



HAL
open science

Développement d'un dispositif expérimental pour la diffraction d'atomes rapides et étude de surfaces d'isolants ioniques

Pierre Soullisse

► **To cite this version:**

Pierre Soullisse. Développement d'un dispositif expérimental pour la diffraction d'atomes rapides et étude de surfaces d'isolants ioniques. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Sud - Paris XI, 2011. Français. NNT: 2011PA112118 . tel-00625450

HAL Id: tel-00625450

<https://theses.hal.science/tel-00625450>

Submitted on 21 Sep 2011

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

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

THÈSE

présentée pour obtenir le grade de

Docteur en sciences
de l'université Paris Sud 11, Orsay

par

Pierre Soulisse

Sujet:

***Développement d'un dispositif expérimental pour la diffraction d'atomes
rapides et étude de surfaces d'isolants ioniques***

Soutenue le 20 juillet devant la commission d'examen :

Mr Matthias Büchner	rapporteur
Mr Guy Jezequel	rapporteur
Mr Tiberiu Minea	président
Mr Philippe Roncin	directeur de thèse
Mr Hocine Khemliche	invité

Remerciements

Je tiens à remercier toutes les personnes qui de près ou de loin m'ont aidé, soutenu et encouragé durant les quatre années de ma préparation de doctorat.

Je remercie messieurs Matthias Büchner et Guy Jezequel d'avoir accepté d'être les rapporteurs de mon travail ainsi que Mr Tiberiu Minea pour sa participation à mon jury de thèse.

La recherche, c'est avant tout un travail d'équipe. Pour cela, je tiens à remercier toute l'équipe MCI de l'ex LCAM et du nouvel ISMO au sein de laquelle j'ai effectué ma thèse. En premier, Philippe Roncin pour m'avoir encadré durant mon stage et d'avoir accepté d'être mon directeur de thèse. Je remercie aussi Hocine Khemliche pour son attention, sa pédagogie et pour les nombreux conseils qu'il m'a donné au cours de ces dernières années. Un grand merci aussi aux autres membres de l'équipe : les actuels : Anouchah, Maxime.M et Yang ; et les anciens membres : Nenad, Georges et Boubakeur avec qui j'ai eu plaisir à travailler et qui ont aussi contribué à la réussite de ma thèse. Je remercie aussi les stagiaires, Guillaume.M et Maxime.D, qui ont eu la gentillesse de relire ce manuscrit et de m'aider dans ma chasse aux fautes de frappe.

Je tiens à exprimer ma gratitude à l'ensemble du laboratoire : chercheurs, enseignants-chercheurs, ITA, pour la sympathie qui m'a été témoignée au quotidien et les encouragements que j'ai reçus. Je pars du laboratoire, un peu nostalgique avec plein de bons souvenirs : les échanges quotidiens dans la salle café, les barbecues et... Roscoff qu'il sera difficile d'oublier. Je vous remercie tous.

Je remercie aussi très chaleureusement les autres étudiants en thèse du laboratoire dont beaucoup sont devenus des amis et avec qui j'ai passé de très bons moments pendant ces quatre années : Damien, Caroline, Icham, Adnan, Marie, Erika, Yang et Sha. Votre compagnie, les discussions, les sourires et les rires que nous avons échangés au quotidien m'ont permis de garder le sourire et m'ont aidé à avancer dans mon travail. Ils resteront gravés dans ma mémoire pour

longtemps. Je vous souhaite une bonne route et plein de réussite. Encore merci à Yang, Erika et Marie pour leur soutien lors de ma période d'écriture, et leur amitié sincère. Une pensée très particulière pour Sha qui a été toujours à mes côtés durant les longs mois d'écriture, m'a soutenu et témoigné son affection même dans les moments les plus difficiles.

The last but not the least J'adresse mes remerciements les plus sincères à ma famille, mes parents pour leur soutien inconditionnel et leurs encouragements. Un très grand merci à mes amis : les magistériens, les anciens munichois, les toujours munichois, les nantais, les limougeots, les Erasm'ups, les anciens erasmus d'Orsay, les chinois, les italiens, les sicilien (ne)s, les espagnols et le petit basque

Résumé:

Ce mémoire de thèse présente le développement d'un dispositif expérimental spécialement conçu pour l'étude de la diffraction d'atomes rapides et son utilisation pour suivre la croissance de couches minces sur un bâti d'épitaxie. Des études de surfaces de KBr(100) et de NaCl(100) avec ce nouveau dispositif sont présentées. Nous nous sommes intéressés notamment à la forme du potentiel que les atomes perçoivent lorsqu'ils diffusent sur une surface de KBr(100). Nous avons également mis en évidence lors de ces études un nouveau régime de diffraction qui semble correspondre à des mouvements longitudinaux et normaux cohérents. Grâce à des images mieux résolues, nous avons montré comment la diffraction d'atomes rapides permet d'observer et quantifier des défauts topologiques comme la mosaïcité.

Une étude d'une surface d'Argent (110) est aussi présentée. Elle a permis d'observer la diffraction d'atomes rapides sur les métaux, montrant ainsi que GIFAD est applicable aux trois types de matériaux (isolants, semi-conducteurs et métaux) et que les processus d'excitations électroniques sur ces surfaces ne détruisent pas complètement la cohérence.

Enfin des premiers résultats de GIFAD en tant que technique de suivi de croissance par épitaxie sont présentés dans ce travail.

Mots clés: GIFAD, fast atom diffraction, incidence rasante, structure cristallographique de surface, potentiel atome-surface, cohérence, corrugation, mosaïcité de surface, excitations électroniques, croissance de couches minces, épitaxie par jets moléculaires

Abstract:

This Ph.D memoir presents the development work of an experimental setup especially designed for the study of the fast atom diffraction and its use as a method to control the thin films growth in an epitaxy chamber. Studies of the surfaces of KBr(100) and NaCl(001) with this new setup are presented. A new diffraction regime which may correspond to coherent longitudinal and normal motions is identified. The enhanced resolution allows observation of topological defects such as the surface mosaicity.

A study of the Ag(100) surface is also presented showing that fast atom diffraction can be observed on metal surface as that the inelastic excitations processes do not completely destroy the coherence. Finally, we present the first results obtained with GIFAD as a method to control thin film growth.

Key words: GIFAD, fast atom diffraction, grazing incidence, surface crystallographic structure, atom-surface potential, coherence, corrugation, surface mosaicity, electronic excitations, thin films growth, molecular beam epitaxy

Table des matières

1 Introduction.....	13
2 Étudier la matière avec la diffraction de particules à travers les réseaux cristallins	17
2.1 Un peu d'histoire des sciences : théorie corpusculaire et théorie ondulatoire.....	17
2.2 Caractérisation cristallographique par la diffraction des rayons X.....	19
2.2.1 Formalisme de Bragg : diffraction des rayons X sur des plans réticulaires successifs...20	
2.2.2 Formulation de Von Laue.....21	
2.3 Techniques de caractérisation de surface utilisant la diffraction de particules	22
2.3.1 La diffusion d'atomes thermiques (TEAS ou HAS).....22	
2.3.2 Diffraction d'électrons de basse énergie.....24	
2.3.3 Diffraction par réflexion d'électrons de haute énergie.....26	
3 Principes généraux de la diffusion atomique en incidence rasante	29
3.1 Configuration géométrique.....	29
3.2 Nature de l'interaction entre le projectile atomique et les atomes de la surface	31
3.2.1 Point de rebroussement et « corrugation »	32
3.3 Modèle de la surface-miroir.....	33
3.3.1 Loi horaire.....33	
3.3.2 Pertes d'énergies nucléaires.....35	
3.3.3 Longueur effective de trajectoire	37
3.4 Profils de diffusion	39
3.4.1 Évolution de la forme du profil de diffusion avec l'orientation de la surface	39
3.4.1.1 Directions cristallographiques majeures : profils « rainbows »	39
3.4.1.2 Direction aléatoire ou random	40
3.4.2 Élargissements polaire et azimutal.....41	
3.4.2.1 Largeur azimutale du profil de diffraction	41
3.4.2.2 Profil polaire :	44
3.4.3 Le local tilt.....47	
4 Principes généraux de la diffraction des atomes rapides en incidence rasante	49
4.1 Construction d'un motif de diffraction.....	51
4.1.1 Interprétation de la position des pics de diffraction	51
4.1.2 Nombre d'ordres de diffraction observés	58

4.1.3 Déformation du profil avec dés-alignement du faisceau	60
4.2 Interprétation de l'intensité des pics de diffraction	62
4.2.1 Modèle du « Hard Corrugated Wall » :	62
4.2.2 Diffraction par un mur dur de forme sinusoïdale :	65
4.3 Cas particuliers	67
4.3.1 Direction random.....	67
4.3.2 Lobes du profil rainbow classique	68
4.3.3 « Supernumerary Rainbows ».....	68
4.4 Cohérence	70
4.5 Effets de la température.....	70
5 Le dispositif expérimental	75
5.1 Introduction : développement d'un dispositif expérimental	75
5.2 Le dispositif expérimental	77
5.2.1 Dispositif complet	77
5.2.2 Le sas d'introduction	79
5.2.3 L'enceinte d'interaction.....	79
5.2.4 Le détecteur	81
5.2.4.1 Quel type de détecteur pour les atomes rapides ?	81
5.2.4.2 Fonctionnement du détecteur	82
5.2.4.3 La caméra CCD et le logiciel d'acquisition.....	86
5.2.5 La ligne de faisceau	88
5.2.5.1 La source d'ions.....	90
5.2.5.2 L'enceinte de neutralisation : de l'échange de charge à la mise en forme du faisceau	90
5.2.6 Remarques sur les matériaux utilisés lors de la conception	97
6 Introduction à l'étude expérimentale.....	103
6.1 Introduction.....	103
6.2 Présentation des isolants ioniques étudiés :.....	105
6.2.1 Propriétés générales des isolants ioniques :	105
6.2.2 Préparation des surfaces :	105
6.2.3 Structure des surfaces de KBr (001) et NaCl(001).....	106
7 Étude de la « corrugation » sur la surface de KBr(001):	109
7.1 Principe de la mesure :.....	109
7.2 Extraction du signal cohérent :	110
7.3 Résultats. Étude le long des directions <100> et <110>.....	112

7.3.1 Étude de la direction <100>.....	114
7.3.2 Étude de la direction <110>.....	119
7.4 Interprétation des résultats.....	123
7.4.1 Conclusion de l'étude et perspectives.....	127
8 Étude des composantes d'un profil de diffraction	129
8.1 Introduction : premières analyses.....	129
8.2 Premières analyses	131
8.2.1 Profil polaire	131
8.2.2 Profil azimutal.....	132
8.3 Principe de la mesure.....	135
8.3.1 Méthode d'analyse.....	135
8.3.2 Points d'intérêt.....	138
8.4 Résultats.....	139
8.4.1 Étude en fonction de l'angle d'incidence :	139
8.4.1.1 Variations de l'écart type de la gaussienne modélisant le pic de Bragg.....	141
8.4.1.2 Évolution des écart-types relatifs des lognormales	142
8.4.1.3 Variation de l'intensité relative du pic fin	143
8.4.1.4 Variations des intensités relatives des autres composantes de la modélisation	144
8.4.2 Étude en fonction de la température.....	146
8.4.2.1 Variation de la largeur du pic de Bragg.....	147
8.4.2.2 Variation des écarts types des lognormales modélisant les raies de Bragg et le fond diffus.....	147
8.4.2.3 Intensités relatives des différentes composantes.....	148
8.4.2.4 Intensité relative du pic fin.....	150
8.5 Discussion des résultats.....	152
8.6 Conclusion	153
9 Mise en évidence et étude de défauts topologiques avec la diffraction d'atomes rapides : la mosaïcité de surface.	155
9.1 Introduction :.....	155
9.2 Présentation et étude des "motifs atypiques" relevés sur la surface de KBr(001).....	156
9.2.1 Cas 1 : d'une largeur radiale importante à la mise en évidence de plusieurs cercles de pics de diffraction.....	156
9.2.1.1 Cas 1 : évolution avec l'énergie totale du faisceau	158
9.2.1.2 Cas 1 : évolution en fonction de l'angle d'incidence.....	159
9.2.1.3 Cas 1 : évolution avec la position du faisceau sur l'échantillon.....	161
9.2.1.4 Résumé de l'étude du cas 1.....	162
9.2.2 Cas 2 : Des pics de diffraction démultipliés.....	162

9.2.2.1 Cas 2 : Évolution en fonction de l'énergie	165
9.2.2.2 Cas 2 : Évolution en fonction de la position du faisceau sur la cible	166
9.2.2.3 Résumé de l'étude du cas 2.....	166
9.2.3 Des cercles de Laue qui se croisent.....	167
9.2.3.1 Comportements.....	167
9.2.4 Remarques.....	168
9.2.4.1 Peut-on voir les trois cas de figures pour toutes les directions cristallographiques ?	168
9.2.4.2 Série arithmétique	168
9.2.4.3 Influence de la taille du faisceau.....	169
9.2.5 Comparaison avec les clichés obtenus sur les autres échantillons.....	170
9.2.5.1 Comparaison entre NaCl(001) et KBr(001).....	170
9.2.5.2 Comparaison entre CaF ₂ (111) et KBr(001).....	172
9.3 Interprétation des résultats :.....	172
9.3.1 Mosaïcité dans le plan.....	174
9.3.2 Mosaïcité hors du plan :	176
9.3.2.1 Les inclinaisons ont lieu dans le plan (X, Z).	176
9.3.3 Les inclinaisons ont lieu dans le plan (Y, Z).	178
9.3.4 Hypothèse sur l'origine de la mosaïcité	180
9.4 Conclusion	180

10 Étude des processus décohérents dus aux excitations électroniques sur une surface d'Ag(110)

10.1 Introduction et problématiques.....	183
10.2 Conditions expérimentales.....	184
10.2.1 Présentation de la surface d'argent Ag(110).....	184
10.2.2 Faisceau.....	184
10.3 Profils de diffraction.....	185
10.4 Mesures de pertes d'énergie.....	187
10.5 Conclusion.....	189

11 Premiers résultats de GIFAD en tant que technique de suivi de croissance de couches minces par épitaxie

11.1 Présentation du dispositif.....	191
11.2 Premiers tests	192
11.3 Conclusion de ces premiers résultats.....	195

12 Conclusion.....	197
13 Bibliographie.....	199

1 Introduction

La diffraction d'atomes rapides est observée lors de la diffusion en incidence rasante d'atomes « rapides » sur des surfaces cristallines le long d'une direction cristallographique majeure. L'énergie des projectiles est comprise dans une gamme allant de la centaine d'eV à plusieurs keV, et leurs angles d'incidence se situent entre quelques dixièmes de degrés à quelques degrés.

L'observation de la diffraction d'atomes sur des surfaces par Esterman et Stern est une expérience fondatrice de la mécanique quantique. Cette découverte ainsi que la technique d'analyse des surface qui en découle utilise comme projectiles des atomes dont l'énergie ne dépasse pas une centaine de milli-électrons volt. C'est donc avant tout le domaine d'énergie et d'angle qui caractérise ce nouveau régime et qui lui vaut l'appellation de « diffraction d'atomes rapides ».

Il a été observé pour la première fois en 2003 par le groupe «Ions Multichargés » du Laboratoire des Collisions Atomiques et Moléculaires lors de l'étude des interactions en incidence rasante d'atomes d'hydrogène de 500eV sur une surface de NaCl(001). Des structures discrètes ont alors été observées sur le profil de diffusion classique (c'est-à-dire habituel). Une série de d'expériences permet alors de se convaincre qu'en dépit de la très faible longueur d'onde du projectile ($< \text{pm}$) c'est bien un nouveau régime de diffraction quantique qui est observé. La publication est bloquée le temps de déposer un brevet, car cette nouvelle technique est bien adaptée à l'étude en temps réel de surface en cours de croissance. Le CNRS conditionne le dépôt de brevet à l'obtention de résultats significatifs sur des semi-conducteurs. Ce sera chose faite en 2007 grâce à une collaboration avec le groupe de Victor Etgens de l'Institut des nanosciences de Paris (INSP). Indépendamment (mais plus tard), le groupe de recherche dirigé par Helmut Winter, de la Humbolt Universität Berlin, mettra en évidence ce phénomène sur une même surface cristalline de LiF(100). Il attribuera lui aussi les structures discrètes observées à un nouveau régime de diffraction atomique de haute énergie. Par chance, le brevet est accepté en juillet 2007 et les deux articles sont publiés « back to back » dans Physical Review Letters [1],[2]

La diffraction d'atomes rapides sur des semi-conducteurs (ZnSe(001) et GaAs(100)) est publiée en 2009 [3] et celle sur des métaux en 2008 [4][5]. Des résultats sur des surfaces métalliques reconstruite par adsorption de gaz sont publiés par le groupe de Berlin [6]

Cette généralisation marque un pas important puisqu'elle montre que la diffraction d'atomes rapides s'applique à tout type de matériaux cristallins. On peut trouver des similitudes entre cette

nouvelle technique et les méthodes d'analyse existantes : si les interactions mises en jeu tendent à la rapprocher de la diffusion d'atomes thermiques, la géométrie en incidence rasante nous invite aussi à faire un parallèle avec la diffraction électronique de haute énergie (RHEED). La diffraction des atomes rapides peut alors s'apparenter à faire du RHEED avec des atomes, à la grande différence qu'il n'y a en effet pas de pénétration sous la surface, ce qui fait de la diffraction d'atomes rapides une technique uniquement sensible à la première couche atomique [7]. En raison de son fort potentiel, la diffraction des atomes rapides fait l'objet d'un brevet européen concernant son utilisation comme technique de contrôle de couches minces par épitaxie déposé par l'équipe « MCI ».

Les travaux de thèse présentés dans ce manuscrit s'inscrivent dans la démarche de sortir GIFAD du cadre du laboratoire pour en faire un outil permettant de suivre la croissance dans un bâti d'épitaxie. L'objectif de mon travail a été de développer un prototype de dispositif spécialement dédié à la diffraction d'atomes rapides qui puisse à la fois nous permettre d'étudier les aspects fondamentaux de la diffraction d'atomes rapides, tout en étant facilement adaptable sur un bâti d'épitaxie pour suivre en temps réel la croissance de couches minces.

Dans la première partie de ce mémoire, après une introduction sur les différentes techniques d'analyse cristalline reposant sur la diffraction de particules, nous présenterons une description générale des principes de la diffusion atomique en incidence rasante et de la diffraction d'atomes rapides. Nous présenterons ensuite le dispositif expérimental conçu durant la thèse, et les travaux de développement réalisés

Nous nous intéresserons dans une seconde partie aux travaux expérimentaux réalisés durant la thèse. Une étude avec la diffraction d'atomes rapides des surfaces de KBr(100) et de NaCl(100) sera présentée. Nous nous intéresserons notamment à la forme du potentiel que les atomes perçoivent lorsqu'ils diffusent sur la surface et nous verrons comment la diffraction d'atomes rapides permet de mettre en évidence des défauts topologiques comme la mosaïcité de surface.

Nous présenterons ensuite une étude réalisée en début de thèse de la surface d'Argent (110) qui a permis de mettre en évidence la diffraction d'atomes rapides sur les métaux. Dans cette partie, nous nous intéressons particulièrement aux processus dé-cohérents dus aux excitations électroniques.

Enfin, nous terminerons ce manuscrit en présentant les premiers résultats de GIFAD en tant que technique de suivi de croissance par épitaxie.

De la diffraction de la lumière à la diffraction d'atomes rapides

2 Étudier la matière avec la diffraction de particules à travers les réseaux cristallins

2.1 Un peu d'histoire des sciences : théorie corpusculaire et théorie ondulatoire

La lumière a sans cesse suscité des interrogations sur sa véritable nature. C'est donc en toute logique qu'elle a été au cours des siècles le phénomène physique le plus étudié par des scientifiques intrigués par les manifestations de ses étonnantes propriétés dont les travaux ont permis le développement de toute notre physique moderne, de l'optique dite classique à l'optique ondulatoire, de la relativité à la mécanique quantique.

Une des manifestations des propriétés de la lumière qui fut les plus intrigantes est la diffraction. Elle sera mise en évidence en laboratoire 1665 par Francesco Grimaldi qui suggéra pour la première fois une nature ondulatoire de la lumière. Partant de cette hypothèse, la diffraction sera alors interprétée par Huygens comme l'interférence d'une onde avec elle-même lors de la rencontre avec un obstacle qui ne lui est pas transparent. À la même époque, Isaac Newton défend quant-à lui une nature corpusculaire de la lumière pour expliquer les phénomènes de l'optique classique telle que la réflexion, la réfraction à travers une lentille ou encore la dispersion à travers un prisme. C'est cette vision qui s'imposera dans la pensée scientifique et éclipsera pendant plus d'un siècle la théorie ondulatoire.

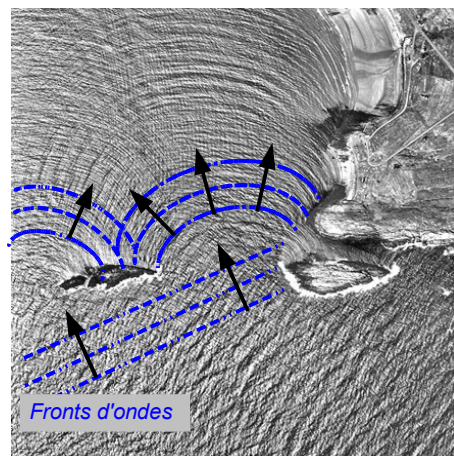


Fig 1: Diffraction de vagues entre des rochers

2.1 Un peu d'histoire des sciences : théorie corpusculaire et théorie ondulatoire

Ce n'est donc qu'au début du 19^{ème} siècle avec les travaux d'Augustin Fresnel et de Thomas Young que la théorie ondulatoire sera remise à l'ordre du jour. Leurs expériences prouveront que quand la lumière est envoyée sur un réseau, on observe un motif d'interférence très semblable à ceux résultant de l'interférence d'ondulations sur l'eau (Fig 1), un résultat que la théorie corpusculaire ne pouvait expliquer. Si la théorie ondulatoire ne remplaça pas immédiatement l'hypothèse newtonienne dans la pensée scientifique, elle s'imposera en revanche peu à peu en expliquant des phénomènes jusqu'à alors mal compris, comme la polarisation de la lumière (Fresnel, 1821), et deviendra incontestable avec la mesure de la vitesse de propagation de la lumière dans l'eau et dans l'air par Léon Foucault en 1850.

Alors que la théorie corpusculaire semblait avoir été enterrée à jamais, elle sera ressuscitée un siècle plus tard par Albert Einstein, qui profitant des travaux Max Planck sur le rayonnement du corps noir, expliquera pour la première fois l'effet photoélectrique mis en évidence 60 ans plus tôt par Antoine Becquerel et son fils en faisant appel à des quantas de lumière qu'on appellera « *photons* ». Ses travaux lui vaudront le prix Nobel et poseront les bases de la mécanique quantique et d'un mariage insoupçonné entre de deux points de vue jusqu'à alors radicalement opposés qui donnera naissance à la notion d'*onde-particule*.

En 1924, en se basant sur les travaux d'Einstein sur l'effet photoélectrique et la relativité restreinte ainsi que sur ceux de Max Von Laue et de William Lawrence Bragg sur la diffraction des rayons X par les réseaux cristallins, un jeune physicien français, Louis De Broglie propose lors de la défense de sa thèse [8] une généralisation osée de la nature ondulatoire à toutes les particules : « Le fait que, depuis l'introduction par Einstein des photons dans l'onde lumineuse, l'on savait que la lumière contient des particules qui sont des concentrations d'énergie incorporée dans l'onde, [coupé] toute particule, comme l'électron, doit être transportée par une onde dans laquelle elle est incorporée »... « À toute particule matérielle de masse m et de vitesse v doit être "associée" une onde réelle » reliée à la quantité de mouvement par la relation :

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{mv} \cdot \sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}} \quad (1)$$

où λ est la longueur d'onde de l'onde associée, h est la constante de Planck, p la quantité de mouvement et c la vitesse de la lumière dans le vide. Il propose aussi à la fin de sa thèse de vérifier expérimentalement cette hypothèse en suggérant en faire diffracter des électrons.

Ce sera chose faite trois ans plus tard. En 1927, Joseph Clinton Davisson et Lester Germer des Laboratoires Bell [9] observent en faisant passer un faisceau d'électrons à travers un film cristallin de nickel des motifs de diffraction dont la forme peut être interprétée avec les travaux de

Bragg sur la diffraction des rayons X. Les conséquences de cette découverte furent colossales car non seulement elles venaient appuyer l'hypothèse de De Broglie sur l'aspect ondulatoire de la matière et contribuer ainsi à l'essor de la mécanique quantique mais elle ouvrait aussi la porte à d'autres expériences de diffraction des particules qui aboutiront à la mise en évidence de la diffraction d'atomes d'hélium par Otto Stern en 1929 [10], de la diffraction des neutrons en 1945 par Ernest O. Wollan [11] et plus récemment de la diffraction de grosses molécules : les fullerènes [12]. En plus de vérifier la généralisation du comportement ondulatoire de la matière prédit par DeBroglie, ces expériences permettront de développer un pan entier de la physique : l'étude de la matière condensée, en posant la première pierre aux techniques de caractérisation cristallographiques.

2.2 Caractérisation cristallographique par la diffraction des rayons X

Un cristal est défini comme un *solide dont le spectre de diffraction est essentiellement discret*. De cette définition de l'union internationale de la cristallographie transparaît l'importance de la diffraction pour ce domaine de recherche. Jusqu'à la découverte des rayons X, la cristallographie ne se basait que sur des études dites géométriques issues des travaux de l'abbé René Just Haüy [13] grâce auquel naquit l'idée qu'un cristal soit une structure périodique de petites mailles élémentaires (Fig 3). Les travaux d' Auguste Bravais permettront alors le recensement et la classification des réseaux périodiques cristallins, les célèbres réseaux de Bravais [14].

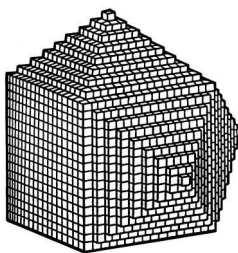


Fig 3: Représentation d'un cristal formé de sous éléments cubiques

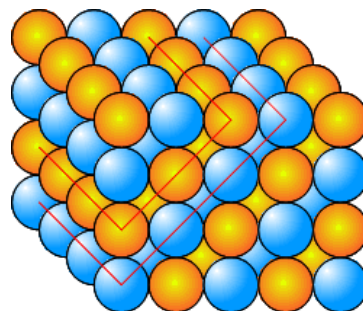


Fig 2: Représentation des plans réticulaires successifs d'un cristal cubique

Avec la découverte de l'atome et la diffraction des rayons X, l'organisation réticulaire (c'est-à-dire l'empilement de plans identiques d'atomes(voir Fig 2) et périodique des cristaux sera mise en évidence à l'échelle atomique. Bragg et Laue proposeront des formalismes mathématiques qui permettront l'étude moderne des cristaux par la diffraction des X. Ces formalismes sont toujours

d'actualité et ils constituent la base de toutes les techniques actuelles d'étude des cristaux par diffraction. Nous allons dans les prochains paragraphes les présenter brièvement.

2.2.1 Formalisme de Bragg : *diffraction des rayons X sur des plans réticulaires successifs*

Lors de l'exposition d'une face de clivage d'un cristal à un faisceau de rayons X arrivant avec un angle incidence θ , Bragg observe des variations d'intensité du spéculaire pouvant aller jusqu'à l'extinction totale lors du changement d'angle d'incidence des rayons. Il interprète ces variations comme étant le résultat des interférences de l'onde incidente avec elle-même lors des réflexions spéculaires sur des plans réticulaires successifs (Fig 4).

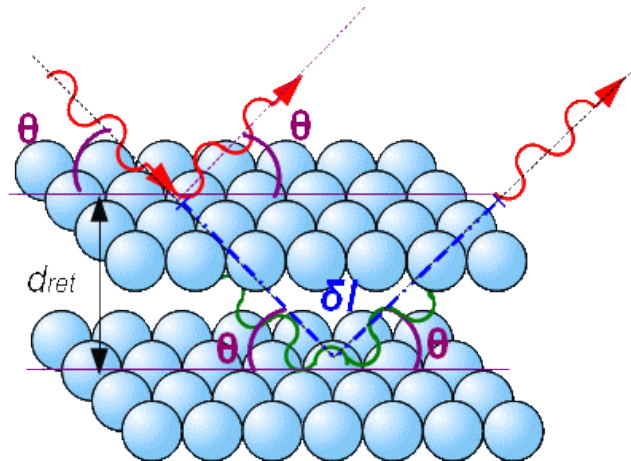


Fig 4: Diffraction d'une onde par réflexion sur des plans réticulaires successifs

Le déphasage entre les réflexions sur deux plans successifs est donné par :

$$\Delta \varphi = k \cdot \delta l$$

où δl est la différence de chemin que le rayon doit parcourir pour venir se réfléchir sur le deuxième plan réticulaire. Elle vaut dans cette configuration :

$$\delta l = 2 \cdot d_{ret} \sin(\theta)$$

Dans la précédente expression k est le vecteur d'onde défini par $k = 2 \cdot \pi / \lambda$ où λ est la longueur d'onde associée de la particule incidente. Pour les particules de masse non nulle (électrons, neutrons, atomes...), cette longueur d'onde est définie par la relation de *DeBroglie* présentée précédemment (eq1). Pour les photons son expression est :

$$\lambda = \frac{h c}{E}$$

où E est l'énergie du photon incident, c la vitesse de la lumière et h la constante de Planck.

Les maxima d'intensité sont obtenus lorsque le déphasage entre les réflexions sur deux plans réticulaires différents est un multiple de 2π , c'est-à-dire lorsque l'on a : $k \cdot \delta l = 2\pi \cdot n$ où n est un entier. On retrouve alors la célèbre relation de Bragg :

$$n \cdot \lambda = 2 \cdot d_{ret} \cdot \sin \theta \quad (2)$$

2.2.2 Formulation de Von Laue

Max Von Laue a proposé un formalisme plus général que celui de Bragg en introduisant la notion de réseau réciproque, qui est l'image du réseau cristallin dans l'espace des vecteurs d'onde. D'après la condition de Laue, une interférence constructive se produit si la variation du vecteur d'onde entre le rayon incident et le rayon diffusé $\vec{G} = \vec{k}' - \vec{k}$ correspond à une combinaison linéaire entière de vecteurs élémentaires du réseau réciproque que l'on notera : $\vec{g}_1, \vec{g}_2, \vec{g}_3$ et dont les normes valent : $\|\vec{g}_i\| = 2\pi/a_i$ où a_i est la plus petite distance entre deux plans périodiques (Fig 5). Par ailleurs, la conservation de l'énergie impose que le vecteur d'onde après la diffusion possède la même norme que le vecteur d'onde initial : $\|\vec{k}'\| = \|\vec{k}\|$.

