

CHAPITRE IV :

*Etude d'une surface vicinale
de Cu(1,1,5) par microscopie à effet
tunnel en fonction de la température*

IV-A. Introduction

La face de Cu(1,1,5) a été étudiée par microscopie à effet tunnel à température variable (STM-VT) afin d'étudier :

- L'évolution de la rugosité en fonction de la température,
- L'influence de l'angle de coupe sur la rugosité de surface,
- Le lien entre l'ordre chimique et la morphologie par comparaison avec la face Cu₈₃Pd₁₇(1,1,5).

Les résultats pour la face Cu(1,1,5) seront comparés à ceux de L. Masson *et al.* [1,2,3] pour la face Cu(1,1,11), qui montrent, par une étude STM à température ambiante, que cette face est rugueuse et stable.

La comparaison avec ceux de la face Cu₈₃Pd₁₇(1,1,5), qui sont présentés dans la seconde partie de ce mémoire de thèse, étend l'étude de l'influence de l'ordre chimique sur la morphologie de S. Goapper [4] (Cu(1,1,11)/Cu₈₃Pd₁₇(1,1,11)).

Avant de présenter les résultats expérimentaux obtenus par l'analyse statistique des images STM, je vais tout d'abord rappeler le principe de la microscopie à effet tunnel ainsi que les différentes techniques expérimentales utilisées. L'interprétation des résultats conduira à la détermination des paramètres énergétiques caractéristiques de cette surface.

IV-B. Techniques expérimentales

IV-B.1. La microscopie à effet tunnel

IV-B.1.1. Bref historique

L'effet tunnel est un phénomène connu depuis la formulation, dans les années vingt, de la mécanique quantique. L'une des principales conséquences de la mécanique quantique est qu'une particule, comme un électron, qui peut être décrite par une fonction d'onde, a une probabilité non nulle de traverser une barrière de potentiel séparant deux régions classiquement permises.

En 1928, ce concept a été utilisé par R. H. Fowler et L. Nordheim [5] afin de déterminer l'expression du courant d'émission d'un métal froid plongé dans un champ électrostatique intense, en modélisant la surface du métal par une barrière de potentiel que traversent les électrons éjectés.

Les progrès technologiques effectués ensuite dans différents domaines comme l'électronique, la physique du solide et les techniques du vide ont permis de rendre ce phénomène accessible à l'expérience. C'est ainsi que Young *et al.* [6] ont mis au point un instrument appelé le *Topografiner* [7] grâce auquel ils ont pu en 1971, pour la première fois, observer le courant tunnel à travers une diode métal-vide-métal. L'année suivante, à l'aide du même appareil, ils ont visualisé des surfaces de platine [8] avec une résolution verticale de 30 Å et horizontale de 4000 Å. Des problèmes de vibration les ont empêchés d'améliorer, par la suite, ces résultats. En 1982, Binnig *et al.* [9,10] ont observé, à l'aide d'un dispositif très similaire au STM utilisé ici, une marche monoatomique. En 1983, la reconstruction 7×7 du Si(111) a été imagée pour la première fois [11]. En 1986, le prix Nobel a été attribué à Binnig et Rohrer pour la mise au point de ce dispositif. Une nouvelle technique d'étude des surfaces était née.

IV-B.1.2. L'effet tunnel

D'un point de vue classique, les électrons d'un solide sont confinés à l'intérieur de celui-ci en raison d'une barrière de potentiel Φ à la surface (travail de sortie). Si l'on approche deux solides à une distance de quelques Angströms l'un de l'autre, les surfaces sont alors suffisamment proches pour que les fonctions d'onde des deux électrodes, qui décroissent de manière exponentielle dans la barrière de potentiel du vide, se recouvrent comme indiqué sur la Figure IV-1. Un courant d'électrons peut alors traverser la barrière de potentiel séparant les deux électrodes lorsqu'une différence de potentiel V_s est appliquée entre elles.

Dans le cas du microscope à effet tunnel, les deux électrodes sont constituées d'une pointe de tungstène et d'une surface conductrice. En se plaçant dans des conditions telles qu'un courant tunnel circule entre la surface et la pointe, la mesure de ce courant lors du déplacement de la pointe sur la surface va fournir des renseignements sur la topographie de la surface. Pour comprendre comment le microscope permet d'obtenir une précision de l'ordre de quelques angströms sur la morphologie de la surface, il faut connaître les caractéristiques de ce courant tunnel.

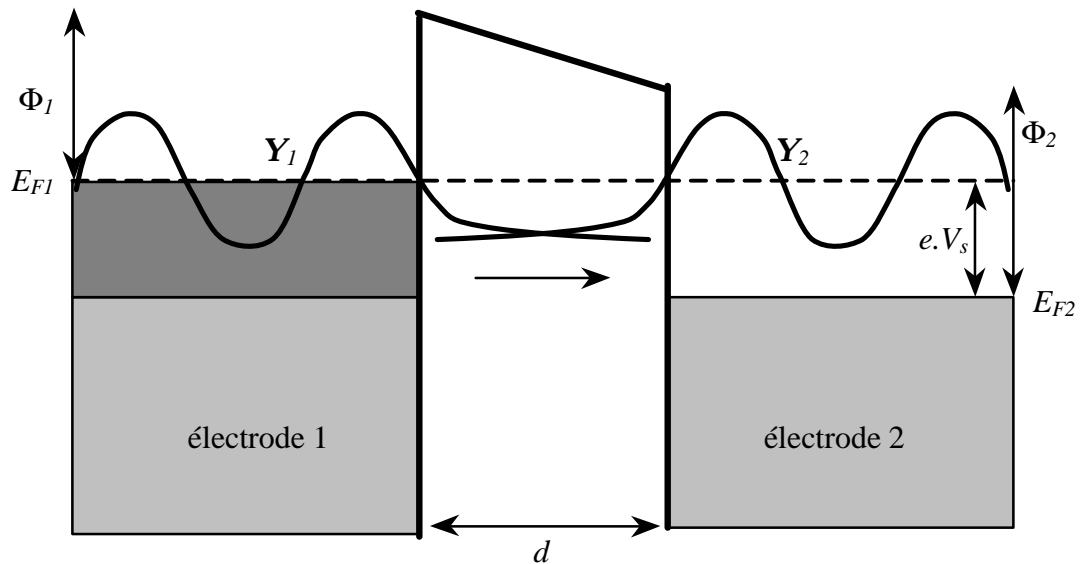


Figure IV-1 : Principe de l'effet tunnel dans une jonction métal-vide-métal : allure des fonctions d'onde des états électroniques. Les électrons qui contribuent sont sélectionnés dans la fenêtre $E_{F1}, E_{F1}-e.V_s$. Ils vont se déplacer des états occupés de l'électrode 1 vers les états vacants de l'électrode 2. Φ_1, Φ_2 et Y_1, Y_2 sont respectivement les travaux de sortie et les fonctions d'onde électroniques dans les électrodes 1 et 2.

IV-B.1.3. Le courant tunnel

La plupart des études menées sur le processus tunnel, dans le cas du STM, se basent sur le formalisme de Bardeen [12]. Ce modèle n'est valide que si l'interaction pointe-surface est suffisamment faible pour que les fonctions d'onde non perturbées de l'échantillon (\mathbf{Y}_s) et de la pointe (\mathbf{Y}_p) puissent être utilisées dans le calcul du courant tunnel.

Le courant tunnel est alors donné au premier ordre par [12,13] :

$$(IV-1) \quad I = \frac{2pe}{\hbar} \sum_{s,p} f(E_p) [1 - f(E_s + eV_s)] |M_{sp}|^2 \mathbf{d}(E_p - E_s) ,$$

où $f(E)$ est la distribution de Fermi-Dirac qui donne la probabilité qu'un état d'énergie E soit occupé. Alors $f(E_p)$ donne la probabilité qu'un état de la pointe, d'énergie E_p , soit occupé, tandis que $[1 - f(E_s + eV_s)]$ donne la probabilité qu'un état de la surface d'énergie $E_s + eV_s$ soit vide, avec V_s le potentiel appliqué à la surface. L'élément de matrice tunnel M_{sp} entre un état de la surface et de la pointe s'écrit [12,13] :

$$(IV-2) \quad M_{sp} = \frac{\hbar^2}{2m} \int dA (\Psi_s^* \vec{\nabla} \Psi_p - \Psi_p \vec{\nabla} \Psi_s^*) ,$$

avec m la masse de l'électron, l'intégrale étant étendue à toute surface A entièrement contenue dans la région séparant la pointe de la surface.

Les équations (IV-1) et (IV-2) permettent de montrer les caractéristiques principales du STM. Pour cela, supposons que l'effet tunnel se produit entre deux métaux de même travail de sortie Φ . Si on se limite, de plus, à un système à une dimension, les fonctions d'onde de la pointe et de la surface, qui décroissent de manière exponentielle dans la zone séparant la pointe de la surface, s'écrivent respectivement :

$$(IV-3) \quad \Psi_p(z) = \Psi_p^0 \exp[-k.(d-z)] \quad \text{et} \quad \Psi_s(z) = \Psi_s^0(\vec{r}) \exp[-k.z]$$

où d est la distance surface-pointe et k , qui a la dimension de l'inverse d'une longueur, est donnée par $k = (2m\Phi/\hbar^2)^{1/2}$.

En combinant les équations (IV-3), (IV-2) et (IV-1), on obtient [14] :

$$(IV-4) \quad I \propto \sum_{s,p} |\Psi_s^0(\vec{r})|^2 |\Psi_p^0|^2 \exp[-2k.d] ,$$

avec \vec{r} la position d'un point sur la surface.

L'expression (IV-4) montre la dépendance exponentielle du courant tunnel avec la séparation pointe-surface d . Pour un travail de sortie typique de 4 eV, $k=1 \text{ \AA}^{-1}$, ce qui implique qu'une variation de d de seulement 1 Å modifie I d'un facteur e^2 . Cette forte dépendance du courant tunnel avec d montre que le STM est un instrument de choix pour l'étude de la topographie des surfaces. Néanmoins, le courant tunnel dépend à la fois de la topographie de la surface et de sa structure électronique $|\Psi_s^0(\vec{r})|^2$, ceci posera problème lors de l'interprétation des images.

Jusqu'ici aucune distinction n'a été effectuée entre la pointe et l'échantillon. Dans un deuxième modèle, la structure de la pointe est supposée infiniment fine et se terminant en un point. Une telle sonde serait idéale car elle permettrait d'étudier la surface avec un maximum de résolution. Dans ce cas, l'expression (IV-4) se simplifie en [13] :

$$(IV-5) \quad I \propto \sum_s |\Psi_s^0(\vec{r})|^2 d(E_s - E_F) ,$$

avec E_F le niveau de Fermi de la surface.

Cette expression montre simplement que le courant est directement proportionnel à la densité d'état $\mathbf{r}(\vec{r}, E_F)$ de l'échantillon au niveau de Fermi :

$$(IV-6) \quad \mathbf{r}(\vec{r}, E_F) \equiv \sum_s |\Psi_s^0(\vec{r})|^2 d(E_s - E_F) .$$

Tersoff et Hamann [13] ont montré que l'on pouvait retrouver l'expression (IV-5) en modélisant l'extrémité de la pointe par un potentiel local hémisphérique. La position \vec{r} peut alors être interprétée comme le centre de courbure de la pointe, c'est-à-dire comme l'origine des fonctions propres de la pointe qui, dans ce modèle, sont représentées par des ondes sphériques.

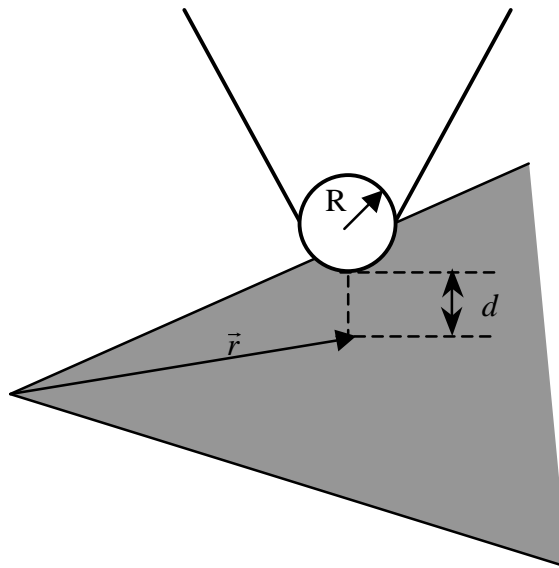


Figure IV-2 : Modèle de Tersoff et Hamann : la pointe est modélisée localement par une sphère de rayon R .

Les calculs effectués à partir de ces différents modèles aboutissent tous au même résultat, à savoir que les images STM correspondent à de véritables *cartes* de la densité d'états électroniques au niveau de Fermi.

Cette conclusion se fonde sur l'hypothèse des faibles tensions V_s . Pour une tension non négligeable (en général $V_s=1$ V pour le cuivre) le courant tunnel ne dépend plus seulement de la fonction d'onde associée au niveau de Fermi, mais dépend également de l'ensemble des fonctions d'onde associées aux niveaux situés entre E_{FI} et $E_{FI}-e.V_s$ de l'échantillon (voir Figure IV-1).

La principale difficulté des études de surfaces par microscopie à effet tunnel réside dans l'interprétation des images. En effet, les images dépendent de la structure de la pointe qui n'est pas connue. Néanmoins, on peut raisonnablement supposer que l'extrémité de la pointe est constituée d'un ensemble de petits amas d'atomes formant des clusters ou mini-pointes. Il est alors vraisemblable que le courant tunnel circule à travers un atome situé au sommet de la mini-pointe dont l'extrémité est la plus proche de la surface. Si on ne tient compte que de l'une de ces mini-pointes, le modèle de Tersoff et Hamann [13], dans lequel l'extrémité de la pointe est représentée par un potentiel hémisphérique, décrit bien le système.

IV-B.1.4. L'enregistrement des images

Le microscope à effet tunnel est constitué d'une pointe métallique très fine (généralement en tungstène) qui se déplace à quelques angströms de la surface que l'on veut étudier. Le déplacement de la pointe se fait à l'aide de trois moteurs piézo-électriques montés perpendiculairement les uns aux autres comme indiqué sur la Figure IV-3.

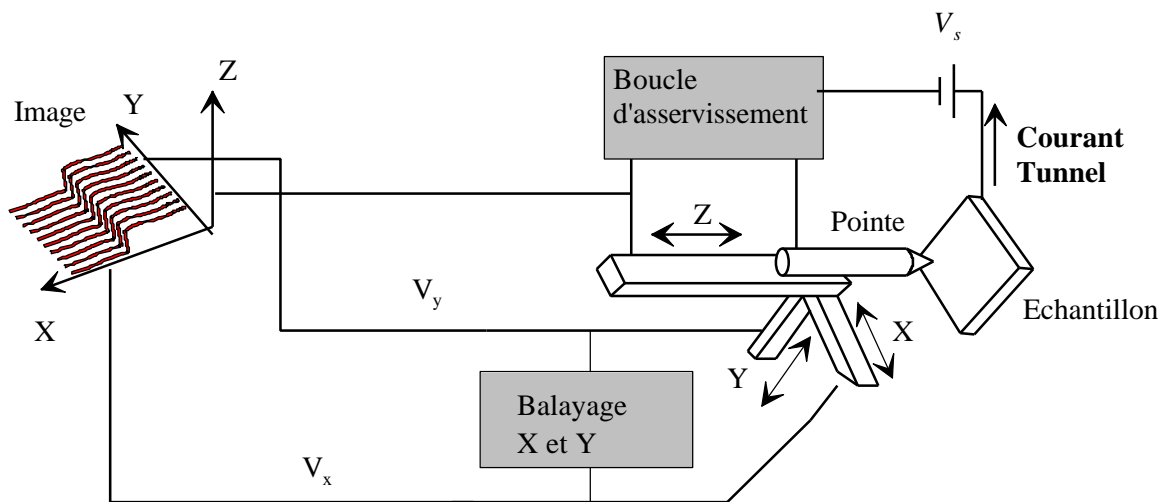


Figure IV-3 : Principe de fonctionnement du microscope à effet tunnel.

L'image de la surface est obtenue par un balayage XY de la pointe. Le signal $S(X,Y)$ enregistré dépend du mode de fonctionnement choisi, il en existe deux représentés sur la Figure IV-4.

Le mode courant constant

En chaque point de l'image, le courant mesuré est amplifié et comparé à une référence choisi par l'utilisateur (de l'ordre de 0.5 nA pour une surface de cuivre). Le signal d'erreur est ensuite utilisé pour asservir la position en Z de la pointe. L'image finale obtenue représente les déplacements de la pointe nécessaires pour conserver le courant constant en fonction de sa position sur la surface, $\Delta Z(X, Y)$. Elle se présente sous la forme d'une carte topographique utilisant une échelle de gris allant du blanc au noir associés respectivement au déplacement le plus grand et au déplacement le plus petit (la distance minimum d'approche de la surface étant choisie comme référence).

