

**THESE de DOCTORAT de l'UNIVERSITE  
PARIS VI**

**Spécialité :**

Physique Expérimentale des Atomes  
et des Molécules et Applications.

Présentée par  
**Eric LE GOFF**

Pour obtenir le grade de  
**DOCTEUR de l'UNIVERSITE PARIS VI**

*Morphologie de surfaces vicinales  
de métaux purs et d'alliages :  
stabilité et rugosité.  
Expériences et modélisations.*

Soutenue le 29 octobre 1999 devant le jury composé de :

MM. R. PINCHAUX	président
A. PIMPINELLI	rapporteur
J.P. DEVILLE	rapporteur
L. BARBIER	
B. LEGRAND	
J.J. METOIS	

**THESE de DOCTORAT de l 'UNIVERSITE  
PARIS VI**

**Spécialité :**

Physique Expérimentale des Atomes  
et des Molécules et Applications.

Présentée par  
**Eric LE GOFF**

Pour obtenir le grade de  
**DOCTEUR de l 'UNIVERSITE PARIS VI**

*Morphologie de surfaces vicinales  
de métaux purs et d'alliages :  
stabilité et rugosité.  
Expériences et modélisations.*

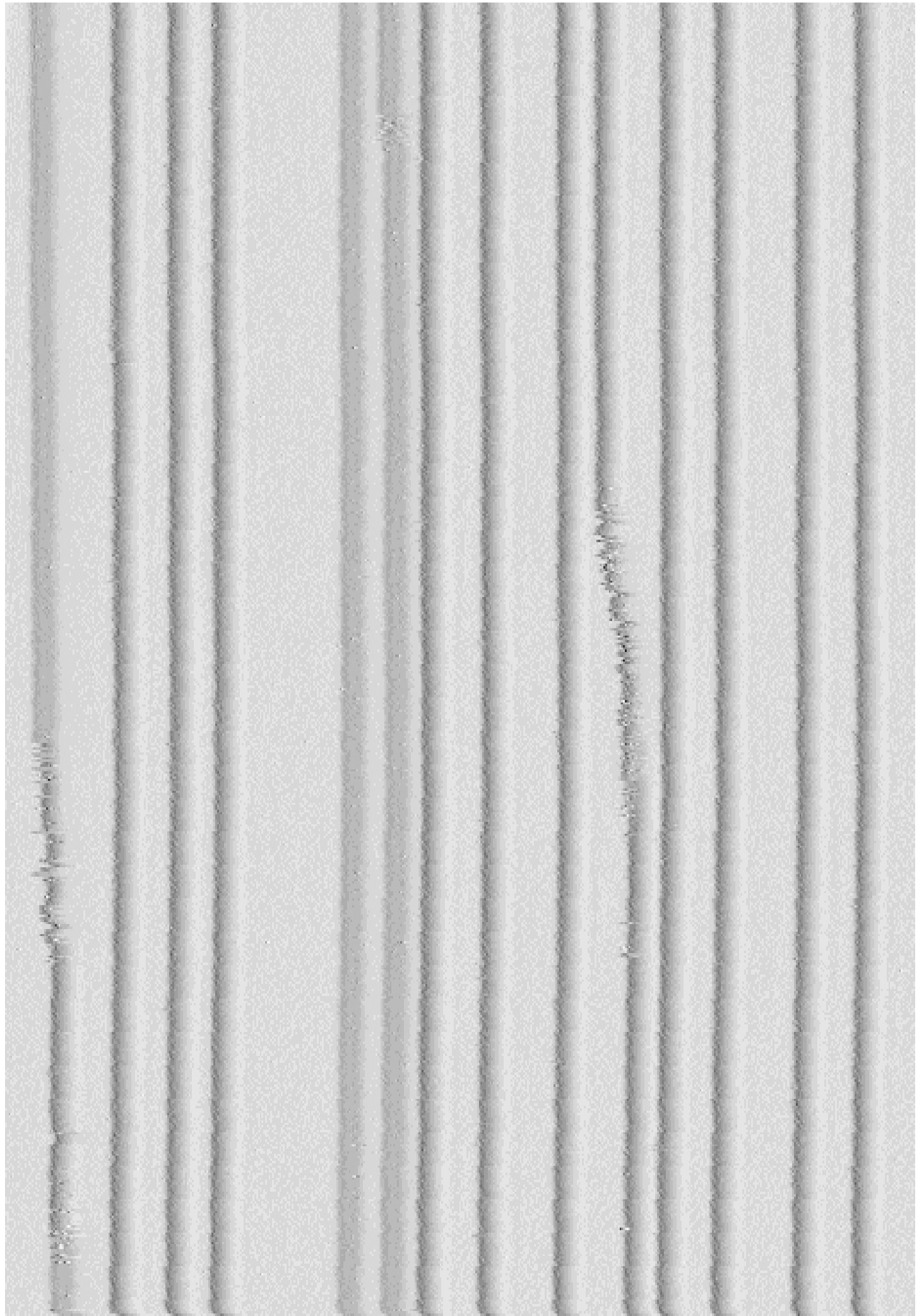
Soutenue le 29 octobre 1999 devant le jury composé de :