En nommant θ l'angle d'incidence, étant donné que l'on considère que la réflexion est spéculaire, le rayon incident est défléchi de 2θ et on a donc :

$$\begin{aligned} \|\vec{G}\|^2 &= \|\vec{k}\|^2 + \|\vec{k}'\|^2 + 2\|\vec{k}'\|\|\vec{k}\|\cos(2\theta) \\ \|\vec{G}\|^2 &= 4\|\vec{k}\|^2 \sin^2(\theta) \end{aligned}$$

ce qui nous permet alors de retrouver la relation de Bragg.

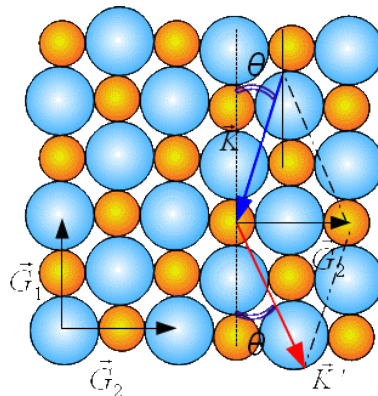


Fig 5: Illustration du formalisme de Laue. G_1 et G_2 sont des vecteurs élémentaires du réseau réciproque

2.3 Techniques de caractérisation de surface utilisant la diffraction de particules

La diffraction des rayons X fut historiquement la première méthode permettant de caractériser la structure cristallographique et elle reste aujourd'hui une des techniques reines pour l'étude en volume, avec la diffusion de neutrons. En revanche pour étudier les premières couches atomiques proches de la surface, on leur préfère des méthodes utilisant la diffraction de molécules ou d'électrons. Selon la gamme d'énergie d'utilisation, ces particules peuvent présenter une plus faible pénétration dans le volume par rapport aux rayons X pour des géométries similaires, et par ailleurs, elles peuvent être plus simplement mises en œuvre.

Dans ce chapitre nous présentons une revue rapide des techniques les plus utilisées pour les études cristallographiques de surface auxquelles nous nous référerons dans ce manuscrit. Nous allons donc nous intéresser dans les prochains paragraphes à la diffraction des électrons de basse énergie (Le LEED), la diffraction par réflexion des électrons de haute énergie (Le RHEED), et la diffraction d'atomes thermiques (le TEAS). Elle reprend une partie présentée par Patrick Rousseau dans son manuscrit de thèse que nous avons complétée.

2.3.1 La diffusion d'atomes thermiques (TEAS ou HAS)

La diffusion d'atomes thermiques d'hélium sur une surface de LiF(001) par Otto Stern en 1929 a permis de montrer le caractère ondulatoire de l'atome. Cependant, en raison de la forte dispersion en énergie des premiers dispositifs, cette technique de diffraction a dû attendre une quarantaine d'années et l'arrivée de sources monochromatiques basées sur des jets supersoniques pour être développée dans les années 1970 pour l'étude des surfaces [15]. La méthode expérimentale consiste à créer un faisceau d'atomes ou de molécules possédant une énergie cinétique allant de quelques dizaines à une centaine de meV et une faible dispersion en énergie à partir d'un jet moléculaire supersonique [16]. L'atome d'hélium et la molécule de dihydrogène sont principalement utilisés, à tel point que cette technique est parfois appelée Helium Atom Scattering, mais des études avec des atomes d'hydrogène, d'alcalins ou de gaz rares lourds (Ne, Ar, Xe) ont aussi été réalisées. Dans ce type dispositif, le faisceau est obtenu par la détente adiabatique d'un gaz sous pression (quelques dizaines de bar) à travers une aiguille de très petit diamètre (de l'ordre de quelques dizaines de μm) dont la température peut être augmentée ou diminuée afin de modifier

l'énergie du faisceau. Les atomes passent ensuite à travers une série d'écorcheurs et de diaphragmes qui permettent de diminuer la divergence angulaire du faisceau avant d'arriver avec un grand angle d'incidence, typiquement entre 40° et 90° , sur la surface de l'échantillon (Fig 6). Contrairement aux méthodes de diffraction électronique ou de diffraction X, les atomes ne pénètrent pas dans la surface. Dans la gamme d'énergie des atomes thermiques, c'est-à-dire, entre 10 et 100 meV d'énergie d'approche, ils sont soumis aux forces attractives ou répulsives de Van de Waals et à la force de répulsion des nuages électroniques de Pauli qui aboutissent à la rétro-diffusion du projectile [17][18]. Les atomes et les molécules incidentes, en raison de la dualité onde particule, possèdent une longueur d'onde, qui pour les projectiles légers d'énergie thermique est proche de la périodicité de la surface. L'arrangement cristallin se présente alors comme un réseau périodique en deux dimensions sur lequel les projectiles vont donc pouvoir diffracter individuellement de manière cohérente.

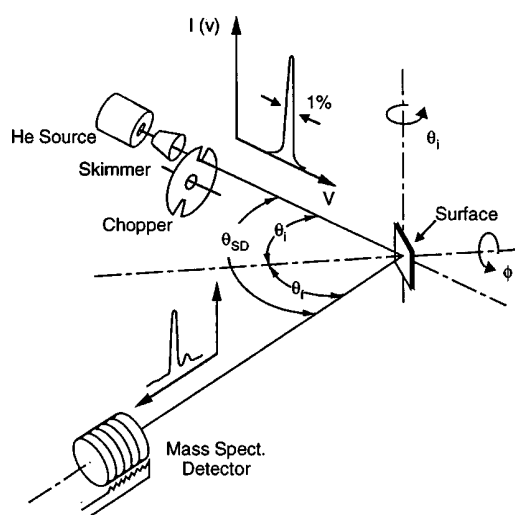


Fig 6: Vue d'un dispositif de TEAS comportant une source d'atomes thermiques pulsés par un chopper, et un spectromètre de masse mobile. [19]

En diffraction d'atomes thermiques, la mesure du profil de diffraction se fait par le déplacement d'un détecteur au-dessus de la surface. La détection d'atomes ou de molécules d'énergie thermique est très difficile. Généralement elle repose sur l'ionisation par un spectromètre de masse quadrupolaire mobile monté sur un goniomètre qui est déplacé le long des deux directions de l'espace pour mesurer le profil de diffraction. Il en résulte que la mesure du profil de diffraction d'atomes thermiques le long des deux dimensions est une opération longue. Par conséquent dans la plupart des travaux publiés, seuls les ordres de diffraction dans le plan de diffusion (c'est-à-dire le plan normal à la surface comprenant la trajectoire des projectiles incidents) sont étudiés. Notons que

bien qu'elle ne soit généralement que peu étudiée, lorsque les atomes arrivent en incidence rasante, la diffusion dans le plan de la surface est très importante, comme l'a montré Farias et ses collaborateurs [20].

La lourdeur de mise en œuvre de cette technique est son principal défaut et cela explique qu'elle n'est pas devenue une méthode de routine pour l'analyse de surface et que seuls quelques dizaines de dispositifs existent dans le monde. Toutefois, cette méthode présente de nombreuses qualités. L'utilisation de particules neutres empêche le chargement des surfaces isolantes, ce qui facilite l'étude des diélectriques ; et surtout la faible énergie des atomes empêche leur pénétration dans le solide. Cette caractéristique fait de la diffusion d'atomes thermiques une technique uniquement sensible à la première couche atomique à la différence des méthodes utilisant des électrons qui peuvent pénétrer sous quelques couches atomiques.

La diffraction d'atomes thermiques est par ailleurs beaucoup utilisée pour obtenir le potentiel particule-surface nécessaire à la compréhension de la dynamique gaz-surface et les informations structurales obtenues par la méthode permettent aussi l'étude de l'adsorption [17][18]. En plus d'obtenir les caractéristiques de la surface, des études avec des faisceaux d'atomes pulsés présentant des dispersions en énergie de moins de 2% ont permis d'étudier les processus de diffusion inélastique des atomes comme les modes de vibrations des atomes de la surface (phonons) [21] ainsi que la présence de défauts (à partir des absorptions résonantes)[19].

Plus récemment, une nouvelle technique basé sur la diffraction d'atomes thermiques s'est développée. Baptisée « Quasi-elastic Helium Atom Scattering (QHAS) », cette méthode permet d'étudier la dynamique de diffusion d'atomes [22] de la surface ou de molécules absorbées à partir de mesures de temps de vol et de spin écho. Une expérience existe notamment au Laboratoire Cavendish de l'université de Cambridge. Pour une revue sur ce type d'expérience, nous invitons le lecteur à lire : [23].

2.3.2 Diffraction d'électrons de basse énergie

De la même manière que la diffraction d'atomes thermiques dérive des expériences démontrant la nature ondulatoire des atomes, la diffraction d'électrons lents repose sur l'expérience de Davisson et Germer de 1927 [9]. Toutefois la méthode n'a été développée que dans les années 1960 avec le développement des tubes à vide [24]. La configuration géométrique de rétro-diffusion

2.3 Techniques de caractérisation de surface utilisant la diffraction de particules

de la diffraction d'électrons lents (LEED) s'apparente à celle de la diffusion d'atomes thermiques. Un faisceau d'électrons possédant une énergie de l'ordre de la dizaine à la centaine d'eV, ce qui correspond à un libre parcours moyen dans le solide d'environ 10 Å, est envoyé en incidence normale sur la surface étudiée. Les particules sont diffractées par la structure cristalline de la surface et le profil de diffusion présente des pics discrets donnant une image du réseau réciproque de la structure cristallographique (Fig 8).

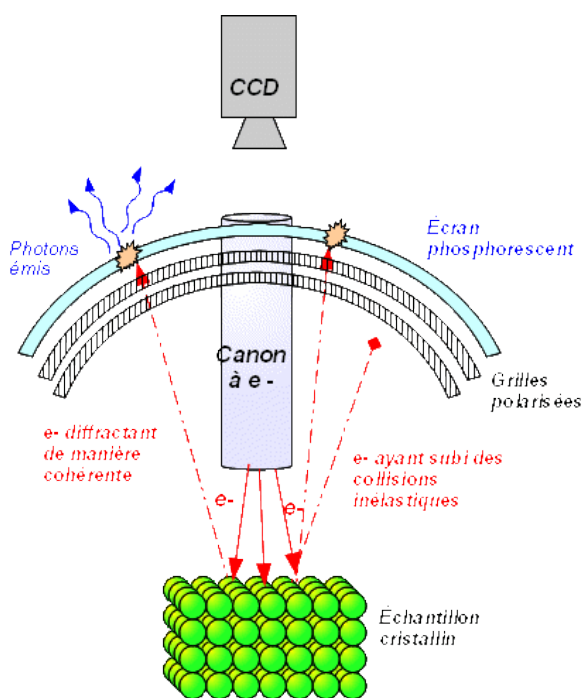


Fig 7: Principe du LEED

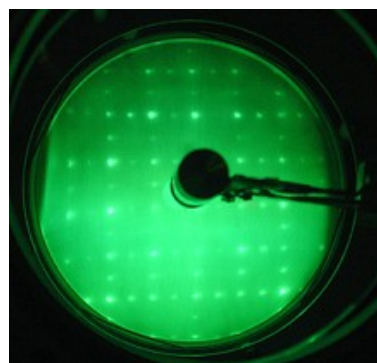


Fig 8: Image LEED d'une surface de Si(100) reconstruite (Licence CC)

À la différence des atomes thermiques, la mise en œuvre de cette technique est assez aisée. En effet, les électrons sont produits par thermo-émission à partir d'un filament de tungstène et sont ensuite extraits puis accélérés à l'énergie souhaitée. D'autre part, à de telles énergies, la détection peut se faire un simple écran phosphorescent placé au-dessus de la surface. Des grilles polarisées placées en amont de ce dernier permettent de sélectionner les énergies des électrons, et de ne garder que ceux ayant subi des collisions élastiques susceptibles de donner un profil de diffraction cohérent (Fig 7). La mise en œuvre de la méthode LEED est donc assez aisée et fait d'elle une technique très populaire et largement utilisée pour vérifier la structure cristalline de surface mais principalement de manière qualitative. En effet, au contraire de la diffusion d'atomes thermiques, les collisions multiples sont importantes lors de la diffusion d'électrons lents et une approche cinématique n'est plus possible, rendant l'interprétation quantitative difficile. D'autre part, des électrons, même de faible énergie, peuvent pénétrer la surface sur quelques couches atomiques réduisant la sensibilité à

la surface par rapport à la diffusion d'atomes thermiques. Notons aussi que l'utilisation du LEED sur des matériaux isolants peut être compliquée par des problèmes de chargement de la surface qui rendent l'interprétation des résultats difficile.

2.3.3 Diffraction par réflexion d'électrons de haute énergie

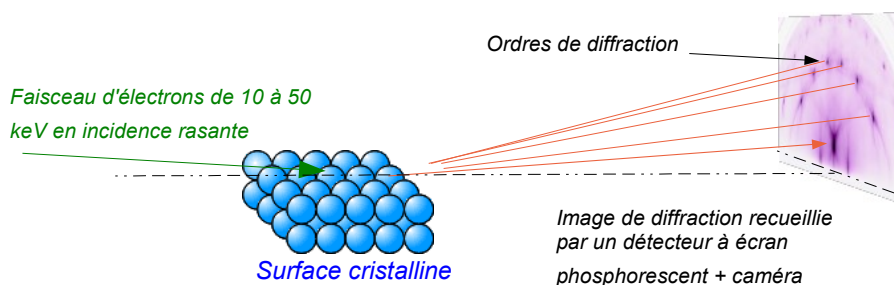


Fig 9: Principe du RHEED

En alternative au LEED, la diffraction par réflexion d'électrons de haute énergie, communément dénommé par son acronyme anglo-saxon RHEED (pour Reflexion High Energy Electron Diffraction) permet aussi l'étude de la structure cristallographique de la surface. Cette technique utilise des électrons d'énergie élevée par rapport à celle du LEED, typiquement de l'ordre de quelques keV à quelques dizaines de keV. Contrairement à la diffraction électronique de basse énergie, le faisceau d'électrons d'énergie du RHEED arrive en incidence rasante sur la surface de l'échantillon, c'est-à-dire avec des angles de l'ordre de quelques °. Un simple écran phosphorescent situé très en aval de l'échantillon est nécessaire pour recueillir le profil de diffraction électronique (Fig 9).

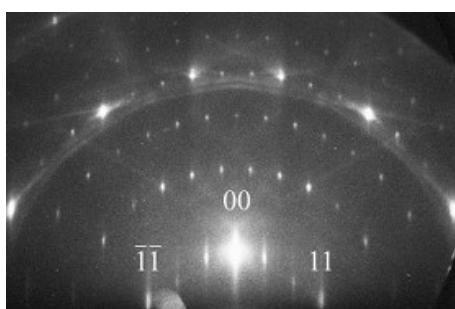


Fig 10: Cliché de diffraction RHEED d'une surface de 6H-SiC(0001) 3x3. Tirée de la publication [25]

En raison de l'incidence rasante utilisée, le profil de diffraction obtenu donne une

information à une dimension de la surface (Fig 10). Plusieurs profils avec une orientation azimutale de la surface différente sont donc nécessaires pour déterminer la structure cristallographique à deux dimensions. En revanche, de part sa géométrie, la diffraction par réflexion d'électrons de haute énergie est moins pénétrante que le LEED et les électrons incidents sont davantage sensible à la qualité de la surface. Cet avantage ainsi que la simplicité de mise en œuvre et sa géométrie de collision qui permet de libérer l'espace au-dessus de la surface à analyser font du RHEED la technique "reine" pour suivre les croissances de couches minces par jets moléculaires (MBE) ([26]) (Fig 12) depuis les années 70 à travers ce qu'on appelle les oscillations RHEED [27][28]. Ce terme désigne les variations de l'intensité du pic spéculaire, c'est à dire de l'ordre 0 du motif de diffraction lors d'une croissance. Lorsqu'une couche commence à se former, la rugosité de la surface augmente, les électrons sont alors défléchis par les pas des terrasses créées et l'intensité diminue jusqu'à la demi-couche. Puis la rugosité diminue jusqu'à ce que la couche soit complète. Les oscillations ainsi observées, permettent de quantifier l'épaisseur de la couche mince formée (Fig 11).

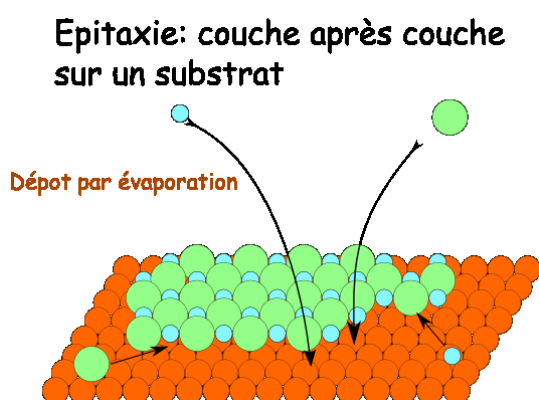


Fig 12: Principe de l'épitaxie par jets moléculaires: dépôt par évaporation des constituants d'un cristal sur un substrat et croissance couche après couche

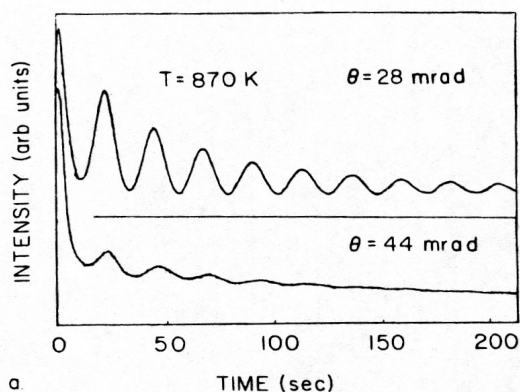


Fig 11: Intensité de l'ordre 0 d'un faisceau d'électrons de 10 keV lors d'une croissance de GaAs. Mesures pour deux angles d'incidence 1.6° (figure du haut) et 2.5° (bas). Illustration tiré d'un article de Van Hove et Co-auteurs [28]

Malgré le fait que les électrons du RHEED pénètrent moins le cristal que dans le cas du LEED, les particules incidentes peuvent tout de même traverser quelques couches. Cet aspect et le fait que les électrons peuvent interagir avec plusieurs atomes de la surface placent le RHEED dans un régime de collisions multiples. De ce fait, l'analyse quantitative d'un cliché de diffraction peut s'avérer difficile et la méthode est donc principalement utilisée de manière qualitative. Si ce sujet intéresse le lecteur nous l'invitons à se reporter à l'ouvrage très détaillé sur le RHEED d'Ichimiya et

2.3 Techniques de caractérisation de surface utilisant la diffraction de particules

Cohen [29] où il trouvera par ailleurs une description du suivi de croissance.

3 Principes généraux de la diffusion atomique en incidence rasante

3.1 Configuration géométrique

La diffraction d'atomes rapides est observée pour des incidences rasantes sur les surfaces cristallines. Ce type de géométrie développée en particulier par le groupe de Berlin a été étendue par notre groupe à des mesures en coïncidence d'électrons éjectés pour étudier les processus électroniques lors des interactions ions-surfaces[30]. Ces études ont constitué les travaux de thèse de mes prédécesseurs : Jérôme Villette (2000), Anouchah Momeni (2003) et Patrick Rousseau (2006). Afin de mieux comprendre les principes qui gouvernent la diffraction des atomes rapides, il est donc indispensable de nous plonger, le temps de quelques pages, dans la diffusion atomique en incidence rasante vue d'un point de vue purement classique, pour bien cerner les particularités de cette géométrie de collision.

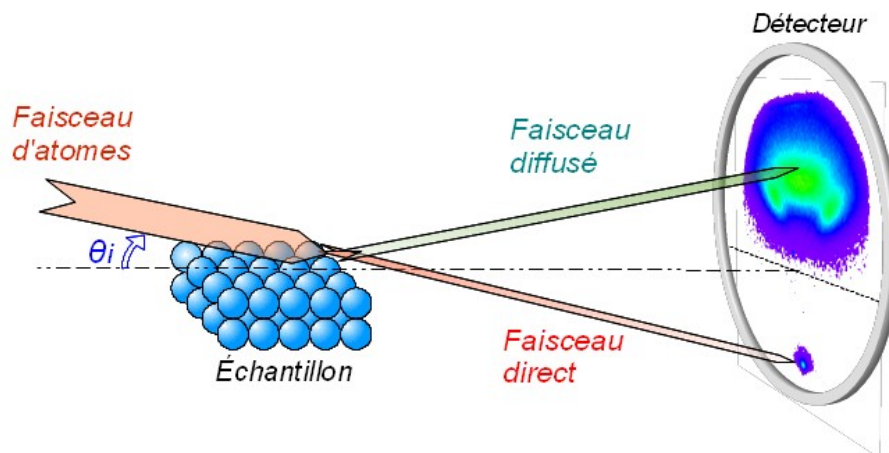


Fig 13: Configuration de la diffusion en incidence rasante

Dans la diffusion atomique en incidence rasante, le projectile est un atome neutre possédant une énergie cinétique E_0 de l'ordre du keV et l'objet diffuseur est une surface cristalline. Le faisceau arrive sur une surface avec un angle d'incidence très faible θ_i , de l'ordre du degré, et on détecte les atomes diffusés avec un détecteur sensible en position situé en aval de la cible. Afin de garder un repère de l'angle d'incidence, la surface « cible » n'est pas complètement insérée dans le faisceau et laisse ainsi passer une petite partie du faisceau « direct » qui marque un point sur le détecteur. (Fig 13)

3.1 Configuration géométrique

Compte tenu de la faible valeur de l'angle d'incidence, la vitesse le long de la surface $v_{\parallel} = v_0 \cos(\theta_i)$ est presque identique à la vitesse totale du projectile tandis que la vitesse d'approche de la surface $v_{\perp} = v_0 \sin(\theta_i)$ est plus faible de près de deux ordre de grandeur. Par conséquent, l'énergie cinétique associée au mouvement d'approche de la surface :

$E_{\perp} = E_0 \sin(\theta_i)^2$ est trois à quatre ordres de grandeurs plus faible que l'énergie du mouvement parallèle à la surface $E_{\parallel} = E_0 \cos(\theta_i)^2$. Dans une telle configuration, un projectile de quelques de quelques keV d'énergie possède donc une énergie normale que l'on peut ajuster entre une dizaine d'eV et une dizaine de meV en variant l'angle de quelque degrés à quelques dixièmes de degrés.

Ex : un atome d'hélium de 500 eV d'énergie cinétique arrivant avec un angle de 1° sur la surface possède une énergie normale de 150 meV et une énergie longitudinale de 499.9 eV

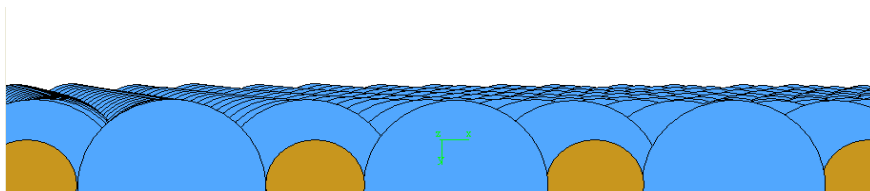


Fig 14: Surface perçue par un faisceau incident arrivant avec un angle d'incidence très faible

Sous une incidence aussi rasante, les atomes de la surface se cachent les uns les autres de sorte que le relief apparent de la surface ressemble plus à une tôle ondulée qu'à relief de boîte à œuf. (Fig 14). Ce masquage très important ainsi que la faible énergie normale explique que les projectiles ne peuvent pas pénétrer sous la surface. Cette pénétration n'est possible qu'en visant entre deux rangées atomiques et pour des énergies normales suffisantes pour pouvoir s'insérer entre ces rangées, soit typiquement au moins une dizaine d'eV [31]. Par conséquent dans le régime d'énergie d'approche de la diffraction d'atomes rapides (quelques dizaines à quelques centaines de meV), le projectile n'interagit qu'avec les atomes de la première couche atomique du cristal lors de sa diffusion.

Bien entendu, si un atome (par exemple un : ad-atome) ou une structure atomique (par exemple : un bord de marche) dépasse du plan cristallin, le masquage n'existe plus et toute l'énergie du projectile est disponible pour une collision « violente » y compris une pénétration à l'intérieur de la structure déposée [32].

3.2 Nature de l'interaction entre le projectile atomique et les atomes de la surface

Une approche simple permettant de comprendre les interactions entre les projectiles atomiques et les atomes de la surface lors de la diffusion dans notre gamme d'énergie d'approche (de quelques meV à quelques centaines de meV) consiste à considérer qu'elles résultent de la somme des interactions binaires entre la particule incidente et chaque atome/ion de la surface. Ces interactions sont de deux sortes. À longue distance, les interactions entre le projectile et les constituants de la surface sont dominées par *les forces de Van der Waals*. Ils s'agit de forces attractives mettant en jeu des effets dipolaires entre le projectile et les atomes/ions constituant le solide. À plus courte distance, si les configurations électroniques du projectile et des atomes de la surface le permettent, les orbitales atomiques peuvent se recouvrir et une *liaison chimique* donnant lieu à un partage d'une paire d'électrons peut se former. Dans ce cas, le projectile peut être piégé par la surface et on parle alors chimisorption. En l'absence d'interaction chimique ou à plus courtes distances, les atomes se repoussent en raison du *principe d'exclusion de Pauli* qui interdit l'interpénétration des nuages électroniques. Remarquons que certains travaux distinguent aussi les interactions de Coulomb entre les ions/électrons du solide et le nuage électronique du projectile atomique, qui correspond à une interaction dipôle-dipôle de Van der Waals([17])

Lors de mes travaux de thèse, j'ai exclusivement travaillé avec l'hélium. Cet atome possède une configuration électronique $1S^2$ caractérisée par une orbitale sphérique. Cette configuration très stable lui confère une réactivité chimique quasi-nulle à l'instar des autres gaz rares, sa chimisorption par la surface est donc improbable. Son nuage électronique est par ailleurs difficilement déformable d'où une très faible polarisabilité. Il n'est donc que faiblement soumis aux forces de Van der Waals des atomes de la surface. Les études en diffraction d'atomes thermiques utilisent souvent des potentiels de type Lennard-Jones – Buckingham pour décrire l'interaction d'un atome d'hélium avec chacun des atomes de la surface [18]. Ce type de potentiel possède une expression de la forme :

$$V(r) = \gamma \left(e^{\left(\frac{-r}{r_0}\right)} - \left(\frac{r_0}{r}\right)^6 \right)$$

Elle rend compte à la fois de la contribution attractive des forces de Van der Waals avec le terme en $1/r^6$ et du mur de potentiel à courtes distances généré par les forces de Pauli à travers le terme exponentiel. À distance intermédiaire, la courbe de potentiel peut laisser apparaître un puits attractif de profondeur « D ». Dans le cas de l'hélium, les forces de Van der Waals sont très faibles et

3.2 Nature de l'interaction entre le projectile atomique et les atomes de la surface

ce creux est de faible amplitude, typiquement quelques meV [33][34][35]. Dans ce chapitre nous négligerons ce puits pour ne retenir qu'un potentiel de nature exponentiel résultant de la répulsion « de Pauli » des nuages électroniques.

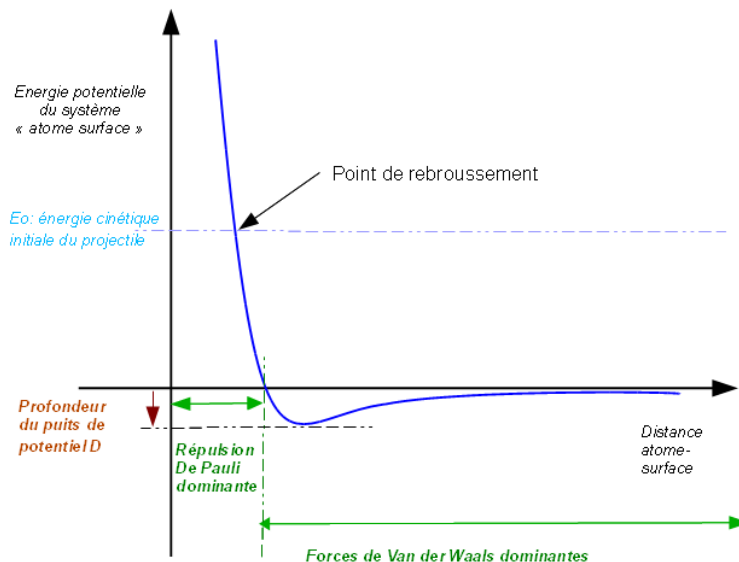


Fig 15: Potentiel d'interaction atome surface de type Lennard -Jones

Notons bien que la forme du potentiel dépend de la nature de l'atome incident et de la nature de la surface. Si dans le cadre de notre étude et pour ce manuscrit les projectiles considérés seront des atomes d'hélium, la forme du potentiel peut être très différente pour d'autres espèces et peut faire apparaître un puits de potentiel très important [36]. Dans le cas des atomes thermiques du TEAS, les projectiles peuvent même subir des adsorptions résonantes [37].

3.2.1 Point de rebroussement et « corrugation »

Lors de la diffusion, le projectile va s'approcher de la surface jusqu'à la distance d'approche maximale avant d'être rétro-diffusé par les nuages électroniques des atomes situés au point d'impact. Ce point de rebroussement dépend de la densité électronique de la surface ([38]) ainsi que de l'énergie normale d'approche du projectile. Plus son énergie normale sera importante plus il pourra s'en approcher. Pour une énergie normale donnée, les points de rebroussement vont donc suivre une courbe équipotentielle qui esquisse le contour de la densité électronique de la surface appelée communément « corrugation » [39] le long de laquelle les projectiles possédant la même énergie normale considérée vont diffuser (Fig 16).

La diffusion d'atome constitue un outil puissant pour sonder la densité électronique des

3.2 Nature de l'interaction entre le projectile atomique et les atomes de la surface

surfaces cristallines et les interactions attractives de Van der Waals (dans le cas où le projectile qui n'est pas un gaz rare) de la même manière que la pointe d'un microscope à force atomique. Cet aspect représente un point fort de la technique de diffusion d'atomes thermiques présentée précédemment.