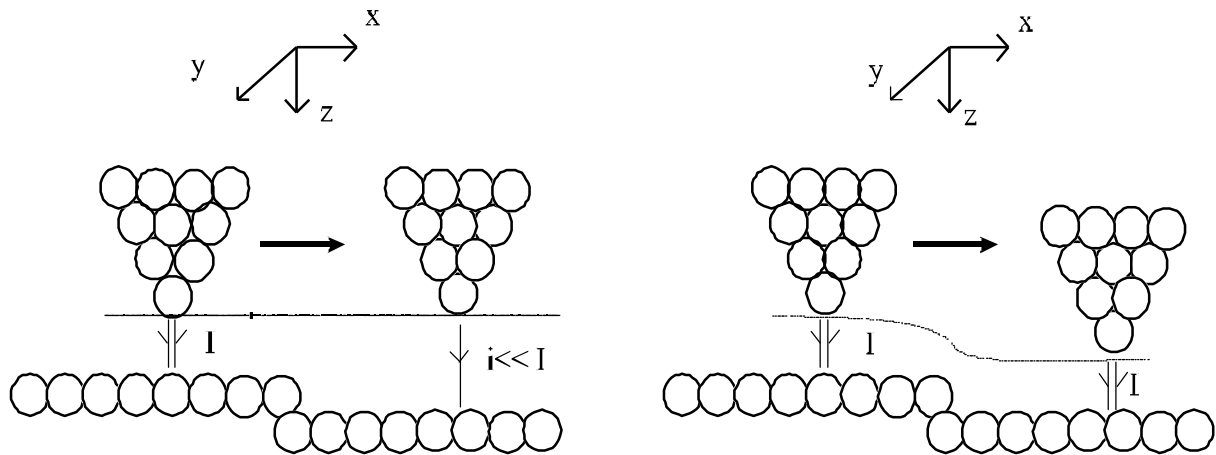


Figure IV-4 : Illustration des deux modes de fonctionnement du STM : mode hauteur constante (figure de gauche) et mode courant constant (figure de droite).

Le mode hauteur constante

Ici, la boucle d'asservissement est déconnectée et la pointe reste à distance fixe de la surface durant le balayage. L'image obtenue représente alors l'intensité du courant tunnel en fonction de la position de la pointe sur la surface, $I(X, Y)$. Elle se présente sous la forme d'une carte topographique utilisant une échelle de gris allant du blanc au noir associés respectivement au courant le plus intense et au courant le plus faible (le courant le moins intense étant choisi comme référence).

Bien que le second mode permette de réaliser des balayages plus rapides, car il ne dépend pas du temps d'asservissement de la boucle, c'est le mode courant constant qui est le plus couramment utilisé. En effet, le mode hauteur constante nécessite que la surface sondée soit très plate afin que la pointe n'accroche pas de défauts, ce qui n'est pas le cas du mode courant constant qui permet d'effectuer des balayages sans risque d'endommager la pointe. Tous les résultats présentés ici ont été obtenus en mode courant constant.

La microscopie à effet tunnel occupe une place importante dans la physique des surfaces de nos jours, car c'est la seule technique permettant une caractérisation dans l'espace direct et à une échelle nanométrique voire atomique de surfaces conductrices ou semi-conductrices.

IV-B.2. Dispositif expérimental

IV-B.2.1. L'enceinte ultra-vide

Pour étudier des surfaces à l'échelle atomique il faut qu'elles soient propres à l'échelle atomique, c'est-à-dire sans aucune impureté sur la surface. Avoir de grandes zones de la surface propres durant une échelle de temps suffisante pour faire des observations STM nécessite de travailler sous ultra-vide (10^{-10} mBar). Le taux résiduel d'adsorbat doit être très faible car ils peuvent créer des points d'accrochage pour les marches dont la configuration ne reflète plus l'équilibre thermodynamique.

Le système de pompage de l'enceinte principale du STM est constitué d'une pompe turbomoléculaire, d'une pompe ionique et d'un sublimateur de titane. Un sas pompé par une pompe turbomoléculaire permet d'introduire les échantillons et les pointes dans l'enceinte principale.

Après chaque remise à l'air des enceintes ultra-vide (pour réparation ou pour modification), elles sont étuvées à 170 °C afin d'accélérer la désorption des parois. La pression après étuvage est de l'ordre de ($10^{-10} - 10^{-11}$ mBar). L'atmosphère résiduelle est principalement constituée de dihydrogène, de monoxyde de carbone, de méthane et de vapeur d'eau.

IV-B.2.2. Le dispositif STM

Durant ce travail de thèse, deux microscopes à effet tunnel fonctionnant sous ultra-vide de marque OMICRON® ont été utilisés : l'un fonctionnant à la température ambiante l'autre permettant de refroidir et de chauffer l'échantillon sur une gamme de température allant de 50 K à 700 K.

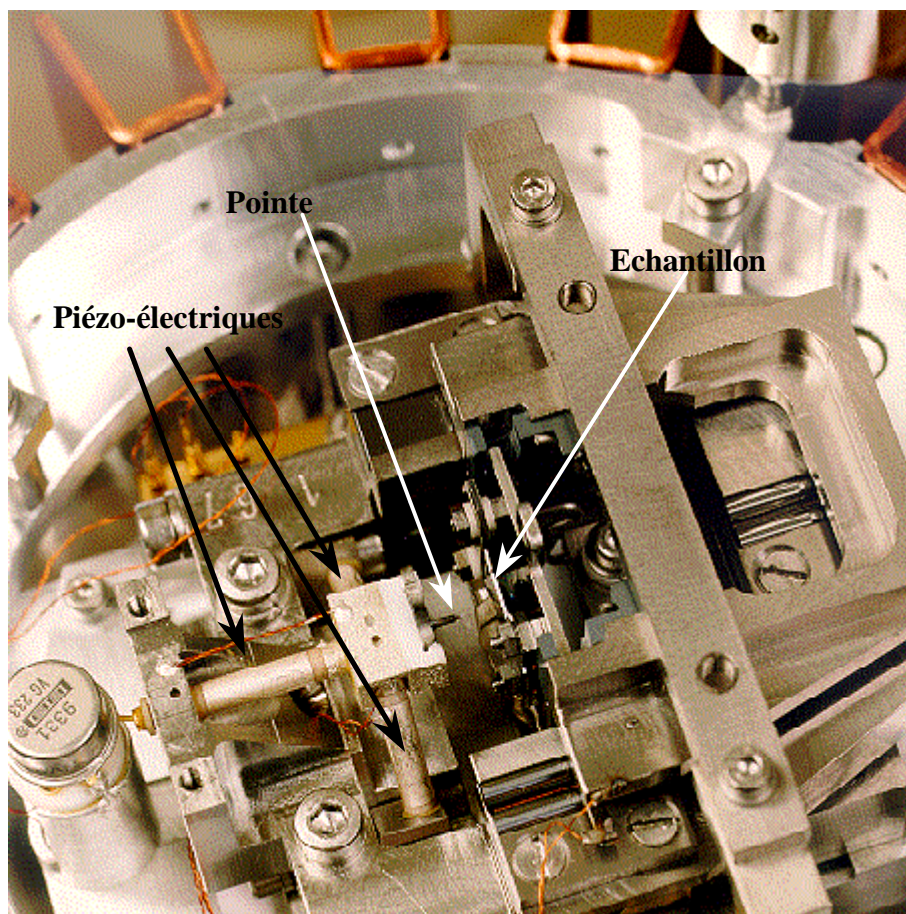


Figure IV-5 : STM OMICRON® fonctionnant à la température ambiante.

- *Le microscope à température ambiante*

Sur la Figure IV-5 est représentée une photographie du microscope à la température ambiante. La géométrie de ce microscope est identique au schéma de la Figure IV-3, avec une pointe horizontale et l'échantillon positionné verticalement. On observe successivement sur la Figure IV-5, de la gauche vers la droite, le trièdre de tubes en céramique piézo-électrique qui assure le déplacement de la pointe, la pointe sertie dans son support et l'échantillon.

Les tensions maximales que l'on peut appliquer aux céramiques sont de ± 140 V, ce qui correspond à une fenêtre de positionnement de la pointe de $1,4 \mu\text{m} \times 1,4 \mu\text{m}$. La taille maximale des images est de $2000 \text{ \AA} \times 2000 \text{ \AA}$. L'échantillon est monté sur deux moteurs inertiels piézo-électriques qui assurent son déplacement "macroscopique" dans la direction Z pour l'approche de la pointe et dans la direction X afin d'explorer différentes zones de la surface. Seule une bande horizontale de $2 \mu\text{m} \times 10 \text{ mm}$ peut être explorée. La taille des échantillons utilisés dans ce microscope est de l'ordre de 12 mm de diamètre et de 2 mm d'épaisseur.

- *Le microscope à température variable*

Le second microscope, fonctionnant à température variable, a une configuration complètement différente (voir Figure IV-6) : l'échantillon est orienté horizontalement vers le bas et la pointe est positionnée verticalement vers haut. La pointe est déplacée à l'aide d'un seul tube piézo-électrique. Les tensions appliquées sur les bords du tube piézo-électrique assurent les déplacements latéraux.

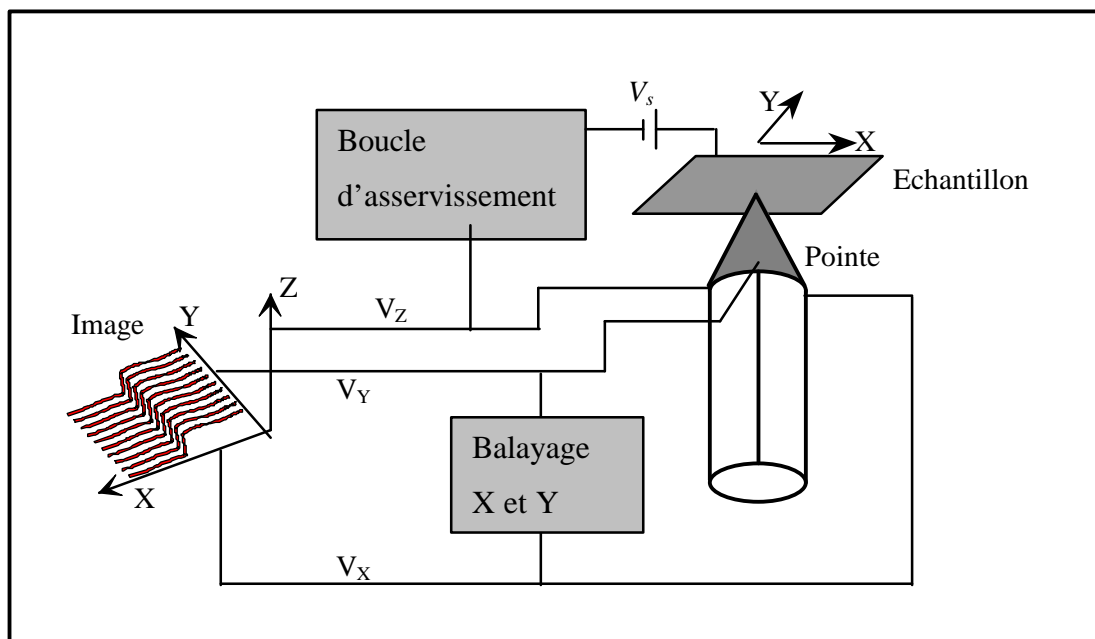


Figure IV-6 : Principe de fonctionnement du STM à température variable.

Le tube piézo-électrique est monté sur trois moteurs inertiels piézo-électriques qui permettent l'approche et le déplacement X Y (5 mm×5 mm). Pour chacune de ces positions macroscopiques, la fenêtre de positionnement accessible par le tube piézo-électrique est de 4 μm ×4 μm (tensions maximales applicables de ± 140 V). La taille maximale des images est de 1 μm ×1 μm . Les échantillons utilisés dans ce microscope sont des parallélépipèdes de 9 mm de long, de 3 mm de large et ayant une épaisseur inférieure à 2 mm (≈ 1.8 mm).

L'échantillon peut être chauffé par rayonnement dans le microscope, grâce à une plaque de nitrure de bore placée dans le porte échantillon. La température maximale à laquelle la surface peut être étudiée est limitée par l'échauffement du tube piézo-électrique qui risque

de se dépolariser à haute température. Afin de limiter le rayonnement provenant du porte échantillon, un cache est placé entre la pointe et le tube. Avec ces caractéristiques le microscope peut fonctionner sans risque durant 12 heures à 600 K et durant 1 heure à 700 K.

Les céramiques piézo-électriques sont sensibles aux variations de température et aux impulsions de tension qui provoquent une dérive de la position de la pointe. Il faut donc, après un chauffage ou une brutale variation de tension, attendre la stabilisation des céramiques avant l'acquisition d'images. La dérive n'est cependant jamais totalement négligeable. Son effet étant d'autant plus gênant que le temps d'acquisition d'une image est grand, il est important de choisir la vitesse de balayage la plus élevée possible.

- *Le système anti-vibration*

La résolution ultime d'un microscope dépend très fortement de la stabilité de la pointe par rapport à l'échantillon, donc de son isolation vis-à-vis des vibrations internes et externes. Pour pouvoir mesurer des amplitudes inférieures au dixième d'angström, cette distance doit être stabilisée à quelques centièmes d'angströms près. Les vibrations mécaniques externes sont des vibrations de basses fréquences (10~100 Hz) provenant de l'environnement. Les deux microscopes sont équipés du même système anti-vibration : la plate-forme support du microscope est suspendue par quatre ressorts (filtres de basse fréquence) fixés par l'intermédiaire de joints (filtres passe-bas). L'amortissement de la plate-forme est assuré par les courants de Foucault créés dans des plaques de cuivre, fixées autour de la plate-forme support circulaire (visibles sur le haut de la Figure IV-5) et plongées dans le champ magnétique induit par des aimants disposés entre chacune d'elles et solidaires de l'enceinte.

- *L'acquisition des images*

Les logiciels informatiques présents sur les deux microscopes permettent de piloter le microscope et de traiter les images obtenues.

En mode d'enregistrement, le logiciel d'acquisition pilote le balayage de la pointe (dimensions de l'image, résolution par pixel, vitesse et angle de balayage...) et enregistre les variations de la tension appliquée à la céramique Z en chaque point $\Delta Z(X, Y)$ (mode courant constant).

En mode analyse, ces logiciels permettent de sélectionner une partie de l'image, de retirer un plan moyen, de filtrer, de calculer la dérivée et la transformée de Fourier des

images, de faire une visualisation en trois dimensions, etc. Malgré toutes ces possibilités, il a été nécessaire de mettre au point nos propres programmes d'analyse d'images adaptés à l'étude des surfaces vicinales.

IV-B.3. Préparation des pointes STM

La qualité des images STM dépend principalement de la pointe [15,16]. L'objectif est d'obtenir une pointe très fine et très pointue de telle sorte qu'elle se rapproche le plus possible de la pointe idéale terminée par un seul atome.

Il existe plusieurs méthodes de fabrication des pointes [17,18]. Celles que nous avons utilisées ont été fabriquées par attaque électrochimique d'une tige de tungstène de 0.25 mm de diamètre. Le tungstène est très largement utilisé car il présente plusieurs avantages. Tout d'abord, sa température de fusion élevée traduit une forte cohésion entre les atomes du solide, ce qui conduit à une pointe stable. De plus, ce matériau a une densité d'états très plate autour du niveau de Fermi qui a donc peu d'influence sur la mesure du courant tunnel.

La tige de tungstène est sertie dans un porte-pointe avant d'être plongée dans une solution composée de $\frac{2}{3}$ d'hydroxyde de potassium (KOH) et de $\frac{1}{3}$ de glycérol ($C_3H_8O_3$). L'attaque électrochimique est réalisée avec une tension alternative fixée à 2 V; elle est arrêtée lorsque le courant devient de l'ordre de 1 mA, avant que la partie immergée ait été complètement attaquée. La pointe, une fois rincée à l'alcool afin d'éliminer les traces de glycérol et d'oxyde de tungstène, est introduite dans l'enceinte ultra-vide via le sas. Dans l'enceinte elle est nettoyée par bombardement électronique ou bombardement ionique (Ar^+) avant d'être placée sur le microscope.

Sur le STM, la pointe peut encore être modifiée par différentes techniques (impulsions de tension à ± 10 V, contact pointe surface...) si elle ne fournit pas d'images nettes ou si elle donne, par exemple, des images formées de la superposition de deux images identiques translatées. C'est le cas lorsque le courant tunnel circule, en même temps, à travers deux micro-pointes distinctes.

Il n'existe pas de méthode systématique pour la préparation des pointes. Empiriquement, une "bonne" pointe est celle qui produit des images à haute résolution.

IV-C. Etude de la surface de Cu(1,1,5)

IV-C.1. Préparation de l'échantillon

La face (1,1,5) fait un angle $\phi_0=15.79^\circ$ avec le plan (0,0,1) dans la direction [1,1,0]. L'échantillon étudié a été découpé dans un monocristal de cuivre par électroérosion. Après avoir subi un polissage mécanique et électrochimique (70% en volume d'acide orthophosphorique, 30% d'eau, $V_{DC}=2$ V polarisation + sur l'échantillon, contre électrode en cuivre), l'erreur finale sur l'orientation ϕ_0 est de $\pm 0.2^\circ$.

Avant d'introduire l'échantillon dans l'enceinte, il a été chauffé durant 1 mois à 1220 K sous flux de dihydrogène. Après cette procédure le cristal est débarrassé de ses principaux contaminants que sont le soufre et le carbone. Une fois dans l'enceinte ultra-vide l'échantillon est nettoyé par une succession de cycles de bombardements Ar^+ à 3 keV suivis de recuits à 850 K. Le dernier recuit avant une observation STM est suivi d'un refroidissement lent de 5 heures afin d'obtenir une surface à l'équilibre.