MM. R. PINCHAUX	président
A. PIMPINELLI	rapporteur
J.P. DEVILLE	rapporteur
L. BARBIER	
B. LEGRAND	
J.J. METOIS	

*Morphologie de surfaces  
vicinales  
de métaux purs et d'alliages :  
stabilité et rugosité.  
Expériences et modélisations.*

**Eric LE GOFF**

**Service de Recherche sur les  
Surfaces et l'Irradiation de la  
Matière**



A mes parents.

## Remerciements

*Je tiens à remercier M. George Lozes pour son accueil au sein du S.R.S.I.M. (Service de Recherche sur les Surfaces et l'Irradiation de la Matière) où c'est déroulé ce travail de thèse.*

*Je remercie respectueusement messieurs Alberto Pimpinelli, Jean-Paul Deville, Jean-Jacques Métois et Robert Pinchaux d'avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse.*

*Je souhaite remercier très chaleureusement Luc Barbier, Bernard Salanon, Pascal Hecquet, Pascal Lavie et Frédéric Merlet avec qui j'ai travaillé quotidiennement durant ces trois années, et sans lesquelles cette thèse ne serait pas ce qu'elle est.*

*Luc Barbier, tout d'abord, m'a accueilli dans son groupe de recherche. Il m'a apporté, tout au long de cette thèse, sa précieuse compétence aussi bien théorique qu'expérimentale. Il m'a soutenu durant les moments difficiles et surtout, il a su me faire partager sa passion pour la recherche. C'est un plaisir de le remercier très amicalement pour ces trois années d'aide au quotidien.*

*Toute ma reconnaissance va également à Bernard Salanon pour sa disponibilité et pour toute la patience dont il a fait preuve face à mes nombreuses questions.*

*Je remercie Pascal Hecquet pour son aide face à une informatique pas toujours très docile, pour sa gentillesse et ses conseils au quotidien.*

*Je voudrais également remercier Pascal Lavie et Frédéric Merlet pour leur disponibilité et la rapidité avec laquelle ils sont intervenus sur les dispositifs expérimentaux. Sans leur aide aucune expérience n'aurait pu être menée à son terme.*

*Quand je repense à tous ceux avec lesquels j'ai travaillé durant ces trois années, je crois que je n'aurai pas pu imaginer meilleure équipe, encore merci à tous.*

*Toute ma reconnaissance va également à mon directeur de thèse M. Bernard Legrand en qui j'ai toujours trouvé un interlocuteur attentif pour des discussions très fructueuses.*

*Je tiens à remercier chaleureusement Xavier Torrelles, Sylvain Goapper et Annick Loiseau pour leur aide au cours du run E.S.R.F.*

*J'adresse mes vifs remerciements à Imad Arfaoui pour l'aide qu'il m'a apporté lors de l'étude du Cu-Pd.*

*Enfin je souhaite dire un grand merci à tous les membres du S.R.S.I.M. et en particulier à tous les stagiaires et les doctorants qui ont contribué à cette ambiance amicale toujours présente durant ces trois années.*

Alice was beginning to get very tired of sitting by her sister on the bank, and of having nothing to do : once or twice she had peeped into the book her sister was reading, but it had no pictures or conversations in it, and what is the use of a book, thought Alice, without pictures or conversations ?

Alice in Wonderland

By Lewis Carroll

# TABLE DES MATIERES

<i>Introduction Générale</i>	1
------------------------------	---

## **PREMIERE PARTIE**

Morphologie des surfaces vicinales.

Transition rugueuse.