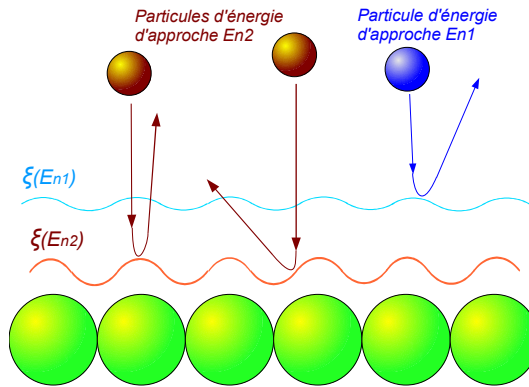


Fig 16: Le point de rebroussement dépend de l'énergie d'approche et de la densité électronique au point d'impact. Ici $E_{n2} > E_{n1}$.

3.3 Modèle de la surface-miroir

Avant de s'intéresser à la forme du profil de diffusion, nous allons introduire à travers une approche théorique deux grandeurs importantes de la diffusion en incidence rasante que sont : la **longueur de l'interaction** avec la surface ainsi que la **distance typique d'interaction**.

Pour cela, nous partons d'une description simple qui consiste à moyenniser les contributions de tous les atomes de la surface. On considère une surface idéalement plane et sans structure atomique. La contribution de chaque atome de la surface est répartie sur toute la maille élémentaire.

Si le potentiel binaire atome de surface-projectile est de type potentiel de Molière [40] :

$$V(r) = (A/r) \exp(-\Gamma r)$$

En réalisant la sommation sur tous les atomes de la surface on obtient un résultat analytique :

$$V(z) = V_0 e^{-\Gamma z} \quad (3)$$

où z est l'altitude par rapport à la surface et Γ la raideur du potentiel d'interaction.

3.3.1 Loi horaire

Soit un projectile de masse m_p et d'énergie cinétique totale E_{tot} évoluant dans ce

3.3 Modèle de la surface-miroir

potentiel et arrivant sur la surface avec un angle d'incidence θ_i faible. Il possède une vitesse le long de la surface v_x et une vitesse d'approche normale v_z , et son énergie totale est

$$E_{tot} = E_{0x} + E_{0z} = \frac{1}{2} m v_x^2 + \frac{1}{2} m v_z^2$$

Dans ce potentiel, la trajectoire du projectile est analytique. L'énergie cinétique du mouvement longitudinal ne varie pas au cours du mouvement (*le potentiel n'a pas de composante selon x*) et donc $v_x = cste$. De ce fait, la conservation de l'énergie nous donne :

$$E_{0z} = \frac{1}{2} m v_z^2 + V_0 e^{-\Gamma z}$$

où E_{0z} est l'énergie initiale associée au mouvement normal. La vitesse associée au mouvement normal est alors donnée par :

$$v_z = \frac{dz}{dt} = \sqrt{\frac{2E_{0z}}{m} (1 - e^{-\Gamma(z-z_0)})}$$

Dans la précédente expression, $z_0 = \ln(V_0 / E_{0z}) / \Gamma$ correspond à l'altitude du point de rebroussement pour lequel sa vitesse normale d'approche s'annule.

L'équation précédente admet une solution analytique qui est, en prenant comme origine de temps $t=0$ le point de rebroussement :

$$z(t) = z_0 + v_{z_\infty} t + \frac{2}{\Gamma} \ln\left(1 + \frac{e^{-\Gamma v_{z_\infty} t}}{2}\right) \quad (4)$$

où $v_{z_\infty} = \sqrt{2E_{0z}/m}$ correspond à la vitesse normale lorsque le projectile est infiniment loin de la surface.

À partir de la précédente équation(4) on obtient une expression de l'angle d'incidence en fonction du temps :

$$\theta(t) = \theta_0 \left(1 - 2 \frac{e^{(\Gamma v_{z_\infty} t/2)}}{\cosh(\Gamma v_{z_\infty} t/2)}\right) \quad (5)$$

La trajectoire est symétrique par rapport au point de rebroussement et les angles en entrée et en sortie sont égaux.

A première vue, la longueur de trajectoire est assez mal définie car cette quantité dépend à l'évidence de la distance à la surface que l'on considère. Comment peut-on alors la définir précisément ? Jérôme Villette et Kristel Cordier[41][42] ont résolu cette question lors d'une étude sur les pertes d'énergie nucléaires, c'est-à-dire l'énergie déposée sur la surface.

3.3.2 Pertes d'énergies nucléaires

Toute diffusion est associée à un changement de direction du projectile, il y a donc un transfert d'une certaine quantité de mouvement vers les atomes de la cible. Ce transfert d'impulsion est associée à une perte d'énergie appelée « énergie de recul » en physique des collision et « dépôt d'énergie nucléaire » dans les problématiques de pourvoir d'arrêt des solides [43].

Lors d'une collision binaire en phase gazeuse entre deux corps, le projectile est diffusé d'un angle $\Delta\theta$ et une énergie de recul est transférée à la cible. La perte d'énergie du projectile associée à ce transfert pour des petits angles de diffusion est donnée par la relation :

$$\Delta E = E_f - E_0 = \frac{m_p}{m_c} E_0 \Delta\theta^2 \quad (6)$$

où E_0 est l'énergie cinétique initiale du projectile, M_p sa masse et M_c la masse de la cible.

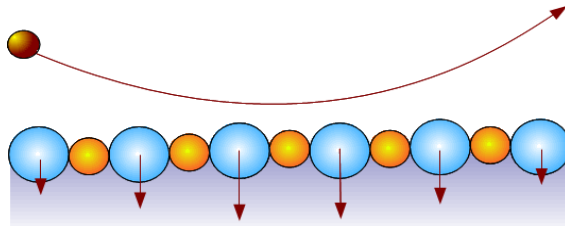


Fig 17: Diffusion rasante sur plusieurs sites. transfert d'énergie de recul à la cible

En incidence rasante, un projectile d'énergie normale va interagir avec plusieurs sites diffuseurs le long de sa trajectoire, et la déviation totale peut être perçue comme la somme de déflexions élémentaires dues à des collisions successives indépendantes. Nous discrétisons la trajectoire analytique en une suite de survols de sites diffuseurs élémentaires de masse M_c , dont la longueur correspond au paramètre de maille a de la surface. En considérant que le projectile est défléchi par chaque segment élémentaire d'une quantité $\delta\theta$ l'énergie de recul (binaire) associée est donnée par la relation :

$$\delta E = \frac{m_p}{m_c} E_0 \delta\theta^2 \quad (7)$$

Ou encore :

$$\delta E = \frac{m_p}{m_c} E_0 \left(\frac{\delta\theta}{\delta t}\right)^2 \delta t^2 \quad (8)$$

L'angle d'incidence étant très faible, la composante de la vitesse le long de la surface est très

3.3 Modèle de la surface-miroir

grande devant la vitesse d'approche normale v_z et reste quasiment constante lors de la diffusion.

On peut alors écrire : $\frac{\delta \theta}{\delta t} = \frac{1}{v_x} \frac{\delta^2 z(t)}{(\delta t)^2}$.

En posant $v_x \approx a/\delta t$, la précédente expression (8) nous conduit à la courbe décrivant le dépôt d'énergie sur la surface :

$$\frac{dE(t)}{dt} = \frac{m_p}{m_c} E_0 a \frac{1}{v_x^3} \frac{\Gamma^2 v_{z\infty}^4}{4 \cosh^4(\Gamma v_{z\infty} t/2)} \quad (9)$$

La réflexion étant spéculaire, la particule sort avec un angle de sortie égal à l'angle d'entrée ; et de ce fait, l'angle total de déviation vaut : $\Delta \theta = 2\theta_i$. L'intégration sur l'ensemble des temps de (9) donne l'expression analytique de la perte d'énergie totale le long de la trajectoire :

$$\Delta E = \frac{2}{3} \frac{m_p}{m_c} E_0 \Gamma a \theta_i^3 \quad (10)$$

où θ_i est l'angle d'incidence du projectile par rapport à la surface.

Cette formule reproduit ainsi l'évolution en θ^3 observée expérimentalement et par simulation numérique par Jérôme Villette lors de sa thèse. Il avait formulé un modèle très simple qui consistait à dire que seul un nombre N_{act} de sites actifs participe à la déflexion de manière équivalente. La perte d'énergie est donc égale à N_{act} fois la perte d'énergie élémentaire (binaire) δE donnée par la formule (7) avec $\delta \theta = \delta \theta_i = 2\theta/N_{act}$:

$$\Delta E = \frac{m_p}{m_c} E_0 \frac{\theta^2}{N_{act}} \quad (11)$$

Illustration : Considérons un atome d'hélium d'énergie 500 eV arrivant sur une surface de NaCl avec un angle d'incidence de 1°. Il possède une énergie normale de 150 meV. La masse effective de la surface est de 29 u.m.a contre 4 u.m.a pour le projectile. Si on considère qu'il survole 10 sites alors la perte d'énergie nucléaire sera de 8 meV.

En ajoutant (résultat de simulation) que N_{act} est inversement proportionnel à l'angle d'incidence $N_{act} = N_0/\theta$, J. Villette avait trouvé :

$$\Delta E = \frac{m_p}{m_c} E_0 \frac{\theta^3}{N_0} \quad (12)$$

Il avait ainsi expliqué la dépendance cubique sans pouvoir expliciter N_0 . En comparant ces deux approches, on voit que N_0 s'exprime avec la raideur du potentiel d'interaction défini par

l'expression (10)

$$N_{act} = \frac{6}{\Gamma a \theta} \quad (13)$$

3.3.3 Longueur effective de trajectoire

En approfondissant, on voit que le calcul permet de valider et de définir précisément la notion de longueur effective. En effet la courbe en $1/\cosh(\Gamma \theta a/2)^2$ du dépôt d'énergie présente une allure quasi-gaussienne qui nous autorise une définition du type : *la longueur effective d'interaction correspond la largeur complète à mi hauteur de la courbe de dépôt d'énergie mais aussi du transfert d'impulsion* (Fig 18)

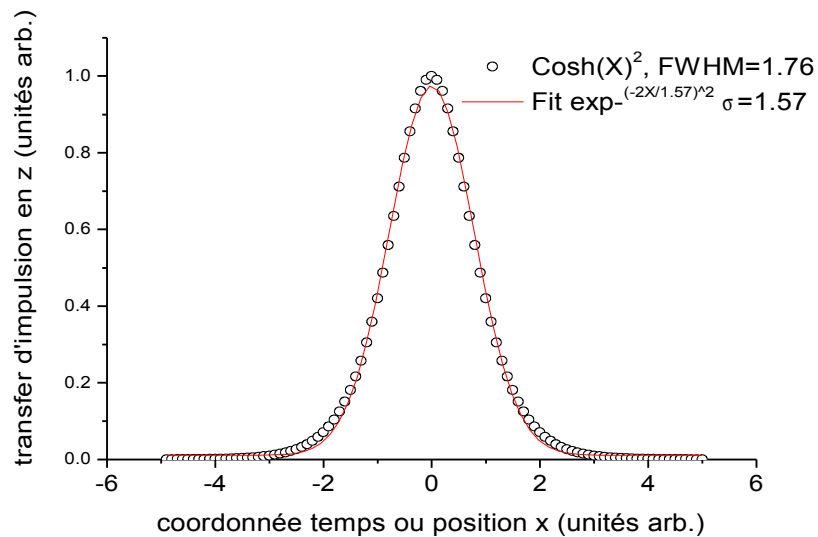


Fig 18: Transfert d'impulsion en fonction du temps et modélisation avec une gaussienne

En partant de l'expression de la perte d'énergie, on calcule une largeur complète à mi hauteur L_{eff} donnée par $L_{eff} = 3,52 / (\Gamma \theta)$, soit $L_{eff} \approx 4 / \Gamma \theta$. On remarque que cette dernière longueur est donc sensiblement plus faible, environ 1,5 fois, que celle déduite ci dessus à partir d'une définition de N_{act} diffuseurs équivalents ($L_{eff} = N_{act} a$). En revanche on établit clairement dans les deux cas que cette longueur d'interaction varie en $1/\theta$.

3.3 Modèle de la surface-miroir

A travers les graphes présentés Fig 20 et Fig 19, on voit que la distance minimum d'approche varie lentement dans un potentiel exponentiel alors que le dépôt d'énergie sur un site donné varie en θ^4 puisque la perte d'énergie totale varie en θ^3 et est répartie sur un plus grand nombre de sites.

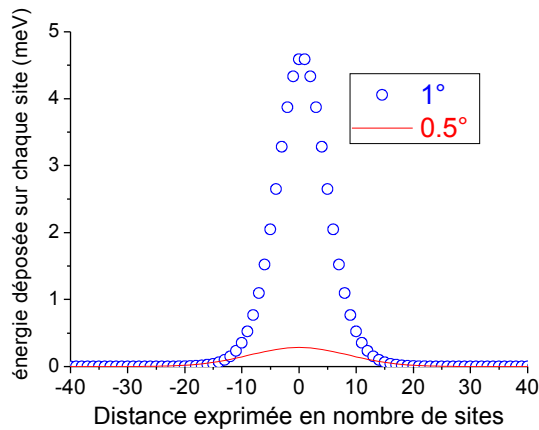


Fig 20: Énergie déposée sur chaque site

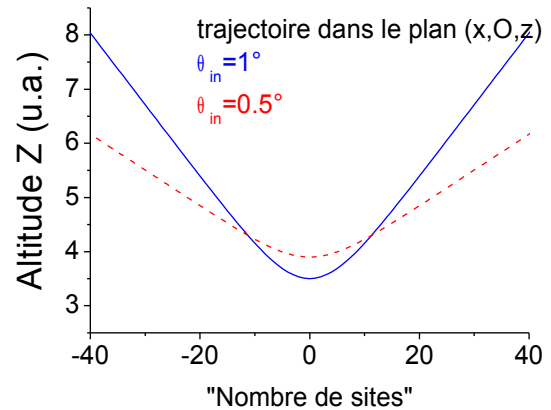


Fig 19: Trajectoire dans le plan (O,x,z)

- **En résumé :**

De cette approche théorique, nous retiendrons que :

- *la longueur de la trajectoire varie en $1/\theta$*
- *que la perte d'énergie « binaire » sur chaque atome varie en θ^4 et devient très petite aux petits angles.*
- Qu'un modèle très simple de N_{act} *diffuseurs équivalents* permet de comprendre les propriétés essentielles et de les relier à la raideur du potentiel d'interaction.

3.4 Profils de diffusion

3.4.1 Évolution de la forme du profil de diffusion avec l'orientation de la surface

Avant de présenter les profils de diffusion, il est important de préciser la terminologie que nous utiliserons tout au long de ce manuscrit pour décrire la trajectoire des projectiles au-dessus de la surface. Nous avons précédemment défini l'angle d'incidence θ comme l'angle entre la trajectoire de la particule et sa projection sur la surface. Si on se place dans un système de coordonnées sphériques, cet angle correspond à **un angle polaire**. En définissant le plan d'incidence du faisceau par le plan normal à la surface contenant la trajectoire incidente du faisceau, on peut aussi définir un **angle azimutal** φ par rapport à un axe cristallographique de la surface, comme le montre la figure ci-dessous.

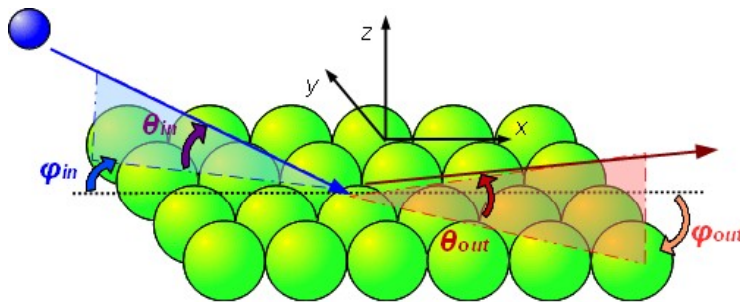


Fig 21: Angles azimutaux et angles polaires

En étudiant l'apparence du cliché de diffusion suivant l'orientation azimutale de la surface, nous pouvons distinguer deux types de profils caractéristiques : les directions cristallographiques majeures et les directions de grands indices.

3.4.1.1 Directions cristallographiques majeures : profils « rainbows »

On observe pour des directions bien déterminées des profils de diffusion présentant des ouvertures azimutales importantes et une structure avec un lobe central et deux lobes latéraux, comme on peut le voir sur le cliché de diffusion représenté par Fig 22. De part leur forme, ces profils sont qualifiés de « rainbow » (terme anglais pour désigner les arcs en ciel). Ce profil

particulier permet d'identifier clairement une direction cristallographique majeure, c'est-à-dire pour laquelle les entiers h , k , et l définissant la direction observée $[hkl]$ ont des faibles valeurs. Le long de ces directions, les atomes de la surface sont parfaitement alignés au sein d'une même rangée. Le projectile perçoit alors la surface comme un champ de sillons le long desquels il peut être canalisé, comme le montre la figure 23.

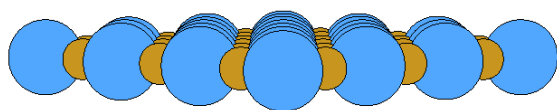


Fig 23: Surface de NaCl(001) orientée suivant l'axe cristallographique $\langle 110 \rangle$. Les rangées d'atomes forment des canaux le long desquels les projectiles sont guidés

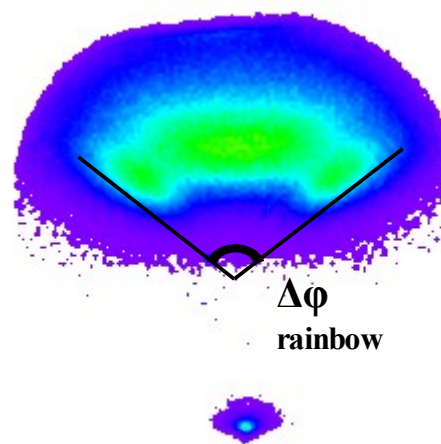
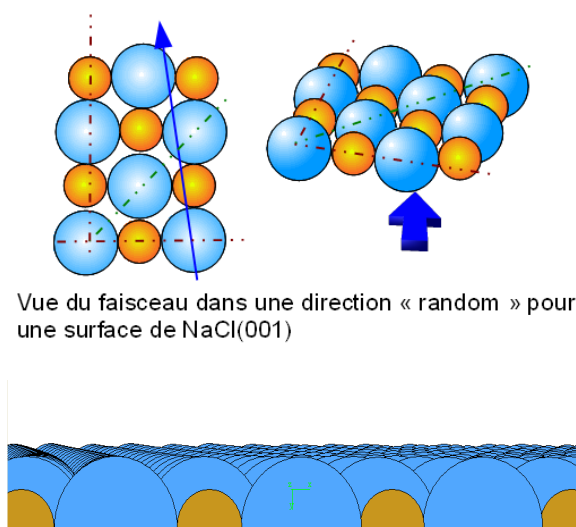


Fig 22: Profil de diffusion « rainbow » enregistré sur une surface de NaCl(001) avec des atomes d'hydrogène le long d'une direction cristallographique majeure. Les couleurs sur le profil représentent différents niveaux d'intensités : les couleurs les plus vives correspondent aux niveaux d'intensité élevés.

3.4.1.2 Direction aléatoire ou random

Dans les cas des directions à grands indice h, k et l , la surface ne montre pas des rangées d'atomes bien alignés, on observe alors un profil de diffusion possédant une ouverture azimutale très réduite, comme le montre la figure 24. On nomme qualifie ce type de direction « d'aléatoire » ou « random ». Pour ce type de direction, les collisions se font de manière aléatoire de part et d'autre du plan de la trajectoire. La projection de ce profil azimutal est bien représentée par une distribution gaussienne.



Vue du faisceau dans une direction « random » pour une surface de NaCl(001)

Fig 25: Surface de NaCl(001) perçue à petit angle d'incidence le long d'une direction cristallographique à grand indice

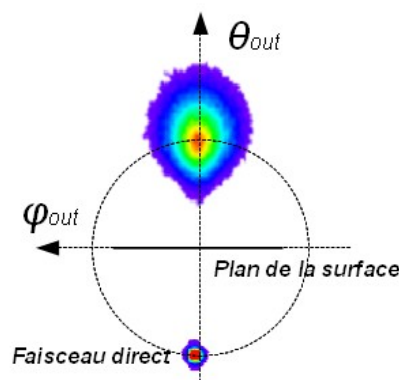


Fig 24: Profil de diffusion enregistré le long d'une direction cristallographique à grand indice

3.4.2 Élargissements polaire et azimutal

Le modèle de la surface miroir que nous avons vu précédemment explique les propriétés essentielles de la diffusion spéculaire, c'est-à-dire que le projectile devrait quitter la surface avec un angle de sortie égal à l'angle d'incidence. Les profils expérimentaux que nous venons de voir montrent un fort élargissement à la fois dans la direction polaire et dans la direction azimutale. Nous allons dans les deux parties suivantes présenter leur interprétation.

3.4.2.1 Largeur azimutale du profil de diffraction

La forme de la distribution azimutale dépend uniquement de l'orientation cristallographique de la cible, et comme nous l'avons vu, elle permet de distinguer deux types de directions cristallographiques : les directions de canalisation et les directions «random». Pour comprendre leur forme, il faut s'intéresser à la forme du potentiel d'interaction que ressent le projectile à l'approche de la surface lorsqu'il arrive en incidence rasante.

Potentiel en incidence rasante :

Lorsque la particule arrive en incidence rasante sur un cristal avec une énergie cinétique de l'ordre du keV, elle survole *le long de sa direction de propagation* une succession périodique d'arrangements de maxima et de minima de « corrugation » correspondant aux atomes de la surface. Danailov et co-auteurs ont montré que cette corrugation (c'est-à-dire le relief) le long de la direction de propagation a peu d'influence sur la distribution angulaire du profil observé [44]. En revanche, celui-ci est directement relié à la forme du relief transverse (c'est à dire dans le plan normal à la surface et à la direction de propagation des projectiles) moyenné le long de la trajectoire.

Une approche « classique » simple permettant de comprendre cet aspect est de remarquer que lors de sa trajectoire au-dessus de la surface, la particule incidente subit juste de légères inflexions « perpendiculaires » à chaque fois qu'elle survole un atome de la surface. Le long de la direction de propagation, le projectile est simplement légèrement ralenti avant chaque atome de la surface puis ré-accélééré de la même quantité en s'éloignant. Comme la distance minimale d'approche est fixée par l'énergie normale, l'énergie potentielle et sa variation caractéristique n'est que de quelques centaines de meV et ne perturbe que très peu le mouvement rapide qui peut être vu comme rectiligne uniforme le long de cet axe (x) (voir Fig 26).

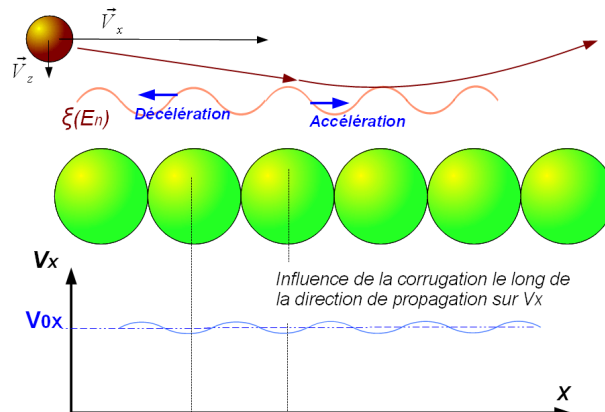


Fig 26: Influence de la corrugation le long de la direction de propagation

Pour les directions transverses, ou les composantes de la vitesse sont plus faibles, il est bien plus simple de considérer leur évolution dans un potentiel moyenné le long de x (une cellule suffit) plutôt que de suivre l'évolution rapide du potentiel généré par le mouvement rapide. On introduit ainsi le potentiel de rangée ([44] [32]) :

3.4 Profils de diffusion

$$\langle V(x, z) \rangle_x = \frac{1}{a_{\text{maille}}} \int_{-a_{\text{maille}}/2}^{a_{\text{maille}}/2} V(x, y, z) dx$$

Le fait que le potentiel vu en incidence rasante peut être considéré comme un potentiel moyenné est un aspect fondamental de la diffusion en incidence rasante puisqu'il permet de comprendre la forme des profils de diffusion.

- **Interprétation du profil azimuthal le long des directions de canalisation :**

Dans le cas des directions de canalisation, la surface présente un arrangement périodique de rangées d'atomes bien alignés le long de direction transverse. La moyenne du potentiel le long de la direction transverse transforme un potentiel réel de forme en « boîte à œufs » en un potentiel effectif moyenné en forme de tôle ondulée, où les sillons correspondent aux maxima de densités électroniques des rangées d'atomes (Fig 28). Si le projectile arrive sur le flan d'une rangée d'atomes, il interagira de la même manière avec tous les atomes successifs de la rangée. Si la corrugation est bien marquée, le projectile peut accumuler autant de répulsion latérale que verticale et ressortir comme sur l'image Fig 27 avec un angle proche de 45° dans le plan transverse au mouvement rapide.

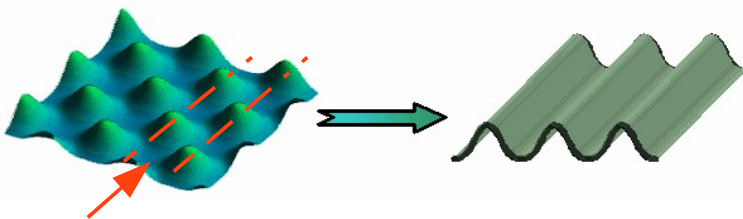


Fig 28: Potentiel moyenné le long de la direction de canalisation

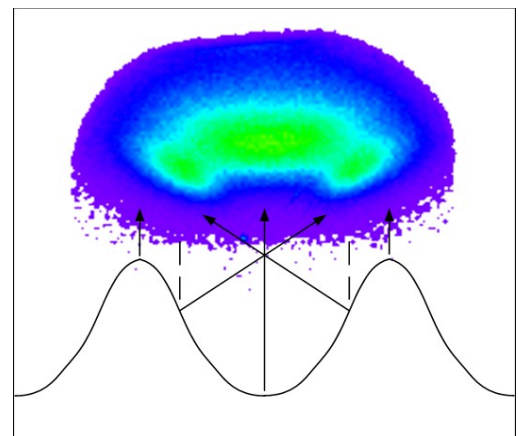


Fig 27: Analyse du profil azimuthal d'un cliché de diffusion d'atomes

Cette forme de potentiel moyenné permet d'expliquer la forme des profils « rainbow » observés par de simples considérations géométriques de type « ray tracing » tout en utilisant un potentiel à une seule dimension. Les particules diffusées par le fond des canaux ou par l'un des sommets ne subissent pas de déflexion azimuthale importante et forment la tâche centrale du profil. Les particules qui diffusent sur la pente des sillons subissent des déflexions azimuthales maximales et produisent les lobes latéraux.

- **Interprétation du profil azimuthal le long des directions aléatoires**

On peut comprendre par le raisonnement précédent le profil azimuthal observé dans lorsque le faisceau est aligné le long d'une direction aléatoire. Dans ces directions, l'arrangement des rangées des atomes vu par le faisceau est quelconque. De ce fait, la corrugation transverse moyennée le long de la direction de propagation est très faible et la surface apparaît quasiment-plane.

3.4.2.2 Profil polaire :

Nous avons vu dans la précédente partie que l'élargissement azimuthal observé ne dépend que l'orientation du faisceau par rapport aux directions cristallographiques majeures de la surface. Comment en revanche expliquer l'élargissement polaire observé ?

Nous venons de voir que le long d'une direction aléatoire le potentiel moyen ressenti par le projectile est très peu corrugué et il devrait s'approcher du potentiel miroir-modèle que nous avons introduit précédemment. Cependant, les profils de diffusion observés présentent une extension polaire importante, comme le montre la figure ci-dessous (Fig 29)

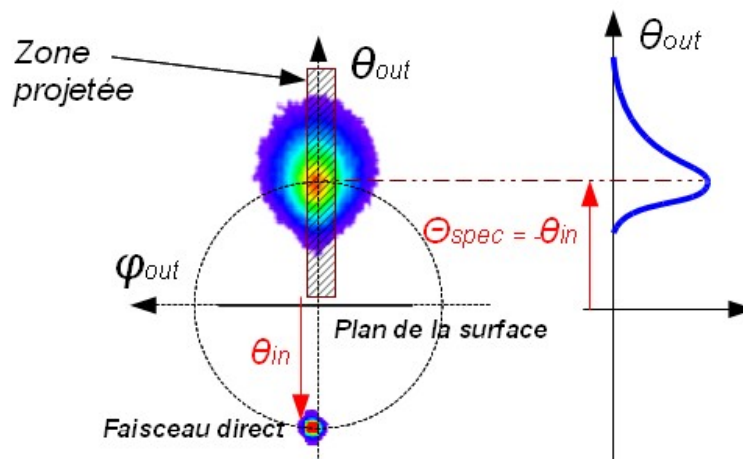


Fig 29: Distribution lognormale le long de la direction polaire

Lorsqu'on projette une tranche $\phi = cste$ du profil le long de la direction radiale, on observe que la distribution d'intensité obtenue présente bien un maxima à la position de l'angle

spéculaire mais avec une largeur importante et une nette extension vers les grands angles. Jérôme Villette[45][41] a étudié l'évolution de ce profil avec la température de la cible. Il a montré que la projection radiale peut être bien reproduite par une distribution « lognormale » dont l'origine est située dans le plan de la cible et dont la largeur « lognormale » (c'est-à-dire relative) ne dépend presque pas de l'angle d'incidence mais principalement de la température de la surface.

- **Influence des vibrations thermiques**

Les atomes soumis aux vibrations aux thermiques sont sujets à des déplacements aléatoires par rapport à leurs positions d'équilibre. La période de vibration des atomes, et donc la période des phonons, même les plus rapides, est très grande devant le temps de collision et par conséquent les atomes de la surface apparaissent statiques lors de la diffusion. Le projectile voit donc une surface « gelée » mais déformée par rapport à la situation idéale car les atomes sont déplacés aléatoirement par rapport à leur position d'équilibre.

Pour modéliser ces vibrations thermiques, on peut dans une première approche se référer à la théorie de Debye et considérer que les atomes oscillent de manière quasi-harmonique autour de leur position d'équilibre. Le déplacement thermique des atomes de la cible dans une direction i ($i=x, y$ ou z) par rapport à leur position d'équilibre dans une maille statique peut être estimé au premier ordre par la distribution de densité de probabilité d'un oscillateur harmonique. Cette distribution est une gaussienne de la forme :

$$P(i) = \frac{1}{\sqrt{2\pi \langle u_i^2 \rangle}} \exp\left(-\frac{i^2}{2 \langle u_i^2 \rangle}\right)$$

où : $\langle u_i^2 \rangle$ est le déplacement quadratique moyen de l'atome autour de sa position d'équilibre. Dans cette étude, seuls les déplacements dans la direction normale sont pris en compte, les déplacements thermiques le long des directions x et y n'ayant pas d'effets sur l'élargissement du profil radial du faisceau diffusé.