IV-C.2. Conditions d'acquisition

La tension tunnel appliquée sur l'échantillon est de l'ordre de +1V et le courant tunnel varie de 0.5 nA à 1 nA. Le choix de ces paramètres a été guidé par l'obtention d'une bonne sensibilité. La résolution choisie est de 0.67 ou 0.8 Å/pixel. Cette valeur de 3 à 4 pixels par distance interatomique (2.54 Å) permet de bien distinguer les crans en bords de marches du bruit de digitalisation ± 1 pixel. La taille utile des images spatiales varie de 200Å^2 à 300Å^2 (il est difficile de trouver une surface sans impureté supérieure à 400Å^2). Le temps d'acquisition d'une image varie de 7 minutes à 23 s en fonction de la qualité de la pointe et de la surface. La taille des images temporelles est typiquement de 200Å par 200 s avec une résolution de 0.2 s.

La surface a été étudiée à plusieurs températures : $T=300$ K, $T=325$ K et $T=365$ K. L'étude expérimentale ne s'est pas poursuivie au-delà de 365 K, car à haute température les fluctuations temporelles sont trop rapides comparées à la vitesse de balayage du STM.

Pour chacune de ces températures, des images dites "*spatiales*" et "*temporelles*" ont été enregistrées. Les images spatiales sont obtenues en utilisant le balayage XY conventionnel, avec la direction X perpendiculaire à la direction des marches. Les images temporelles sont, quant à elles, réalisées en enregistrant toujours la même ligne au cours du temps. On obtient alors des images dont l'axe Y est un axe temporel.

IV-C.3. Les images spatiales

Des exemples d'images spatiales de $200\text{\AA} \times 200\text{\AA}$ enregistrées à $T=300\text{ K}$, $T=325\text{ K}$ et $T=365\text{ K}$ sont représentées sur la Figure IV-7, la Figure IV-10 et la Figure IV-11 respectivement. Sur ces images les marches sont verticales et les bords de marches orientés vers la droite.

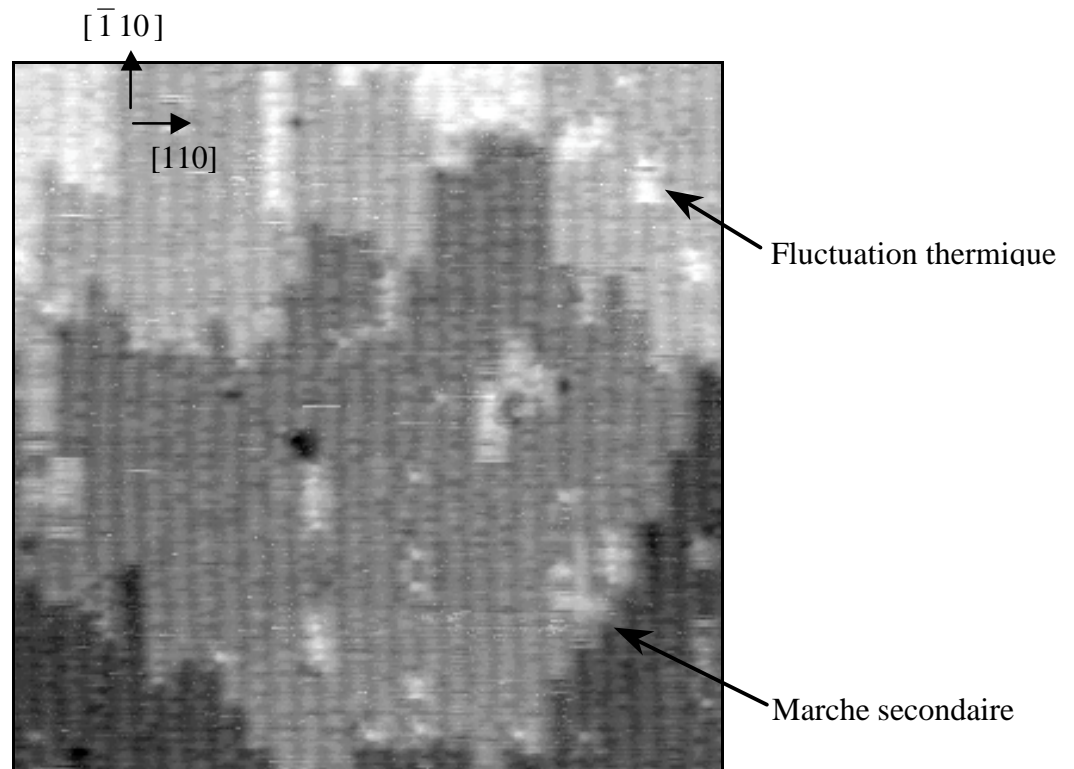


Figure IV-7 : Image STM spatiale ($200\text{\AA} \times 200\text{\AA}$) enregistrée à $T=300\text{ K}$.
($I=0.78\text{ nA}$ et $V_s=1.1\text{ V}$)

Sur l'image à $T=300\text{ K}$ (Figure IV-7) les niveaux de gris traduisent les différences de hauteur de la surface. On peut séparer la surface en différents domaines de hauteur moyenne à peu près constante. A l'intérieur de chaque domaine, les marches sont droites et présentent peu d'excitations. A la frontière entre deux domaines, l'ensemble des marches présentent un cran dans la même direction (voir Figure IV-8 a). Ces frontières ou *marches secondaires*

correspondent à une variation locale de la hauteur moyenne de la surface liée à une variation de la largeur des terrasses (voir Figure IV-8 b).

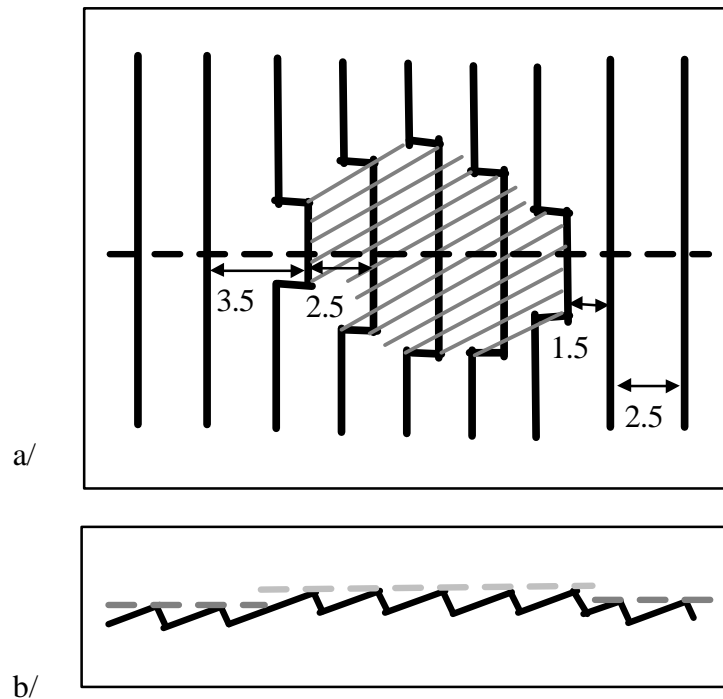


Figure IV-8 : a/ Vue de dessus d'un domaine délimité par une marche secondaire.

b/ Vue de profil : élévation du plan moyen dans le domaine.

Les marches secondaires ne sont pas dues à une erreur de coupe, car sur les différentes zones explorées, toutes les orientations sont visibles. Ces marches ont pour origine une désorientation locale de la surface qui n'est pas à l'équilibre sur de grandes distances. On observe sur les images successives que ces domaines sont très stables (voir Figure IV-9). Les excitations à l'intérieur d'un domaine sont rares et présentent une faible mobilité. Vu la taille des domaines observés sur la surface, on peut considérer que la surface correspondant à cette image est équilibrée sur une distance de l'ordre de 100\AA .

F. Fabre *et al.* [19] ont étudié par diffraction d'hélium le retour à l'équilibre de la face Cu(1,1,5) après bombardement (surface très désordonnée). Il ont obtenu que l'équilibre ne pouvait être atteint sur une distance de 300\AA en 3 h que pour des températures supérieures à 300 K.

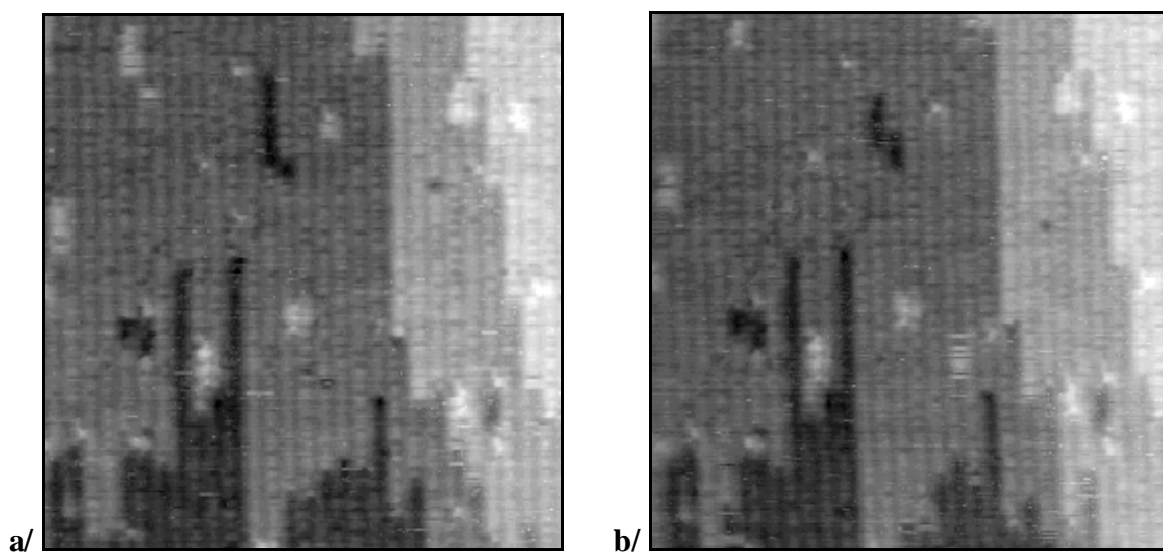


Figure IV-9 : Deux images STM spatiales à $T=300$ K de la même zone de la surface ($200\text{\AA}\times 200\text{\AA}$), enregistrées à 10 min. d'intervalle (a/ puis b/) ($I=0.75$ nA et $V_s=1.10$ V).

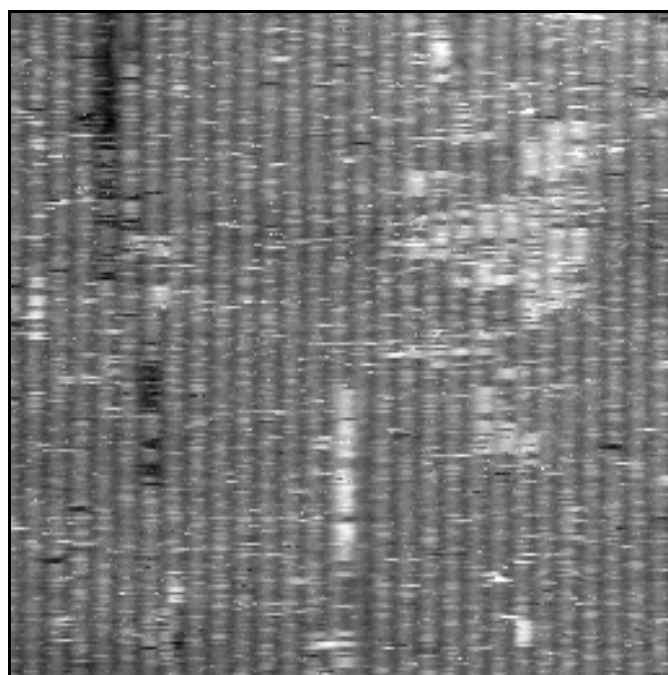


Figure IV-10 : Image STM spatiale ($200\text{\AA}\times 200\text{\AA}$) enregistrée à $T=325$ K. ($I=0.83$ nA et $V_s=0.84$ V)

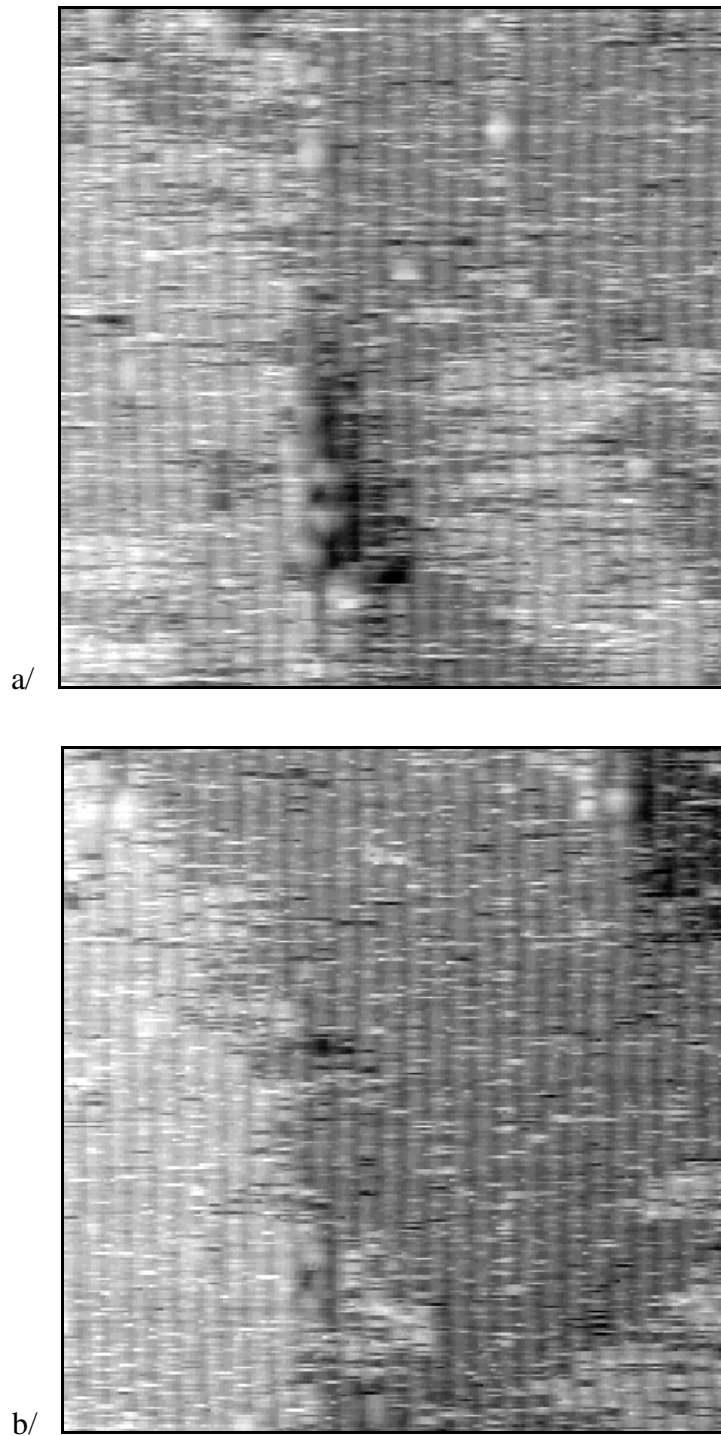


Figure IV-11 : Deux images STM spatiales ($200\text{\AA}\times 200\text{\AA}$) de la même zone de la surface à $T=365\text{ K}$, enregistrées à 25 secondes d'intervalle (a/ puis b/). ($I=0.48\text{ nA}$ et $V_s=0.94\text{ V}$)

A $T=325\text{ K}$ on observe plus de fluctuations qu'à 300 K : on remarque que les images à cette température comportent beaucoup de "frizzeling" c'est-à-dire des crans de largeur un pixel dus aux déplacements des atomes durant le balayage de la pointe. Ces adatoms peuvent se regrouper pour former de petits domaines qui fluctuent rapidement. Sur les images prises à

cette température on observe aisément des zones planes de plus de 200\AA^2 (voir Figure IV-10), ce qui est en accord avec les observations de F. Fabre *et al.* [19].

A plus haute température $T=365$ K, des domaines de grande taille se créent et disparaissent très rapidement au cours du temps. Les Figure IV-11 a/ et b/ montrent que la structure en domaine évolue considérablement en moins de 25 s. Le fait que les marches secondaires thermiques prolifèrent est le signe que la surface est proche de la température de transition rugueuse (température à laquelle les marches secondaires ont une énergie libre qui devient nulle).

Il faut bien faire la différence entre les marches secondaires gelées présentes à $T=300$ K où la surface est mal équilibrée et les parois fluctuantes que l'on observe à plus haute température et qui correspondent à de la rugosité thermique d'une surface à l'équilibre. A 300 K la surface présente deux échelles de longueur (taille des domaines et fluctuations locales), tandis qu'à 365 K les fluctuations sont à l'échelle de l'image.

IV-C.4. Les images temporelles

L'étude temporelle a été réalisée aux trois températures, la Figure IV-12 et la Figure IV-13 illustrent le comportement en temps pour les deux températures extrêmes : $T=300$ K et $T=365$ K. Comme précédemment, sur ces figures les marches sont verticales et les bords de marches sont orientés vers la droite.