---

### **CHAPITRE I**

<i>Généralités</i>	11
<b>I-A. <u>Faces Cu(1,1,n) idéales</u></b>	<b>13</b>
<b>I-B. <u>Interaction entre marches</u></b>	<b>14</b>
I-B.1. Interaction entropique	15
I-B.2. Interaction élastique	15
I-B.3. Interaction dipolaire électrique	16
<b>I-C. <u>Représentation microscopique d'une surface vicinale</u></b>	<b>18</b>
<b>I-D. <u>La transition rugueuse</u></b>	<b>19</b>
I-D.1. Notion de transition rugueuse	19
I-D.2. La transition rugueuse sur les surfaces vicinales	20
<b>I-E. <u>Conclusion</u></b>	<b>22</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE</b>	<b>23</b>



---

## CHAPITRE II

<i>Modélisation des surfaces vicinales</i>	25
<b>II-A. <u>Introduction</u></b>	<b>27</b>
<b>II-B. <u>Modèles à marche unique</u></b>	<b>28</b>
<b>II-B.1. Introduction</b>	<b>28</b>
<b>II-B.2. La marche libre</b>	<b>28</b>
<b>II-B.3. Une marche plongée dans un potentiel</b>	<b>30</b>
II-B.3.1. <u>Les murs durs</u>	30
II-B.3.2. <u>Méthode de l'approximation harmonique</u>	31
II-B.3.3. <u>Potentiel quelconque : méthode de la matrice de transfert à une marche</u>	32
<i>Fonction de partition, énergie libre</i>	
<i>Distribution des largeurs de terrasses</i>	
<i>Fonction de corrélation le long du bord de marche</i>	
II-B.3.4. <u>Comparaison avec les résultats expérimentaux de la face Cu(1,1,11)</u>	35
II-B.3.5. <u>Conclusion : les modèles à une marche sont insuffisants</u>	37
<b>II-C. <u>Modèles à plusieurs marches</u></b>	<b>38</b>
<b>II-C.1. Présentation des modèles</b>	<b>38</b>
<b>II-C.2. Equivalence avec le modèle des fermions en interaction</b>	<b>41</b>
II-C.2.1. <u>Energie libre</u>	41
II-C.2.2. <u>Distribution des largeurs de terrasses</u>	45
<b>II-C.3. Le modèle des ondes capillaires</b>	<b>47</b>
II-C.3.1. <u>Cas rugueux (<math>T &gt; T_R</math>)</u>	48
II-C.3.2. <u>Cas non rugueux (<math>T &lt; T_R</math>)</u>	51
<b>II-C.4. La simulation Monte Carlo</b>	<b>53</b>
II-C.4.1. <u>Généralités</u>	53
II-C.4.2. <u>Cas des surfaces vicinales</u>	55

<b>II-C.5. La méthode du cylindre</b>	<b>59</b>
II-C.5.1. <u>Introduction</u>	59
II-C.5.2. <u>Présentation de la méthode</u>	59
II-C.5.3. <u>Fonction de partition, énergie libre</u>	62
<i>Calcul de l'énergie libre</i>	
<i>Convergence de l'énergie libre</i>	
II-C.5.4. <u>Distribution des largeurs de terrasses</u>	68
II-C.5.5. <u>Fonctions de corrélation</u>	69
<i>Calcul des fonctions de corrélation</i>	
<i>Convergence des fonctions de corrélation</i>	
<b>II-D. <u>Conclusion</u></b>	<b>73</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE</b>	<b>75</b>

## CHAPITRE III

<i>Etude statistique des surfaces vicinales</i>	79
<b>III-A. <u>Diagramme de phases des surfaces vicinales</u></b>	<b>81</b>
<b>III-A.1. Introduction</b>	<b>81</b>
<b>III-A.2. Interaction répulsive (<math>A \geq 0</math>)</b>	<b>82</b>
III-A.2.1. <u>Variation de l'énergie libre avec la vicinalité <math>A=0</math> K</u>	82
III-A.2.2. <u>Variation de l'énergie libre avec la vicinalité <math>A&gt;0</math> K</u>	84
III-A.2.3. <u>Variation de l'énergie libre avec la température</u>	85
III-A.2.4. <u>Diagramme de phases pour <math>A&gt;0</math></u>	87
III-A.2.5. <u>Cas de la face (115)</u>	89
<b>III-A.3. Stabilité des surfaces vicinales pour une interaction attractive : le modèle de Sutherland attractif</b>	<b>91</b>
<b>III-A.4. Conclusion</b>	<b>96</b>
<b>III-B. <u>Etude statistique des surfaces vicinales</u></b>	<b>97</b>

<b>III-B.1. Distribution des largeurs de terrasses</b>	<b>97</b>
III-B.1.1. <u>Comparaison modèle continu, modèle discret</u>	97
III-B.1.2. <u>La variance des largeurs de terrasses</u>	100
<i>Marches sans interaction (<math>A=0</math>)</i>	
<i>Marches en interaction (<math>A&gt;0</math>)</i>	
III-B.1.3. <u>Distribution universelle des largeurs de terrasses à <math>T=T_R</math></u>	104
<b>III-B.2. Rigidité et potentiel de localisation pour <math>T&lt;T_R</math></b>	<b>107</b>
<b>III-B.3. Conclusion</b>	<b>110</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE</b>	<b>111</b>

