{où} \quad r_\ell = \frac{\varepsilon_0 \hbar^2}{\pi m_\alpha e^2} \quad \text{et} \quad E_\ell = \frac{e^2}{8\pi \varepsilon_0 r_\ell}$$

33. Il y a en fait un facteur multiplicatif mais il n'est pas déterminant et pris unitaire. La même chose est pratiquée dans la suite.

34. Une autre approche, moins rigoureuse, consiste à découper l'hyperbole représentative de V en une succession de barrières rectangulaires pour lesquelles on cumule en produit les probabilités de

Maintenant que la loi $T(E)$ est connue, on peut en déduire le taux de désintégration $\lambda(E)$ (probabilité d'émission α par unité de temps, indépendante du temps). Il suffit pour cela de multiplier $T(E)$ par le nombre de collisions par unité de temps de la particule α avec la barrière nucléaire dans le noyau père (en raison d'allers et retours sur des distances $2R$). Dans la plupart des cas, on peut estimer cette fréquence de collision à 10^{21} s^{-1} . Enfin, on passe à la loi de demi-vie par la relation

$$t_{1/2}(E) = \frac{\ln 2}{\lambda(E)}$$

Un tel modèle permet bien de décrire la forte dépendance de la demi-vie avec l'énergie cinétique mesurée pour les particules α et est cohérent avec la loi empirique de Geiger-Nuttall déjà évoquée. De plus, il propose des dépendances de C_1 et C_2 avec le numéro atomique fils Z et conduit à des évaluations d'ordres de grandeurs de $t_{1/2}$ relativement raisonnables³⁵ compte-tenu de sa simplicité.

L'effet tunnel a été utilisé ici pour expliquer l'éjection de particules α du noyau. Cockcroft et Walton songèrent alors à exploiter l'effet en sens inverse : ils utilisèrent en 1932 un faisceau de protons pour bombarder du lithium ${}^7_3\text{Li}$ et générer une réaction nucléaire. Ils réalisèrent ainsi la première transmutation artificielle en formant deux particules α et validèrent au passage la célèbre formule d'Einstein « $E = mc^2$ ». Ce fut le début de l'étude de la physique nucléaire par les accélérateurs de particules (et cela leur valut le prix Nobel 1951).

L'effet tunnel est aussi à considérer pour expliquer la génération d'énergie dans le Soleil (et autres étoiles) qui repose sur une première étape de réaction de fusion de deux protons : cet effet permet aux protons de se rapprocher suffisamment pour autoriser la réaction, malgré la barrière de potentiel due à leur répulsion coulombienne...

1. Écrire l'équation-bilan de production d'une particule α et d'un noyau fils Y à partir d'un noyau père X de nombre de masse A . On rappelle que, dans le texte, Z est le numéro atomique du noyau fils.
2. La désintégration α est-elle plutôt à considérer pour des noyaux légers ou lourds ? Justifier la réponse.
3. Expliciter, en utilisant la loi d'Einstein, l'énergie Q produite par le processus précédent. Pourquoi peut-on dire que c'est en bonne approximation l'énergie cinétique E de la particule α libérée ?

Effectuer l'application numérique en considérant le cas du radium (masse atomique $226,0254 u$) qui produit du radon (masse atomique $222,0176 u$) et la particule α (masse atomique $4,0026 u$) ; u désigne l'unité de masse atomique et vaut environ $931 \text{ MeV}/c^2$.

- Est-ce en accord avec le texte ? La particule α est-elle relativiste ?
4. Comment peut-on expliquer, qualitativement, que l'énergie cinétique E des particules α libérée par désintégration α n'explore qu'une gamme étroite de valeurs ?
 5. Quelle est l'expression de la loi de répulsion coulombienne $V(r)$ à adopter pour la barrière en fonction de Z , e (charge élémentaire), ϵ_0 et r ?
 6. Préciser les relations permettant de déterminer le rayon nucléaire R , l'énergie maximale de barrière E_m et le rayon de sortie de barrière R_e . Effectuer les applications numériques pour ${}^{226}_{88}\text{Ra}$. Commenter.
 7. Quelle relation littérale, fonction de E , E_0 , m_α et R peut-on proposer pour estimer la fréquence de collision de la particule α pas encore libérée du noyau ? Effectuer l'application numérique pour ${}^{226}_{88}\text{Ra}$. Commenter.
 8. La décroissance exponentielle de la loi $T_0(E)$ du texte est-elle une surprise ?
 9. Pouvez-vous expliquer, de façon plus détaillée que le texte, comment est obtenue l'expression avec intégrale du coefficient de transmission $T(E)$? On ne demande pas de discuter le calcul de l'intégrale.
 10. Pouvez-vous expliquer pourquoi $t_{1/2}(E) = \frac{\ln 2}{\lambda(E)}$?
 11. Expliciter complètement la loi $t_{1/2}(E)$ obtenue grâce au modèle de Gamow (formule de Gamow). Utiliser cette loi pour estimer la demi-vie de ${}^{226}_{88}\text{Ra}$. Commenter.
 12. La formule de Gamow est-elle bien cohérente avec la loi empirique de Geiger-Nuttall ?
 13. Effectuer, en utilisant les tableaux de valeurs expérimentales du texte, la validation de la loi $t_{1/2}(E)$ issue du modèle de Gamow *en considérant le coefficient C_1 constant* (hypothèse admise).