Les échelles de temps sur ces deux images ne sont pas identiques : l'intervalle de temps entre deux lignes correspond à 0.2 s sur la Figure IV-12 et à 0.1 s sur la Figure IV-13.

On observe peu d'événements au cours du temps à $T=300$ K. Ceci implique une mise à l'équilibre très lente de la surface à cette température.

A haute température ($T=365$ K), les fluctuations temporelles sont nombreuses, l'aspect de l'image temporelle devient similaire à celui des images spatiales de la Figure IV-11. L'influence du temps ne pourra pas être négligée lors de l'analyse des images à cette température.

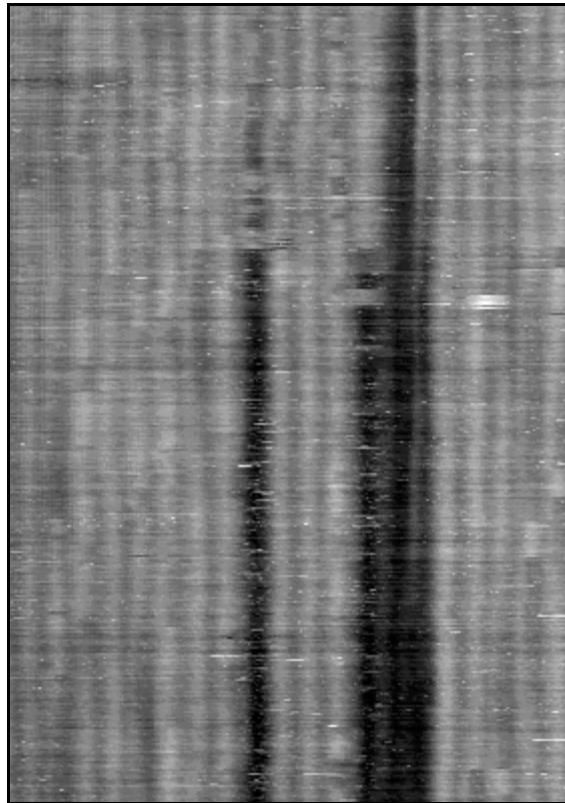


Figure IV-12 : Image STM temporelle ($140\text{\AA}\times 80\text{s}$) à $T=300\text{ K}$. Pour réaliser cette image une même ligne de 140\AA de long a été enregistrée 400 fois à intervalle de temps de 0.2 s .

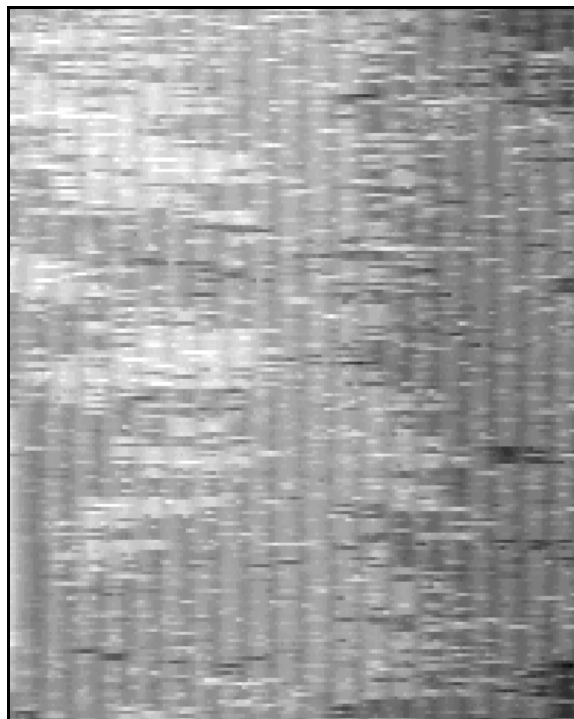


Figure IV-13 : Image STM temporelle ($140\text{\AA}\times 20\text{s}$) à $T=365\text{ K}$. Pour réaliser cette image une même ligne de 140\AA de long a été enregistrée 200 fois à intervalle de temps de 0.1 s .

On peut remarquer que les petits domaines, à $T=365$ K, se déplacent très rapidement sur la surface : un domaine comportant cinq marches (≈ 35 Å de long) disparaît en une vingtaine de lignes c'est-à-dire en 2 s.

IV-C.5. Analyse statistique : fonctions de corrélation et distributions des largeurs de terrasses

IV-C.5.1. Fonctions de corrélation spatiale

La procédure d'analyse d'images utilisée par L. Masson *et al.* [1,2,3], lors de l'étude du Cu(1,1,11), a consisté à repérer la position des bords de marches, puis à calculer les fonctions de corrélation et les distributions des largeurs de terrasses. Cette technique, bien appropriée pour les faces vicinales ayant une grande distance moyenne entre marches, s'est révélée impossible à mettre en œuvre ici sur une face (1,1,5), surtout pour l'analyse des images à haute température.

Il a fallu développer une nouvelle méthode de digitalisation, basée sur l'analyse de la structure en niveaux de l'image : l'idée est de ne plus considérer cette surface comme une surface vicinale, mais comme une surface plate associée au plan moyen de la face (1,1,5). La Figure IV-17, montre une ligne de balayage STM dans la direction perpendiculaire aux marches. La réponse de la pointe n'est pas linéaire. Les marches régulièrement espacées produisent une faible modulation de la hauteur de pointe. Des déplacements notables de la pointe sont observés lorsque les terrasses ont une longueur différente de ℓ_0 (qui conduisent à une variation locale de hauteur par rapport au plan moyen (voir Figure IV-8 b)). Les écarts entre niveaux sont normalisés à 1. A chaque point de l'image on associe le niveau correspondant, on obtient ainsi une image ne reflétant que les différences de niveaux de hauteur de la surface.

Sur la Figure IV-14, la Figure IV-15 et la Figure IV-16 sont représentées simultanément, pour chaque température étudiée, l'image STM et l'image en niveaux correspondante.

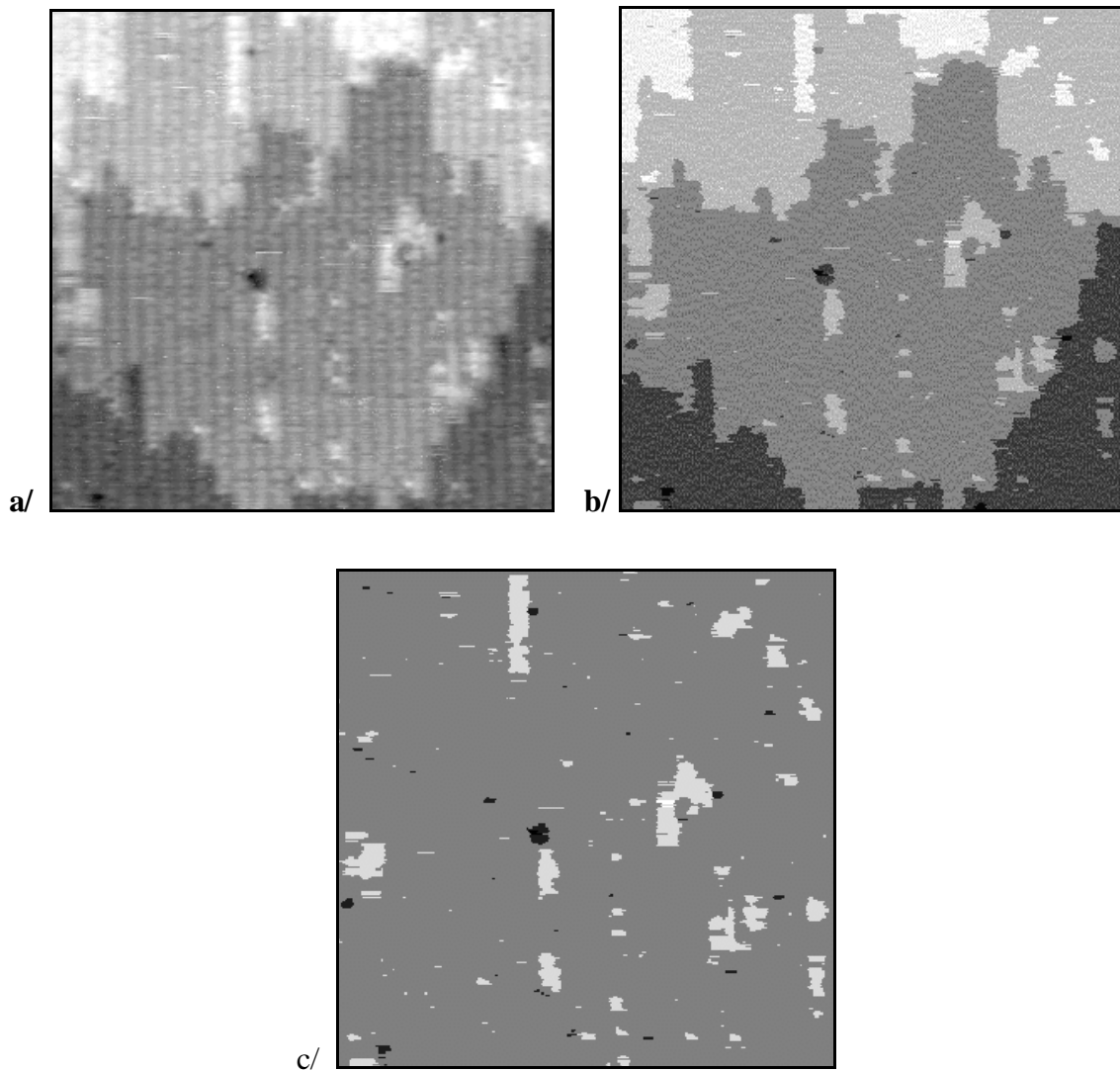


Figure IV-14 : a/ Image spatiale identique à la Figure IV-7.

b/ Image a/ discrétisée en niveaux, la différence de hauteur entre chaque niveau est normalisée à 1.

c/ Image b/ après retrait des marches secondaires.

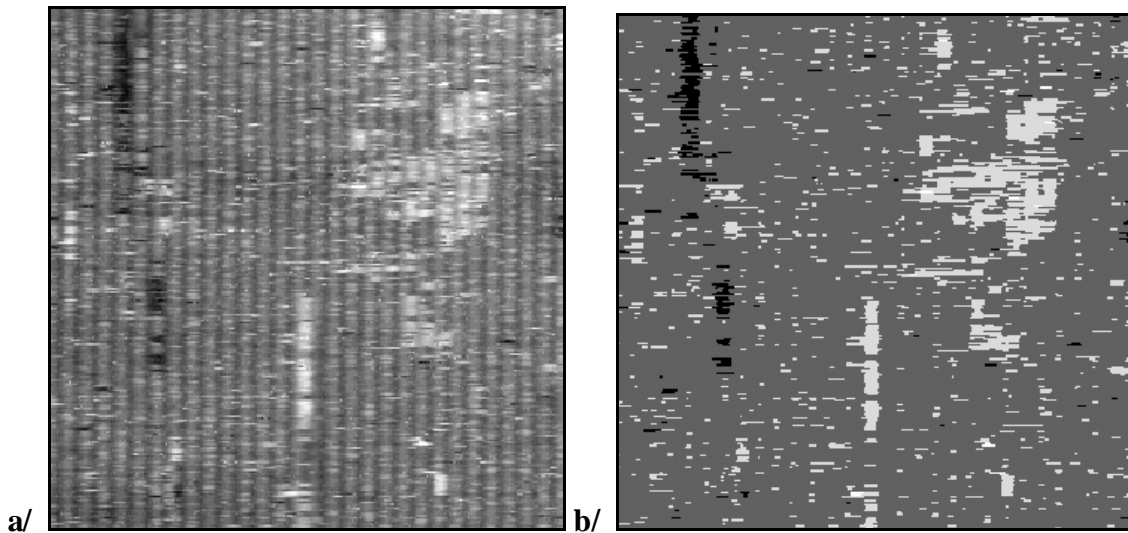


Figure IV-15 : a/ Image spatiale identique à la Figure IV-10.

b/ Image a/ discrétisée en niveaux, la différence de hauteur entre chaque niveau est normalisée à 1.

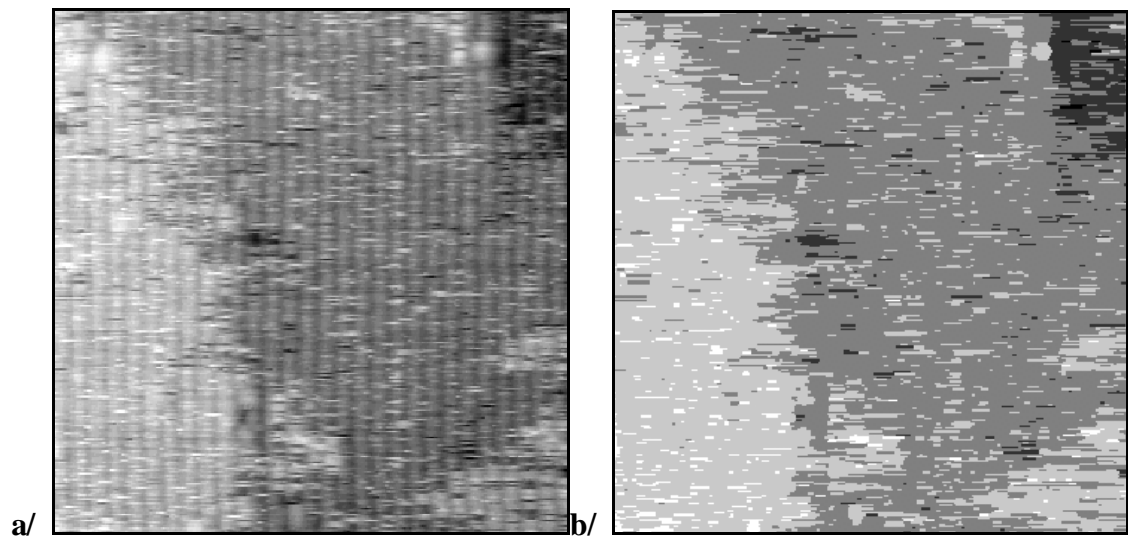


Figure IV-16 : a/ Image spatiale identique à la Figure IV-11 b.

b/ Image a/ discrétisée en niveaux, la différence de hauteur entre chaque niveau est normalisée à 1.

Cette mise en niveau a posé de nombreux problèmes dus au bruit toujours présent sur les images STM et aux variations de résolution dues aux pointes. Seules les images homogènes et de grande qualité (10 % des images) permettent une digitalisation en niveaux correcte.

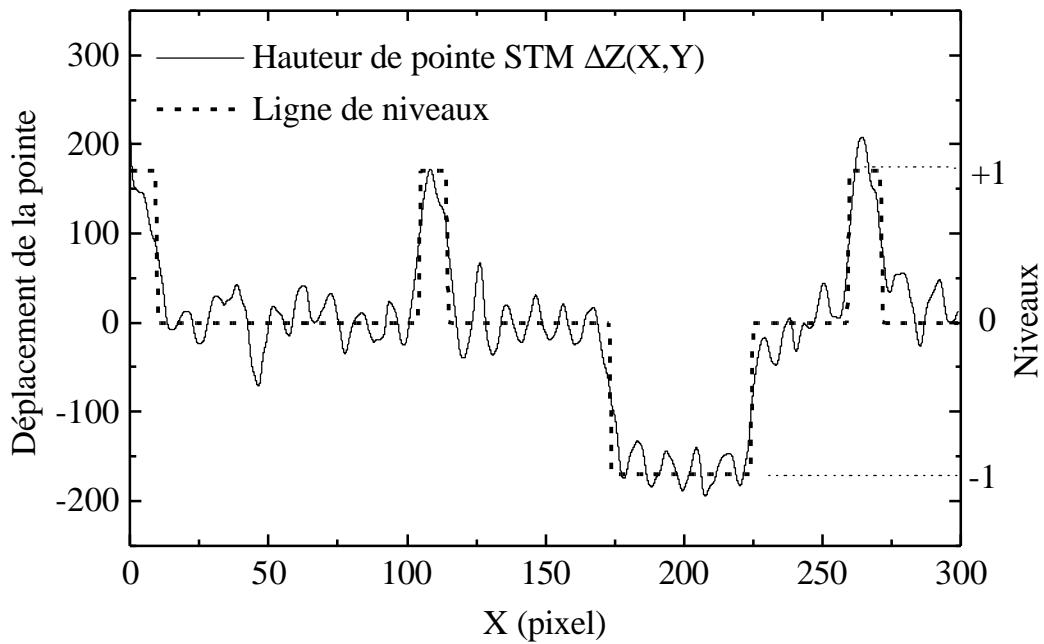


Figure IV-17 : Illustration de la mise en niveaux d'une ligne d'image STM. (—) le signal STM $\Delta Z(X,Y)$. (- - -) ligne de niveaux. La ligne de balayage est tirée de l'image enregistrée à 300 K de la Figure IV-7. Chaque maximum local correspond à la position d'un bord de marche.