---

## CHAPITRE IV

<i>Etude d'une surface vicinale de Cu(1,1,5) par microscopie à effet tunnel en fonction de la température</i>	113
<b>IV-A. <u>Introduction</u></b>	<b>115</b>
<b>IV-B. <u>Techniques expérimentales</u></b>	<b>116</b>
<b>IV-B.1. La microscopie à effet tunnel</b>	<b>116</b>
IV-B.1.1. <u>Bref historique</u>	116
IV-B.1.2. <u>L'effet tunnel</u>	117
IV-B.1.3. <u>Le courant tunnel</u>	118
IV-B.1.4. <u>L'enregistrement des images</u>	121
<i>Le mode courant constant</i>	
<i>Le mode hauteur constante</i>	
<b>IV-B.2. Dispositif expérimental</b>	<b>123</b>
IV-B.2.1. <u>L'enceinte ultra-vide</u>	123
IV-B.2.2. <u>Le dispositif STM</u>	123

<i>Le microscope à température ambiante</i>	
<i>Le microscope à température variable</i>	
<i>Le système anti-vibration</i>	
<i>L'acquisition des images</i>	
<b>IV-B.3. Préparation des pointes STM</b>	<b>127</b>
<b>IV-C. <u>Etude de la surface de Cu(1,1,5)</u></b>	<b>128</b>
<b>IV-C.1. Préparation de l'échantillon</b>	<b>128</b>
<b>IV-C.2. Conditions d'acquisition</b>	<b>128</b>
<b>IV-C.3. Les images spatiales</b>	<b>129</b>
<b>IV-C.4. Les images temporelles</b>	<b>133</b>
<b>IV-C.5. Analyse statistique : fonctions de corrélation et distributions des largeurs de terrasses</b>	<b>135</b>
IV-C.5.1. <u>Fonctions de corrélation spatiale</u>	135
IV-C.5.2. <u>Distribution des largeurs de terrasses</u>	141
<b>IV-C.6. Fonctions de corrélation temporelle</b>	<b>143</b>
IV-C.6.1. <u>Mesure</u>	143
IV-C.6.2. <u>Détermination de l'énergie d'activation</u>	144
IV-C.6.3. <u>Aspect temporel des images spatiales : comparaison entre <math>G(0,y)</math> et <math>G(t)</math></u>	146
<b>IV-C.7. Détermination des paramètres énergétiques <math>A</math> et <math>E_k</math></b>	<b>148</b>
IV-C.7.1. <u>Ajustement sur <math>G(m,0)</math></u>	148
IV-C.7.2. <u>Comparaison images STM et configurations Monte Carlo</u>	151
IV-C.7.3. <u>Détermination des rigidités de surface et du potentiel de localisation</u>	153
<b>IV-C.8. Discussion</b>	<b>155</b>
<i>Comparaison avec <math>Ag(1,1,5)</math></i>	
<i>Etudes par diffraction – par STM</i>	
<i>Influence de l'angle de coupe</i>	
<b>IV-C.9. Conclusion de l'étude expérimentale du Cu(1,1,5)</b>	<b>160</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE</b>	<b>161</b>

---

<i>Conclusion de la première partie</i>	163
---	-----

## SECONDE PARTIE

Morphologie des surfaces vicinales d'alliages.

Transition chimique.

---

### CHAPITRE V

<i>Généralités sur les alliages CFC <math>A_3B</math> de structure <math>L1_2</math></i>	169
<b>V-A. <u>Introduction</u></b>	171
<b>V-B. <u>Transition ordre – désordre</u></b>	172
<b>V-C. <u>Phase désordonnée (A1)</u></b>	173
<b>V-D. <u>Phase ordonnée (<math>L1_2</math>)</u></b>	174
<b>V-E. <u>Description des variants d'ordre dans la structure <math>L1_2</math></u></b>	175
V-E.1. Les variants	175
V-E.2. Mise en ordre - parois d'antiphase	176
<b>V-F. <u>Mise en désordre - rôle des interfaces</u></b>	178
<b>V-G. <u>Mise en ordre : modèle de S.M. Allen et J.W. Cahn</u></b>	179
<b>V-H. <u>Faces vicinales (1,1,<math>n</math>) des alliages <math>A_3B</math></u></b>	181
<b>V-I. <u>Conclusion</u></b>	182
<b>BIBLIOGRAPHIE</b>	183