En effet dans l'approximation des petits angles, on peut considérer que : $\theta_f \approx v_{z\infty}/v_x = \sqrt{2E_z/m}$.

Dans le cas particulier où le déplacement thermique est nul, le paramètre d'impact est z_0 et l'angle de réflexion spéculaire a donc pour expression :

$$\theta_{spec} \approx \frac{v_{z\infty}}{v_x} = \sqrt{\frac{2V_o}{m}} e^{-\frac{z_0}{2}}$$

3.4 Profils de diffusion

Considérons le cas simple d'une collision binaire. Afin de ne pas changer le nom des variables cette collision binaire est définie par un projectile qui se déplace selon x avec une cible dans le plan $y=0$ et le paramètre d'impact est défini par une altitude z_0 . Si le potentiel est exponentiel et de la forme : $V(r)=V_0 \exp(-\Gamma z)$, l'angle de déviation associé suit aussi une loi exponentielle :

$$\theta(z) \propto \theta(z_0) \exp(-\Gamma z)$$

Si la cible est déplacée d'une quantité dz alors l'angle de déviation change selon l'expression :

$$\theta(z_0 + dz) = \theta(z_0) \exp(-\Gamma dz)$$

C'est cette transformation exponentielle qui explique que la distribution normale de dz se transforme en une distribution lognormale de l'angle de déviation dont l'expression est donnée ci-dessous (eq (14)). Un petit déplacement vers $dz > 0$ à plus d'effet relatif qu'un retrait $dz < 0$ sous le plan.

$$P(\theta_f) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \cdot \frac{1}{\Gamma \sigma \theta_f} e^{\frac{-2 \ln^2(\frac{\theta_f}{\theta_{spec}})}{\Gamma^2 \cdot \sigma^2}} \quad \text{avec} \quad \sigma^2 = \langle u_z^2 \rangle \quad (14)$$

Dans la précédente expression : θ_{spec} est l'angle spéculaire ($\theta_{spec} = -\theta_{inc}$).

On voit que la largeur « lognormale » de cette distribution ne dépend que du produit $\Gamma \sigma$ c'est-à-dire la raideur du potentiel multipliée par le déplacement quadratique moyen et qu'elle ne dépend pas de l'angle d'incidence et de ce fait sa largeur relative $d\theta/\theta_0$ est constante. En revanche, sa largeur à mi-hauteur varie linéairement avec l'angle d'incidence.

Le déplacement quadratique moyen peut être obtenue par la limite haute température du modèle de Debye de la densité de phonons :

$$\sigma^2 = \langle u_z^2 \rangle = \frac{3 \cdot (\frac{h}{2\pi})^2 T_s}{M_s k_B \Theta_D^2} \quad (15)$$

Dans cette formule : T_s est la température de la surface donnée en kelvins, h est la constante de Planck, M_s est la masse de l'atome de surface qui participe à la déflexion, k_B est la constante de Boltzmann et Θ_D est la température de Debye.

La densité de probabilité obtenue précédemment ne traite que d'une collision avec un seul atome, or nous avons vu que lors de la diffusion le projectile interagit avec un certain nombre d'atomes. Cette formulation est-elle encore valable dans ce cas ? Qualitativement, le fait que la distribution lognormale est de largeur indépendante de l'angle de déviation suggère que oui.

Cependant la convolution de deux lognormale n'est pas une lognormale. Nous nous contentons d'une description statistique. Le théorème de la limite centrale nous permet d'affirmer que la déviation moyenne totale est bien la somme des déviations moyennes individuelles et que la largeur totale est la racine carrée de la somme des carrés des largeurs individuelles. On a donc bien une distribution globale avec le même exposant.

3.4.3 Le local tilt

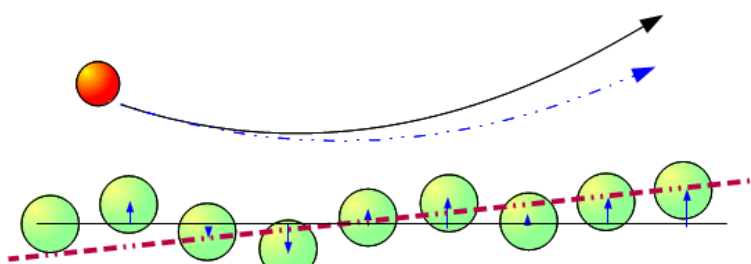


Fig 30: Pente locale apparente due aux déplacements thermiques des atomes

Comme nous l'avons vu dans la sous partie précédente : le projectile voit lors de la collision des atomes de la surface décalés par rapport à leur position d'équilibre, ce qui donne lieu à un élargissement lognormal du profil (voir eq (14)). Sur le plan expérimental, seule une petite partie du profil se trouve concentrée autour de l'angle spéculaire. Comment doit-on interpréter les angles hors spéculaire ? Plus précisément, supposons qu'une propriété Λ varie non linéairement avec l'angle d'incidence. Par exemple $\Lambda = \alpha \cdot \theta_{inc}^2$ au spéculaire, on peut dire que l'on sépare les deux branches symétriques que sont la voie d'entrée et de sortie $\Lambda = \frac{\alpha}{2} (\theta_{inc}^2 + \theta_{out}^2)$ puisque pour ce cas particulier on a : $\theta_{inc} = \theta_{out}$. Hors spéculaire doit-on dire comme l'intuition nous le suggère que l'on va obtenir $\Lambda' = \Lambda = \frac{\alpha}{2} (\theta_{inc}^2 + \theta_{out}^2)$? Les données de perte d'énergie suggèrent que non. L'accord à l'expérience est bien meilleur si l'on considère que la propriété est attaché à la demi-somme : $\theta_{eff} = \frac{\theta_{inc} + \theta_{sortie}}{2}$ comme si la surface était localement inclinée c'est ce qui est appelé « local tilt » par Jérôme Villette.

3.4 Profils de diffusion

Qualitativement cela revient à considérer qu'en « choisissant » N_{act} atomes particuliers de la surface, ces derniers présentent une pente locale donnée. En partant du modèle de Debye, cela revient à se poser la question de la distribution $z(x) = \alpha + \beta x$ de pente β et du décalage α qui existe au sein d'un ensemble de ces N_{act} oscillateurs harmoniques de variance en z $\sigma = \sqrt{\langle u_z^2 \rangle}$ régulièrement espacés d'une maille a , tels qu'avec $x=0$ pris au centre on a $x_i = a(i - \frac{N}{2})$.

Une régression linéaire à travers cet ensemble particulier nous donne la pente et le décalage. Plus intéressant, on peut chercher la variance de ces distributions en fonction de la variance des positions en z . En suivant l'analyse proposée dans Numerical Recipes [46] et en injectant une

expression de la somme des carrés des premiers entiers $\sum_1^n k^2 = \frac{n(n+1)(2n+1)}{6}$, on obtient :

$$\sigma_\alpha = \frac{\sigma}{\sqrt{N}} \quad \text{et} \quad \sigma_\beta = \frac{\frac{\sigma}{a}}{\sqrt{\frac{1}{6}(N^3 + \frac{3N^2}{2} + N)}}$$

C'est-à-dire que le déplacement effectif moyen de la rangée de N atomes est \sqrt{N} fois plus petit que celui d'un seul atome et que la distribution de pente est de l'ordre de :

$$\sigma_\beta \approx \frac{\frac{\sigma}{a}}{\sqrt{\left(\frac{N^3}{6}\right)}}$$

où σ/a est l'inclinaison typique d'une maille de la surface. Si on exprime maintenant N en fonction de l'angle en reprenant l'expression du nombre de sites effectifs (eq (13)) on a :

$$\sigma_\beta \approx \sigma \frac{\sqrt{(\Gamma^3 a \theta^3)}}{6} \quad \sigma_\beta \approx \frac{\sigma}{6a} \sqrt{(\Gamma^3 a^3 \theta^3)}$$

On ne retrouve pas la distribution lognormale car l'approche par régression linéaire est comme son nom l'indique linéaire. En revanche cette approche trouve une légère dépendance en θ .

4 Principes généraux de la diffraction des atomes rapides en incidence rasante

Après avoir introduit dans la partie précédente les grands principes de la diffusion atomique en incidence rasante, vue du point de vue de la mécanique classique, nous allons nous intéresser aux aspects quantiques en commençant par la diffraction. Ce phénomène est mis en évidence lorsqu'un faisceau d'atomes possédant une énergie de l'ordre du keV ainsi qu'une très faible divergence angulaire arrive en incidence rasante dans l'axe d'une direction cristallographique majeure de la surface le long de laquelle les atomes sont parfaitement alignés et forment des rangées. On peut alors voir des structures discrètes régulièrement espacées (Fig 31).

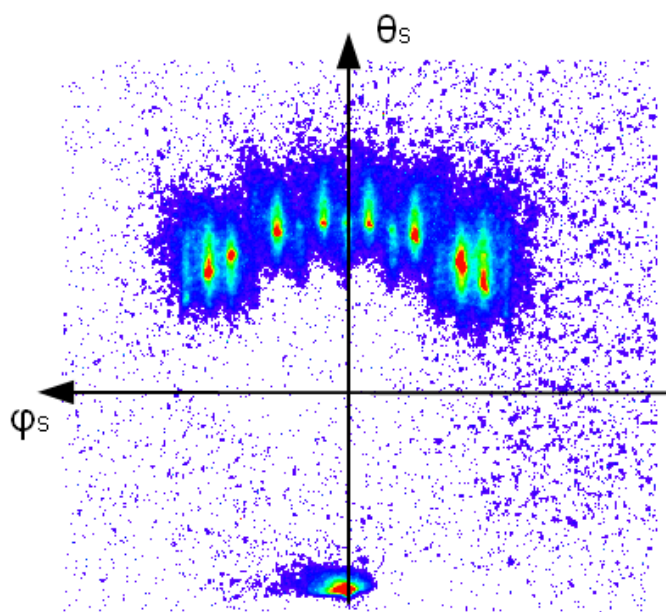


Image y10h67 07/07/10 He n 450 ev sur NaCl(100)

Fig 31: Cliché de diffraction obtenu sur NaCl(001) avec un faisceau d'hélium neutre de 450eV

Ces structures discrètes sont interprétées comme le résultat de la diffraction des atomes incidents par la périodicité du cristal. Dans une direction de canalisation, la surface présente des rangées d'atomes alignés. La surface s'apparente donc à un réseau périodique de sillons propice à une diffraction cohérente des atomes.

Ce comportement a de quoi surprendre. En effet, la longueur d'onde λ des atomes à cette

énergie est très petite devant le paramètre de maille des cristaux. Par exemple un atome d'hélium de 500 eV possède une longueur d'onde : $\lambda=0,65 \text{ pm}$, une valeur de trois ordres de grandeur plus petite que le paramètre de maille d'un cristal de NaCl qui est de 560 pm. Il est encore plus remarquable d'observer la diffraction si on considère le fait que les fluctuations thermiques de la position des atomes sont de l'ordre de 100 pm [47]. Ces déplacements par rapport à la position d'équilibre sont donc de deux ordres de grandeurs plus importants que la longueur d'onde et on s'attendrait à ce que la cohérence finale soit négligeable.

Dans cette partie, nous allons présenter les principes généraux de la diffraction atomique. Nous verrons dans un premier temps comment un motif de diffraction se construit. Dans une seconde partie nous nous intéresserons aux informations que permet d'obtenir l'étude de l'intensité des pics de diffraction. Enfin dans une dernière partie, nous aborderons les effets des vibrations thermiques sur la cohérence d'un profil de diffraction.

4.1 Construction d'un motif de diffraction

4.1.1 Interprétation de la position des pics de diffraction

Afin d'interpréter la répartition des pics de diffraction, nous pouvons utiliser le formalisme de Von Laue présenté en introduction. Comme pour le formalisme de Bragg, le formalisme de Von Laue a permis d'expliquer la diffraction des rayons X par les cristaux en considérant les interférences d'une onde et de relier le motif d'interférences observé au réseau cristallin. Dans notre cas, le faisceau est constitué d'atomes possédant une énergie cinétique E_0 de l'ordre du keV, et la longueur d'onde est donnée par la formule de DeBroglie non relativiste introduite précédemment. Les atomes du faisceau arrivent un par un sur le cristal et diffractent individuellement sur le réseau cristallin. Le motif de diffraction observé est donc le résultat statistique d'un grand nombre d'évènements cohérents de diffraction atomique par un même réseau périodique.

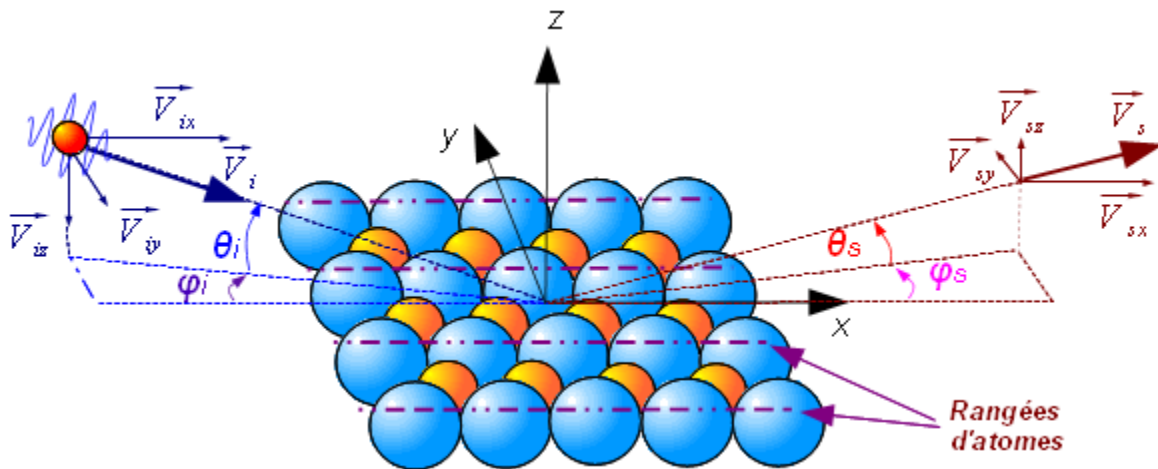


Fig 32: Géométrie de la diffraction le long des rangées d'atomes

Considérons un atome arrivant en incidence rasante avec une énergie E_0 sur un cristal avec un angle d'incidence θ_i et un angle azimutal φ_i par rapport à la direction de canalisation. Il est diffusé par la surface et repart avec les angles θ_s et φ_s . On se placera dans le repère direct (x, y, z) tel que l'axe des x correspond à l'axe de la direction de canalisation et axe des z est normal à la surface.

Une approche simple et permettant de comprendre le motif de diffraction consiste à se placer dans une approche semi classique où l'onde de matière associée au projectile est représentée par une

4.1 Construction d'un motif de diffraction

onde plane à laquelle on associe un vecteur d'onde incident $\vec{K}_i = \vec{K}_{ix} + \vec{K}_{iy} + \vec{K}_{iz}$ et un vecteur d'onde sortant $\vec{K}_s = \vec{K}_{sx} + \vec{K}_{sy} + \vec{K}_{sz}$ correspondant à l'onde diffusée. On se place dans le cas où le faisceau est parfaitement aligné le long de la direction cristallographique : $\varphi_i = 0$ et par conséquent, la composante du vecteur d'onde le long de l'axe « y » est nulle : $K_{iy} = 0$

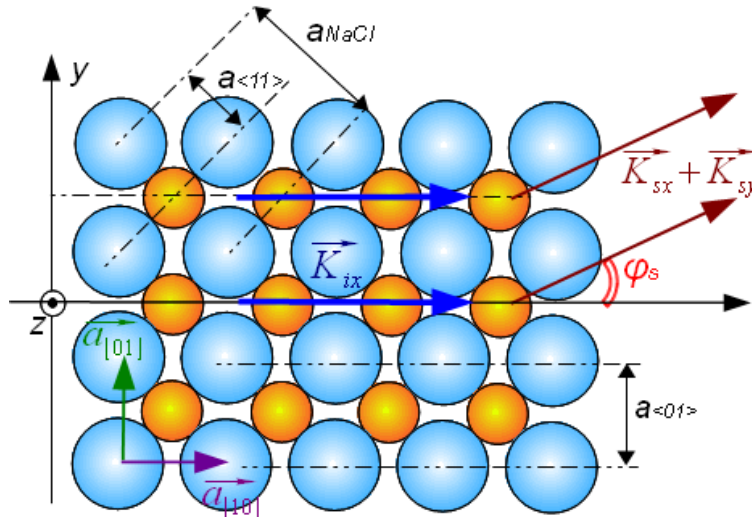


Fig 33: Vue de dessus d'une surface de type NaCl(001). Les vecteurs $a[01]$ et $a[10]$ forment la maille élémentaires de la surface dans le réseau réciproque. Le faisceau est orienté le long de la direction $[10]$ qui correspond à une direction de type $\langle 110 \rangle$ si on se réfère aux indices de Miller du volume du cristal. La surface présente des rangées d'atomes parfaitement alignés le long des directions parallèles et transverse à la direction de propagation ainsi que le long des directions $[11]$ et $[\bar{1}\bar{1}]$. Seule la diffraction due aux rangées parallèles à la direction de propagation est observée avec la diffraction atomique en incidence rasante.

Nous avons vu que les atomes rapides ne pénètrent pas dans le volume du cristal. Ils diffractent sur une surface cristalline : c'est-à-dire un cristal plan. Cette dernière s'apparente à un réseau d'atomes à deux dimensions que l'on décompose en un réseau périodique de rangées d'atomes (dans la direction y), elles-mêmes formées d'un arrangement périodique d'atomes (direction x). On observe des interférences constructives entre rangées successives à un angle de sortie donné si la différence de chemin parcouru par l'onde incidente lors de sa diffusion sur deux rangées successives correspond à un multiple entier de la longueur d'onde. L'élément diffractant est donc la rangée d'atomes.

En adoptant le formalisme de Von Laue, les précédentes considérations nous permettent de formuler qu'il y a interférences constructives pour les ondes vérifiant :

4.1 Construction d'un motif de diffraction

$$\vec{K}_s - \vec{K}_i = \vec{G} \quad (16)$$

où \vec{G} est une combinaison linéaire entière des vecteurs du réseau réciproque \vec{G}_1 et \vec{G}_2 associés respectivement aux périodicités le long de la direction de propagation (x) et le long de la direction transverse (y) tel que : $\|\vec{G}_i\| = 2\pi/a_i$ où a_i est la distance inter-rangées le long de la direction considérée.

$$\vec{G} = n_1 \vec{G}_1 + n_2 \vec{G}_2, \quad n_1, n_2 \in \mathbb{Z}$$

En incidence rasante, les atomes rapides sont sensibles à la périodicité du relief moyen des rangées d'atomes. Cette périodicité ne correspond pas nécessairement à la périodicité du réseau cristallin [1]. A titre d'illustration, prenons le cas de la surface de NaCl(001) : la périodicité des

rangées perçue par le faisceau dans la direction $\langle 01 \rangle$ est $a_{\langle 01 \rangle} = \frac{a_{NaCl}}{2\sqrt{2}}$. En revanche, le long de la direction $[11]$, deux rangées d'atomes successives présentent des reliefs moyens identiques bien que leurs arrangements atomiques propres montre un décalage d'un atome, la périodicité à considérer est donc : $a_{\langle 11 \rangle} = a_{NaCl}/2$.

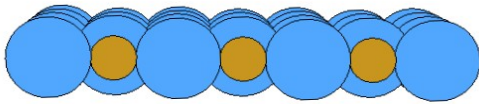


Fig 34: Rangées d'atomes dans la direction $\langle 11 \rangle$ vue par le faisceau

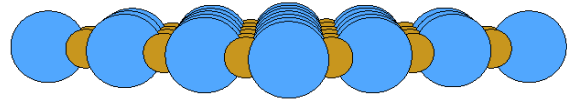


Fig 35: Rangées d'atomes dans la direction $\langle 10 \rangle$ vue par le faisceau.

Le vecteur du réseau réciproque \vec{G} étant dans le plan de la surface, la condition de Laue établie eq (16) nous donne donc :

$$\vec{K}_{sx} + \vec{K}_{sy} = \vec{K}_{ix} + \vec{G} \quad (17)$$

Par ailleurs, la conservation de l'énergie impose que l'on ait :

$$K_{ix}^2 + K_{iz}^2 = K_{sx}^2 + K_{sy}^2 + K_{sz}^2 \quad (18)$$

En posant $\vec{G} = \vec{G}_x + \vec{G}_y$ avec $\vec{G}_x = n_1 \vec{G}_1$ et $\vec{G}_y = n_2 \vec{G}_2$ et en combinant les deux précédentes équations (17) et (18) nous obtenons :

4.1 Construction d'un motif de diffraction

$$K_{sz}^2 = K_{iz}^2 - 2 \vec{K}_{ix} \cdot \vec{G}_x - G_x^2 - G_y^2 \quad (19)$$

Expérimentalement, nous n'observons avec les atomes rapides que des pics de diffraction correspondant à la diffraction par les rangées d'atomes parallèles à la direction de propagation du faisceau pour lesquels la composante G_x est nulle [1]. Cet aspect peut être expliqué par deux arguments :

- **Le premier est de nature énergétique.** La différence entre énergie normale de l'onde diffusée et celle de l'onde incidente est obtenue à partir de la relation (19) et s'écrit :

$$E_{ns} - E_{ni} = \frac{-\hbar^2}{2m} (2 \vec{K}_{ix} \cdot \vec{G}_x + G^2)$$

Si : $G_x \neq 0$ alors deux cas de figure se présentent.

- Dans le cas où $\vec{K}_{ix} \cdot \vec{G}_x > 0$, comme l'énergie cinétique du mouvement normale est de plusieurs ordres de grandeur supérieure à l'énergie normale et que $|\vec{K}_{ix}| \gg G$ et $|\vec{K}_{iz}| \sim G$ alors $E_{ns} < 0$. C'est-à-dire que l'onde perd plus d'énergie normale qu'elle n'en possède. Elle est donc évanescence.
- Dans le cas où on a : $\vec{K}_{ix} \cdot \vec{G} < 0$ alors comme $|\vec{K}_{ix} \cdot \vec{G}| \gg G^2$ on a : $E_{ns} - E_{ni} \gg 0$
L'onde sortante est défléchie à un angle très grand devant l'angle spéculaire. Pour illustrer cet aspect, considérons un atome d'hélium neutre de 500 eV arrivant avec un angle d'incidence de 1° sur un cristal de NaCl (001). Il possède des vecteurs d'onde :
 $K_{ix} = 9.8 \cdot 10^{12} m^{-1}$ et $K_{iz} = 1.7 \cdot 10^{11} m^{-1}$. Ces valeurs sont de plusieurs ordres de grandeurs supérieures au vecteur du réseau réciproque de NaCl :
 $\|\vec{G}\| = 2\pi/a = 1.14 \cdot 10^{10} m^{-1}$. Dans ce cas, le premier ordre de diffraction due à la périodicité le long de la direction de propagation se situe à l'angle $\theta_{\pi} \approx 3,7^\circ$.
Expérimentalement, les ordres de diffraction à grand angle n'ont pas été observés.

- **Le deuxième argument est directement lié à l'intensité de couplage**, autrement dit, à l'intensité des forces responsables de la déflexion.

Dans le cas de la déflexion transverse, l'atome incident subit lors de sa diffusion le long des rangées une suite de déflexions élémentaires $\vec{\delta}k_{yj}$ dues à chacun des N atomes de la

4.1 Construction d'un motif de diffraction

rangée qu'il avoisine le long de sa trajectoire. Ces déflexions élémentaires s'additionnent « de manière constructive » en ce sens où elles sont toutes de même signe, de sorte que la

déflexion totale est alors :
$$\Delta \vec{k}_y = \sum_j^N \delta \vec{k}_{yj} .$$

Il est donc possible d'obtenir une déflexion transverse de l'ordre de quelques \vec{G}_2 , et d'observer les ordres de diffraction correspondants. En revanche le long de l'axe x, les déviations élémentaires subies par le projectile au-dessus de chaque atome se compensent. Le projectile est freiné lorsqu'il s'approche d'un atome puis accéléré de la même quantité lorsqu'il s'éloigne. De ce fait, la somme de ces déflexions à l'issue de la trajectoire le long de l'axe est elle même quasi-nulle. La probabilité d'observer la diffraction due à la périodicité longitudinale est d'autant plus faible qu'elle est associée à un transfert important d'énergie normale et que le couplage est très faible.

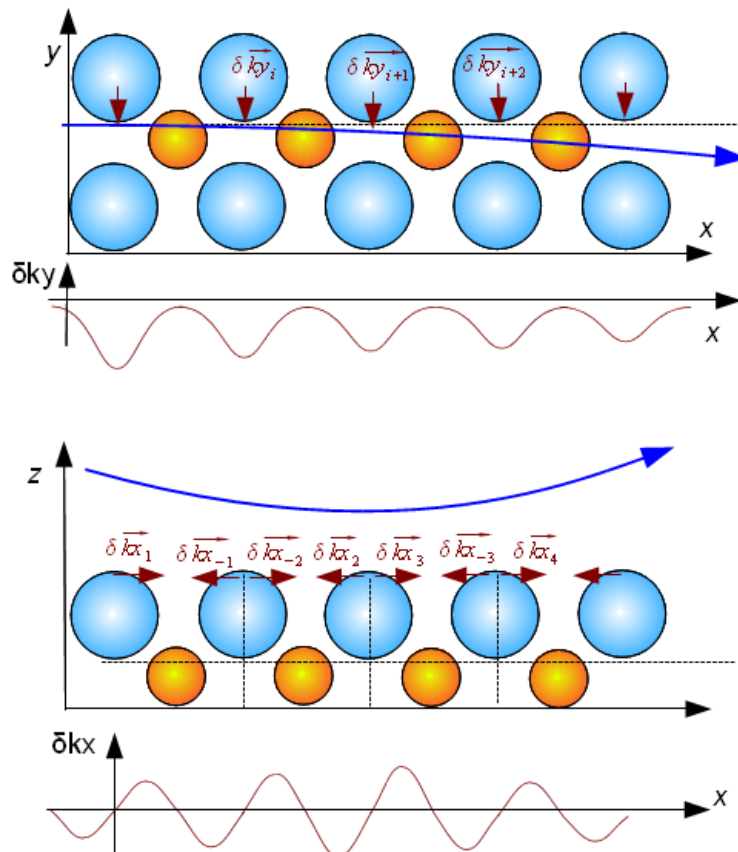


Fig 36: Transfert d'impulsion lors de la diffusion entre deux rangées

Par conséquent, les pics de diffraction observés sont le résultat de la diffraction des particules par les rangées parallèles au mouvement de propagation, et ils sont observés aux

4.1 Construction d'un motif de diffraction

positions angulaires pour lesquelles on a : $\vec{K}_s - \vec{K}_i = n_2 \vec{G}_2$ avec $n_2 \in \mathbb{Z}$.

En renommant a_2 et n_2 respectivement en : $a_{rangées}$ et n , l'équation (19) devient :

$$K_{sz}^2 + K_{sy}^2 = K_{iz}^2 \quad \text{avec} \quad K_{sy} = \frac{2\pi \cdot n}{a_{rangées}} \quad (20)$$

Cette expression présente la forme de l'équation d'un cercle : $(X - X_c)^2 + (Y - Y_c)^2 = R^2$ dont le rayon vaut $R = |K_{iz}| = |K_i \sin \theta_i|$ et dont le centre se situe aux coordonnées : $X_c = 0, Y_c = 0$. Ce cercle passe par le faisceau direct ($X_{direct} = 0, Y_{direct} = K_{iz}$) et par la position du spéculaire ($X_{direct} = 0, Y_{direct} = -K_{iz}$)

D'un point de vue énergétique, on obtient :

$$E_{sz} + E_{sy} = E_{ni} \quad \text{avec} \quad E_{sy} = n^2 \frac{h}{2m} \left(\frac{2\pi}{a_{rangée}} \right)^2$$

où E_{iz} et E_{sz} sont respectivement les énergies normales avant et après la diffusion.

Étant donné que le vecteur d'onde le long de l'axe (x) ne change pas lors de la diffusion, on a :

$$\theta_s = \arctan(K_{sz}/K_{ix}) \quad , \quad \varphi_s = \arctan(K_{sy}/K_{ix}) \quad \text{et} \quad \theta_i = \arctan(K_{iz}/K_{ix})$$

En insérant ces expressions dans l'équation (20) on obtient donc :

$$\tan(\theta_s)^2 + \tan(\varphi_s)^2 = \tan(\theta)^2$$

Dans l'approximation des petits angles, cette équation devient :

$$(\theta_s)^2 + (\varphi_s)^2 = (\theta_i)^2$$

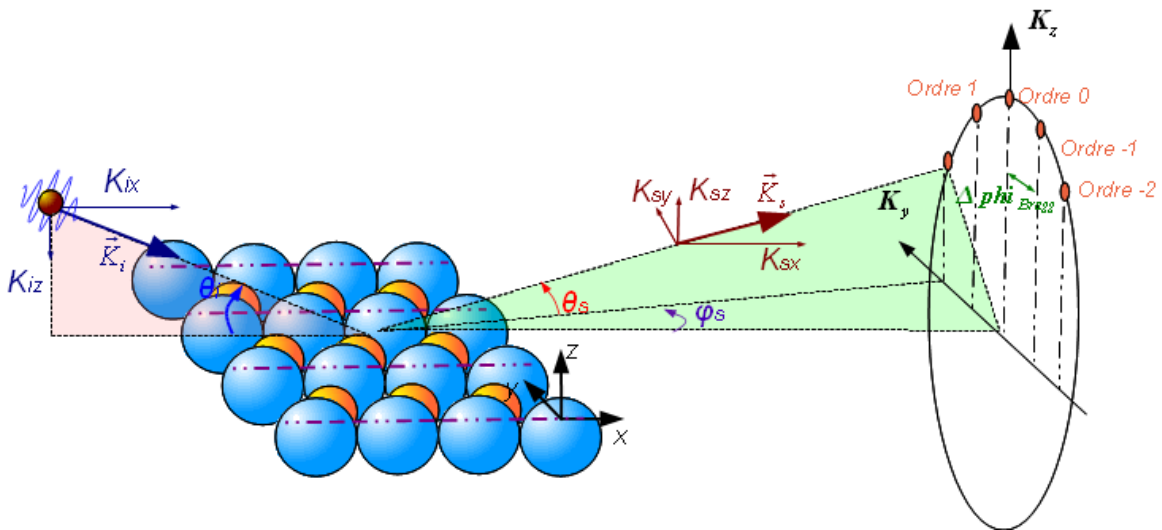


Fig 37: Faisceau atomique arrivant en incidence rasante sur une surface de type NaCl(100) le long de la direction (110). On observe des pics de diffraction positionnés à intervalle azimutal régulier sur un cercle passant par l'image du faisceau direct et par la position spéculaire

4.1 Construction d'un motif de diffraction

Pour résumer, on voit donc que dans l'espace de mesure (y,z) qui équivaut pour les petits angles à l'espace (θ, φ), les pics de diffraction décrivent un cercle, qui est le cercle de conservation de l'énergie, aussi nommé en RHEED : **cercle de Laue**. Les ordres de diffraction correspondent à des valeurs quantifiées du mouvement transverse paramétrées par l'entier n et par la période des rangées. Le mouvement longitudinal n'intervient qu'en tant que « mouvement de projection » dans l'espace transverse (x, z) à travers l'expression des angles d'entrée et de sortie de la diffusion. Son vecteur d'onde est inchangé lors de la diffusion et par conséquent on a $K_{ix} = K_{sx}$.