Une fois l'image mise en niveaux, on peut calculer les fonctions de corrélation :

$$(IV-7) \quad G(m, y) = \langle [z(m, y) - z(0,0)]^2 \rangle ,$$

où $z(m,y)$ est la hauteur sur l'image en niveaux à la position (m,y) . m est exprimé en distance moyenne entre marches ($L=\ell_0/\cos(\phi_0)$) et y en sites ($a_{||}$). La moyenne sur une image est réalisée en prenant comme origine chaque point de l'image. On calcule successivement les fonctions de corrélation $G(0,y)$ et $G(m,0)$ sur chaque image. La moyenne est ensuite effectuée sur plusieurs images. Le nombre de données utilisées pour l'étude statistique des fonctions de corrélation spatiale aux différentes températures est précisé dans le Tableau IV-1.

	T=300 K	T=325 K	T=365 K
Images spatiales	8 images de 200 Å ² à 300 Å ² ≈34000 sites, soit 8.8 μm de longueur de bord de marches	4 images de 300 Å ² ≈14300 sites, soit 3.6 μm de longueur de bord de marches	6 images de 200 Å ² ≈13500 sites, soit 3.4 μm de longueur de bord de marches
Images temporelles	8 images de 140 Å × 500 lignes ≈76000 données	4 images de 90 Å × 520 lignes ≈27000 données	4 images de 180 Å × 750 lignes ≈81600 données

Tableau IV-1 : Nombre de données utilisées pour l'étude statistique spatiale (fonctions de corrélation spatiale et distributions des largeurs de terrasses) et temporelle (fonctions de corrélation temporelle).

Sur la Figure IV-18 et la Figure IV-19 sont représentées respectivement les fonctions de corrélation spatiale $G(m,0)$ et $G(0,y)$ pour les différentes températures.

Les fonctions de corrélation spatiale mesurées à $T=300$ K présentent une variation importante. Ceci est dû à la désorientation locale de la surface mal équilibrée à cette température. Afin d'éliminer la contribution de la structure en domaines gelée, nous avons réalisé un calcul ne tenant pas compte des marches secondaires. Pour ceci, les marches secondaires ont été supprimées des images à $T=300$ K. Le résultat de cette procédure est illustré sur la Figure IV-14 où sont représentées l'image en niveaux déterminée à partir de l'image réelle (Figure IV-14 b/) et l'image en niveaux sans les marches secondaires (Figure IV-14 c/).

Les fonctions de corrélation calculées sur ces images ne sont correctes qu'à des distances inférieures à la taille caractéristique des domaines (100 Å soit $m=15$). Rigoureusement il ne faudrait calculer les fonctions de corrélation qu'au centre des domaines. Cette procédure sera validée ultérieurement par comparaison avec les configurations tirées des simulations Monte Carlo. Après ce traitement, on observe que la fonction de corrélation sature à une valeur inférieure à celle obtenue à $T=325$ K (voir Figure IV-18 et Figure IV-19).

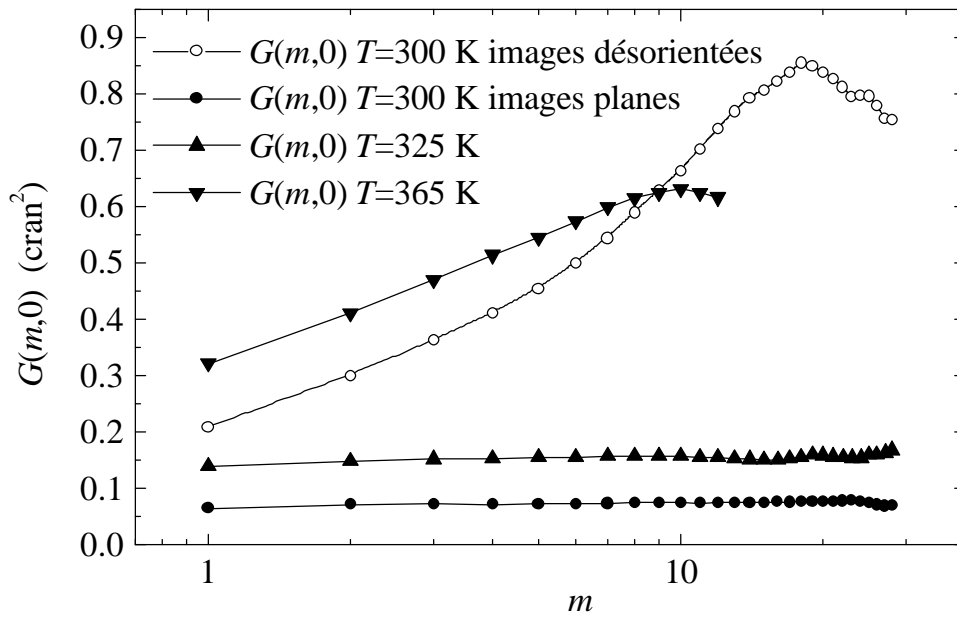


Figure IV-18 : Fonctions de corrélation spatiale $G(m,0)$ en fonction de la température.

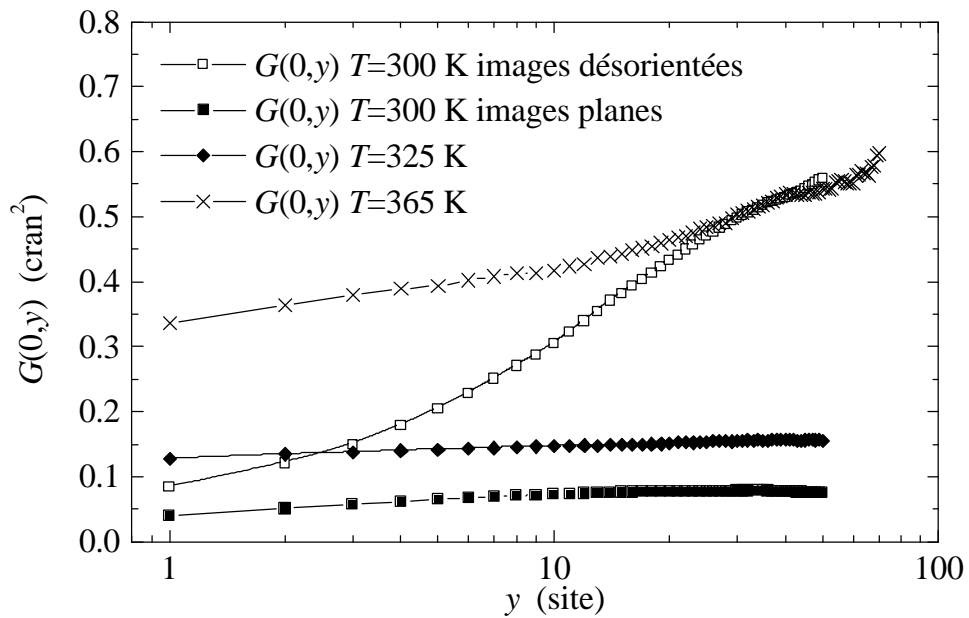


Figure IV-19 : Fonctions de corrélation spatiale $G(0,y)$ en fonction de la température.

A $T=365$ K, on observe pour $G(m,0)$ un comportement logarithmique pour $m < 10$ bien que la surface soit non rugueuse ($G(m=1,0) < 4/\pi^2$).

A $T=365$ K, $G(0,y)$ on observe que $G(0,y=1) > G(m=1,0)$ ce qui est surprenant vu l'anisotropie d'une face vicinale ($\eta_x < \eta_y$). Ce comportement, dû à l'aspect temporel des images, sera étudié au paragraphe IV-C.6.3.

IV-C.5.2. Distribution des largeurs de terrasses

Les distributions des largeurs de terrasses sont calculées sur les images en niveaux, en utilisant l'expression suivante :

$$(IV-8) \quad D(\ell) = \left\langle \mathbf{d}_{z(L,0)-z(0,0)+L,\ell} \right\rangle$$

avec $\mathbf{d}_{i,j}$ la fonction delta de Kronecker et $L = \ell_0 / \cos(\phi_0)$ la distance moyenne entre marche dans le plan moyen de la surface. Sur chaque image, la moyenne est réalisée en prenant comme origine chaque pixel. Le résultat est obtenu en faisant la moyenne sur plusieurs images.

Sur la Figure IV-20, la Figure IV-21 et la Figure IV-22 sont respectivement représentées les distributions des largeurs de terrasses à $T=300$ K, $T=325$ K et $T=365$ K. On remarque, sur ces trois figures, que les distributions sont très étroites.

	$T=300$ K	$T=325$ K	$T=365$ K
$w^2(T)$	0.067	0.139	0.322

Tableau IV-2 : Ecart quadratique moyen des distributions des largeurs de terrasses pour les trois températures étudiées.

Par comparaison avec la distribution universelle des largeurs de terrasses à T_R (voir paragraphe III-B.1.3.), les distributions présentent un écart quadratique moyen w^2 inférieur à $4/\pi^2$. On en conclut que la surface est non rugueuse dans toute la gamme de température étudiée.

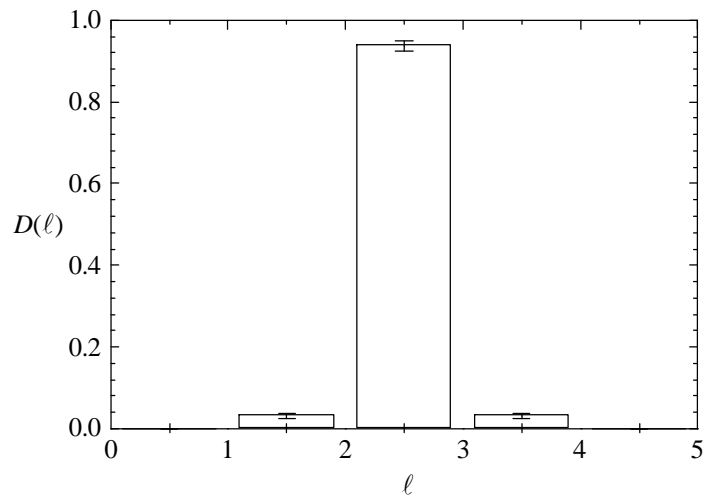


Figure IV-20 : Distribution des largeurs de terrasses expérimentale à $T=300$ K. Les barres d'erreur correspondent à la dispersion mesurée sur les images utilisées.

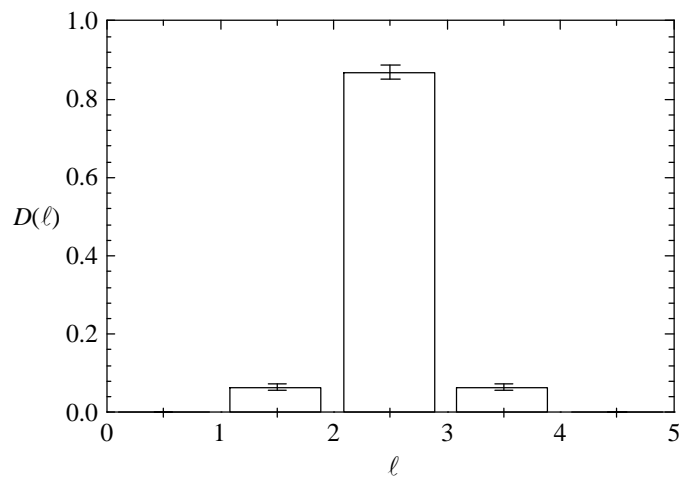


Figure IV-21 : Distribution des largeurs de terrasses expérimentale à $T=325$ K. Les barres d'erreur correspondent à la dispersion mesurée sur les images utilisées.

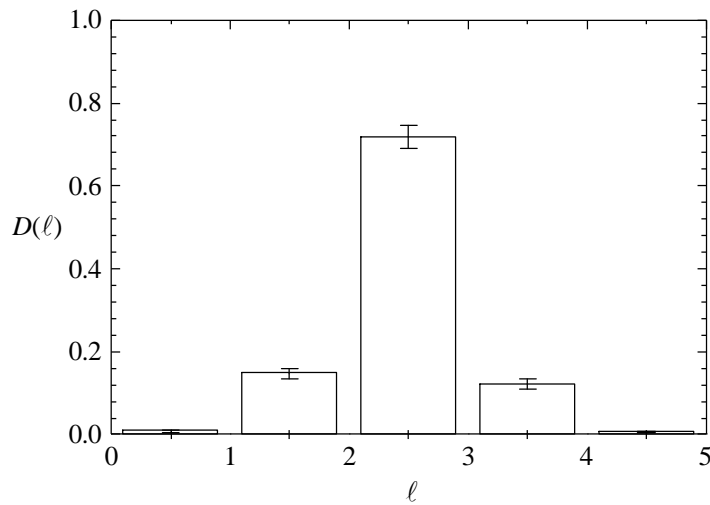


Figure IV-22 : Distribution des largeurs de terrasses expérimentale à $T=365$ K. Les barres d'erreur correspondent à la dispersion mesurée sur les images utilisées.

IV-C.6. Fonctions de corrélation temporelle

IV-C.6.1. Mesure

A partir des images temporelles, la fonction de corrélation temporelle $G(t)$ est calculée dans la direction parallèle aux bords de marches. Cette fonction est définie par :

$$(IV-9) \quad G(t) = \langle (h_m(y,t) - h_m(y,0))^2 \rangle ,$$

avec $h_m(y,t)$ le déplacement à l'instant t de la marche m au site y par rapport à sa position d'équilibre. Dans la pratique, $G(t)$ est calculée sur les images temporelles de la même façon que $G(0,y)$ sur les images spatiales. Le nombre de données utilisées pour l'étude statistique de la fonction de corrélation temporelle aux différentes températures est précisé dans le Tableau IV-1.

Sur la Figure IV-23 sont représentées les fonctions de corrélation $G(t)$ pour les trois températures $T=300$ K, $T=325$ K et $T=365$ K. Les fluctuations sont très faibles à 300 K (la surface est presque gelée) et augmentent avec la température.

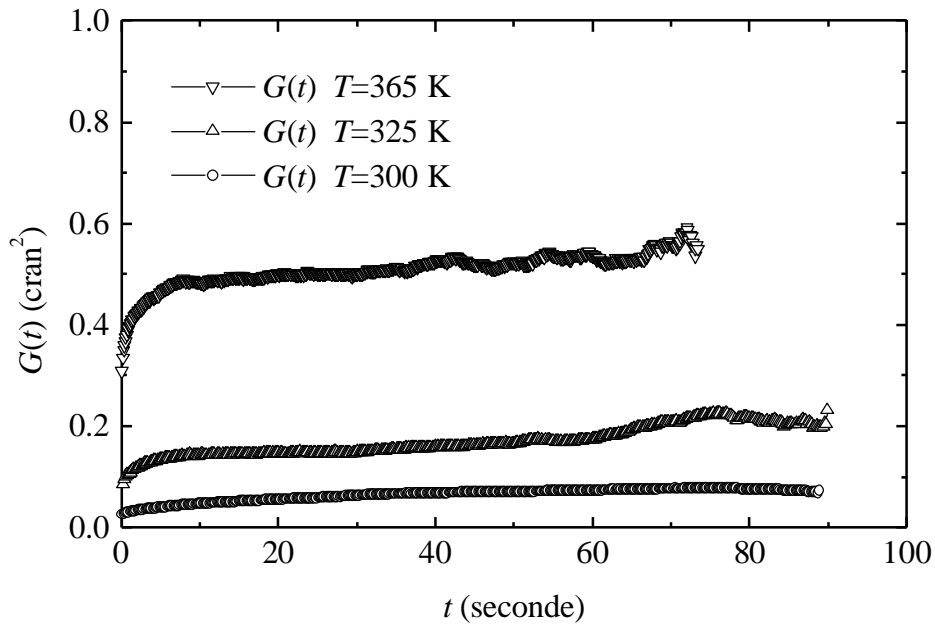


Figure IV-23 : Fonctions de corrélation temporelle $G(t)$ pour les trois températures étudiées.

IV-C.6.2. Détermination de l'énergie d'activation

A l'équilibre, la dépendance temporelle des fluctuations des bords de marches $G(t)$ dépend du régime de diffusion des atomes. N.C. Bartelt *et al.* ont montré que pour une diffusion limitée aux bords de marches la fonction de corrélation $G(t)$ varie en $t^{1/4}$ [20]. A haute température, l'effet de la différence d'énergie d'activation pour la diffusion le long d'un bord de marche et pour le détachement du bord de marche s'estompe. La marche fluctue alors par échange avec un réservoir d'adatoms (issus de la même marche) sur la terrasse. $G(t)$ présente alors une dépendance en $t^{1/3}$ [21,22]. Dans le cas d'un échange d'atomes entre la marche et un réservoir d'adatoms provenant des marches voisines, on obtient une dépendance de $G(t)$ en $t^{1/2}$ [20].

Le comportement en $t^{1/2}$ de $G(t)$ a été observé par N.C. Bartelt *et al.* [23] par microscopie électronique en réflexion sur la face Si(111) à 900°C. La dépendance en $t^{1/4}$, a été mesurée par L. Masson *et al.* [1,2] sur la face Cu(1,1,11), ainsi que par M. Giesen-Seibert *et al.* [24] sur les surfaces vicinales Cu(1,1,13), Cu(1,1,19) et Cu(1,1,79).