---

## CHAPITRE VI

<i>Etude de la face <math>Cu_{83}Pd_{17}(1,1,5)</math></i>	185
<b>VI-A. <u>Introduction</u></b>	187
<b>VI-B. <u>Choix du système</u></b>	188
<b>VI-C. <u>Comparaison des faces (1,1,11) et (1,1,5) : objectifs</u></b>	189
<b>VI-D. <u>Morphologie de la surface, influence du traitement thermique</u></b>	191
VI-D.1. Préparation de l'échantillon	191
VI-D.2. Images STM obtenues, comparaison avec la face $Cu_{83}Pd_{17}(1,1,11)$	191
VI-D.3. Interprétations des images obtenues	193
VI-D.3.1. <u>Modèle structural</u>	193
VI-D.3.2. <u>Modèle énergétique</u>	194
VI-D.4. Analyse statistique de la position des marches	196
<b>VI-E. <u>Conclusion</u></b>	198
<b>BIBLIOGRAPHIE</b>	200

---

## CHAPITRE VII

<i>Etude de la face <math>Cu_3Au(1,1,11)</math></i>	201
<b>VII-A. <u>Introduction</u></b>	203
<b>VII-B. <u>Choix du système</u></b>	204
<b>VII-C. <u>Etude par microscopie à effet tunnel à température ambiante</u></b>	206
VII-C.1. Préparation de l'échantillon	206
VII-C.2. Description des images STM	206
VII-C.3. Cinétique de mise en ordre	215

<b>VII-C.4. Conclusion de l'étude de la face <math>\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)</math> à température ambiante</b>	<b>217</b>
<b>VII-C.5. Comparaison avec la face <math>\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)</math></b>	
<b>Comparaison face plate - face vicinale</b>	<b>218</b>
<b><u>VII-D. Etude par microscopie à effet tunnel en fonction de la température</u></b>	<b>220</b>
<b>VII-D.1. Evolution de la morphologie en fonction de la température</b>	<b>220</b>
<b>VII-D.2. Etude statistique : distribution des largeurs de terrasses</b>	<b>225</b>
VII-D.2.1. <u>Calcul des distributions des largeurs de terrasses</u>	225
VII-D.2.2. <u>Distributions des largeurs de terrasses</u>	226
<b>VII-D.3. Conclusion de l'étude par STM en fonction de la température</b>	<b>232</b>
<b><u>VII-E. Etude par diffraction d'atomes d'hélium</u></b>	<b>233</b>
<b>VII-E.1. Comparaison des techniques, STM – diffraction d'atomes d'hélium</b>	<b>233</b>
<b>VII-E.2. Techniques expérimentales</b>	<b>234</b>
VII-E.2.1. <u>L'enceinte Ultra-vide</u>	234
VII-E.2.2. <u>Faisceau d'atome d'hélium</u>	235
VII-E.2.3. <u>Porte échantillon et détecteur</u>	236
<b>VII-E.3. Diffraction par une surface vicinale régulière</b>	<b>237</b>
VII-E.3.1. <u>Diffraction sur une surface vicinale à <math>T=0</math> K</u>	237
VII-E.3.2. <u>Debye-Waller</u>	240
VII-E.3.3. <u>Exemple de la face de <math>\text{Cu}(1,1,11)</math></u>	242
<b>VII-E.4. Diffraction d'hélium sur la face de <math>\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)</math></b>	<b>243</b>
VII-E.4.1. <u>Préparation de l'échantillon</u>	243
VII-E.4.2. <u>Résultats</u>	244
<b>VII-E.5. Modèle unidimensionnel de marches markoviennes</b>	<b>247</b>
<b>VII-E.6. Comparaison avec les résultats obtenus par STM-VT</b>	<b>253</b>
<b>VII-E.7. Comparaison de l'évolution en température du <math>\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)</math> et du <math>\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)</math></b>	<b>254</b>

<b>VII-F. <u>Conclusion de l'étude de la face Cu<sub>3</sub>Au(1,1,1)</u></b>	<b>259</b>
---	------------

<b>BIBLIOGRAPHIE</b>	<b>260</b>
----------------------	------------

---

<i>Conclusion de la seconde partie</i>	263
--	-----

<i>Conclusion Générale</i>	267
----------------------------	-----

**ANNEXE I**

**ANNEXE II**

**ANNEXE III**

**ANNEXE IV**



# *Introduction générale*



L'étude de la morphologie de surface des métaux purs est d'un très grand intérêt du point de vue fondamental. Elle permet en effet, sur des solides simples, de montrer l'existence de phénomènes aussi importants que la transition rugueuse, de connaître les facteurs responsables de la stabilité des surfaces, ou encore de comprendre les formes d'équilibre des cristaux. Mais, il faut remarquer que ce sont principalement les alliages qui peuvent présenter des applications (catalyse, corrosion, réalisation de nanostructures, recherche aérospatiale...). Cependant, le passage par l'étude, considérablement plus simple des surfaces de métaux purs, reste un préalable indispensable à l'étude et à la compréhension de la morphologie des surfaces d'alliages.