Dans l'espace (θ, φ), la position des ordres de diffraction sur ce cercle est paramétrée par la composante K_{sy} qui ne peut prendre que des valeurs discrètes multiples de $2\pi/a_{rangées}$.

Pour un ordre n donné on a :

$$\varphi_{s_n} = \arctan\left(\frac{K_{sy}}{K_{ix}}\right) = \arctan\left(\frac{n \cdot \lambda_{atome}}{a_{rangées} \cos(\theta_i)}\right)$$

En raison de l'incidence rasante, la précédente expression peut se simplifier et une expression simple de l'écart angulaire entre les ordres de diffractions est obtenue :

$$\Delta \phi_{Bragg} \approx \frac{\lambda_{atome}}{a_{rangées}}$$

Enfin, on retiendra aussi que le cercle de conservation de l'énergie passe nécessairement par le faisceau direct noté F sur la figure ci-dessous (Fig 38), et par le spéculaire, marqué S, qui correspond aux atomes n'ayant pas échangé de moment transverse lors de la diffusion. On note aussi la position du centre du cercle et l'équateur qui correspond physiquement au plan de la surface. Dans le cas où le faisceau est parfaitement aligné, les points S, C et F sont alignés sur un même axe.

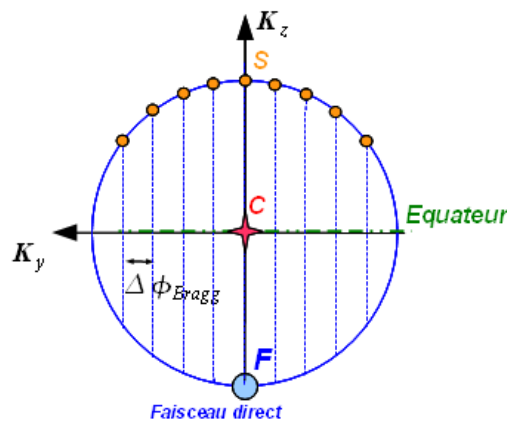


Fig 38: Cercle de conservation de l'énergie - points particuliers

- **Découplage entre le mouvement transverse et le mouvement longitudinal.**

Le fait que la diffraction d'atomes rapides ne peut pas avoir lieu le long de la direction longitudinale constitue une particularité importante de la diffraction d'atomes rapides car elle nous amène à considérer que **le mouvement transverse** (le long des directions x et y) **et le mouvement longitudinal** (le long de l'axe z) **sont découplés**. **La diffraction d'atomes rapides s'apparente donc à la diffraction d'une onde transverse transportée par un mouvement longitudinal rapide**. Cette onde diffracte sur le relief des rangées moyenné par le mouvement longitudinal rapide le long de la trajectoire. Cet aspect a une conséquence importante à laquelle nous nous intéresserons plus en détail ultérieurement : il n'est pas nécessaire que le mouvement longitudinal soit très cohérent pour observer la diffraction.

4.1.2 Nombre d'ordres de diffraction observés

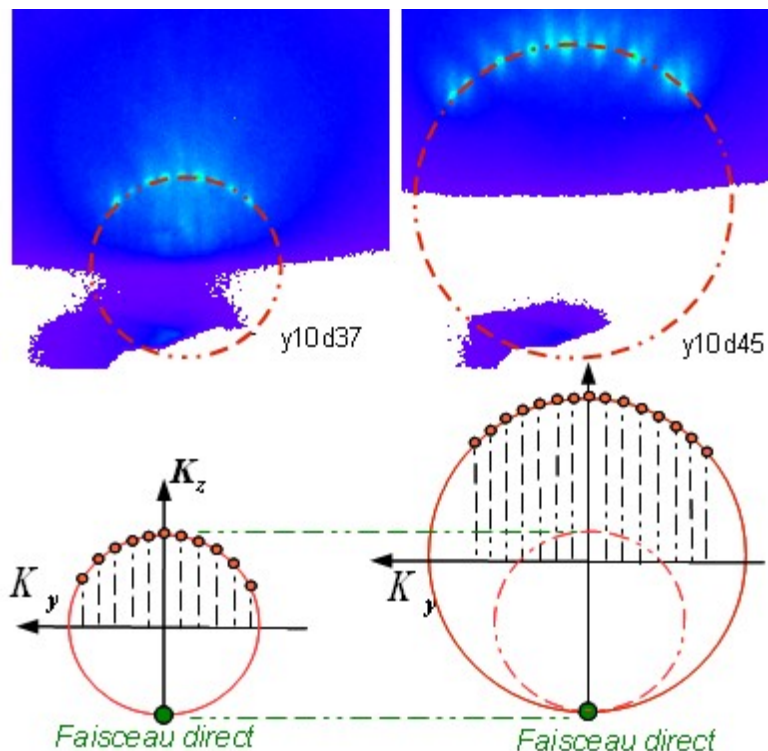


Fig 39: Clichés de diffraction pris sur une surface de $\text{CaF}_2(111)$ pour des mêmes conditions de faisceau mais deux angles d'incidence différents. Les nombres de d'ordres que l'on aperçoit sont de 11 pour l'image de gauche et de 15 pour celle de droite

Expérimentalement, on observe que les ordres de diffraction ne couvrent pas toute la

4.1 Construction d'un motif de diffraction

longueur de la moitié supérieure du cercle sur lesquels ils sont positionnés, et que leur nombre peut varier avec l'angle d'incidence et l'énergie.

Le nombre maximal d'ordres qui peut être observé sur un cliché de diffraction est limité par la taille du cercle de Laue (et donc par l'énergie normale) et par la taille de la projection du réseau réciproque fixée par l'énergie parallèle ($\Delta\phi_{Bragg} = G_y/k_{\parallel}$) ainsi que par la déflexion maximale transverse que peut subir l'onde-particule lors de sa diffusion. Cette dernière est directement liée au relief apparent de la «surface» au point de rebroussement du projectile décrit par la fonction «corrugation» ξ que nous avons introduite dans la partie traitant de la diffusion atomique (section 3.2.1). Comme nous l'avons vu précédemment, la corrugation ξ est une mesure directe du potentiel d'interaction entre le projectile et la surface. En effet pour les points de coordonnées $(x, y, \xi(E_n, x, y))$ l'énergie normale de la particule vaut exactement la valeur du potentiel (la vitesse normale étant nulle) $V(x, y, \xi(E_n, x, y)) = E_n$.

En incidence rasante, le potentiel est moyenné le long de la trajectoire par le mouvement longitudinal rapide. Le long des rangées d'atomes, sa forme s'apparente à celle d'une tôle ondulée, dont les maxima correspondent aux rebroussements sur les sommets des rangées d'atomes. Le potentiel est périodique le long de la direction transverse et invariant par translation le long de la direction longitudinale, La déflexion transverse maximale que peut subir une onde-corpuscule est obtenue lorsque celle-ci est diffusée par le flanc des sillons, où la pente est maximale (Fig 40).

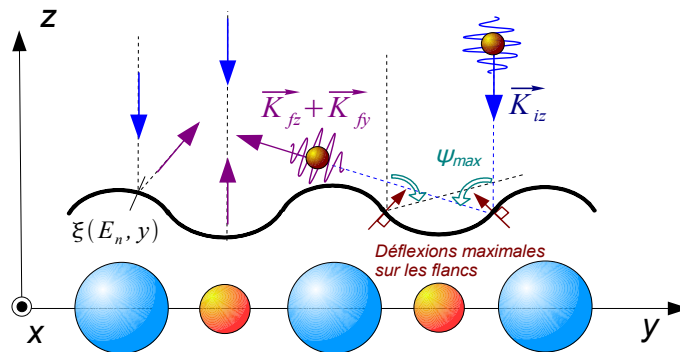


Fig 40: La déflexion maximale de l'onde transverse est obtenu sur la pente des sillons du potentiel moyen transverse de la surface

En notant ψ_{max} , l'angle entre la normale à la pente par rapport à la normale à la surface, on a :

$$\arctan\left(\frac{|K_{sy}|}{|K_{iz}|}\right) \leq \psi_{max}$$

4.1 Construction d'un motif de diffraction

L'ouverture angulaire du profil de diffraction possède la même limitation que le profil rainbow habituel $\Psi_{rainbow} = 2\psi_{max}$. Les ordres de diffraction qui peuvent être observés sont les ordres n qui vérifient :

$$\frac{|n| * 2\pi}{a_{rangées} * |K_{iz}|} \leq \psi_{max} \text{ avec } n \in \mathbb{Z} .$$

Le terme ψ_{max} dépend directement de la forme transverse du potentiel mesuré à l'énergie normale de la diffusion. Lorsqu'on augmente l'angle d'incidence, deux effets se produisent. D'une part, la composante normale du vecteur d'onde incident augmente, et avec elle le rayon du cercle de conservation de l'énergie sur lesquels sont positionnés les pics de diffraction. D'autre part, l'énergie normale augmentant, le projectile s'approche davantage de la surface et la forme du potentiel qu'il sonde peut changer. C'est l'action combinée de ces deux effets qui fixe le nombre d'ordres que nous pouvons observer.

4.1.3 Déformation du profil avec dés-alignement du faisceau

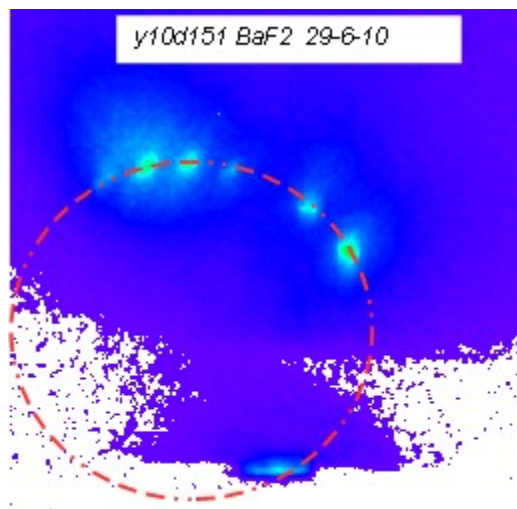


Fig 41: Cliché d'un faisceau légèrement désaligné par rapport aux rangées cristallographiques

La diffraction des atomes rapides est très sensible aux fines variations de l'angle azimutal. Un léger dés-alignement de $0,1^\circ$ suffit à déformer le motif de diffusion obtenu. On observe alors un profil plus ou moins penché, avec des spots de diffraction qui ne sont plus positionnés de manière symétrique sur le cercle passant par l'image du faisceau direct et la position spéculaire. En revanche l'espacement entre les spots reste constant et la position de l'ordre 0, c'est-à-dire la position de

4.1 Construction d'un motif de diffraction

l'angle spéculaire reste fixe [48].

La forme de ces motifs peut être comprise en reprenant le travail précédent et en se plaçant dans le cas plus général où l'alignement du projectile avec la direction de canalisation n'est pas parfait [49]. Dans ce cas, la composante du vecteur d'onde incident K_{iy} n'est plus nulle et vaut :

$$K_{iy} = K_i \cos(\theta_i) \sin(\varphi_i) \neq 0$$

$$\text{On a donc } K_{sz}^2 = K_{iz}^2 - 2 K_{iy} G_y - G_y^2 \text{ avec } G_y = n \frac{2\pi}{a_{rangées}}$$

Cette équation peut alors se mettre sous la forme :

$$K_{sz}^2 + \left(\frac{2\pi n}{a_{rangées}} + K_{iy} \right)^2 = K_{iz}^2 + K_{iy}^2 \quad (21)$$

Il s'agit toujours de l'équation d'un cercle : $(X - X_c)^2 + (Y - Y_c)^2 = R^2$ passant par le faisceau direct et par le spéculaire mais son centre n'est plus situé à l'origine, il est déplacé d'une quantité $-K_{iy}$. Cependant pour une même énergie normale incidente, le rayon du cercle obtenu est plus grand que celle du cas où le faisceau est parfaitement aligné et son rayon est $R = \sqrt{K_{iy}^2 + K_{iz}^2}$

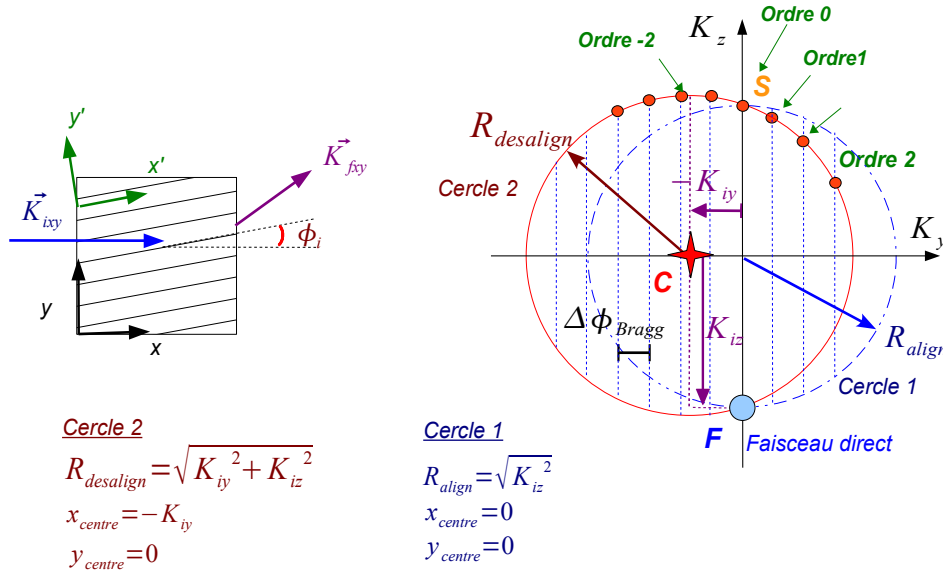


Fig 42: Construction du profil de diffraction lorsque le faisceau est légèrement désaligné. Le vecteur d'onde possède alors une composante transverse le long de la direction (y).

4.2 Interprétation de l'intensité des pics de diffraction

Nous avons vu dans la section précédente comment nous interprétons la position des pics de diffraction à partir de la configuration géométrique du faisceau par rapport à la surface. En regardant une projection des intensités des spots, on constate que l'intensité n'est pas équitablement distribuée entre les pics de diffraction : certains ordres sont complètement éteints alors qu'au contraire d'autres présentent des maxima d'intensités. Lorsqu'on se focalise sur un ordre donné (hors lobes) et qu'on change l'angle d'incidence, on observe une évolution de son intensité avec une succession de minima et de maxima.

Ce comportement est aussi observé pour la diffraction d'atomes thermiques. Il est directement lié à la forme du potentiel entre la surface et la particule diffusée, c'est-à-dire à la forme apparente de la surface. Il a été sujet à de nombreuses études théoriques dont l'objectif fut de développer un modèle permettant une analyse rapide de la distribution d'intensité afin de rendre possible des mesures précises du potentiel avec cette technique[17][50][51][36]. La diffraction atomique de haute énergie présente des similitudes avec la diffusion d'atomes thermiques, notamment en ce qui concerne la gamme d'énergie normale d'approche des projectiles. Pour GIFAD, celle-ci est comprise entre une dizaine de meV et peut aller jusqu'à l'eV. Dans le cas des expériences TEAS, celles-ci vont du meV à la centaine de meV. Une des pistes que l'on peut suivre pour comprendre la distribution des intensités des pics de diffraction consiste donc à se référer aux outils théoriques développés pour la diffusion d'atomes thermiques.

Dans le cas de la diffraction atomique de haute énergie, nous avons vu que le mouvement longitudinal n'intervient pas dans la diffraction. Le mouvement longitudinal et le mouvement normal peuvent être considérés comme découplés et la diffraction peut être perçue comme le résultat de la diffusion d'une onde plane transverse transportée par un mouvement longitudinal rapide le long des rangées d'atomes.

4.2.1 Modèle du « Hard Corrugated Wall » :

Dans le cas de la diffraction d'atomes rapides, le potentiel entre la surface et la particule incidente est moyenné le long de la direction de propagation. Nous pouvons alors expliquer qualitativement la variation angulaire de l'intensité des pics par un modèle semi-classique à une

dimension, en considérant la forme transverse du potentiel moyen le long de la trajectoire.

Une approche simple et présentant de bons résultats consiste à considérer que le potentiel entre la particule incidente et la surface est de la forme :

- $V(y, z) = 0$ pour $z > \xi(E_n, y)$
- $V(y, z) = \infty$ pour $z < \xi(E_n, y)$

La surface cristalline s'apparente alors à un mur dur de potentiel infini sur lequel les particules incidentes sont retro-diffusées et dont la silhouette est donnée par la fonction « corrugation ». Ce modèle très utilisé en diffusion d'hélium thermique est appelé « Hard Corrugated Wall Model »[52] [39]. Par la suite dans le cadre de ce modèle, nous désignerons à travers l'expression « corrugation » la forme $Z(y)$ de ce potentiel infini.

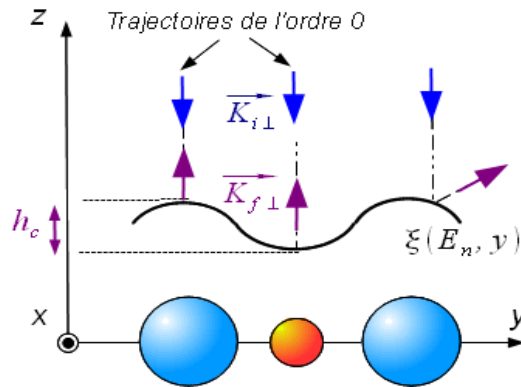


Fig 43: interférences entre les trajectoires de l'ordre 0

Pour simplifier, nous considérons le cas de l'ordre zéro, c'est à dire les atomes n'ayant pas échangé de moment transverse latéral avec la surface. Si on regarde d'un point de vue purement corpusculaire, les atomes de l'ordre 0 ont rebondi sur une région où la « corrugation » présente une « pente » nulle. Ils ont donc soit rebondi sur le sommet d'une rangée d'atomes soit dans le creux de « corrugation » situé entre deux rangées. Si on considère maintenant l'onde de matière associée à l'atome d'un point de vue semi-classique, la probabilité d'observer l'atome incident à la position de l'ordre 0 dépend de la différence de phase relative $\Delta\varphi$ entre la partie de l'onde qui se réfléchit sur les sommets et de celle qui se réfléchit au fond du creux de « corrugation ». Celle ci sera maximale lorsque les deux ondes réfléchies interfèrent de manière constructive. Cette condition peut se formuler ainsi :

$$\Delta\varphi = K_{i\perp} \cdot \delta_l = 2\pi l \text{ avec } l \in \mathbb{Z} .$$

où $K_{i\perp}$ est la composante normale à la surface du vecteur d'onde incident défini par

4.2 Interprétation de l'intensité des pics de diffraction

$K_{i\perp} = K_i \sin(\theta_i)$ et δ_l est la différence de marche.

Cette différence de marche vaut : $\delta_l = 2h_c$ où h_c est la différence d'altitude entre les creux et les sommets de la « corrugation ».

Par ailleurs, on peut définir une longueur d'onde associée au mouvement normal et définie par :

$$\lambda_{\perp} = \frac{2\pi}{|K_{i\perp}|} \quad \text{ou encore} \quad \lambda_{\perp} = \frac{2\pi}{\sqrt{2mE_0 \sin^2(\theta_i)}} \quad (22)$$

La relation décrivant le cas pour lequel nous observons des interférences constructives à l'ordre 0 peut être posée sous la forme :

$$4\pi \frac{h_c}{\lambda_{\perp}} = 2\pi l \quad \text{avec} \quad l \in \mathbb{Z}$$

$$\text{ou encore :} \quad l\lambda_{\perp} = 2h_c .$$

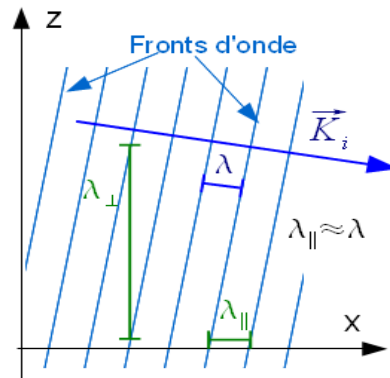


Fig 44: représentation de la longueur d'onde normale pour une onde plane arrivant avec un angle de 10° par rapport à la surface.

Les interférences constructives sont obtenues lorsque la longueur d'onde normale est un multiple du double de la différence d'altitude entre les sommets et les creux de la « corrugation du potentiel ». Les interférences destructives sont en revanche obtenues lorsque la différence de phase équivaut à un multiple entier impair de π , c'est-à-dire pour les longueurs d'ondes vérifiant :

$$(2l+1)\lambda_{\perp} = 4h_c$$

Dans le cas où la « corrugation du potentiel » change très peu avec l'énergie normale de la particule incidente, nous pouvons voir de part l'expression de la longueur d'onde normale (eq (22)) que pour les angles rasants, la différence de phase varie linéairement avec l'angle d'incidence, et l'intensité de l'ordre 0 oscille de manière régulière avec l'augmentation ou la diminution de celui-ci. Dans le cas général, la « corrugation du potentiel » dépend de l'énergie normale et sa forme peut changer avec l'angle d'incidence. Lorsqu'on augmente celui-ci, la particule possède une énergie

4.2 Interprétation de l'intensité des pics de diffraction

normale plus élevée qui lui permet de s'approcher d'avantage de la surface. Comme pour la raideur d'un ressort en mécanique classique, on parle de « **raideur du potentiel** » pour désigner la variation du potentiel au fur et à mesure que la particule peut s'approcher de la surface. Si on considère un potentiel exponentiel de la forme : $V(z) = V_0 e^{-\Gamma z}$ [53], la raideur du potentiel Γ dépend de la densité électronique locale et des différences peuvent apparaître entre le sommet des rangées d'atomes et le creux de potentiel entre deux rangées [54].

Le même raisonnement peut être appliqué pour les ordres supérieurs en considérant qu'un ordre n est le résultat de trajectoires ayant été diffusées par des régions de la « corrugation » de pente identique donnant lieu à une même défection transverse tel que transfert de moment vaut :

$$K_{sy} = \frac{n \cdot 2 \pi}{a_{rangées}}$$

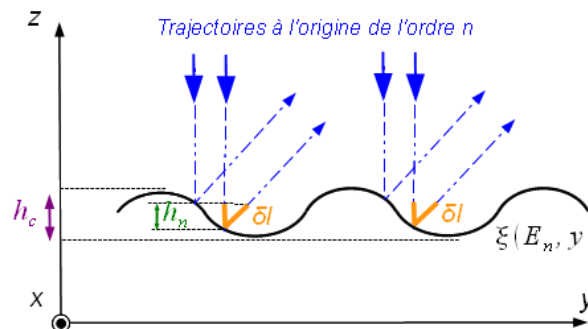


Fig 45: Trajectoire à l'origine de l'ordre n

L'étude de la répartition d'intensité entre les différents ordres peut nous fournir des indications pour tracer la « silhouette » du potentiel sur lequel la particule est diffusée, à une énergie normale donnée. La précision sur sa forme est limitée, d'une part, par le nombre d'ordres de diffraction présent sur le motif qui sont autant de points de mesures du potentiel. D'autre part, elle est limitée par la longueur d'onde normale du projectile : plus celle-ci sera petite, plus la particule pourra sonder de fines variations du potentiel

4.2.2 Diffraction par un mur dur de forme sinusoïdale :

La recherche de la forme du potentiel à partir de l'étude de l'intensité d'un nombre limité d'ordres de diffraction n'a de sens que lorsqu'on recherche une forme simple. Un modèle simple consiste à représenter le contour du potentiel transverse moyen à l'aide d'une fonction sinusoïdale dont la période est la distance inter-rangée. La diffraction d'un atome sur une telle tôle ondulée a été

4.2 Interprétation de l'intensité des pics de diffraction

étudiée pour la diffusion d'atomes thermiques par I. Masel et P. Merrill [55], et ce modèle a été utilisé par la suite lors de nombreuses études expérimentales [56].

Il a été montré que dans le cas où la « corrugation du potentiel » est de la forme :

$$\xi(y) = h_c a_{rangées} \cos\left(2\pi \frac{y}{a_{rangées}}\right) \quad \text{où } h_c \text{ est l'amplitude de la fonction corrugation (différence}$$

d'altitude entre le sommet des rangées d'atomes et le creux de potentiel) et $a_{rangées}$ la distance entre les rangées, alors l'amplitude de diffusion de l'ordre n est une fonction de Bessel d'ordre $m, m \in \mathbb{N}$ tel que $m = |n|$:

$$A(G_y) = J_m(x) \quad \text{avec : } x = 4\pi \frac{h_c}{\lambda_{\perp}} \quad \text{et } m = |n|$$

et la probabilité de mesurer la particule à d'ordre n est donc : $P_n = J_m^2(x)$ avec : $\sum P_n = 1$

Patrick Rousseau a comparé durant sa thèse les mesures réalisées sur des surfaces de NaCl(100) et LiF (100) pour des faisceaux de dihydrogène et d'hélium neutre avec le modèle d'un potentiel sinusoïdal. Pour ces systèmes, les résultats sont bien reproduits avec ce modèle simple dans le cas des directions de type $\langle 001 \rangle$. Cet accord est moins bon pour les directions $\langle 011 \rangle$. En revanche un bon accord est obtenu si on ajoute au potentiel une deuxième composante sinusoïdale de période deux fois plus courte. Cet ajout est motivé par la nécessité de renforcer la prise en compte de la densité électronique des ions Na^+ situés entre les rangées, auxquels le projectile semble être sensible aux grands angles d'incidence.

Ces résultats ont été comparés avec des simulations réalisés par A.G Borisov pour la propagation de paquets d'onde représentant des atomes d'hélium sur des surfaces de NaCl(100) et LiF(100) dont le potentiel est décrit par la méthode Hartree-Fock. Les résultats expérimentaux, là encore, montrent un bon accord avec les résultats des simulations [57][1].

De manière générale, on peut toujours représenter la forme du potentiel $Z(y)$ par un

développement de Fourier :
$$z(y) = \xi(y) = \sum_{i=0}^N h_i \cos\left(\frac{2\pi}{a_{rangées}} i y\right)$$

et l'amplitude de diffusion d'un ordre n peut alors être calculé dans le cadre du modèle du « Hard Corrugated Wall » à partir de la formule générale intégrale :

$$A(G_y) = \frac{1}{a_{rangées}} \int_0^{a_{rangées}} dy e^{-i G_y y} e^{-i k_{iz} + k_{sz} \xi(y)} \quad [49]$$

4.3 Cas particuliers

4.3.1 Direction random

Nous nous sommes intéressés jusqu'à présent au cas où le faisceau est aligné le long d'une direction de canalisation. Qu'advient-il dans le cas où le faisceau est orienté dans une direction aléatoire ? Lorsqu'on observe la diffraction dans une direction de canalisation et qu'on change l'orientation du faisceau de manière à se trouver dans une direction aléatoire, nous observons un cliché de diffusion présentant une tache unique. La seule caractéristique qui « signe » le régime de diffraction est la très faible ouverture azimutale. Le profil est alors beaucoup plus étroit que ceux obtenus lorsque la diffraction n'est pas observée et que la diffusion est « purement classique ». Ce profil peut être compris si on considère que dans une direction random, la surface décrite par le potentiel moyen est plane. L'atome incident, ne peut donc pas échanger de mouvement transverse G_y avec la surface, et par conséquent seul l'ordre 0 est observé. En absence de corrugation de potentiel, l'intensité de cet ordre n'oscille pas avec l'augmentation de l'énergie normale, et on observe seulement une diminution d'intensité due aux effets décohérents comme l'agitation thermique des atomes.

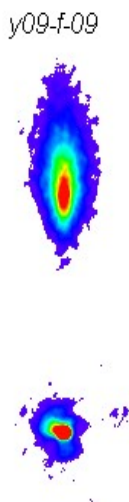


Fig 46: Cliché de diffraction obtenu le long d'une direction aléatoire sur une surface de $\text{CaF}_2(111)$ avec un faisceau d'hélium neutre de 500 eV

4.3.2 Lobes du profil rainbow classique

Nous avons vu précédemment que les lobes du profil « rainbow » apparaissant aux extrêmes de l'ouverture azimutale du profil correspondent aux trajectoires d'atomes ayant subis une déflexion maximale transverse due au flanc des rangées d'atomes. Si sur un même flanc de rangée, il existe une seule région où la pente est maximale alors par conséquent, le lobe est le résultat d'un seul type de trajectoire. Dans le cas où la diffraction est observée, les ordres positionnés au niveau de ce lobe présentent alors toujours un maximum d'intensité quelque soit l'angle d'incidence, une même trajectoire étant toujours en phase avec elle même.

4.3.3 « Supernumerary Rainbows »

En revenant à un potentiel de type cosinus, nous avons vu que l'intensité est décrite par une fonction de Bessel. Ces fonctions ont un caractère oscillant qui explique que les intensités de deux ordres voisins varient plus ou moins vite, produisant ce que le groupe de Helmut Winter de l'université Humbolt de Berlin appelle des « supernumerary rainbow ». Ce dernier a montré que lorsque la cohérence ne permet pas d'observer des interférences entre des rangées successives, il est cependant possible d'observer encore la diffraction entre les trajectoires issues d'une même rangée. Ces interférences seraient à l'origine de la structuration des profils « rainbows » (en anglais : « supernumerary rainbow ») observées en diffusion atomique de haute énergie [58]. Ce phénomène tire son nom de l'analogie faite de ce phénomène avec les « arcs-en-ciel surnuméraires » qui peuvent être observés lors d'un jour de pluie. Une étude détaillée a été réalisée dans le cadre de sa thèse de doctorat par A.Schüller (Humbolt Universität)[59].