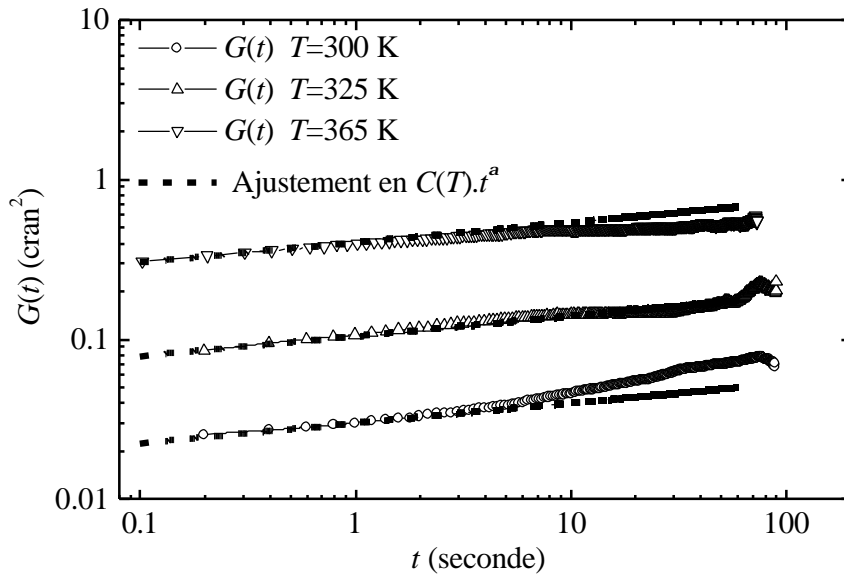


Figure IV-24 : Ajustement d'une loi en $C(T).t^a$ sur les fonctions de corrélation temporelle.

Pour la face Cu(115) que nous avons étudiée, $G(t)$ évolue en loi de puissance $C(T).t^a$ (Figure IV-24). On obtient pour les trois températures le même exposant a de l'ordre de $1/8$ (0.125 ± 0.015). En reportant sur un diagramme d'Arrhénius (Figure IV-25) l'évolution du préfacteur en fonction de la température, nous obtenons une énergie d'activation de 0.37 ± 0.025 eV.

L'exposant mesuré est nettement inférieur aux exposants observés sur les autres faces vicinales. Une interprétation de ce résultat peut être proposée : pour la gamme de température explorées, le mécanisme de diffusion le plus probable est un déplacement des atomes par diffusion le long des bords de marches. L'énergie d'activation que nous avons mesurée est en effet très proche de l'énergie d'activation obtenue (0.324 ± 0.008 eV) pour le régime $G(t) \propto t^{1/4}$ par M. Giesen-Seibert *et al.* [24] sur les faces de Cu(1,1,13), Cu(1,1,19) et Cu(1,1,79). On observe cependant sur la face Cu(1,1,5) un exposant 0.125.

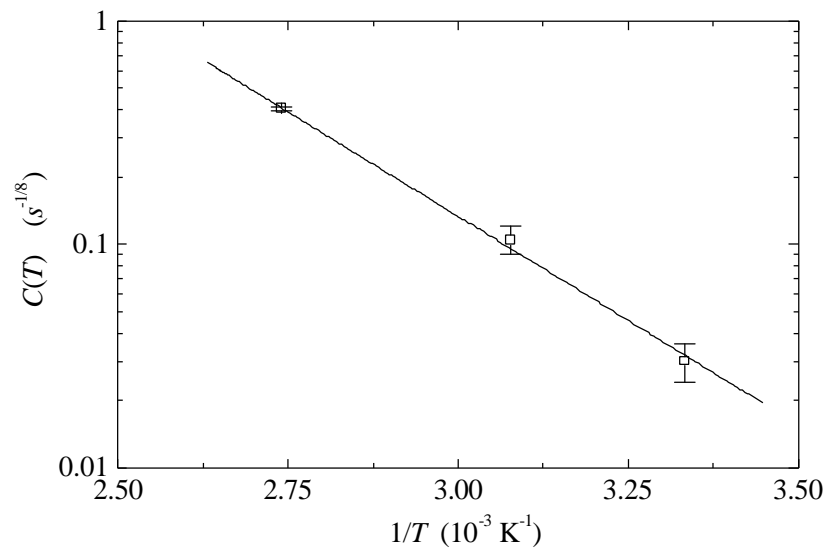


Figure IV-25 : (?) Diagramme d'Arrhénius du préfacteur $C(T)$. (—) Ajustement avec une droite correspondant à une énergie d'activation de 0.37 ± 0.025 eV .

D'un point de vue théorique, des exposants $t^{1/4}$ et $t^{1/2}$ ont été obtenus pour les fluctuations aux temps courts d'une marche unique dans le cadre du modèle harmonique. Ce résultat est la solution d'une équation de type Langevin tenant compte ($t^{1/4}$) ou pas ($t^{1/2}$) de la conservation de la matière le long du bord de marche [20]. Pour une face Cu(1,1,5) l'interaction entre marches est forte et l'approximation de marche unique n'est plus valable. Dans ce cas, un traitement des fluctuations temporelles doit nécessairement tenir compte de l'interaction et un modèle à plusieurs marches est vraisemblablement nécessaire.

Afin d'interpréter nos résultats, des simulations Monte Carlo sur un système constitué de plusieurs marches pourraient être réalisées. Une autre voie pourrait être de reprendre le traitement de l'équation de Langevin pour un système à plusieurs marches. De plus, il serait intéressant de mesurer $G(t)$ au-dessus de T_R .

En conclusion il faut remarquer que la faible valeur de l'exposant mesuré pour $G(t)$ signifie qu'il est très difficile d'équilibrer une surface non rugueuse.

IV-C.6.3. Aspect temporel des images spatiales : comparaison entre $G(0,y)$ et $G(t)$

Les fonctions de corrélation spatiale mesurées dans la direction parallèle aux marches $G(0,y)$ présentent une dépendance temporelle du fait du balayage de la pointe. On peut

reporter sur un même graphe $G(t)$ et $G(0,y)$ en prenant pour échelle de temps en y le temps nécessaire au balayage de y sites.

On observe sur la Figure IV-26, que les fonctions de corrélation $G(0,y)$ et $G(t)$ se superposent aux trois températures. $G(0,y)$ est donc dominée par les fluctuations temporelles. $G(0,y)$ ne contient, par conséquent, qu'une dépendance spatiale négligeable. Ce résultat ne paraît pas surprenant pour les températures les plus élevées ($T=325$ K et $T=365$ K) où les fluctuations temporelles sont très importantes (voir Figure IV-11). Pour les images à $T=300$ K, il faut remarquer que le balayage est beaucoup plus lent, du fait des instabilités de la pointe utilisée, ce qui nous a empêché de réduire la contribution temporelle dans $G(0,y)$.

L'absence d'information sur les corrélations spatiales dans la direction parallèle aux bords de marches posera problème lors de la détermination des paramètres énergétiques A et E_k qui devront être fixés à partir des fonctions $G(m,0)$.

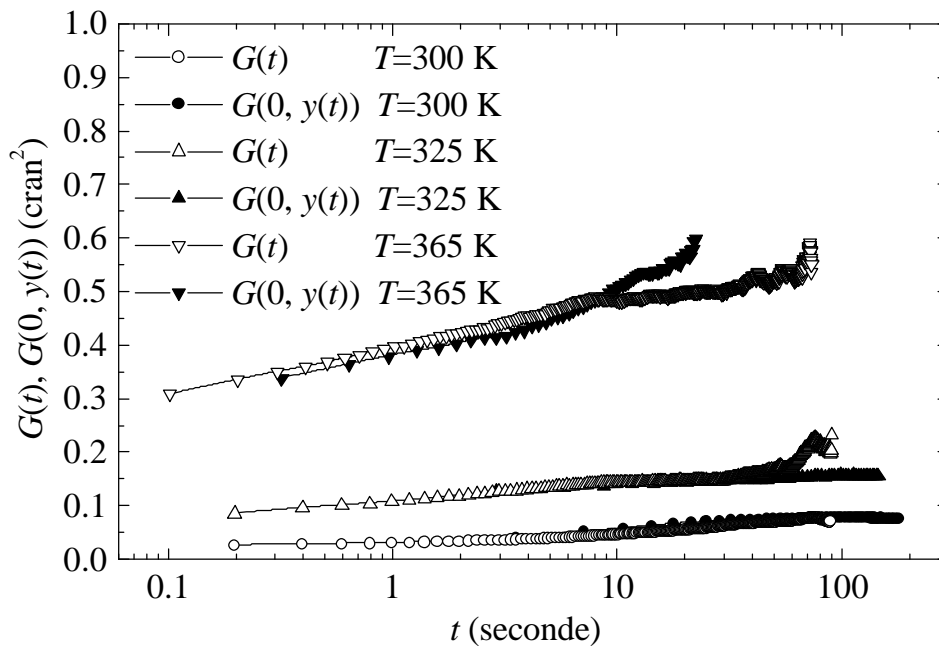


Figure IV-26 : Comparaison des fonctions de corrélation spatiale et temporelle aux trois températures.

IV-C.7. Détermination des paramètres énergétiques A et E_k

IV-C.7.1. Ajustement sur $G(m,0)$

Dans la direction perpendiculaire aux marches, on suppose que le balayage d'une ligne est suffisamment rapide (0.5s à $T=300\text{K}$ et $T=325\text{K}$, 0.04s à $T=365\text{K}$) pour négliger la dépendance temporelle.

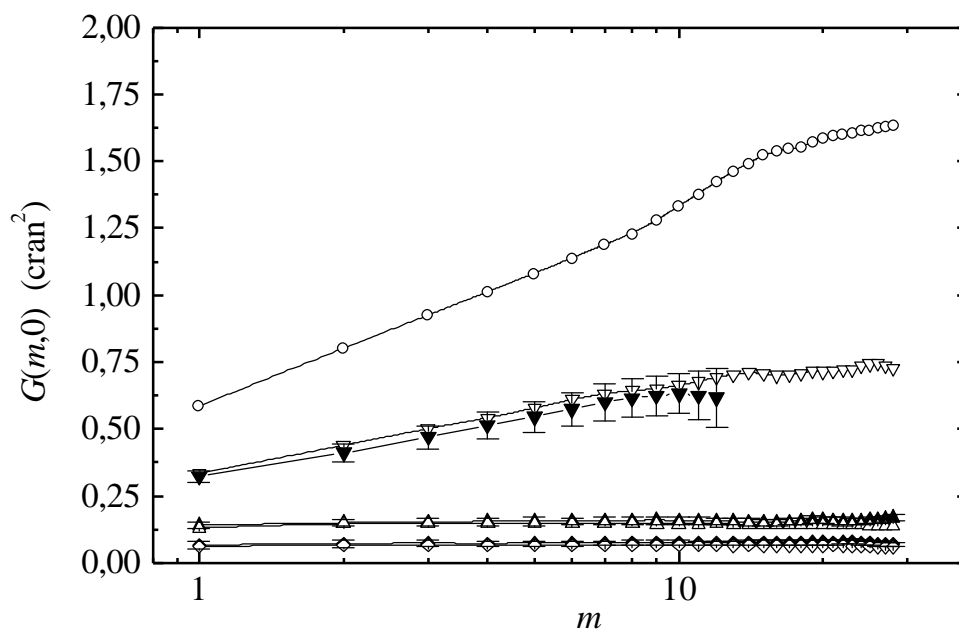


Figure IV-27 : (\diamond, ∇, Δ) Fonctions de corrélation expérimentales $G(m,0)$ à 300 K, 325 K et 365 K. (∇, Δ, \circ) Fonctions de corrélation obtenues par simulations Monte Carlo à 300 K, 325 K, 365 K et 450 K pour $A=100$ K et $E_k=1430$ K. Ces simulations ont été réalisées sur un système de 76 marches \times 1300 sites. Après 1000 configurations de mise à l'équilibre, la moyenne statistique est calculée sur 4000 configurations.

Les paramètres énergétiques A et E_k ont été déterminés en ajustant sur l'ensemble des fonctions de corrélation $G(m,0)$ expérimentales les fonctions de corrélation $G(m,0)$ calculées par simulations Monte Carlo. Le meilleur ajustement a été obtenu pour $A=100 \pm 5$ K et $E_k=1430 \pm 20$ K (voir Figure IV-27). Pour ces valeurs des paramètres on vérifie que l'on reproduit de façon correcte les distributions des largeurs de terrasses (Figure IV-28, Figure IV-29 et Figure IV-30).

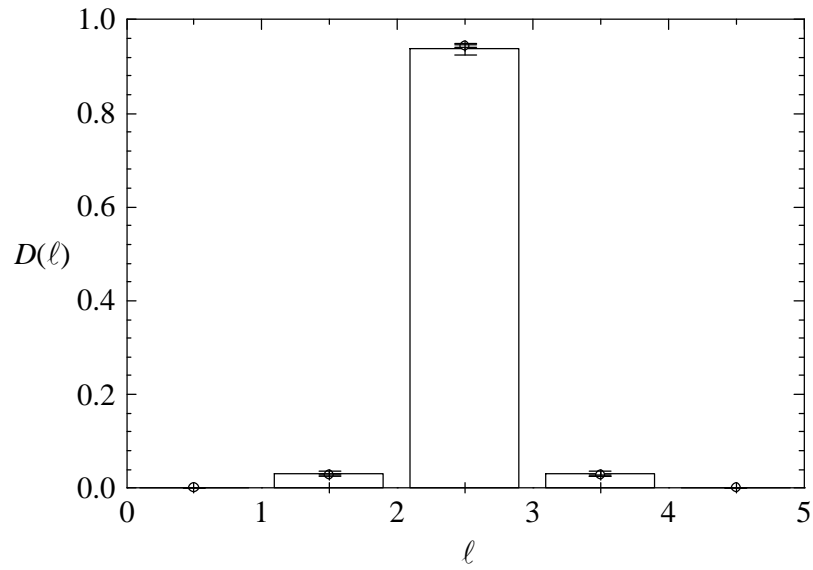


Figure IV-28 : $T=300$ K (histogramme) distribution des largeurs de terrasses expérimentale. (O) Distribution obtenue par simulation Monte Carlo pour $A=100$ K et $E_k=1430$ K. Simulation réalisée sur un système de 76 marches \times 1300 sites. Après 1000 configurations de mise à l'équilibre, la moyenne statistique est calculée sur 4000 configurations.

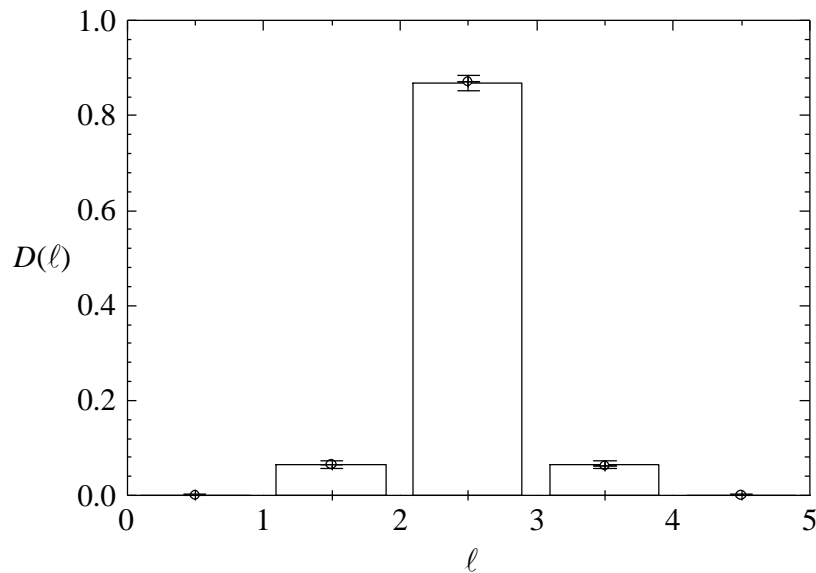


Figure IV-29 : $T=325$ K (histogramme) distribution des largeurs de terrasses expérimentale. (O) Distribution obtenue par simulation Monte Carlo pour la même valeur des paramètres que Figure IV-28.

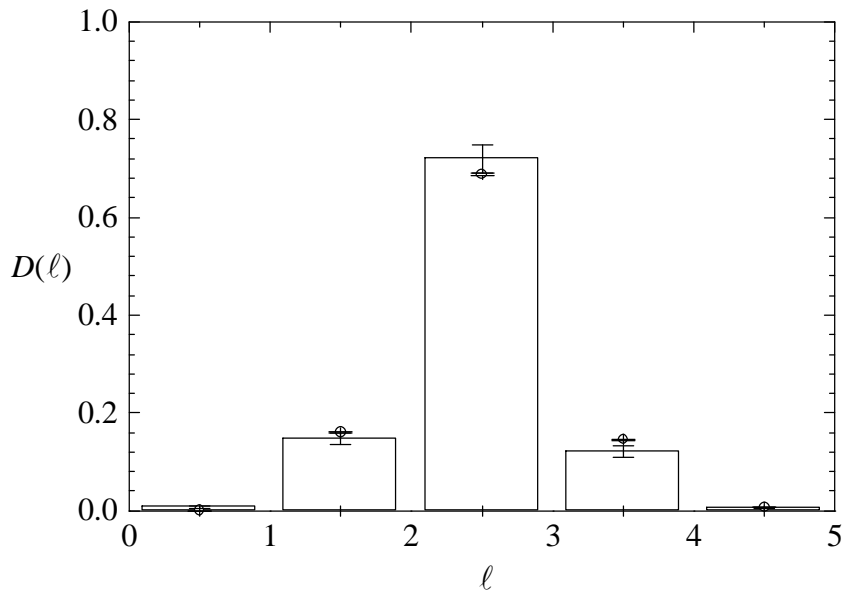


Figure IV-30 : $T=365$ K (histogramme) distribution des largeurs de terrasses expérimentale. (O) Distribution obtenue par simulation Monte Carlo pour la même valeur des paramètres que Figure IV-28.