L'élaboration de modèles, ainsi que des méthodes permettant de les résoudre, apportent une maîtrise et une compréhension des facteurs responsables de la structure d'équilibre des surfaces. Cette modélisation est nécessaire en vue d'une utilisation technologique optimisée des surfaces et au développement de nouveaux matériaux.

Comme nous le verrons au cours de cette thèse, ces modèles permettent de caractériser une surface à l'aide de quelques paramètres énergétiques fondamentaux (énergie de formation d'une lacune, d'une marche, d'un cran en bord de marches...). La détermination de ces paramètres énergétiques qui gouvernent la morphologie, à l'échelle atomique et mésoscopique, des surfaces de monocristaux est à l'origine de nombreux travaux expérimentaux et théoriques.

A l'échelle atomique, les marches sont présentes sur toutes les surfaces. Sur les faces denses, des marches atomiques résiduelles sont toujours présentes car la mise à l'équilibre d'une surface à l'échelle macroscopique est impossible à réaliser. Pour les orientations intermédiaires, les surfaces présentent un réseau régulier ou non de marches atomiques. Ces objets jouent un rôle important dans la structure d'équilibre, au cours de la croissance ou comme site privilégié de réaction catalytique.

Un bon moyen d'étudier les propriétés liées aux marches atomiques est de s'intéresser à un réseau régulier de marches tel celui obtenu en taillant un cristal selon un petit angle par rapport à un plan dense. Une telle surface est appelée *surface vicinale*<sup>\*</sup>, car elle correspond à une orientation voisine d'un plan dense.

Dans le cas d'un cristal de métal pur, les faces vicinales régulières sont formées, à  $T=0$  K, d'un réseau de marches droites équidistantes séparées par des terrasses. Lorsque la température augmente, les marches fluctuent du fait de l'excitation thermique en formant des crans. Ces fluctuations sont limitées par l'interaction répulsive existant entre les marches. Ainsi en 1985, Villain *et al.* [1] ont pu décrire la rugosité des surfaces vicinales de cuivre à l'échelle atomique en terme d'énergie de formation de crans sur les bords de marches et d'interaction entre marches. Ils ont également montré que le concept de transition rugueuse s'appliquait bien aux faces vicinales où elle est observable (contrairement aux faces denses où la température de transition rugueuse est généralement supérieure au point de fusion). La transition rugueuse, peut être simplement définie à partir de la fonction de corrélation des bords de marches. Cette fonction de corrélation est définie par  $G(m, y) = \langle (h_{m,y} - h_{0,0})^2 \rangle$ , avec  $h_{m,y}$  le déplacement de la marche  $m$  au site  $y$  par rapport à sa position d'équilibre. Sous la température de transition rugueuse, notée  $T_R$ , la fonction de corrélation  $G(m, y)$  sature aux grandes distances ( $m$  ou  $y$  grands) et la surface est dite *plate*. Au-dessus de cette température, la fonction de corrélation diverge de façon logarithmique, ce qui définit l'état *rugueux*.

Des expériences de diffraction d'atomes d'hélium sur des faces vicinales de Cu(001) ont permis de mettre en évidence ce phénomène de transition rugueuse [1]. Dans le cas des petites distances entre marches telles que sur la face Cu(1,1,5), l'interprétation quantitative

---

<sup>\*</sup> du latin *vicinus* voisin.

des spectres de diffraction pose problème. Deux études menées respectivement par F. Fabre *et al.* [2,3] et par Ernst *et al.* [4] conduisent à des résultats en complète contradiction. L'équipe de F. Fabre *et al.* observe la transition rugueuse au voisinage de 380 K. A l'opposé, dans l'expérience réalisé par Ernst *et al.* la partie élastique et inélastique du spectre de diffraction peuvent être séparées. L'analyse de la forme des pics de diffraction, les conduit à conclure qu'il n'observe pas la transition dans la gamme 160-700 K. Cette non observation de la transition à conduit ces auteurs à remettre en question le comportement logarithmique caractéristique de la transition rugueuse à l'échelle de la centaine d'angström.

Toutes les faces vicinales ne sont cependant pas stables (ou régulières). Les études récentes par diffraction de rayons X de Mochrie *et al.* montrent pour des systèmes aussi variés que Si(113) [5,6,7], Au(111) [8], ou Pt(100) [9] des diagrammes de phases complexes. De même, S. Rousset *et al.* [10] ont observé, sur des faces vicinales de Au(111), une morphologie « en toit d'usine » formée de facettes (111) et (755). Ces différents diagrammes de phases montrent qu'il peut exister des orientations « magiques » (que l'on pense stabilisée par des reconstructions de terrasses) ainsi que des phénomènes de facettage ou la surface se sépare en deux régions de vicinalité différente. L'interprétation de ces diagrammes de phases reste aujourd'hui une question largement débattue.