Ce phénomène peut être compris dans le cadre modèle du Hard-Wall, en ne considérant plus que l'interférence d'une onde normale par le relief d'une même rangée. Dans ce cas, les angles azimutaux de sortie ne vérifient plus les conditions d'interférences constructives entre les rangées établies dans la partie « **Construction du motif de diffraction** ». En revanche, les ondes de matières diffractent encore de manière cohérente sur le relief du potentiel entre les rangées et la probabilité d'être diffusé au couple d'angles de sorties (θ_s, φ_s) dépend de la différence de phase entre les trajectoires sortant à ces angles comme nous l'avons vu dans la partie « Hard Corrugated Wall ».

4.3 Cas particuliers

Les conditions de cohérence étant moins restrictives que pour la diffraction entre plusieurs rangées d'atomes, il est possible d'observer la diffraction au sein d'une même rangée pour des systèmes présentant une longueur d'onde plus petite, c'est-à-dire soit à de plus haute énergie soit avec des espèces chimiques de masse plus importante, comme le Néon([60][61][62]).

Dans l'ensemble des travaux présentés dans ce manuscrit, nous nous intéresserons uniquement à la diffraction entre plusieurs rangées.

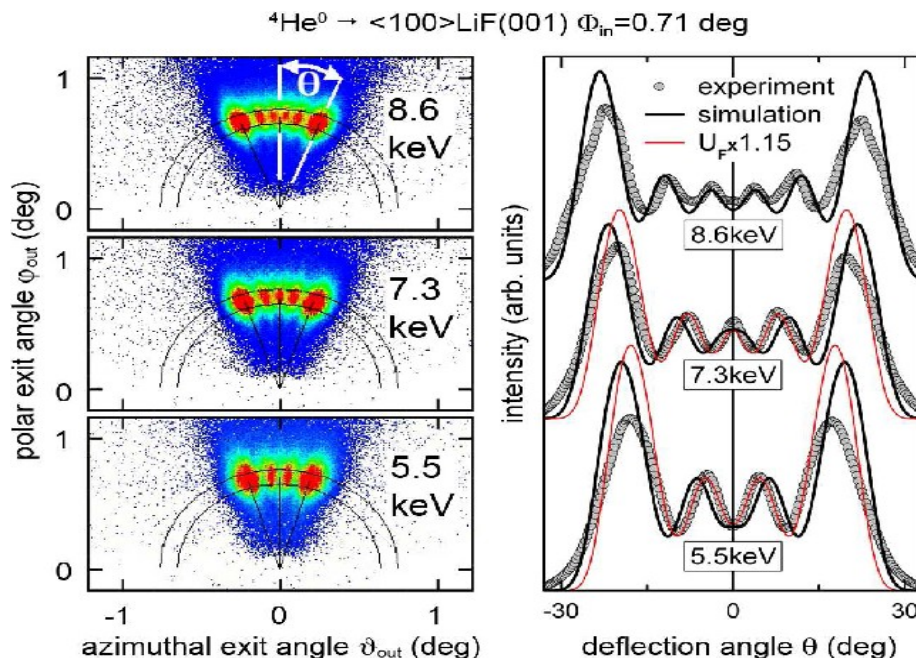


Fig 47: Figure issue de la publication de A. Schüller et H. Winter traitant des "supernumerary rainbows" en diffusion atomique de haute énergie. Des profils de diffusion obtenus pour des faisceau d'hélium neutre à différentes énergies sont présentées.

4.4 Cohérence

Pour que la diffraction puisse être observée, il faut que les diffractions individuelles des atomes entre des rangées voisines donnent des résultats identiques, c'est-à-dire que les interférences constructives aient lieu pour les mêmes combinaisons d'angles de sorties. En d'autres termes, il faut que la diffusion des atomes par deux rangées voisines soit cohérente. L'image que nous obtenons sur notre détecteur est la superposition incohérente de tous les interférogrammes dont la dispersion d'énergie et d'angle brouille progressivement le signal.

Dans le cas de la diffraction d'atomes rapides, un des premiers facteurs de décohérence à prendre en compte est la dispersion entre les atomes du faisceau tant au niveau de leur énergie que de leur direction de propagation. Expérimentalement, nous cherchons donc à obtenir un faisceau mono-cinétique bien collimaté présentant une divergence angulaire faible. Cette dernière peut être obtenue en faisant passer le faisceau à travers une série de petits diaphragmes (voir section 5.2.5)

La perte de cohérence peut avoir lieu aussi lors de l'interaction des projectiles avec la surface et peut être notamment causé par les vibrations thermiques.

4.5 Effets de la température

Pour établir la condition de diffraction, nous nous sommes placés dans le cas idéal d'une surface dont les atomes sont situés parfaitement et statiquement sur les sites du réseau cristallographique. En réalité, les atomes de la surfaces vibrent autour de leur position d'équilibre de part l'agitation thermique (y compris l'énergie de point zéro). Le déplacement des atomes se fait dans les trois directions de l'espace autour de leur position d'équilibre et l'agitation thermique provoque donc un perte de cohérence et une diminution de la fraction cohérente de l'intensité. En diffraction d'hélium thermique, la décohérence induite par l'agitation thermique est telle que l'énergie d'approche de 100 meV est considérée l'énergie maximale pour laquelle il est encore possible d'observer un cliché de diffraction cohérent.

Une manière courante d'évaluer l'influence des vibrations thermiques en diffraction de neutrons et diffraction X consiste à se placer dans la cadre de l'approximation de la surface gelée : les atomes de la surfaces ne bougent pas lors de la collision mais sont déplacés aléatoirement de

4.5 Effets de la température

leur position d'équilibre. L'impact sur chacun de ces atomes hors de leurs positions d'équilibre conduit donc à un déphasage et introduit donc de la décohérence dans le profil de diffraction. L'application de cette approximation dans le cas des atomes rapides peut se justifier par le fait que le temps de collision est très petit par rapport à la période des phonons.

Dans ce cas, la variation d'intensité de la fraction cohérente est décrite par le facteur de Debye-Waller qui a une forme analytique simple dans le cas où on considère des vibrations harmoniques comme dans le modèle de Debye. En considérant que chaque diffusion individuelle des atomes du faisceau a lieu sur un seul atome de la surface (comme ça peut être le cas en TEAS à grand angle). Le rapport d'intensité est donné :

$$\frac{I}{I_0} = \exp(-2W) \quad (23)$$

avec I l'intensité du pic de diffraction mesurée à une température, T et I_0 l'intensité pour un réseau statique[63]. L'exposant de Debye-Waller est défini par :

$$W = \frac{1}{2} \langle (\Delta \vec{k} \cdot \vec{u})^2 \rangle \quad (24)$$

avec $\Delta \vec{k}$ la variation du vecteur d'onde et \vec{u} la déplacement de l'atome de la surface.

Le déplacement quadratique peut se faire dans les trois directions de l'espace : u_x, u_y, u_z . Des simulations réalisées par D.Danailov & al [44] ont montré que pour des atomes d'hélium possédant une énergie de l'ordre du keV et diffusant en incidence rasante sur des surfaces, seul le déplacement thermique normal des atomes de la surface a une influence sur la diffusion. À partir de l'équation (24), nous pouvons donc exprimer l'exposant de Debye-Waller en fonction de $\Delta \vec{k}_z$ et du déplacement quadratique moyen des atomes $\langle u_z^2 \rangle$ [64]. Le facteur de Debye-Waller devient alors :

$$W = \frac{1}{2} \Delta k_z^2 \langle u_z^2 \rangle \quad (25)$$

Cette formulation du facteur de Debye est aussi utilisée en diffraction d'atomes thermiques bien que la période d'interaction avec la surface soit longue et qu'on ne puisse plus considérer que les atomes de la surface ne bougent pas durant la collision [18].

Dans le cas de GIFAD, la interaction ne se fait pas avec un seul atome de la surface, le projectile interagit successivement avec les d'atomes constituant la rangée. La trajectoire peut être perçue comme une série de N_{eff} collisions successives de déflexions élémentaires équivalentes

4.5 Effets de la température

$$\delta k_z \text{ tel que : } \delta k_z = \frac{\Delta k_z}{N_{eff}} .$$

Le déphasage total à la l'issue de la collision est le résultat d'une suite de déphasages individuels qui s'additionnent et le facteur de Debye est alors :

$$W = \frac{1}{2} N_{eff} \delta k_z^2 \langle u_z^2 \rangle = \frac{1}{2} \frac{\Delta k_z^2 \langle u_z^2 \rangle}{N_{eff}}$$

D'autre part au spéculaire on a : $\Delta k_z = 2k_n$ où k_n est le vecteur normal incident. L'équation donnant l'évolution du rapport entre l'intensité diffractée et l'intensité totale devient :

$$\frac{I}{I_0} = \exp\left(-4 \frac{k_n^2}{N_{eff}} \langle u_z^2 \rangle\right) \quad (26)$$

Le modèle de Debye donne une expression quadratique moyen vertical d'un atome de masse m_s pour une température donnée T. Dans la limite haute température celle-ci est donnée par la relation [15][65] :

$$\langle u_z^2 \rangle = \frac{3 \hbar^2 T}{m_s k_B \Theta_D^2} \quad (27)$$

avec k_B la constante de Boltzmann et Θ_D la température de Debye de la surface qui caractérise les modes de vibrations de la surface. Remarquons que cette expression ne tient pas compte du puits de potentiel attractif qui peut être ressenti à l'approche de la surface. Lorsque celui-ci n'est plus négligeable il faut tenir compte de la "correction de Beeby " [66][67]. Pour les systèmes étudiés avec l'hélium dans le cadre de ce manuscrit, cette composante attractive est négligeable et nous pourrons nous en tenir à l'expression précédente.

Pour évaluer le nombre de site effectif, nous reprenons l'expression obtenue dans la partie "Diffusion atomique" avec un potentiel exponentiel de la forme $V(z) = V_0 \exp(-\Gamma z)$. Le nombre de sites effectifs $N_{eff} = \frac{6}{\Gamma a \theta}$ avec θ l'angle d'incidence, a la distance entre les atomes de la surface le long de la direction de propagation et Γ la raideur du potentiel au point de rebroussement. En rentrant l'expression du nombre de sites et du vecteur d'onde normal:

$$k_z^2 \approx k_0^2 \theta^2 = \frac{(2 M_p E_0)}{\hbar^2} \theta^2$$

au sein de l'équation (26), on obtient :

$$\frac{I}{I_0} = \exp\left(-\alpha M_p E_0 \theta^3 \langle u_z^2 \rangle\right) \quad (28)$$

4.5 Effets de la température

avec $\alpha = \frac{4 \Gamma a}{3 \hbar^2}$ et où E_0 est l'énergie cinétique totale de la particule incidente [68].

Nous voyons donc à partir de la formulation générale $W = \frac{1}{2} \Delta k_z^2 \langle u_z^2 \rangle$ et à partir de la précédente expression de que les vibrations thermiques atténuent le signal cohérent lorsque la température augmente et lorsqu'à température constante, on augmente l'énergie normale.

4.5 Effets de la température

5 Le dispositif expérimental

5.1 *Introduction : développement d'un dispositif expérimental*

La diffraction des atomes rapides a été observée pour la première fois en 2003 lors de l'étude de l'interaction de proton avec NaCl dans le cadre des travaux de thèse de Patrick Rousseau sur les différents processus de neutralisation (Capture Auger, double capture etc.). Un point singulier avait poussé à effectuer un test avec des atomes d'hydrogène sur cette surface de NaCl(100). Hors du champ principal d'investigation, les résultats étranges ont été laissés de côté pour vérification. Ce n'est qu'un an plus tard que ces résultats ont été repris et analysés en permettant au programme d'analyse de créer des images à plus haute résolution. Le dispositif expérimental sur lequel a été mise en évidence la diffraction a été conçu afin d'étudier les interactions des ions multichargés arrivant en incidence avec des surfaces cristallines. Il était constitué d'une ligne de faisceau comprenant une source d'ions fonctionnant par résonance cyclotronique capable de produire des ions de différents états de charge. Cette source était suivie d'un aimant de sélection qui permettait de choisir une espèce chimique et un état de charge bien déterminé, d'une enceinte dédiée à la neutralisation du faisceau (dans le cas des études avec des projectiles atomiques), d'une enceinte d'interaction sous atmosphère ultra-vide équipée d'un ensemble de 16 détecteurs montés au-dessus de la surface ainsi que d'un détecteur de particules "coup par coup" avec lequel les premiers clichés de diffraction ont été enregistrés (Voir Fig 48. Pour une description plus détaillée du dispositif et de ses fonctions : [45][31]).

Grâce à sa configuration multifonctionnelle, ce dispositif permettait notamment de réaliser des combinaisons de mesures en coïncidence de profils de diffusion d'ions ou d'atomes, des mesures de pertes d'énergie par temps de vol, et la détection des électrons secondaires émis lors de la collision ([69]).

Si ce dispositif a permis de réaliser les premières études fondamentales de la diffraction, il présentait en revanche un fort encombrement qui ne permettait pas son montage sur un bâti d'épitaxie pour réaliser des contrôles de croissances de couches minces en temps réel. Afin de valoriser le brevet portant sur la technique **GIFAD**, il s'est donc avéré nécessaire de développer un prototype de ligne de faisceau optimisé pour la diffraction d'atomes rapides très compact qui puisse

5.1 Introduction : développement d'un dispositif expérimental

être monté sur un bâti de croissance. L'un des objectifs de ma thèse fut donc, dans un premier temps, de développer une ligne de faisceau présentant les propriétés précédemment énoncées, ainsi que de concevoir un dispositif expérimental qui puisse nous permettre de tester cette nouvelle ligne de faisceau et de poursuivre l'étude des aspects fondamentaux de la diffraction d'atomes rapides. Dans cette partie, nous allons donc présenter cet appareil, conçu et monté durant ma période de thèse, qui m'aura permis de réaliser les études présentées dans ce manuscrit.

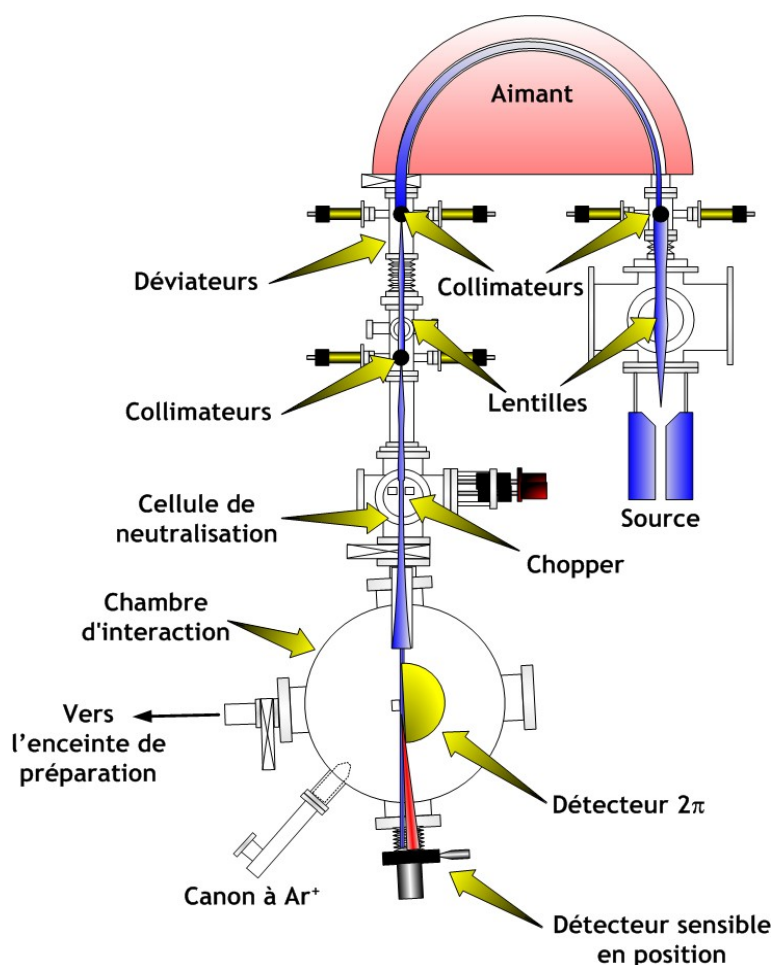


Fig 48: Vue du dispositif expérimental sur lequel P.Rousseau, A.Momeni et J.Villette ont réalisé leur thèse

5.2 Le dispositif expérimental

5.2.1 Dispositif complet

Le dispositif expérimental est constitué :

- i. *d' un prototype compact de ligne de faisceau (conçu durant la thèse) qui permet la production et la mise en forme de faisceaux d'atomes intenses et cohérents.*
- ii. *d'une enceinte d'introduction.*
- iii. *d'une enceinte d'interaction.*
- iv. *D'un système de détection constitué d'un détecteur à écran phosphorescent (conçu durant la thèse) et d'une caméra CCD.*

L'ensemble du dispositif est monté sur un bâti modulaire en profilé aluminium réalisé par la firme RexRoth.

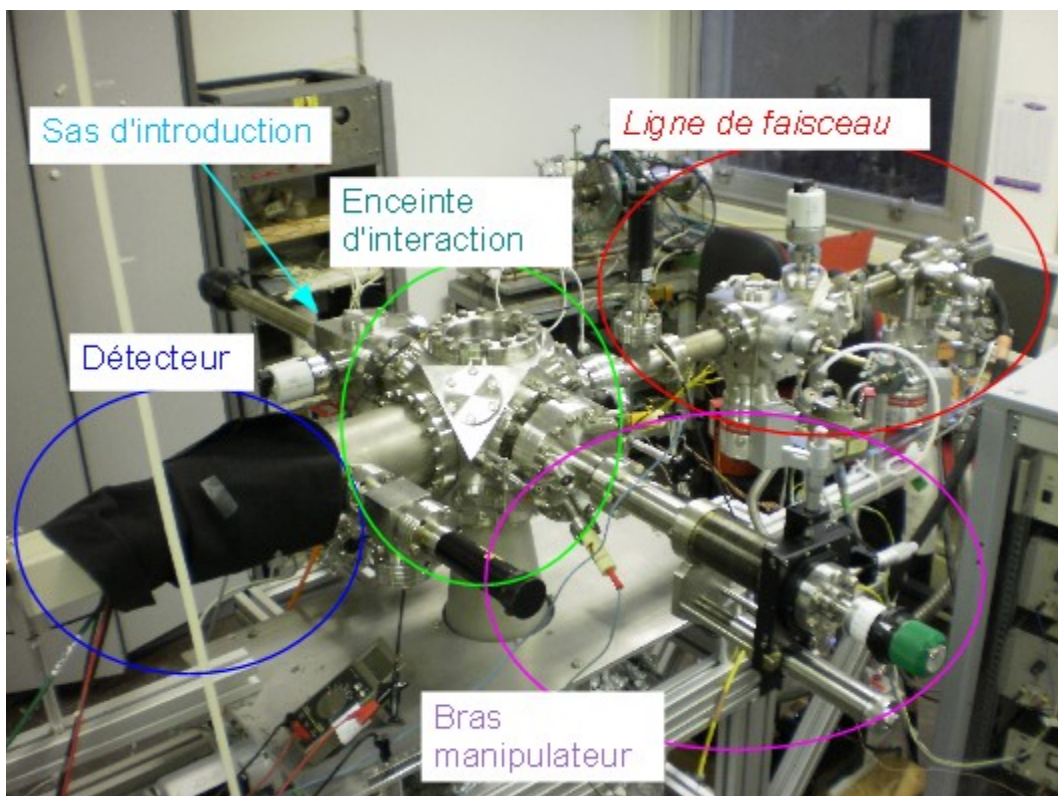


Fig 49: Vue de l'ensemble du dispositif expérimental

5.2 Le dispositif expérimental

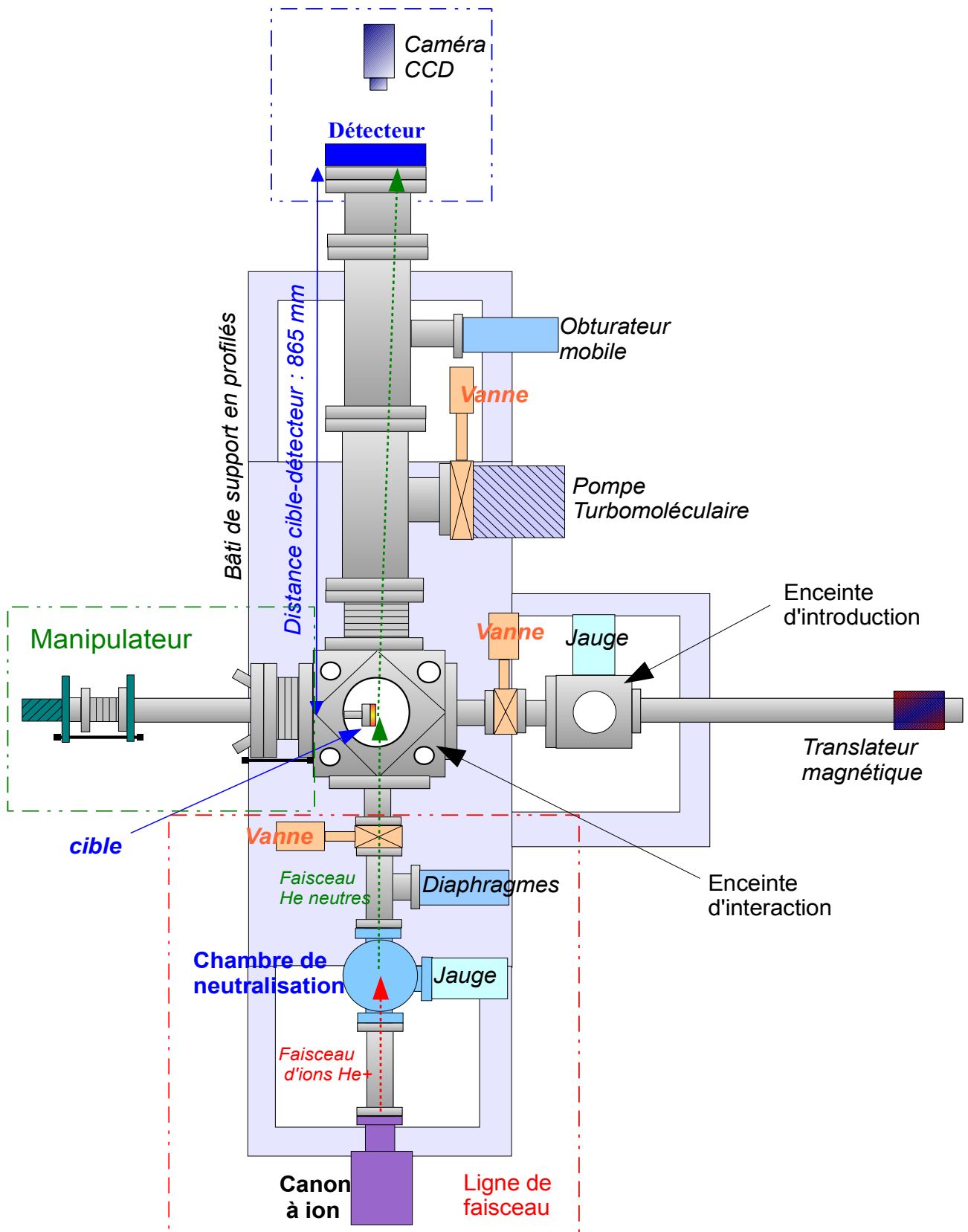


Fig 50: Schéma du dispositif expérimental. Vue de dessus

5.2.2 Le sas d'introduction

Constituée d'une petite enceinte ultra-vide, le sas permet d'introduire les échantillons via une petite porte-hublot à l'intérieur de l'expérience sans avoir la contrainte de mettre l'enceinte d'interaction à l'air. Elle est isolée de cette dernière par une vanne (voir Fig 50). L'échantillon que l'on souhaite transférer est monté sur un support en molybdène appelé communément "*molyblock*". Il est équipé d'un système de fixation à baïonnette femelle qui permet son montage sur un translateur linéaire magnétique. C'est par ce translateur que la surface que l'on souhaite étudier peut être transférée sous vide vers l'enceinte principale.

Les échantillons sont insérés à pression atmosphérique dans le sas. La mise sous vide s'effectue par une pompe turbomoléculaire couplée à une pompe primaire. La pression est contrôlée grâce à une jauge à cathode froide montée sur un port du sas. Ce dispositif permet de descendre assez rapidement dans le domaine des 10^{-7} mbar, pression qui nous autorise alors à faire le transfert vers l'enceinte principale. Il permet aussi l'éventuel stockage d'échantillons à une atmosphère proche de 10^{-8} mbar.

5.2.3 L'enceinte d'interaction

Comme son nom l'indique, c'est dans cette chambre que le faisceau d'atomes provenant de la ligne va venir interagir avec la surface cristalline. Lors des mesures, l'échantillon se situe au centre de l'enceinte d'interaction. Il est fixé via son support en molybdène sur un *bras manipulateur* mécanique réalisé par l'entreprise Meca2000. Ce dernier offre 5 degrés de libertés de mouvement de l'échantillon (voir Fig 51) :

- **Trois degrés de translation** : deux dans le plan de l'échantillon, le long des axes nommés X et Y, permettent de changer la zone d'interaction du faisceau sur l'échantillon. Un troisième le long la normale à la surface de l'échantillon permet d'insérer plus ou moins la cible dans le faisceau.
- **Deux degrés de liberté angulaires** : un premier degré permet de tourner l'échantillon autour de sa normale et de changer ainsi son azimut, le second permet de changer l'angle d'incidence des atomes sur l'échantillon en inclinant plus ou moins le plan de la surface par rapport à l'axe du faisceau.

5.2 Le dispositif expérimental

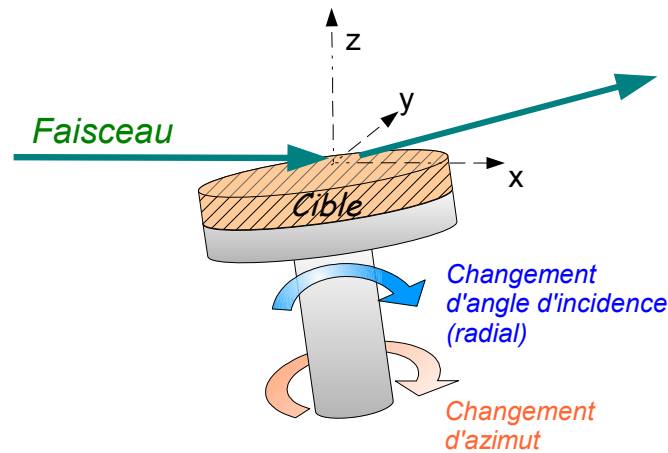


Fig 51: Degrés de liberté du manipulateur

Le manipulateur est par ailleurs équipé d'un filament se situant juste en dessous du porte-cible qui permet de chauffer l'échantillon. La mesure locale de la température se fait grâce à un thermocouple de type W5 (alliage Rhénium Tungstène) possédant une gamme de mesures de températures allant de 0° à 2300° (Informations du fournisseur **Conax**. [70]). Le chauffage peut être utilisé soit pour réaliser des mesures à différentes températures soit pour préparer la cible lors de cycles de bombardements suivis de recuits.

L'interaction entre le faisceau et l'échantillon a lieu sous une pression de quelques $10e^{-10}$ mbar. Il est en effet impératif de travailler sous atmosphère ultra-vide afin de maintenir un très bon état de surface de nos échantillons et éviter que ceux ne soient recouverts trop rapidement de molécules adsorbées. Sous une pression de $10e^{-10}$ mbar, une mono-couche de molécules adsorbées se forme en quelques heures. Pour atteindre des telles conditions de travail, l'enceinte est pompée par une pompe ionique de la compagnie **Gamma Vacuum** équipée d'un sublimateur de titane, et par une pompe turbo-moléculaire qui permet de pomper le gaz provenant de la ligne de faisceau lors des acquisitions ou l'argon introduit dans l'enceinte lors d'un décapage de la cible.

La pression dans l'enceinte est contrôlée par une jauge Bayard-Alpert ainsi que par un analyseur de gaz résiduel qui permet, en plus de la pression, de connaître la composition chimique de l'atmosphère résiduelle de l'enceinte et vérifier qu'aucun polluant n'a été introduit en grande quantité lors d'une opération, comme le transfert d'une cible ou bien l'injection de gaz lors d'un bombardement. L'enceinte est aussi équipée d'un canon de décapage à Argon ionique positionné à 45° par rapport à la normale de l'échantillon. Ce dispositif permet de préparer les surfaces par cycles de bombardements à grands angles suivis de recuits.

5.2.4 Le détecteur

5.2.4.1 Quel type de détecteur pour les atomes rapides ?

La diffraction a été observée en 2003 avec un détecteur de particules sensible en position dont le fonctionnement à partir d'un assemblage de galettes micro-canaux et d'une anode résistive permettait une détection "particule par particule". En raison de l'importance des temps morts entre deux évènements enregistrés (quelques micro-secondes), ce type de détecteur est incapable de compter plus de 100 000 particules par seconde.

Or pour espérer que la diffraction des atomes rapides puisse se démocratiser en tant que technique de caractérisation, il faut que l'utilisateur obtienne ses images dans une période inférieure au temps caractéristique du phénomène qu'il souhaite observer. Dans le cas de la croissance par épitaxie, ce temps correspond au délai nécessaire avant qu'une couche atomique ne se complète et qu'une autre commence, c'est-à-dire à ce que l'on nomme communément *la période des oscillations RHEED* et qui est l'ordre de quelques secondes (voir la section 2.3.3)

Le développement d'un nouveau détecteur a fait parti des premiers travaux de ma thèse. Les objectifs principaux étaient de caractériser l'option d'un détecteur basé sur un assemblage de galettes de micro-canaux et d'un écran phosphore pour obtenir des images en quelques secondes et avec une bonne résolution spatiale. Mes travaux se sont traduits par la conception d'un prototype évolutif qui s'est avéré voisin de ceux utilisés dans les dispositifs LEED ou RHEED haut de gamme où la présence d'un étage d'amplification électronique constitué d'un assemblage de galettes micro-canaux permet d'augmenter le flux d'électrons incidents. Dans ce type de montage, le profil de diffraction est recueilli par une caméra CCD focalisée sur l'écran phosphore.