Le fait que l'on a bien accord entre expérience et simulation à $T=300$ K confirme qu'il ne faut pas tenir compte des marches secondaires à basse température car elles ne correspondent pas à des excitations thermiques mais à un gel de la surface. Cet accord montre, de plus, que le comportement des fluctuations thermiques est peu perturbé par la présence des marches secondaires.

L'ajustement par la méthode du cylindre sur les trois seules valeurs de $G(m=1,0)$ en fonction de la température conduit aux couples de valeurs extrêmes suivantes :

- interaction entre marches premières voisines **$A=90$ K et $E_k=1480$ K,**

(en accord avec les simulations Monte Carlo) **$A=130$ K et $E_k=1320$ K,**

- interaction entre toutes les marches **$A=80$ K et $E_k=1490$ K,**

$A=110$ K et $E_k=1380$ K.

Expérimentalement la fonction de corrélation $G(m,0)$ n'étant mesurée que jusqu'à 365 K, le comportement de $G(m,0)$ au voisinage et au-dessus de la transition a été déterminé par des simulations Monte Carlo. Avec les paramètres énergétiques obtenus, les simulations Monte Carlo conduisent à une température de transition rugueuse de **380 K** pour laquelle $G(m=1,0)=4/\pi^2$. On observe bien sur la Figure IV-27 le passage de la saturation à basse température à un comportement logarithmique au-dessus de la transition.

IV-C.7.2. Comparaison images STM et configurations Monte Carlo

Les configurations obtenues par simulations Monte Carlo peuvent être directement comparées aux images STM. Sur la Figure IV-31, la Figure IV-32 et la Figure IV-33, sont représentées pour les trois températures étudiées une image STM en niveaux et une configuration Monte Carlo.

A 300 K, on vérifie ici directement l'accord qui montre, une fois de plus, la nécessité de ne pas tenir compte, dans la statistique, des marches secondaires dues au gel de la surface.

On observe qu'au fur et à mesure que la température augmente, les marches secondaires deviennent de plus en plus nombreuses, jusqu'à devenir prépondérantes, au voisinage (Figure IV-33) et au-dessus de T_R (450 K, Figure IV-34), par rapport aux fluctuations locales des bords de marches. Ceci est dû au fait que l'énergie libre des marches secondaires devient nulle à T_R (cf. § I-D.).

Les configurations Monte Carlo sont intéressantes car elles correspondent à des images instantanées de la surface, elles ne dépendent pas d'un temps de balayage comme les images STM.

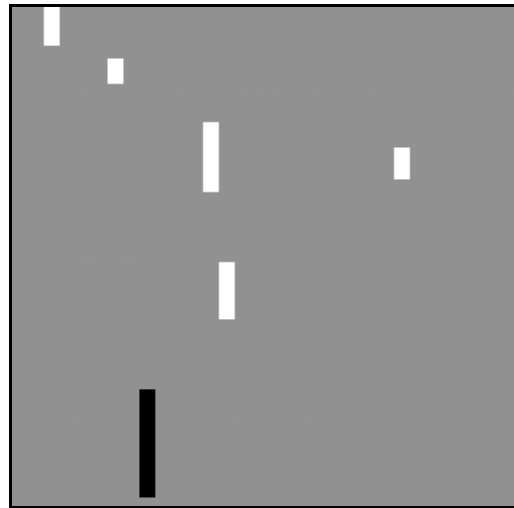
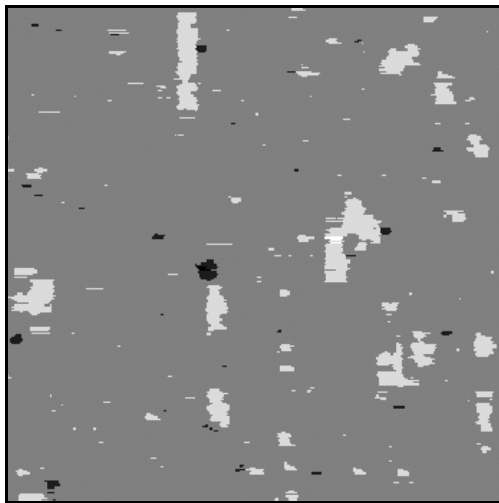


Figure IV-31 : Comparaison image STM en niveaux et configuration Monte Carlo à $T=300$ K ($200\text{\AA} \times 200\text{\AA}$).

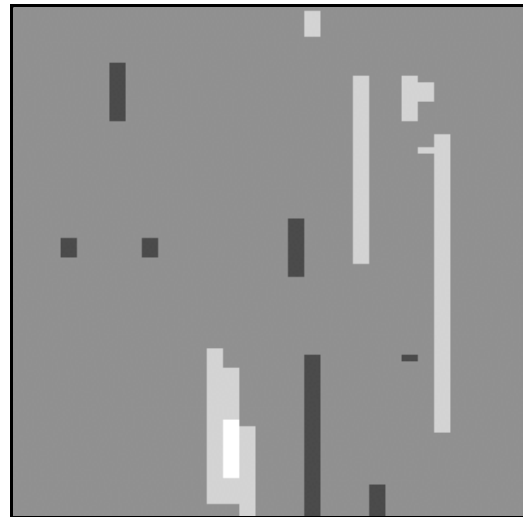
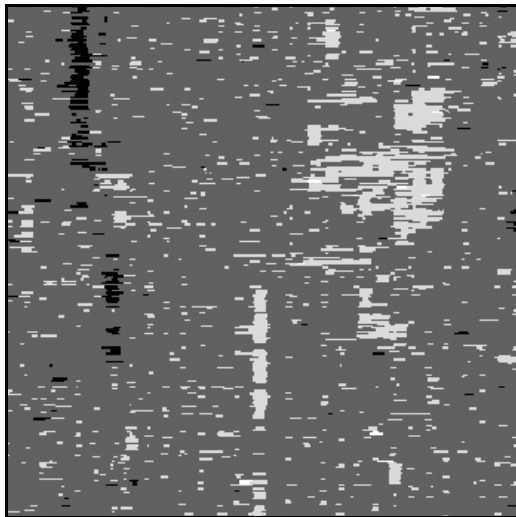


Figure IV-32 : Comparaison image STM en niveaux et configuration Monte Carlo à $T=325$ K ($200\text{\AA} \times 200\text{\AA}$).

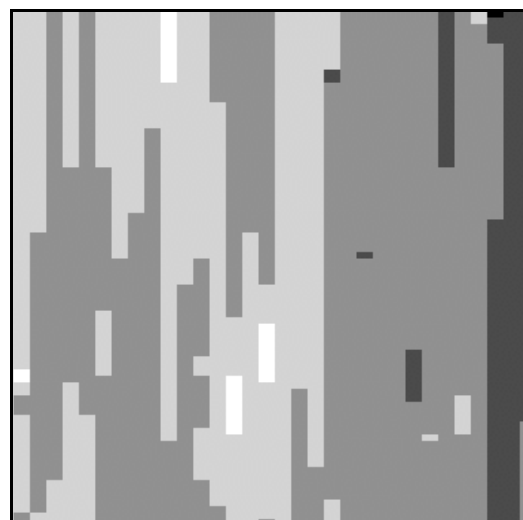
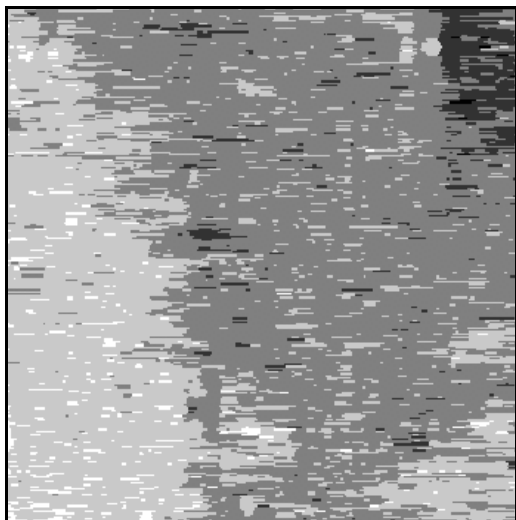


Figure IV-33 : Comparaison image STM en niveaux et configuration Monte Carlo à $T=365$ K ($200\text{\AA} \times 200\text{\AA}$).

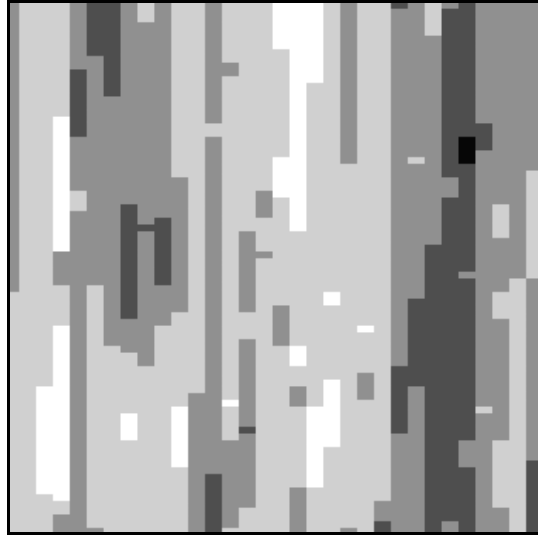


Figure IV-34 : Configuration Monte Carlo à $T=450$ K ($200\text{\AA} \times 200\text{\AA}$).

IV-C.7.3. Détermination des rigidités de surface et du potentiel de localisation

Connaissant les paramètres énergétiques A et E_k de la face de Cu(1,1,5) on peut déterminer l'évolution, en fonction de la température, des rigidités de surface h_x , h_y et du potentiel de localisation V_{loc} via des simulations Monte Carlo (en reprenant la procédure exposée au § III-B.2.). La Figure IV-35 présente l'évolution de ces paramètres en fonction de la température. On observe que sous T_R , V_{loc} devient non nul et que h_y diffère très fortement de la valeur donnée par l'équation (II-57).

En ajustant l'interaction entre toutes les marches du modèle capillaire sur les simulations Monte Carlo au-dessus de T_R on obtient $A_{cap}=65$ K. Avec les paramètres $A_{cap}=65$ K et $E_k=1430$ K l'équation (II-63) donne $(T_R)_{cap}=370$ K qui est proche de la valeur obtenue par les simulations Monte Carlo (380 K).

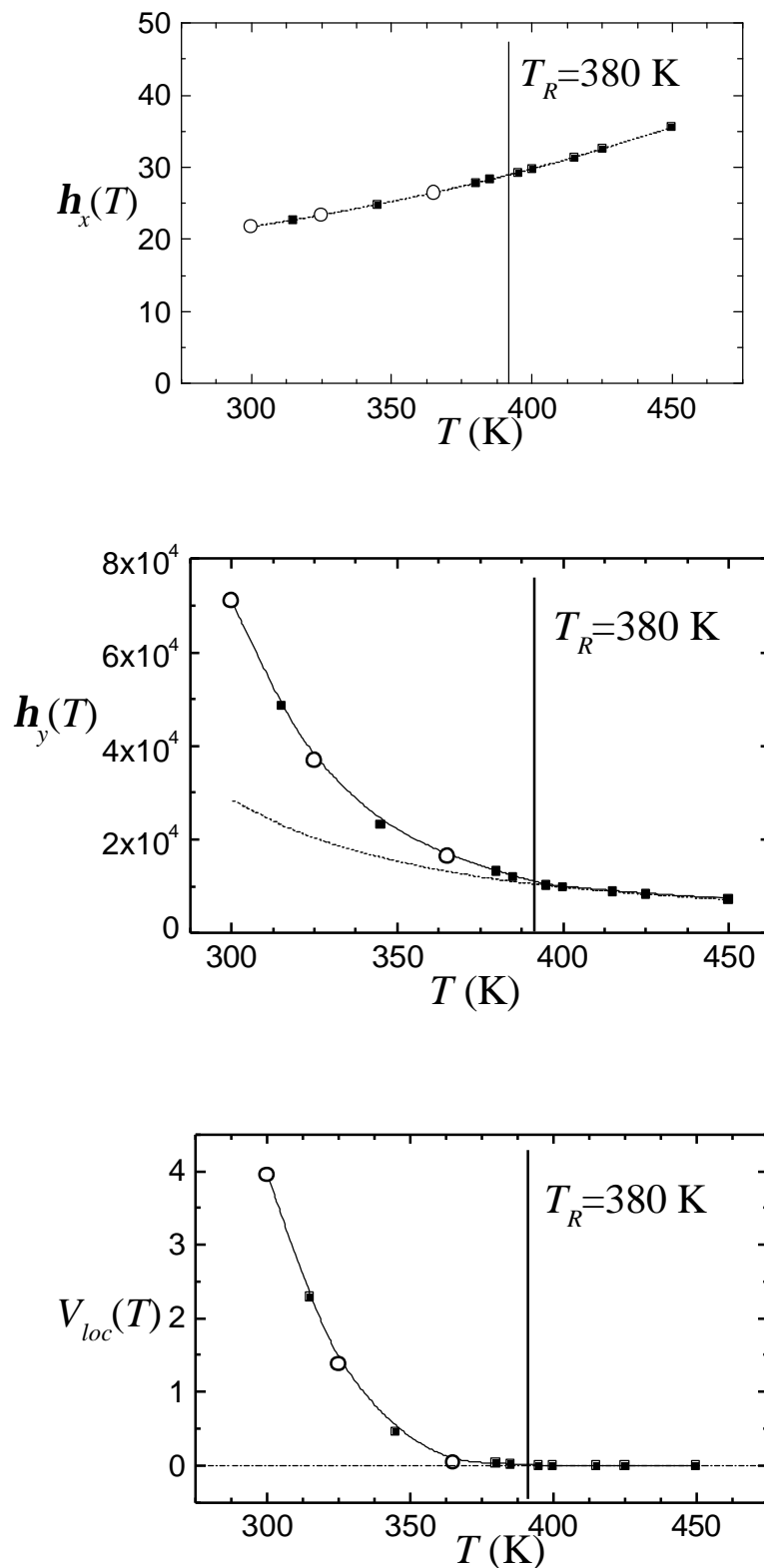


Figure IV-35 : (◻) Evolution en température de h_x , h_y et V_{loc} (en Kelvin) déterminés en suivant la procédure exposée au § III-B.2. ($E_k=1430$ K, $A_{cap}=65$ K, $\ell_0=2.5$). Les symboles (◊) correspondent aux températures expérimentales. Les lignes continues sont un guide pour l'œil. (---) h_x et h_y données par les équations (II-56) et (II-57).

IV-C.8. Discussion

Comparaison avec Ag(1,1,5)

Récemment, M. S. Hoogeman *et al.* [25,26] ont étudié la face Ag(1,1,5) par STM en fonction de la température. Cette expérience, très semblable à la nôtre, leur a permis de retrouver les caractéristiques de la transition rugueuse.

Comme dans notre expérience, M. S. Hoogeman *et al.* ont été confrontés à des problèmes de désorientation locale de la surface conduisant à un comportement plus ou moins linéaire de la fonction de corrélation $G(m,0)$, qu'ils observent sur toutes leurs images. Ceci les a conduits à mettre au point une procédure permettant de sélectionner les parties planes de la surface. Ils observent alors que le préfacteur de la fonction de corrélation $G(m,0)$, logarithmique au-dessus de 445 K, croise la valeur universelle $2/\pi^2$ entre 460 et 510 K. Ils ont également obtenu qu'au-dessus de T_R , le terme constant de $G(m,0)$ est bien égal à deux fois le préfacteur du logarithme, en parfait accord avec l'expression (II-62). Néanmoins, il est surprenant que l'analyse de leurs images STM ne leur ait permis de déterminer ni $G(m=1,0)$, ni les distributions des largeurs de terrasses. Il aurait été intéressant de comparer ces dernières à la distribution universelle à T_R .