Des informations sur la stabilité des faces vicinales peuvent aussi être tirées de l'observation de la forme des petits cristaux. Ainsi Heyraud *et al.* [11,12] ont observés qu'il existait sur des microcristaux d'or un raccord anguleux entre les faces denses et les parties arrondies (correspondant aux orientations où la surface est dans un état rugueux). Les faces vicinales associées à ces orientations interdites sont donc instables. Un des grands intérêts de ce type d'expérience est que la forme des monocristaux est reliée par la construction de Wulff à la variation de l'énergie libre avec la pente  $p$ . Inversement, la convexité de l'énergie libre fournit un critère de stabilité des surfaces et une zone concave se traduira par un facettage.

Les monocristaux d'alliages ont, jusqu'à présent, été principalement étudiés en volume. Ces études ont permis de montrer que les alliages chimiquement ordonnés peuvent présenter une transition ordre – désordre, à la température  $T_C$  appelée *température critique*. Au cours de cette transition, le cristal passe de la structure la plus symétrique (phase désordonnée), à haute température, à la structure la moins symétrique (phase ordonnée), à basse température. Lors de la mise en ordre, cette baisse de la symétrie entraîne le

fractionnement de la phase ordonnée en plusieurs domaines de translation que l'on appelle *variants*. Ces variants sont séparés par des parois appelées *parois d'antiphase*.

Très peu d'études expérimentales ont été réalisées sur les surfaces vicinales d'alliages. La surface vicinale de  $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$  a été étudiée dans sa phase ordonnée et dans sa phase désordonnée par S. Goapper *et al.* [13,14,15]. Ils ont observé que, dans la phase ordonnée, les marches étaient appariées, tandis que dans la phase désordonnée, la surface présente un réseau régulier de marches simples. Ce résultat montre l'influence de l'ordre chimique de volume sur la morphologie de la surface. Dans la phase ordonnée, il a été également observé une structure en domaines dans l'appariement des marches. Cette structure en domaines est induite par l'émergence des domaines chimiquement ordonnés en volume (variants). Reichert *et al.* [16] ont étudiés par diffraction de rayons X la mise en ordre, en présence d'une surface, sur un échantillon de  $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ . Ils ont observé une mise en ordre très anisotrope avec la formation de grands domaines au niveau de la surface sans émergence des parois d'antiphase. Ce résultat, pour une face dense, contraste avec les observations effectuées sur la face vicinale de  $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$  par S. Goapper *et al.*

Au cours de cette thèse nous nous sommes initialement proposés de poursuivre l'étude des faces vicinales d'alliages. La relation ordre chimique – structure est complexe et fait intervenir des phénomènes d'équilibre, de ségrégation ou encore de mise en ordre chimique et structurale. Une compréhension de ces phénomènes exige encore aujourd'hui un plus grand nombre d'études expérimentales permettant de mieux caractériser toutes les facettes du problème et ainsi de permettre sa modélisation. En particulier, des informations expérimentales concernant la morphologie de surface en fonction de l'angle de coupe et/ou de la nature de l'alliage sont nécessaires pour généraliser les résultats obtenus sur le CuPd. Comme cela a été précisé au début de cette introduction, la comparaison avec l'étude de faces similaires de métaux purs est un élément important qui doit permettre de mieux faire ressortir la spécificité des surfaces d'alliages.

Nous avons ainsi choisi d'étudier initialement, de façon comparative, les surfaces de  $\text{Cu}(1,1,5)$  et de  $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ . Cette étude doit permettre, en changeant l'angle de coupe, une comparaison aussi riche que celle que l'on peut tirer des travaux de L. Masson *et al.* [17] sur le  $\text{Cu}(1,1,11)$  et de S. Goapper *et al.* [13,14,15] sur  $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ . Le but est de caractériser la morphologie de ces deux surfaces. Connaissant les problèmes liés à l'étude par diffraction d'hélium sur les faces vicinales à courte distance entre marches, nous avons choisi

d'entreprendre ces études par microscopie à effet tunnel. De plus, les récents développements de la technique de microscopie à effet tunnel à température variable permettent aujourd'hui de faire une étude en température.