Suite à la satisfaction apportée par ce premier montage-test, nous avons validé le choix technologique, et acquis un détecteur commercial de grand diamètre (80 mm contre 40 mm dans la version d'essai) fabriqué par la firme américaine Photonis. Ce détecteur présente une architecture très similaire au montage conçu durant la thèse, à la différence près du diamètre qui offre une plus grande ouverture angulaire, ce qui autorise son utilisation sur un bâti d'épitaxie où les distances surface-détecteur sont grandes. Dans le sous-chapitre suivant, nous décrivons plus en détail le fonctionnement de ce dispositif de détection qui a permis de réaliser les images présentées dans ce manuscrit.

5.2 Le dispositif expérimental

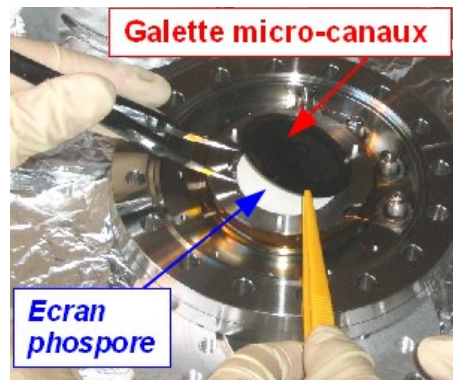


Fig 52: Montage du détecteur à écran phosphore conçu durant la thèse: mise en place de la première galette micro-canaux

5.2.4.2 Fonctionnement du détecteur

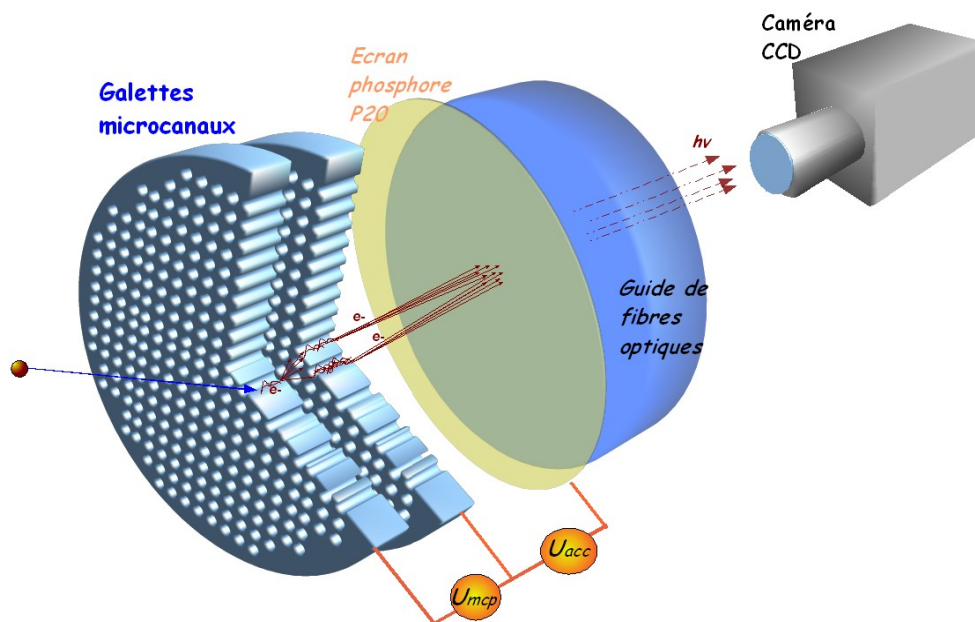


Fig 53: Schéma du détecteur Photonis

Comme dans le cas du prototype d'essai que nous avons conçu, le détecteur fabriqué par la firme Photonis est constitué d'un écran phosphore de type P20 précédé par un assemblage en chevron de deux galettes micro-canaux (voir Fig 53) qui joue le rôle "d'amplificateur de signal". En effet, contrairement aux électrons ou aux rayons X, des atomes de quelques keV d'énergie cinétique ne créent pas assez de photons lors de leur impact sur l'écran phosphore pour être détectés correctement, et il est donc nécessaire de lui associer des galettes micro-canaux dont le

fonctionnement est décrit ci-dessous.

- **Les galettes micro-canaux**

Il s'agit de galettes en céramique traversées de part en part par un réseau de micro-canaux possédant des diamètres de l'ordre de quelques dizaines de microns et légèrement inclinés (Dans le détecteur Photonis: les capillaires ont des diamètres proches de 10 μm pour une inclinaison moyenne de 8° , ce qui lui confère de bonnes propriétés pour l'imaging). Les faces de la galette sont métallisées, ce qui permet d'y appliquer une tension de polarisation. Par ailleurs, l'intérieur des micro-canaux est recouvert d'un dépôt isolant qui favorise l'émission électronique.

Lorsqu'une particule entre dans un canal et percute sa paroi, elle provoque l'émission de plusieurs électrons qui sont accélérés par la tension de polarisation. Les électrons émis vont à leur tour frapper la paroi et provoquer l'émission d'autres électrons et générer une amplification en cascade. Pour un impact, un gain d'un millier d'électrons peut ainsi être obtenu avec une réponse temporelle très faible ; le temps de création d'une avalanche étant de l'ordre 100 ps. Après une avalanche, le canal connaît un temps mort, de l'ordre de 10^{-2}s à 10^{-1}s . Mais comme il y a un grand nombre de canaux, le temps mort de la galette est beaucoup plus faible car d'autres canaux sont susceptibles d'être activés pendant ce temps (Pour une revue sur les détecteurs à bas de galettes micro-canaux: [71]).

L'efficacité des galettes est limitée par quatre facteurs :

- ***L'efficacité géométrique intrinsèque de la galette.*** Elle correspond à la surface que représente l'ouverture des micro-canaux par rapport à la surface active de la galette. Cette efficacité se situe aux alentours de 50 % pour notre détecteur (source *Photonis*).
- ***Le revêtement métallique des micro-canaux.*** Selon sa composition et sa qualité, il permet de créer plus ou moins d'électrons secondaires.
- ***De la tension de polarisation aux bornes de la galette.***
- ***De la particule incidente.*** La détection d'une particule est directement liée à sa nature (ion, électron, photon), de son énergie (maximale autour de 1000 eV pour les électrons [72]), mais aussi de la direction de sa trajectoire dans le micro-canal et notamment de la probabilité de frapper une paroi. On remarquera par ailleurs qu'il convient de bien choisir la polarisation de la galette selon l'état de charge que l'on souhaite détecter. En effet pour un sens de polarisation de la galette donné, par exemple en entrée : $0V$ et en sortie : $-1000V$, la particule pourra être soit ralentie si elle est négative soit accélérée si

sa charge est positive lors de son entrée dans le canal [73] [74].

Le montage à deux galettes comme celui du détecteur Photonis permet d'améliorer ce gain en amplifiant l'avalanche électronique, ce qui permet d'obtenir à partir d'un seul impact jusqu'à une dizaine de millions d'électrons. Mais il faut noter que ce gain d'intensité se fait au détriment de la précision de localisation. En effet, le faisceau d'électrons à la sortie du canal dans lequel l'impact a eu lieu possède une certaine divergence intrinsèque. Lors de sa sortie de la première galette, il est susceptible alors d'éclairer plusieurs canaux de la seconde. Pour éviter cet effet dû à la divergence de la cascade d'électrons, les galettes de notre prototype et du détecteur Photonis sont collées **face contre face** avec une géométrie dite "en chevrons" (voir Fig 54) dans laquelle les inclinaisons des capillaires sont opposées.

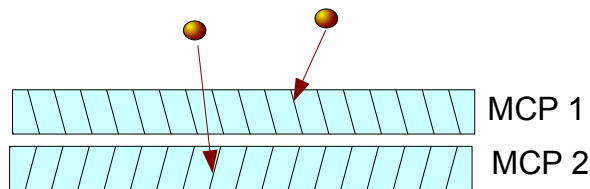


Fig 54: Montage de 2 galettes micro-canaux en chevrons

- **Accélération en sortie de galettes micro-canaux. Un axe de développement majeur de notre détecteur.**

Comme nous pouvons le voir, sur la figure 55, l'écran phosphore est disposé en sortie des galettes. Il est isolé électriquement et on peut appliquer entre ces éléments une tension de l'ordre de quelques kV qui permet d'accélérer les électrons en sortie de la galette afin qu'ils puissent produire lors de leur impact un nombre de photons suffisant pour être détectés. En effet, l'efficacité de détection de l'écran est directement proportionnelle à leur énergie. Dans le cas de l'écran P20 on a : 0,063 photons/eV (données du fournisseur Proxitronics [75]) et un électron de 3 keV pourra émettre 189 photons

La distance qui sépare l'écran de l'étage d'amplification de l'écran résulte d'un compromis. En effet, si l'on souhaite accélérer les particules il faut que la distance soit suffisamment importante pour garantir une bonne isolation électrique et éviter les claquages qui endommageraient le détecteur. Or dans un même temps augmenter la distance détecteur-écran réduit fortement sa résolution. En effet, le faisceau d'électrons sortant de la galette possède une divergence intrinsèque et de ce fait : plus la distance qui la sépare de l'écran est grande, plus la taille du spot sur l'écran est importante. Pour avoir la meilleure résolution possible, il est donc nécessaire de rapprocher au

5.2 Le dispositif expérimental

maximum la face de sortie des galettes de l'écran phosphore. La recherche du compromis entre ces deux contraintes a été l'un des points majeurs du développement de notre détecteur, et il a abouti à un montage où la distance entre l'écran et la sortie de la seconde galette est de 1mm. Afin d'éviter tout claquage, nous avons dessiné les pièces isolantes mises à l'épreuve des hautes tensions de telle manière que le chemin électrique entre les pièces métalliques à la haute tension qu'elles séparent soit maximal (voir la forme du support isolant en téflon sur la figure 55) Nous pouvons avec notre montage appliquer une tension pouvant monter jusqu'à 5 kV entre la galette et l'écran.

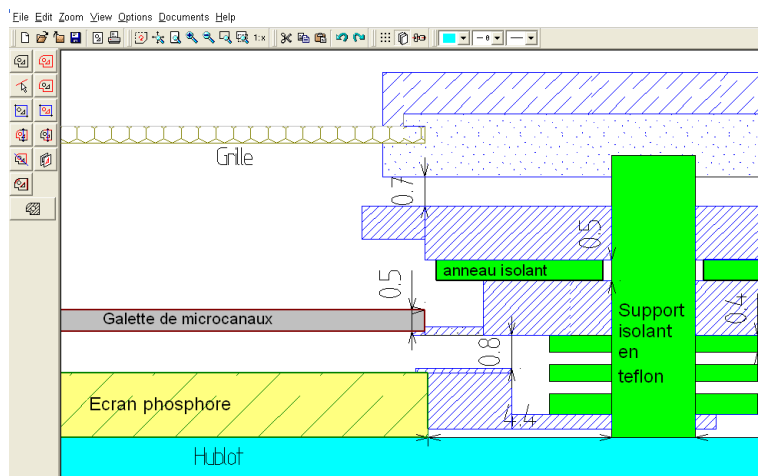


Fig 55: Capture d'écran lors de la conception du détecteur. Les pièces en bleu marine correspondent à des pièces métalliques alors que les pièces en verte sont des éléments isolants en téflon.

Remarquons que dans le détecteur Photonis, la distance "écran-galette" est de 0.7 mm.

- **L'écran phosphore et le guide à fibre optique**

Il existe plusieurs types d'écrans phosphorescents de compositions chimiques diverses. Dans le cas de nos détecteurs, il s'agit d'un écran phosphore P20 dont les caractéristiques sont données ci-dessous (informations données par les fabricants Proxitronic et Collutron). La couche de matériau phosphorescent est par ailleurs recouverte d'un film mince d'aluminium en entrée, afin que les photons émis lors de l'impact des électrons de la galette soit réfléchi vers l'extérieur. Ce type d'écran phosphore possède une efficacité de conversion électrons-photons de l'ordre de **0,063 photons/eV** pour des électrons de quelques keV d'énergie. En considérant que lors de l'impact d'une particule, 1 million d'électrons sont produits par les deux galettes, si on applique 3 kV de tension entre la sortie de la dernière galette et l'écran, l'écran phosphore peut alors émettre jusqu'à 189 millions de photons.

5.2 Le dispositif expérimental

<i>Composition chimique</i>	<i>Émission lumineuse</i>	<i>Decay time</i>
(Zn,Cd)S:Ag	De 470 nm à 670 nm avec un maximum à 550 nm d'où une couleur des spots jaune-verte	90% à 10% d'intensité : 4 ms et de 10% à 1% en 55 ms.

Dans le détecteur qui a été conçu durant ma thèse, l'écran phosphore repose sur un socle de verre monté sur un hublot qui assure la séparation entre l'atmosphère ultra vide et l'extérieur (Fig 55).

En ce qui concerne le détecteur développé par la firme Photonis, l'écran phosphorescent est directement déposé sur un guide de lumière constitué de milliers de fibres optiques accolées les unes aux autres. Il permet de récupérer une grande partie des photons produits lors de l'impact de l'avalanche électronique sur l'écran phosphore et qui sont émis dans toutes les directions de l'espace. Cet élément garantit ainsi une bonne efficacité de détection. Ce guide de lumière est par ailleurs directement soudé sur la bride ultra-vide sur laquelle est montée le détecteur et qui sépare l'intérieur de l'enceinte ultra-vide de l'extérieur. Cette configuration présente un avantage certain, celui de s'affranchir d'une transition verre-vide-fibre-optique qui aurait pu générer des pertes de photons par réflexion.

5.2.4.3 La caméra CCD et le logiciel d'acquisition

La caméra d'acquisition est positionnée à la sortie du guide de fibres optiques, dans un compartiment hermétique à la lumière extérieure. Il s'agit d'une caméra développée par la firme japonaise Hamamatsu dont le principe de détection repose sur une matrice CCD monochrome (noir et blanc) rectangulaire de 1344*1026 pixels pour une taille effective de 8,67mm*6,60 mm.

Les matrices CCD (abréviation du terme anglais *Charge Coupled device*) sont des composants électroniques basés sur un assemblage de pixels photodiodes qui permettent de convertir un rayonnement lumineux dans le domaine UV-visible-infra-rouge en un signal électrique analogique (pour un ouvrage sur ce sujet voir : [76]). Les photodiodes sont des petites cellules de semi-conducteurs qui transforment les photons incidents en paires électrons-trous grâce à l'effet photovoltaïque dont le nombre est directement proportionnel à celui des photons reçus.

Dans le cas de la caméra Hamamatsu, les pixels sont des petites cellules de forme carrée de

5.2 Le dispositif expérimental

6,45 μm de côté pouvant accueillir jusqu'à 15000 électrons. Le maximum de leur efficacité quantique, c'est-à-dire le pourcentage de photons qu'une cellule capte en moyenne, est de 70% pour des longueurs d'ondes comprises entre 450 et 600 nm. Cette gamme spectrale est très proche de celle des spots qu'émet l'écran phosphore P20. Ils forment une matrice interligne qui associe à chaque ligne de pixels une zone de stockage et de transfert qui est masquée. Avec ce système, les charges emprisonnées dans chaque photo-site ne sont pas translatées vers d'autres photo-sites, comme c'est le cas dans le format CCD basique, mais évacuées directement vers une ligne de stockage qui assure leur transfert jusqu'au registre. Le temps d'indisponibilité des cellules est donc considérablement réduit puisque le transfert peut se faire pendant la durée de la prochaine exposition. Ce type de CCD possède en revanche le défaut de diminuer la zone exposée aux photons. Il peut être compensé, comme c'est le cas pour notre caméra grâce à un réseau de micro-lentilles qui focalise les photons vers les zones actives (pour des articles traitant des micro-lentilles, voir : [77][78]).

La conversion du signal dynamique résultant des charges collectées par chaque pixel en signal numérique est faite sur 12 bits offrant ainsi 4096 valeurs d'intensité possibles. L'image numérique de la CCD est alors envoyée à un ordinateur équipé du logiciel d'acquisition HIPIC. Ce logiciel conçu par le fabricant et adapté à la caméra offre la possibilité de modifier facilement les temps d'exposition dans une gamme comprise entre la milliseconde et la seconde ainsi que le gain d'amplification (0 ou 14 dB) . Il propose plusieurs types de modes d'acquisition allant de la simple prise d'image à l'intégration d'un nombre important de clichés successifs pris en continu ou à intervalle régulier. Dans le cas des images obtenues par intégration de plusieurs clichés, le codage se fait sur 16 bits, ce qui permet d'obtenir 65536 niveaux d'intensité.

5.2.5 La ligne de faisceau

La ligne de faisceau permet la production et la mise en forme de faisceau d'ions et d'atomes avec des énergies allant de quelques centaines d'eV à quelques keV. Elle est composée d'un canon à ion, d'une chambre de neutralisation et d'une série de diaphragmes. Ce prototype a été conçu dans l'objectif de produire des faisceaux d'atomes intenses avec des très faibles divergences angulaires et une faible dispersion énergétique. Lors de la conception de cette ligne de faisceau, nous avons cherché à obtenir un prototype simple et très compact qui puisse être utilisé par la suite pour étudier la croissance de couches minces dans un bâti d'épitaxie.

Contrairement à l'enceinte d'interaction, la ligne de faisceau ne requiert pas un vide très poussé, mais en revanche il est nécessaire que l'atmosphère qui y règne contienne peu d'éléments chimiques réactifs comme l'oxygène ou l'eau qui risqueraient de détériorer fortement les filaments de la source d'ions et de polluer le faisceau. La pression résiduelle est de l'ordre de quelques 10^{-8} mbar, mais lors de la neutralisation d'un faisceau d'ions qui requiert une injection de gaz assez importante, elle peut s'établir autour de 10^{-6} mbar. Le pompage de la ligne est assuré par deux pompes turbomoléculaires HiPace de la compagnie Pfeiffer capables de pomper rapidement des grandes quantités de gaz (capacité de pompage de 67 l/s) et qui par ailleurs, offrent un très bon taux de compression pour l'hélium, le gaz que nous utilisons le plus. Une des ses pompes est montée sous le canon et la seconde est placée sous l'enceinte de neutralisation

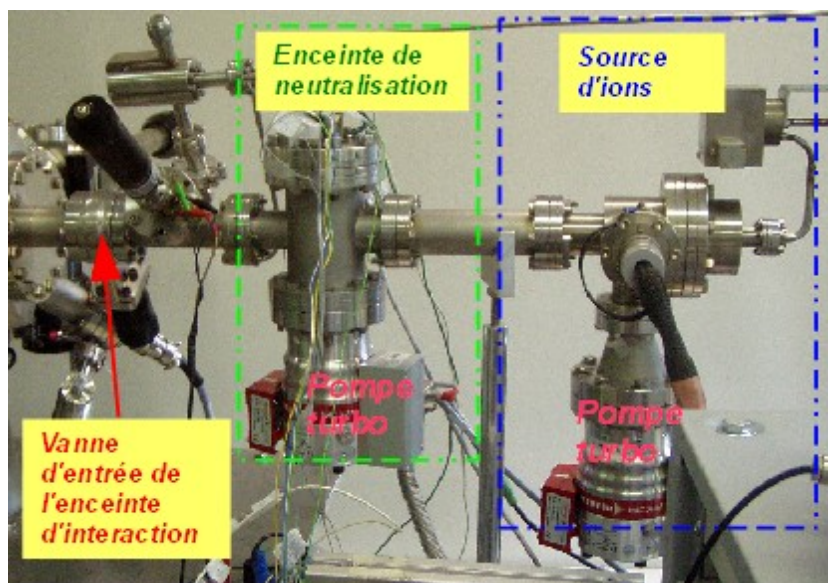


Fig 56: Vue de la ligne de faisceau

5.2 Le dispositif expérimental

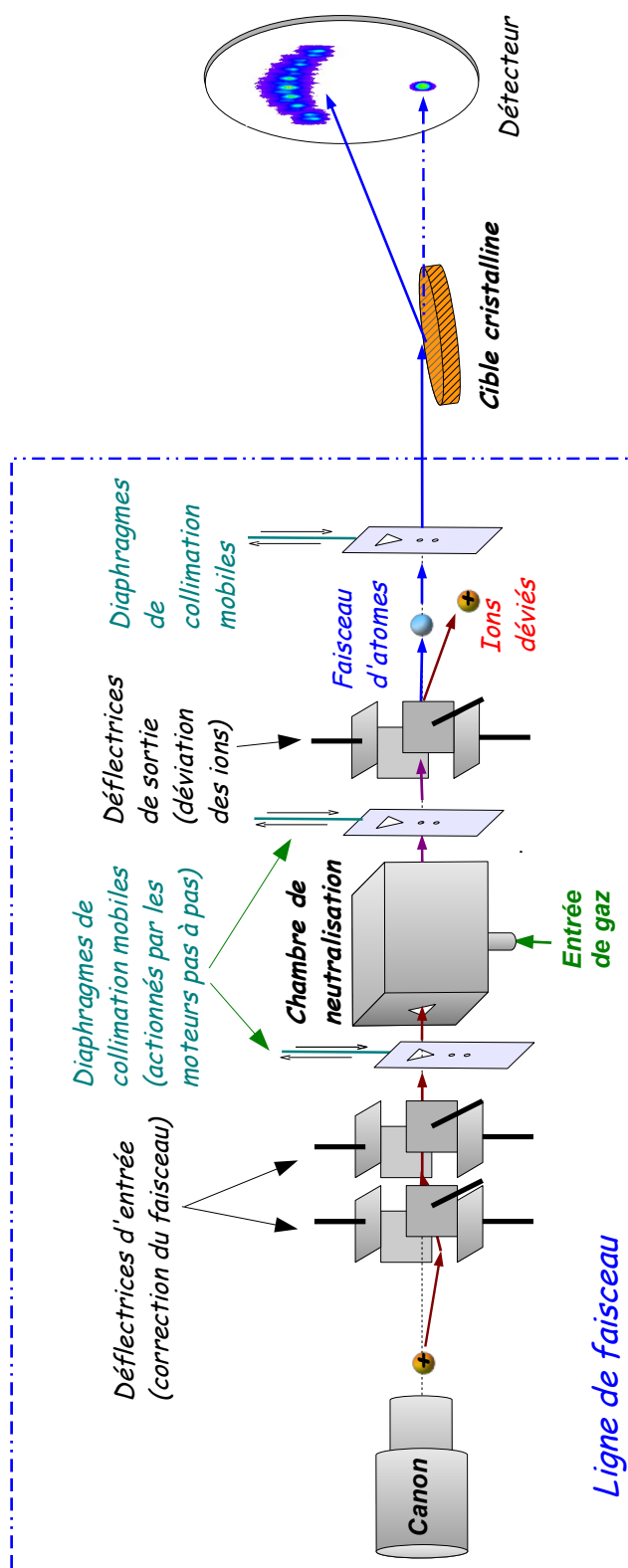


Fig 57: Schéma d'ensemble de la ligne de faisceau

5.2.5.1 La source d'ions

La source utilisée dans ce premier prototype est une source d'ions **Fison EX05**. Cette source commerciale est capable de produire des courants de quelques μA d'ions mono-chargés de gaz noble (He^+ , Ne^+ et Ar^+). Ces ions sont obtenus à partir d'un gaz que l'on injecte dans la source par bombardement d'électrons émis par un filament de tungstène porté à haute température. Ils sont ensuite extraits de la source et accélérés à des énergies allant de quelques centaines d'eV jusqu'à 5 keV, avec une dispersion en énergie de l'ordre de l'eV. Si cette source est adaptée pour les faisceaux de gaz nobles en raison de leur faible réactivité chimique, il est déconseillé en revanche d'utiliser une telle source pour des éléments chimiques réactifs, tels que le dihydrogène ou l'oxygène au risque de réduire fortement la durée de vie des filaments. Cette source est équipée par ailleurs d'un tube de dérive, d'un jeu de lentilles, et de quatre plaques déviateuses qui permettent de mettre en forme le faisceau d'ions et notamment de jouer sur sa focalisation.

5.2.5.2 L'enceinte de neutralisation : de l'échange de charge à la mise en forme du faisceau

Dans le dispositif précédent qui a permis de découvrir la diffraction des atomes rapides en 2003, la chambre de neutralisation et les éléments d'optimisation et de mise en forme du faisceau (déflecteurs, diaphragmes et cages de Faraday) étaient clairement séparés avec pour conséquence une ligne de faisceau assez longue (quelques mètres). Dans l'optique d'avoir un dispositif compact et léger, qui puisse être monté facilement sur un bâti d'épitaixie, nous avons développé une enceinte de neutralisation qui réduit au maximum l'encombrement en regroupant ces deux fonctions sur un même élément de raccordement ultra-vide. En plus de la compacité, ce choix offre le confort d'avoir un ensemble solidaire facile à monter et à démonter. Il en résulte un dispositif compact assurant les fonctions suivantes :

- *La neutralisation du faisceau d'ions*
- *La correction de trajectoire*
- *La mise en forme du faisceau*
- *La mesure du courant.*

• a) Neutralisation du faisceau par les échanges de charges résonants

Le faisceau d'ions issu de la source est neutralisé grâce à des processus d'échanges de charge résonnants en traversant une petite chambre située au centre de l'enceinte de neutralisation dans laquelle on injecte du gaz de même nature chimique que celui introduit dans la source.[79][80][81][82]. Gao et al ont étudié ces processus pour l'hélium et dans la gamme d'énergie de notre source 0-5keV. Ils ont montré que l'efficacité de neutralisation est maximale pour des énergies de quelques centaines d'eV (0,2-0,5 keV) et que dans ce cas, la section efficace d'interaction vaut $\sigma_{neutr} = 12 \text{ \AA}^{-2}$ [83].

En partant de l'objectif d'obtenir **10% de faisceau neutralisé**, nous avons pu estimer la pression de la cellule nécessaire en suivant le raisonnement suivant. Pour N_0 ions d'hélium traversant une épaisseur L d'une cible gazeuse d'hélium de densité volumique n_{gaz} , le nombre de neutres produits est donné par :

$$N_{neutres} = N_0 (1 - e^{-\sigma_{neutr} n_{gaz} L})$$

Afin de relier la densité à la pression de la cible gazeuse, nous nous servons de la formule des gaz parfaits. On obtient alors :

$$P_{gaz} = n_{gaz} \cdot k_B \cdot T$$

avec P la pression en Pa, T la température en K et k_B la constante de Boltzmann.

Nous calculons alors qu'à température ambiante (300K) et pour une longueur de cible de 2 cm, la pression dans la cellule pour obtenir 10% de neutres doit être de :

$$P_{gaz} = 2 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$$

Afin de s'assurer que toute la plus grande partie du faisceau n'est pas perdue lors de la traversée de la chambre de neutralisation, nous pouvons estimer la valeur du libre parcours moyen des atomes à cette pression. Cette grandeur est une estimation de la distance que peut parcourir une particule entre deux collisions successives pour une pression donnée. Dans notre cas, le gaz de neutralisation est de la même espèce chimique que les particules incidentes, c'est-à-dire de l'hélium. L'expression du libre parcours moyen est alors donnée par :

$$\lambda_{free\ mean\ path} = \frac{k_B T}{\sqrt{2} \pi d_{He}^2 P_{gaz}} \quad ([84])$$

où T est la température, P : la pression, d : le diamètre d'un atome d'hélium et k_B la constante de Boltzmann.

5.2 Le dispositif expérimental

En prenant $T = 300 \text{ K}$, $P_{\text{gaz}} = 2 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$ et $d_{\text{He}} = 2,2 \text{ \AA}$ ([85]), nous obtenons que le libre parcours moyen est de :

$$\lambda_{\text{free mean path}} = 9,6 \text{ cm} .$$

La longueur de la chambre étant de 2 cm, on peut voir à partir du résultat précédent que bien qu'une partie importante du faisceau subira des collisions lors de sa traversée (elles sont nécessaires pour que les ions puissent être neutralisés), le faisceau ne sera pas arrêté par la cible gazeuse. Cependant il est à noter qu'en raison du caractère collisionnel de la neutralisation (collision atome-cible gazeuse), ce processus entraîne une divergence angulaire du faisceau incident.

- **Pression dans l'enceinte lors de la neutralisation**

Bien que la pression soit élevée dans la chambre de neutralisation, de part ses dimensions (2cm de longueur, quelques mm de hauteur /largeur- voir partie suivante), le régime d'écoulement dans la chambre est "moléculaire". À partir de la pression du gaz de neutralisation que nous avons calculée, nous pouvons alors estimer la pression dans l'enceinte de neutralisation. Considérons que la chambre se compose d'un tube de grand diamètre dont les deux extrémités sont fermées par deux diaphragmes de 100 μm de diamètre, et que l'enceinte est pompée par une pompe turbomoléculaire d'une capacité de pompage : $S_{\text{pompe}} = 67 \text{ l/s}$.

Le débit volume correspondant aux fuites du gaz de la chambre vers l'enceinte est donné par :

$$Q_{\text{fuite}} = 2 C_{\text{trou}} (P_{\text{chambre}} - P_{\text{enceinte}}) \approx 2 C_{\text{trou}} P_{\text{chambre}}$$

où C_{trou} est la conductance d'un diaphragme dont l'expression est :

$$C_{\text{trou}} = 3,64 \cdot \sqrt{(T/M_{\text{gaz}})} A_{\text{trou}} \quad ([85])$$

T est la température, M la masse du gaz considéré en unité atomique et A_{trou} la surface du diaphragme (en cm^2).

En prenant $T = 300 \text{ K}$ et l'hélium comme gaz nous trouvons que : $C_{\text{trou}} = 2,47 \cdot 10^{-3} \text{ l/s}$ et donc : $Q_{\text{fuite}} \approx 1 \cdot 10^{-5} \text{ mbar.l/s}$.

Par ailleurs, à l'équilibre tout le gaz qui sort de la chambre est pompé par la pompe de l'enceinte et on a :

$$Q_{\text{fuite}} = P_{\text{enceinte}} \cdot S_{\text{pompe}}$$

On en déduit que dans la configuration décrite, la pression de l'enceinte est alors de :

5.2 Le dispositif expérimental

$$P_{enceinte} \approx 1,5 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$$

En pratique, lors de nos expériences, nous avons mesuré des pressions dans l'enceinte allant de quelques 10^{-7} mbar quelques 10^{-6} mbar, suivant la quantité de gaz introduite dans la chambre et les tailles des diaphragmes en entrée et en sortie de la chambre (diamètres compris entre $20\mu\text{m}$ et quelques fractions de millimètres).