Dans leurs expériences, les paramètres énergétiques sont déterminés en analysant, à la température ambiante, la probabilité pour certaines configurations particulières des marches. La formation d'un cran sur une marche en bord de domaine est indépendante de l'interaction entre marches Figure IV-36a . Pour la configuration de la Figure IV-36b l'énergie ne dépend pas de la position du cran sur la marche centrale entre B et C. En dehors de ces limites le déplacement du cran de n sites coûte une énergie $n \cdot w_2$, w_2 étant l'énergie par unité de longueur pour déplacer une marche d'une rangée atomique :

$$(IV-10) \quad w_2 = A \left[\frac{1}{(\ell+1)^2} + \frac{1}{(\ell-1)^2} - \frac{2}{\ell^2} \right].$$

Pour la face Ag(115), ils obtiennent : $E_k=1323 \pm 10$ K, $w_{2+}=42 \pm 4$ K et $w_{2-}=35 \pm 3$ K d'où l'on tire $A=185 \pm 15$ K. A partir de l'expression approchée du modèle TSK [27]

$$\frac{w_2}{k_B T_R} e^{\frac{E_k}{k_B T_R}} = 2, \text{ ils obtiennent } T_R=427 \pm 10 \text{ K. L'expression (II-63) conduit à } T_R=392 \text{ K.}$$

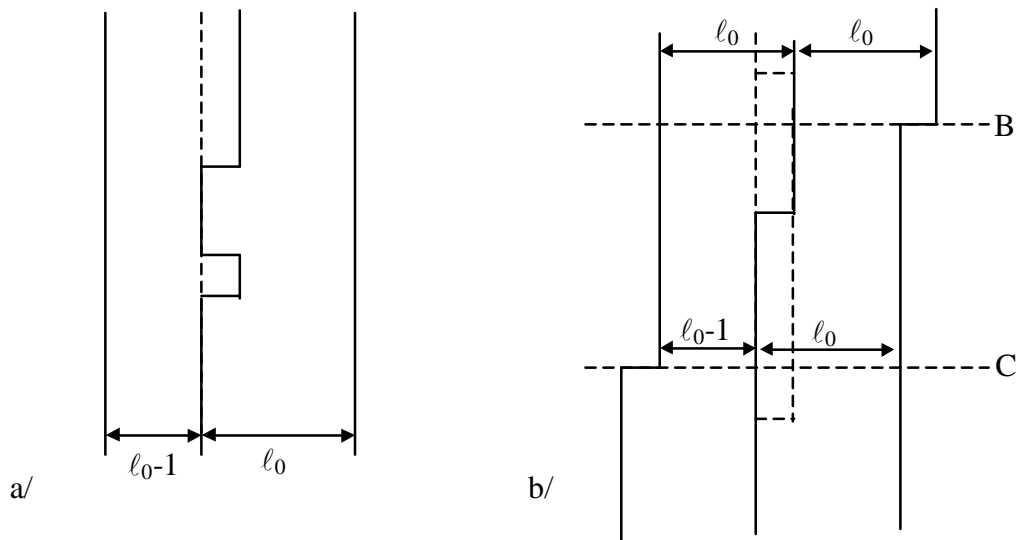


Figure IV-36 : Configurations particulières des marches utilisées par M. S. Hoogeman *et al.* [25] pour déterminer les paramètres énergétiques.

Dans notre analyse nous avons préféré déterminer les paramètres énergétiques à partir de $G(m,0)$, plutôt que sur des configurations particulières des marches secondaires qui correspondent, à la température ambiante, à une désorientation locale.

L'énergie de cohésion pour Ag (4.09 eV) et Cu (3.60 eV) étant très proche, il est cohérent d'obtenir, pour ces deux métaux, une énergie de cran et une énergie d'interaction du même ordre.

Etudes par diffraction – par STM

La face Cu(1,1,5) a été étudiée par diffraction d'hélium par F. Fabre *et al.* [19,28] et par J. Ernst *et al.* [29]. L'analyse des pics de diffraction de F. Fabre *et al.* conduit à $A=120$ K et $E_k=1500$ K. Ils ont également obtenus expérimentalement $T_R=380$ K (en mesurant le préfacteur du logarithme de $G(m,0)$). Ces résultats semblent donc être en très bon accord avec les résultats obtenus par microscopie à effet tunnel. Cependant, les expériences en temps de vol de J. Ernst *et al.*, qui permettent, contrairement aux expériences de F. Fabre *et al.*, de séparer la partie élastique de la partie inélastique du signal de diffraction, aboutissent à des résultats complètement différents. En effet, ils ont observé (entre 160 K et 700 K) un profil des pics de diffraction Lorentzien, qui conduit à des fonctions de corrélation linéaires,

caractéristiques d'un désordre aléatoire de la surface. A 160 K, la largeur à mi-hauteur des pics correspond à une taille caractéristique de surface sans défauts de 100-150 Å. N'ayant pas observé le comportement logarithmique des fonctions de corrélation, ils n'ont pas observé le passage de la transition rugueuse. On peut noter dès à présent que nous observons un comportement linéaire des fonctions de corrélation à la température ambiante, en présence d'une structure en domaines hors équilibre.

La mise à l'équilibre des faces vicinales en-dessous de T_R est donc le principal problème de ces études. Notre étude et celle de M. S. Hoogeman *et al.* montrent que le STM permet de sélectionner les parties de la surface qui sont à l'équilibre, contrairement aux techniques de diffraction. A haute température le résultat de J. Ernst *et al.* reste à priori surprenant car la surface doit pouvoir s'équilibrer sur de grandes distances. Dans cette expérience, l'information sur la rugosité est obtenue par l'analyse des formes de pics. Cette analyse suppose que le facteur de diffusion est indépendant de la largeur des terrasses. Cette approximation, qui semble raisonnable pour les faces vicinales telles que Cu(1,1,11), n'est certainement plus vérifiée pour une face comportant des terrasses courtes telle que Cu(1,1,5). Ainsi, il serait intéressant de comparer nos résultats obtenus par STM avec ceux d'une étude par rayons X où l'approximation de diffusion simple est vérifiée.

Influence de l'angle de coupe

La surface de Cu(1,1,11) a été étudiée par L. Masson *et al.* [1,2,3] par microscopie à effet tunnel (STM) à la température ambiante (voir Figure IV-37) ainsi que par diffraction d'hélium. Ils ont obtenu que cette face est stable et rugueuse à $T=300$ K. L'analyse statistique des images STM leur a permis de déterminer une énergie de cran $E_k=1430$ K et une énergie d'interaction $A=70$ K. La valeur de A a été obtenue pour une interaction entre marches limitée aux premières voisines. A partir de ces données expérimentales, la méthode du cylindre conduit à $A=59$ K pour une interaction entre toutes les marches et pour la même énergie de cran. On en déduit $T_R=205$ K.

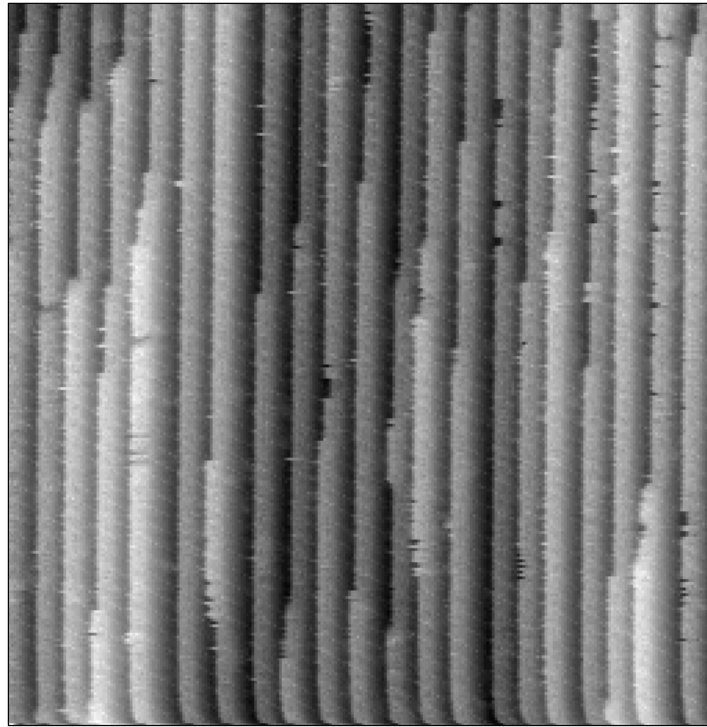


Figure IV-37 : Image STM (310×275)Å² de Cu(1,1,11) tirée de [1].

Contrairement à la face Cu(1,1,11), la face Cu(1,1,5) est non rugueuse à la température ambiante. Pour la face Cu(1,1,5), nous avons obtenu la même énergie de cran ($E_k=1430$ K), mais une énergie d'interaction légèrement supérieure $A=100$ K. Ces paramètres conduisent à une température de transition rugueuse $T_R=380$ K.

Une énergie de cran du même ordre de grandeur ($E_k=1486 \pm 40$ K) a également été obtenue par M. Giesen *et al.* [30,31] sur les faces Cu(1,1,13) et Cu(1,1,19). La comparaison de ces diverses expériences montre que **l'énergie de cran ne dépend pas de la distance moyenne entre marches.**

La constante d'interaction entre marches pour Cu(1,1,5) est légèrement supérieure à celle de Cu(1,1,11). Ces mesures montrent, qu'au premier ordre, **une dépendance en A/ℓ^2 de l'interaction entre marches est parfaitement justifiée.**

Hammonds *et al.* [32] ont modélisé les surfaces vicinales de métaux à l'aide d'un potentiel interatomique de type Finnis-Sinclair. Pour Cu(1,1,5), ils obtiennent E_k de l'ordre de 1000 K et A entre 100 K et 600 K suivant les paramètres du modèle. Tian et Rahman [33] ont utilisé un potentiel de type EAM (Embedded-Atom Method) pour simuler des faces vicinales

de cuivre. Ils ont obtenus $E_k=1570$ K et $A=959$ K pour une dépendance en $\ell^{-2.23}$. Plus récemment, P. Hecquet et B. Salanon [34] ont utilisé un potentiel de type Rosato-Guillopé-Legrand [35] dans un calcul de dynamique moléculaire permettant de traiter les relaxations. Ils ont calculé une énergie de cran de 1400 K et une constante d'interaction $A=250$ K pour une dépendance, pour les faces $(1,1,n)$, en ℓ^{-2} valide jusqu'à $n=5$.

Les valeurs de E_k et A obtenues par simulations sont très sensibles à la forme exacte du potentiel et à la valeur des paramètres. Comparés aux expériences, les résultats de P. Hecquet et B. Salanon sont les plus réalistes.

IV-C.9. Conclusion de l'étude expérimentale du Cu(1,1,5)

L'étude de la face de Cu(1,1,5) nous a permis de montrer que :

- ◆ La fonction de corrélation $G(t)$ varie en $t^{0.125}$ entre 300 et 365 K contrairement aux surfaces de largeur de terrasses plus grandes pour lesquelles la fonction de corrélation varie en $t^{1/4}$, puis en $t^{1/2}$ à plus haute température. Cette variation en $t^{0.125}$ est vraisemblablement due à la forte interaction entre marches présente sur la face Cu(1,1,5).
- ◆ En reportant sur un diagramme d'Arrhénius l'évolution du préfacteur de $t^{0.125}$ en fonction de la température, nous obtenons une énergie d'activation de 0.37 ± 0.025 eV. Ceci est en accord avec les énergies d'activation pour la diffusion en bord de marches, précédemment obtenues sur des faces rugueuses [24].
- ◆ En ajustant les fonctions de corrélation $G(m,0)$ calculées par simulation Monte Carlo (interaction limitée aux marches premières voisines) sur les mesures expérimentales, les paramètres énergétiques pour cette face sont :

$E_k=1430 \pm 20$ K	$A=100$ K \pm 5 K	$T_R=380$ K
---------------------	---------------------	-------------

Comparées à la face Cu(1,1,11) [1,2,3] ($A=70$ K et $E_k=1430$ K) l'énergie de cran est identique et la constante d'interaction est du même ordre de grandeur. Ces paramètres conduisent à $T_R=380$ K pour Cu(1,1,5) et à $T_R=205$ K pour Cu(1,1,11).

BIBLIOGRAPHIE

- [1] L. Masson, Thèse de l'Université Paris XI (1994).
- [2] L. Masson, L. Barbier, J. Cousty et B. Salanon, Surf. Sci. Lett. **317** (1994) 1115
et son erratum L. Masson, L. Barbier, J. Cousty et B. Salanon, Surf. Sci. Lett.
324 (1995) 378.
- [3] L. Barbier, L. Masson, J. Cousty et B. Salanon, Surf. Sci. **345** (1996) 197.
- [4] S. Goapper, Thèse l'Université de Marne la Vallée (1998).
- [5] R.H. Fowler et L. Nordheim, Proc. Roy. Soc. **A119** (1928) 173.
- [6] R. Young, J. Ward et R. Scire, Phys. Rev. Lett. **27** (1971) 922.
- [7] *Topographiner* vient du grec **topografeiu** "décrire un lieu".
- [8] R. Young, J. Ward et R. Scire, Rev. Sci. Instrum. **43** (1972) 999.
- [9] G. Binning, H. Rohrer, Ch. Gerber et E. Weibel, Phys. Rev. Lett. **49** (1982) 57.
- [10] G. Binning et H. Rohrer, Hev. Phys. Acta. **55** (1982) 726.
- [11] G. Binning, H. Rohrer, Ch. Gerber et E. Weibel, Phys. Rev. Lett. **50** (1983) 120.
- [12] J. Bardeen, Phys. Rev. Lett. **6** (1961) 57.
- [13] J. Tersoff et D.R. Hamann, Phys. Rev. **B 31** (1985) 805.
- [14] P. Avouris, J. Phys. Chem. **94** (1990) 2246.
- [15] Sang-il Park, J. Nogami et C. F. Quate, Phys. Rev. **B 36** (1987) 2863.
- [16] Y. Kuk et P.J. Silverman, Appl. Phys. Lett. **48** (1986) 1597.
- [17] A.I. Oliva, A. Romero, G.J.L. Peña, E. Anguiano et M. Aguilar, Rev. Sci.
Instrum. **67** (1996) 1917.
- [18] P.J. Bryant, H.S. Kim, Y.C. Zheng et R. Yang, Rev. Sci. Instrum. **58** (1987)
1115.
- [19] F. Fabre, D. Gorse, J. Lapujoulade et B. Salanon, Europhys. Lett. **3** (1987) 737.

- [20] N.C. Bartelt, J.L. Goldberg, T.L. Einstein et E. D. Williams, Surf. Sci. **273** (1992) 252.
- [21] E.D. Williams, Surf. Sci. **299/300** (1994) 502.
- [22] A. Pimpinelli, J. Villain, D.E. Wolf, J.J. Métois, J.C. Heyraud, I. Elkinani et G. Uimin, Surf. Sci. **295** (1993) 143.
- [23] N.C. Bartelt, J.L. Goldberg, T.L. Einstein, E.D. Williams, J.C. Heyraud et J.J. Métois, Phys. Rev. **B 48** (1993) 15453.
- [24] M. Giesen-Seibert, F. Schmitz, R. Jentjens et H. Ibach Surf. Sci. **329** (1995) 47.
- [25] M.S. Hoogeman, D.C. Schlößer, J.B. Sanders, L. Kuipers et J.W.M. Frenfen, Phys. Rev. **B 53** (1996) 13299.
- [26] M.S. Hoogeman, M.A.J. Klik, D.C. Schlößer, L. Kuipers et J.W.M. Frenfen, Phys. Rev. Lett. **82** (1999) 1728.
- [27] J. Villain, D.R. Grempel et J. Lapujoulade, J. Phys. **F 15** (1985) 809.
- [28] F. Fabre, D. Gorse, B. Salanon et J. Lapujoulade, J. Phys. **48** (1987) 1017.
- [29] H.J. Ernst, R. Folkerts et L. Schwenger, Phys. Rev. **B 52** (1995) 8461.
- [30] M. Giesen, Surf. Sci., **370** (1997) 55.
- [31] M. Giesen-Seibert, R. Jentjens, M. Poensgen, et H. Ibach, Phys Rev. Lett. **71** (1993) 3521.
- [32] K. D. Hammonds et R.M. Lynden-Bell, Surf. Sci. **278** (1992) 437.
- [33] Z.-J. Tian et T.S. Rahman, Phys. Rev. **B 47** (1993) 9751.
- [34] P. Hecquet et B. Salanon, Surf. Sci. **366** (1996) 415.
- [35] V. Rosato, M. Guillopé et B. Legrand, Philos. Mag. **59** (1989) 321.

Conclusion de la première partie

Nous avons, au cours de cette première partie de ce travail de thèse, étudié expérimentalement par microscopie à effet tunnel en fonction de la température la face Cu(1,1,5).

Cette surface étant non rugueuse sur toute la gamme de température étudiée, le modèle capillaire a dû être étendu sous T_R .

Une autre méthode, appelée méthode du cylindre, a été appliquée ici pour la première fois au cas des surfaces vicinales. Elle permet de déterminer la distribution des largeurs de terrasses, la fonction de corrélation $G(0,y)$ et l'énergie libre quelle que soit la température et le potentiel d'interaction. Ceci nous a permis de déterminer le diagramme de phases complet des faces vicinales pour une interaction attractive ou répulsive.

L'étude temporelle du Cu(1,1,5) est la première étude temporelle d'une face vicinale sous T_R , et montre une dépendance en $t^{0.125}$ (et non $t^{1/4}$). On mesure pour le processus de diffusion en bord de marches associé une énergie d'activation de 0.37 ± 0.025 eV.

L'ajustement des fonctions de corrélation $G(m,0)$ calculées par simulation Monte Carlo sur les fonctions de corrélation expérimentales de la face Cu(1,1,5) a permis de déterminer les paramètres énergétiques suivants :

$E_k=1430 \pm 20$ K	$A=100$ K ± 5 K	$T_R=380$ K
---------------------	---------------------	-------------

La comparaison entre Cu(1,1,5) et Cu(1,1,11) montre :

- **que l'énergie de cran ne dépend pas de la distance moyenne entre marches,**
- **une dépendance en A/ℓ^2 de l'interaction entre marches.**

Un prolongement possible de cette étude du Cu(1,1,5) serait de vérifier, à l'aide de simulations Monte Carlo avec conservation de la matière, l'interprétation proposée pour la variation en $t^{0.125}$ de $G(t)$ (forte interaction entre marches). Expérimentalement, une étude à plus haute température ($T > T_R$) serait souhaitable.