Cette première partie nous a conduit, pour l'interprétation de nos résultats expérimentaux, à examiner et à approfondir l'ensemble des modèles traitants de l'équilibre des faces vicinales. Une partie importante de cette thèse y sera consacrée. Comme nous le verrons, la surface (1,1,5) est non rugueuse à température ambiante, un travail théorique pour étendre ces modèles sous la transition rugueuse était donc nécessaire.

Nous avons ensuite choisi d'étudier la surface d'un autre alliage :  $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,11)$ . La structure de cet alliage est semblable à celle du  $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$  mais les deux alliages diffèrent sous de nombreux aspects, plus particulièrement sur le comportement des parois d'antiphase en volume. L'orientation (1,1,11) a été choisie car la distance entre marches correspondante est bien adaptée à nos techniques expérimentales (microscopie à effet tunnel et diffraction d'hélium). Ce choix permettra aussi une comparaison aisée avec les résultats sur le Cu et le  $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$  pour cette même orientation.

Ce mémoire de thèse est scindé en deux parties. La première, du chapitre I à IV est consacrée aux surfaces vicinales de métaux purs, tandis que la seconde du chapitre V à VII est consacrée aux surfaces vicinales d'alliages. Chacune de ces deux parties s'articule de la façon suivante :

Dans le chapitre I, les faces vicinales de métaux purs sont décrites et la notion de transition rugueuse est introduite. Une description des modèles à une et à plusieurs marches, ainsi que des méthodes permettant de les traiter est donnée dans le chapitre II. Dans ce même chapitre, est également présentée la méthode du cylindre (méthode de la matrice de transfert avec des conditions aux limites périodiques), appliquée ici, pour la première fois, au cas des surfaces vicinales. Le chapitre III est consacré à la description des résultats obtenus à l'aide des modèles à plusieurs marches. Les résultats expérimentaux obtenus sur la face de  $\text{Cu}(1,1,5)$  sont présentés chapitre IV.

Les généralités sur les surfaces vicinales d'alliages sont exposées dans le chapitre V et les résultats expérimentaux obtenus sur les faces de  $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$  et le  $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,11)$  sont respectivement présentés aux chapitres VI et VII.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- [1] J. Villain, D.R. Grempel et J. Lapujoulade, *J. Phys.* **F 15** (1985) 809.
- [2] F. Fabre, D. Gorse, J. Lapujoulade et B. Salanon, *Europhys. Lett.* **3** (1987) 737.
- [3] F. Fabre, D. Gorse, B. Salanon et J. Lapujoulade, *J. Phys.* **48** (1987) 1017.
- [4] H.J. Ernst, R. Folkerts et L. Schwenger, *Phys. Rev.* **B 52** (1995) 8461.
- [5] S. Song et S.G.J. Mochrie, *Phys. Rev. Lett.* **73** (1994) 995; *Phys. Rev.* **B 51** (1995) 10068.
- [6] S. Song, M. Yoon et S.G.J. Mochrie, *Surf. Sci.* **334** (1995) 153.
- [7] M. Yoon, S.G.J. Mochrie, M.W. Tate, S.M. Gruner et E. F. Eikenberry, *Surf. Sci.* **411** (1998) 70.
- [8] G.M. Watson, D. Gibbs, S. Song, A.R. Sandy, S.G.J. Mochrie et D.M. Zehner, *Phys. Rev.* **B 52** (1995) 12329.
- [9] M. Yoon, S.G.J. Mochrie, D. M. Zehner, G. M. Watson et D. Gibbs, *Phys. Rev.* **B 49** (1994) 16702.
- [10] F. Pourmir, Thèse de l'Université Paris VII (1993); F. Pourmir, S. Rousset, S. Gauthier, M. Sotto, J. Klein, J. Lecoeur et J.P. Bellier, *Surf. Sci.* **324** (1995) L337.
- [11] J.C. Heyraud et J.J. Métois, *Acta Met.* **28** (1980) 1789.
- [12] J.C. Heyraud et J.J. Métois, *Surf. Sci.* **128** (1983) 334.
- [13] S. Goapper, Thèse de l'Université de Marne la Vallée (1998).
- [14] L. Barbier, S. Goapper, B. Salanon, R. Caudron, A. Loiseau, J. Alvarez, S. Ferrer et X. Torrelles, *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997) 3003.
- [15] S. Goapper, L. Barbier, B. Salanon, A. Loiseau et X. Torrelles, *Phys. Rev.* **B 57** (1998) 12497.



[16] H. Reichert, P.J. Eng, H. Dosch et I.K. Robinson Phys. Rev. Lett. **78** (1997) 3475.

[17] L. Masson, thèse l'Université Paris XI (1994) ; L. Barbier, L. Masson, J. Cousty et B. Salanon, Surf. Sci. **345** (1996) 197.