- **La chambre de neutralisation**

La chambre de neutralisation est réalisée en acier inox et est montée sur l'élément de raccordement ultra-vide standard *CF63* grâce à des petites colonnettes isolantes réalisées en plastique *PEEK*. Le gaz de neutralisation est injecté depuis l'extérieur à travers un tube soudé à la bride. Son débit est contrôlé par vanne micro-fuite. Le transport du gaz du tube soudé à la bride vers la chambre de neutralisation est réalisé via un ensemble solidaire constitué de sections de tubes inox et de tubes en isolant téflon, lequel est emmanché en force dans un trou percé en centre de la chambre (voir Fig 58 et Fig 59). Il en résulte que la chambre de neutralisation est isolée électriquement du reste du système, et ceci afin de permettre de décélérer le faisceau avant sa neutralisation. En effet, le courant d'ions qui peut être extrait de la source dépend fortement de l'énergie, et si pour des fortes énergies, nous pouvons obtenir de fortes intensités, en revanche au-dessous de 500 eV, les courants de faisceau que l'on peut extraire de la source sont assez faibles. Décélérer le faisceau d'ions avant sa neutralisation permet donc d'obtenir un faisceau à la fois intense et de basse énergie

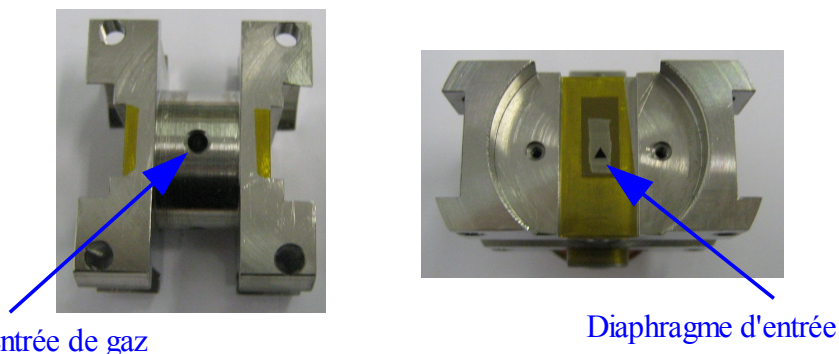


Fig 58: Vues de dessous (à gauche) et de face (à droite) de la chambre de neutralisation. On peut voir sur l'image de gauche, au centre au centre de la chambre, le trou par lequel le gaz qui va permettre le transfert de charge est injecté. La figure de droite expose le trous d'entrée de la chambre par lequel arrive le faisceau incident. Comme en sortie, l'entrée de la cellule est fermée par un diaphragme triangulaire collé sur le bloc métallique par un film en plastique Kapton (film orangé) .

- Des ensembles de déviateurs

Bien que la source soit équipée d'un jeu de défecteurs, le faisceau d'ions obtenu à sa sortie n'est pas toujours bien aligné avec les autres éléments de la ligne et il est donc nécessaire de pouvoir corriger sa trajectoire. Dans notre montage, cette correction est réalisée grâce à deux jeux de 4 plaques déviateurs : *haut, bas, gauche, droite* (Fig 57) entre lesquelles on vient appliquer une différence de potentiel électrostatique pouvant aller jusqu'à 500V. Afin d'obtenir un dispositif compact, les plaques déviateurs sont soudées sur des rondelles métalliques de quelques millimètres d'épaisseur (Fig 60). Dans le montage, ces dernières se juxtaposent tout en étant isolées électriquement les unes des autres par des petites rondelles isolantes réalisées en Kapton (Élément 1 de Fig 59). Ces ensembles de déviateurs sont fixés sur la chambre de neutralisation par des axes en PEEK tout en étant isolés électriquement de celle-ci.

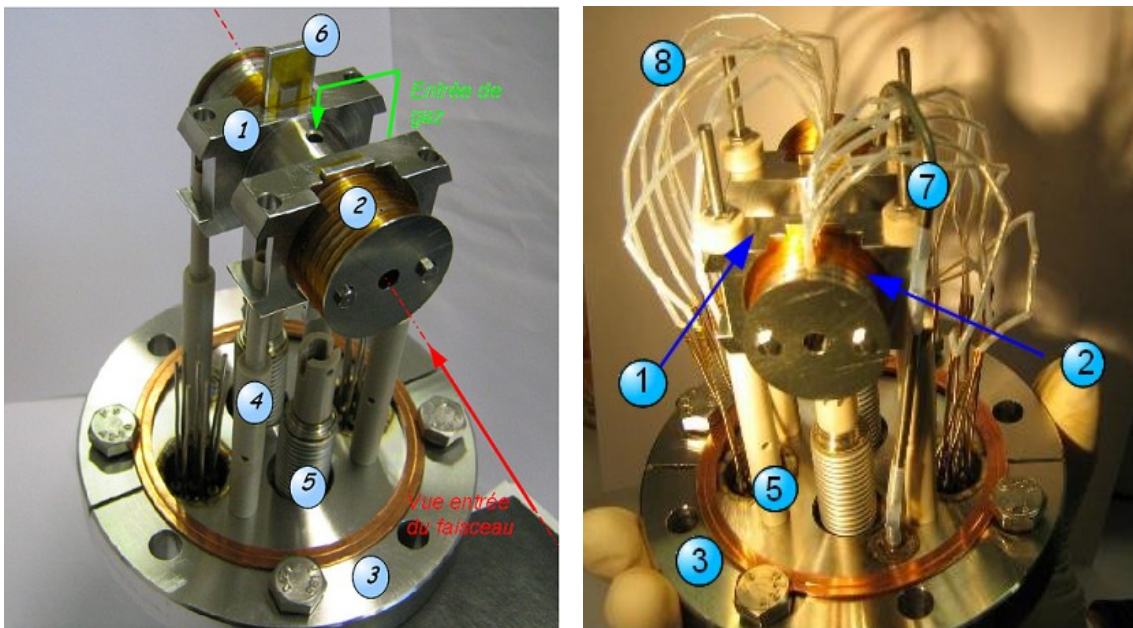


Fig 59: Cellule d'échange de charge: montage éclaté (à gauche) et montée (à droite)

- 1: Chambre de neutralisation
- 2: Ensemble de déviateurs
- 3: Élément de raccordement ultra-vide CF63
- 4: Colonne de support en PEEK
- 5: Soufflets (transfert de mouvement)
- 6: Porte-diaphragme mobile
- 7: Entrée de gaz (tube métalliques+tubes téflon)
- 8: Connections électriques (des défecteurs et des porte-diaphragmes)

La cellule de neutralisation possède en plus des deux premiers jeux de défecteurs placés en amont de la chambre, un troisième jeu en aval qui sert à dévier les ions non neutralisés, de manière à n'obtenir qu'un faisceau d'atomes en sortie (voir Fig 57 et Fig 61).

5.2 Le dispositif expérimental



Fig 61:: *Chambre de neutralisation avec jeux de déviateurs montés*

- 1: Jeux de déviateurs (entrée)
- 2: Chambre de neutralisation
- 3: Jeu de déviateurs (sortie)
- 4: Diaphragmes mobiles.



Fig 60: *anneaux défecteurs*
 En haut: *vue des deux faces*
 En bas: *montage des défecteurs avec isolation par des feuilles de Kapton (films de couleur orange)*

- *Un jeu de diaphragmes destiné à modifier la taille et la divergence angulaire du faisceau avant et après sa neutralisation*

Le faisceau de neutres est mis en forme par trois séries de diaphragmes constitué d'un ensemble de trous de 100 μm , 50 μm et 20 μm complété par un trou en forme de triangle équilatéral de 2mm de côté comme le montre la figure 63. L'association de cette ouverture de forme triangulaire et d'un diaphragme triangulaire inversé fixé en entrée (ou en sortie) de chambre de neutralisation (Fig 57) forme un iris, qui avec l'ensemble des trous, offre une large gamme de taille et de forme de faisceau, comme le montre la figure 62.

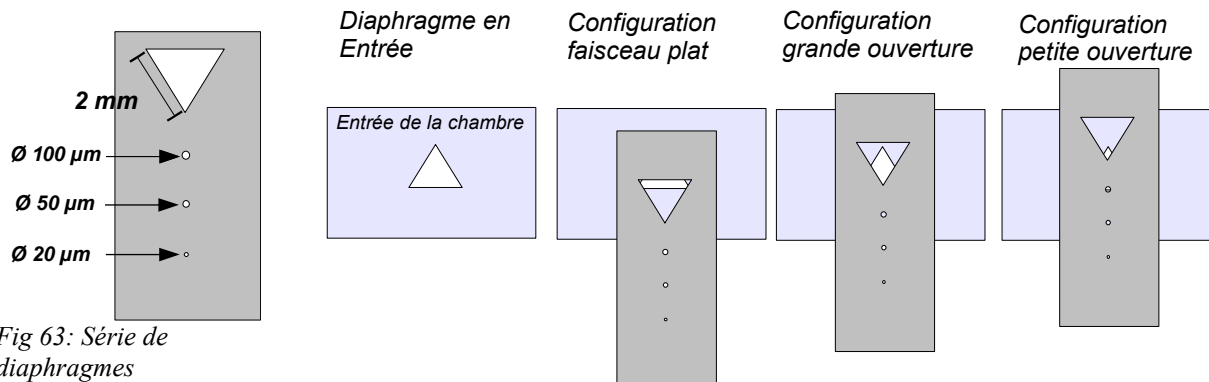


Fig 63: *Série de diaphragmes*

Fig 62: *Différentes formes et tailles de faisceau*

Deux de ces séries de diaphragmes sont montées sur des plaques mobiles qui coulissent dans un guide entre le corps de la chambre de neutralisation et les jeux de défecteurs grâce à l'action de

5.2 Le dispositif expérimental

moteurs pas à pas situés à l'extérieur. Le troisième diaphragme se situe en dehors de l'enceinte de neutralisation, juste avant la connexion de la ligne de faisceau avec l'enceinte d'interaction. Grâce à l'action combinée de ces trois jeux de diaphragmes mobiles successifs, nous pouvons modifier aisément la taille du faisceau et obtenir des divergences très faibles. Dans notre montage, les deux séries de diaphragmes, situées respectivement en entrée (on le nommera D1) et en sortie de la chambre de neutralisation (D2) sont espacés de 24mm alors que la distance entre le diaphragme situé en sortie de chambre (D2) et le dernier diaphragme (D3) situé juste avant l'entrée de l'enceinte est de 133 mm. La divergence angulaire transverse maximale que l'on peut avoir avec notre dispositif est déterminé par l'angle α décrit par les trajectoires extrêmes que laissent passer les deux

derniers diaphragmes (voir Fig 64) et est donnée par l'expression :
$$\alpha \approx \frac{\varnothing_{D2} + \varnothing_{D3}}{2 \text{ distance}_{D2-D3}}$$

Le tableau ci-dessous présente ces valeurs pour des combinaisons de diaphragmes que nous avons fréquemment utilisés dans nos travaux.

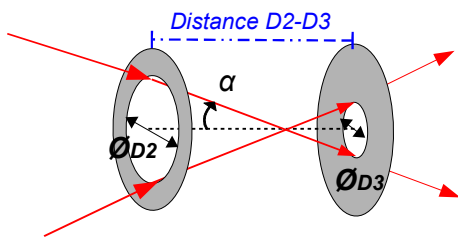


Fig 64: Calcul de la divergence.

\varnothing_{D2} en μm	\varnothing_{D3} en μm	Divergence α
20	20	$1.5 \text{ E-}4$ radians soit 0.009°
50	20	$2.6 \text{ E-}4$ radians soit 0.015°
100	20	$4.5 \text{ E-}4$ radians soit 0.026°
50	50	$3.8 \text{ E-}4$ radians soit 0.022°
100	50	$5.6 \text{ E-}4$ radian soit 0.032°
100	100	$7.5 \text{ E-}4$ radians soit 0.044°

- **Mesure du courant de faisceau sur les diaphragmes.**

Les trois supports de diaphragmes mobiles que nous avons mentionnés précédemment sont isolés électriquement des autres éléments. Ce choix de conception nous offre la possibilité de mesurer des courants d'ions ou de neutres (en fait, le courant de pulvérisation) en entrée et en sortie de la chambre de neutralisation avec un microampèremètre afin d'optimiser les réglages du canon pour obtenir un faisceau le plus intense possible. Dans le cas des porte-diaphragmes coulissants situés en entrée et en sortie de cellule, cette isolation a été réalisée avec des films en Kapton "collés" sur les parois (voit l'élément 4 de la figure 61). En plus de l'isolation, l'usage de ce type de film permet d'obtenir un meilleur glissement des pièces coulissantes et un meilleur plaquage des porte-diaphragmes contre le flanc de la chambre ; avec comme gain une réduction des fuites de gaz de

l'intérieur de la chambre vers l'enceinte.

5.2.6 Remarques sur les matériaux utilisés lors de la conception

Lors du développement de notre dispositif et plus particulièrement de la ligne de faisceau, nous avons conçu puis fait réaliser certaines pièces (dont une grande partie de celles que comporte la cellule de neutralisation et la mise en forme du faisceau) par l'atelier de mécanique de notre laboratoire. Nous avons utilisé des matériaux compatibles ultra-vide de deux types : des métaux et des isolants. Si la plupart d'entre eux sont utilisés par l'industrie du vide depuis de nombreuses années, lors du développement de notre dispositif, nous avons aussi fait appel à des matériaux qui font leur apparition dans ce domaine et qui nous ont apporté de nombreuses solutions techniques.

- **Les matériaux métalliques :**

Outre les diaphragmes de la cellule qui ont été réalisés en Nickel, les parties métalliques de notre dispositif ont été réalisées en alliages INOX 304 et 316. Ces alliages à base de fer, de Nickel, et de chrome, sont à la base de tous les systèmes ultra-vide de part leurs propriétés :

- *Chimiques.* Très résistants à la corrosion et très peu réactifs chimiquement (des propriétés qu'ils doivent à la forte proportion de chrome dans leur composition)
- *Mécaniques.* Leurs résistances mécaniques est proche du laiton, et ils présentent de ce fait une assez bonne usinabilité.
- *Très faible surface réelle.* Par opposition à la surface géométrique qui est la surface définie par la géométrie d'une pièce à l'échelle de l'œil humain, la surface réelle d'un élément est sa surface lorsqu'on prend en compte tous ses défauts et ses reliefs à l'échelle microscopique. C'est cette surface qui sera mise en jeu dans les processus chimiques d'absorption et d'adsorption. Elle peut être très différente de la surface géométrique, comme c'est le cas pour certains alliages à base d'aluminium où elle peut être jusqu'à plusieurs centaines de fois plus importante. Dans le cas de L'inox, la surface réelle est très proche de la surface géométrique : son rapport à la surface réelle est proche de 8 ([85])

5.2 Le dispositif expérimental

Dans notre dispositif nous avons utilisés deux types d'alliages INOX dont les compositions ci-dessous sont données en fonction du pourcentage des constituants dans le volume de fer (pour les données, voir [86])

INOX 316 et 316 L	0,07 % de Carbone (0,03 pour le 316 L), 16 à 18 % de Chrome, 10 à 12,5 % de Nickel (10,5 à 13 pour le 316 L), 2 à 2,5% de Molybdène, 1% de Silicium, 2% de Manganèse, 0,04% de phosphore, 0,03 % de Souffre
INOX 304 et 304 L	0,07% de Carbone (0,03 % pour le 304L), 17 à 19% Cr, 8 à 10% Ni (9 à 11 pour le 304 L) , 1% Si, 2% Mo, 0,04% P, 0,03% S

L signifie : Low carbon

- **Les matériaux isolants :**

- **Céramiques :**

Les matériaux isolants les plus fréquemment utilisés dans la conception d'éléments ultra-vide sont les céramiques et les verres. Ces matériaux ont l'avantage de présenter une isolation en surface et en traversée très importante et de ne pas contenir de composants susceptibles de polluer l'atmosphère résiduelle ultra-vide. Ils supportent en outre des températures très élevées, ce qui peut permettre des étuvages importants. En revanche, ce sont des matériaux très durs et très peu malléables, ce qui rend leur usinage très délicat et particulièrement difficile pour des petits éléments. Aussi pour la réalisation de pièces isolantes nous avons du faire appel à d'autres matériaux.

- **Les plastiques polymères semi-cristallins :**

Ces matériaux isolants possèdent des faibles réactivités chimiques qui les rendent utilisables pour la conception d'éléments destinés aux atmosphères ultra-vide. Pour la conception de notre prototype, nous avons régulièrement fait appel à ces matériaux.

a) **Le PEEK** (Polyether ether ketone) : Plastique très robuste dont l'utilisation ultra vide peut se

5.2 Le dispositif expérimental

faire jusqu'à 275°C ([87]) . Nous nous sommes limités dans notre cas à des températures inférieures à 143° qui correspond à sa température de transition vitreuse.(Sa température de fusion est de 300°). Un étuvage au-delà de cette température est donc à prohiber dans le cas où sa non déformabilité est l'aspect recherché. Cependant, dans le cas de notre ligne de faisceau, pour atteindre une pression de 10^{-8} mbar un étuvage à 110-120°C est suffisant.

- b) Le téflon (Polytetrafluoroethylene) : C'est un des polymères semi-cristallins les plus utilisés dans l'industrie. Il possède de bonnes propriétés élastiques et est facilement déformable, contrairement au PEEK (Sa température de transition vitreuse est de -30°C), et sa température de fusion est de 327°C.
- c) le Kapton: est un film de polyimide qui peut être utilisé jusqu'à une température proche de 400°C. Il est très utilisé dans le domaine de l'ultra vide. Depuis quelques années , certains fabricants de matériels ultra-vide ont développé des rubans adhésifs compatibles avec les atmosphères "utltra-vide". Nous avons utilisé ce type de ruban pour fixer certains éléments de la cellule de neutralisation. Il s'agit d'un film de Kapton sur lequel est déposé une fine couche de polymères de Silicone (chaîne Si-O-Si-). Cette chaîne inorganique possède une faible réactivité et une bonne résistance à la température, ce qui en fait un bon candidat pour des atmosphères de vide-poussé : pressions aux alentours de 10^{-8} mbar, comme dans le cas de notre ligne de faisceau.

5.2 Le dispositif expérimental

Étude expérimentale de la diffraction d'atomes rapides

5.2 Le dispositif expérimental

6 Introduction à l'étude expérimentale

6.1 Introduction

Nous allons maintenant aborder l'étude expérimentale de la diffraction d'atomes rapides qui a été réalisé durant la thèse et qui porte sur trois types de matériaux : les surfaces d'isolants ioniques, les surfaces métalliques et les semi-conducteurs.

Dans un premier temps, nous nous intéresserons à l'étude des cristaux ioniques et plus exactement aux surfaces NaCl(001) et de KBr(001). C'est sur des surfaces de ce type qu'a été mise en évidence la diffraction atomique en général par Esterman et Stern 1930 ainsi que la diffraction des atomes rapides par le groupe MCI du Laboratoire des Collisions Atomiques et Moléculaires puis par le groupe d'Helmut Winter à Berlin [1][2]. Leur étude a permis de comprendre les aspects fondamentaux de la diffraction des atomes rapides. Les travaux présentés dans cette partie s'inscrivent donc dans la lignée des études réalisées par Patrick Rousseau et Andreas Schüller lors de leurs thèses. Ces isolants ioniques présentent des structures cristallines simples et présentent l'avantage d'être faciles à préparer. Par ailleurs, ces surfaces sont très favorables à l'observation de la diffraction des atomes rapides en raison du relief des densités électroniques très marqué par rapport à d'autres matériaux comme les métaux. D'autre part sur ces matériaux, la probabilité que les atomes d'hélium incidents puissent générer des excitations électroniques, susceptibles de détruire la cohérence, est très faible. Elles constituent donc de bons candidats pour tester un prototype expérimental tout juste réalisé. De plus, du point de vue de la valorisation du travail de développement réalisé durant ma thèse, le fait que ce type de surfaces aient déjà été étudié auparavant permet d'avoir un point de comparaison en termes de performances et de résolution entre le dispositif conçu durant la thèse et le précédent.

Au cours de cette étude, nous verrons dans un premier temps une des applications de la diffraction d'atomes rapides comme une sonde du relief du potentiel d'une surface de KBr(001). Cette étude constituera une mise-en-bouche où l'on introduira des outils d'analyse auxquels nous aurons recours. Nous présenterons ensuite une étude qui a permis la mise en évidence d'un nouveau régime de diffraction, prédit mais qui n'avait pas été jusqu'à maintenant observé. Enfin nous verrons comment la diffraction des atomes rapides permet de mettre en évidence des défauts topologiques, et en particulier la mosaïcité.

6.1 Introduction

Dans un second temps nous présenterons une étude sur une surface d'argent Ag(110) qui a été réalisée en début de thèse avant que le nouveau dispositif issu de mes travaux ne soit opérationnel. Ces travaux ont une importance de premier plan puisqu'ils ont permis la mise en évidence de la diffraction d'atomes rapides sur les surfaces métalliques[4] et il constitue une preuve que la diffraction des atomes rapides est généralisable à tous les matériaux.

L'observation de la diffraction sur des surfaces métalliques était loin d'être une évidence théorique. En effet, sur ce type de matériaux, il est très facile pour les projectiles de grande énergie cinétique, comme les atomes rapides, d'exciter des électrons de la surface et de perdre de l'énergie dans ces processus, augmentant ainsi le risque de ne pas pouvoir observer de diffraction cohérente. Au cours de ce chapitre nous nous intéresserons donc particulièrement à ces processus dé-cohérents dus aux excitations électroniques.

Enfin, nous terminerons l'étude expérimentale avec la présentation des premiers résultats de suivi de croissances de couches minces par épitaxie avec les atomes rapides. Ces résultats récents ont une importance capitale car ils prouvent l'efficacité de la technique GIFAD pour le contrôle de la croissance, et contribuent ainsi à sa valorisation.

Dans cette étude, toutes les mesures présentées dans ce manuscrit ont été réalisées avec l'hélium atomique comme projectile.

6.2 Présentation des isolants ioniques étudiés :

6.2.1 Propriétés générales des isolants ioniques :

Dans un cristal ionique, les liaisons entre les atomes du cristal sont comme son nom l'indique de type ionique. Elles ramènent les configurations électroniques des atomes à celle d'un gaz rare. L'énergie de liaison d'un cristal ionique est élevée (grande constante de Madelung [88]). Les cristaux ioniques possèdent aussi la propriété d'être des isolants électriques. Dans ces matériaux, les électrons sont localisés principalement sur les sites halogènes et occupent des états de la bande de valence ; la bande de conduction est quant-à-elle vide. Faire passer un électron dans un état excité de la bande de conduction requiert un apport important d'énergie : $E_g > 3 \text{ eV}$. Bien que les atomes rapides possèdent une énergie totale de l'ordre du keV, en raison des faibles énergies normales en diffusion rasante, de l'ordre de la **dizaine de meV à l'eV**, les atomes sont rebroussés loin de la surface (quelques angströms) rendant les transitions électroniques très improbables sur ce type de matériau du fait de la faible affinité électronique à ces distances[41].

6.2.2 Préparation des surfaces :

Les surfaces de KBr(001) et de NaCl(001) que nous avons étudié durant la thèse ont été obtenues par clivage à l'air. Les échantillons obtenus se présentent comme des lamelles de section carrée ou circulaire de l'ordre de 1 mm d'épaisseur et d'une dizaine de millimètres de diamètre/largeur. Ils ont été ensuite fixés sur une petite plaque mécanique qui permet leur montage sur le porte-échantillon. Une fois mises sous vide, ces surfaces ont ensuite subi des recuits. Lors du recuit, la surface a été chauffée par le filament en tungstène du manipulateur et la température a été contrôlée à l'aide du thermocouple placé derrière le porte échantillon (voir partie concernant le dispositif expérimental).

Dans le cas de la surface de KBr(001), nous avons aussi réalisé des séries d'expériences sur un surface polie. Cette surface a été introduite directement sous vide avant de subir un recuit.

6.2.3 Structure des surfaces de KBr (001) et NaCl(001)

Les cristaux de KBr et de NaCl possèdent un réseau « cubique face centrée » d'anions où les cations occupent tous les sites octaédriques de la maille (voir Fig 66). La surface (001) de ces cristaux qui a servi de support à nos illustrations jusqu'à présent, est de nouveau représentée sur la figure 65. Elle présente deux types de directions de canalisation : les directions cristallographiques de type $\langle 100 \rangle$ et les directions de type $\langle 110 \rangle$. Deux directions équivalentes successives sont espacées d'un angle azimutal de 90° tandis que deux directions $\langle 001 \rangle$ et $\langle 011 \rangle$ successives sont espacées de 45° .

Les arrangements atomiques que le faisceau voit le long de ces directions pour des angles rasants sont représentés Fig 67 et Fig 68. Si on appelle a le paramètre de maille du cristal, les périodicités des rangées perçues par le faisceau aux directions $\langle 001 \rangle$ et $\langle 011 \rangle$ sont respectivement de : $a_{\langle 001 \rangle} = a/2$ pour la direction $\langle 001 \rangle$ et de $a_{\langle 011 \rangle} = a/\sqrt{2}$ pour la direction $\langle 011 \rangle$.

Des paramètres importants de ces cristaux tels que le paramètre de maille, la température de Debye sont résumés dans le tableau (*Propriétés des surfaces de KBr (001) et NaCl(001)*).

Il est intéressant de remarquer que les cations et les anions qui forment la dernière couche atomique ne sont pas situés dans le même plan (pour des raisons de stabilités électrostatiques[89]). Ce décalage entre le plan dans lequel se trouvent les cations et celui des anions est communément qualifié de « rumpling »[90]

Des mesures du « rumpling » ont été réalisées en LEED par Vogt et Heiss sur les surfaces de KBr(001) et NaCl(001) [91],[92]. Ils ont montré que dans le cas de la surface de NaCl, les ions chlorure sont surélevés de $0,07 \text{ \AA}$ par rapport au plan de surface alors que les ions sodium sont légèrement décalés vers le volume du cristal de la même quantité. Dans le cas de KBr, le déplacement dû au « rumpling » est de l'ordre de $0,02 \text{ \AA}$. Par ailleurs, des mesures de « rumpling » ont aussi été réalisées en diffraction d'atomes rapides par le groupe d'Helmut Winter pour une surface de LiF(001). Le fluorure de lithium est un isolant ionique qui possède le même type de structure que le cristal de NaCl et KBr, et sa surface (001) présente une organisation atomique similaire à celles de KBr(001) et NaCl(001). En comparant les mesures expérimentales à des simulations, il a été mesuré pour cette surface que les « décalages » des plans des ions fluorure et des ions lithium par rapport au plan médian étaient de : $0,05 \text{ \AA}$ (4) [93].

6.2 Présentation des isolants ioniques étudiés :

Les propriétés physiques des surfaces de NaCl(100) et de KBr(100) auxquelles nous serons amenés à nous référer dans ce manuscrit sont présentées dans le tableau suivant. À titre de comparaison, nous présentons aussi les propriétés de la surface de LiF (100) étudiées par le groupe d'Orsay et par le groupe de Berlin.

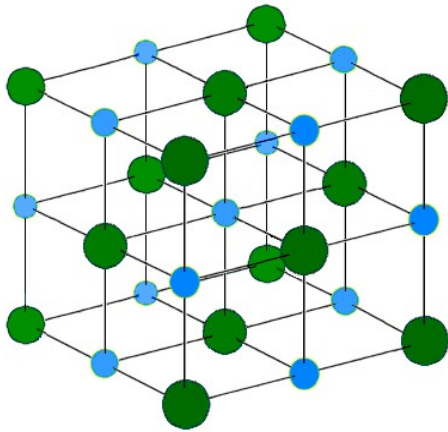


Fig 66: Réseau cubique face centrée d'un solide ionique où les cations occupent les sites octaédriques. Les positions des anions dans la maille sont symbolisées par les sphères vertes, celles des cations par les sphères bleues.

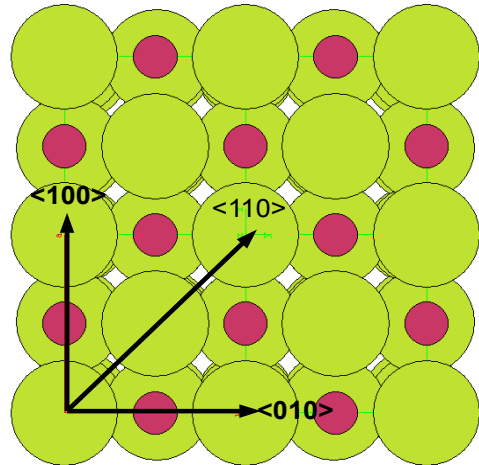


Fig 65: Vue de dessus d'une face (001) d'un cristal de KBr. Les cercles en rouge représentent les cations et les cercles verts les anions

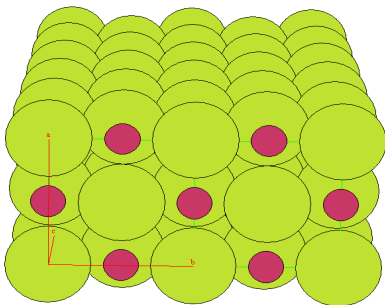


Fig 67: Vue de l'arrangement atomique d'une surface de KBr(001) le long d'une direction de <100>.

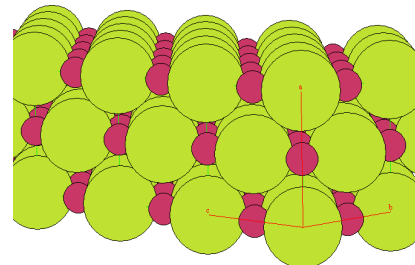


Fig 68: Vue de l'arrangement atomique le long d'une direction de type <110> pour une surface de KBr(001).

Propriétés des surfaces de KBr (001) et NaCl(001)

Propriétés	KBr	NaCl	LiF
Paramètres de maille :	6.6 Å	5,64Å	4,04 Å
Périodicité pour les directions de type <100>	3.3 Å	2,82 Å	2,02 Å
Périodicité pour les directions de type <110>	4,67 Å	3,99 Å	2,84 Å
Température de fusion du cristal	734°	801°	845°
Température de Debye de Surface mesurée en LEED.	104 K (+/- 10 K) [92]	174K (+/- 3 K) [91]	
Température de Debye mesurée en HAS		220 K (estimation) [94]	550 K (avec des atomes d'hydrogène, Tmes=78 K) [95] 530 K [96]
Rayon ionique du cation :	K ⁺ : 1.38 Å	Na ⁺ : 1.02 Å	0.74 Å
Rayon ionique de l'anion :	Br ⁻ : 1.96 Å	Cl ⁻ : 1.81Å	1,33 Å
Rapport des rayons ioniques	0,7	0,56	0,56
Rumpling mesuré	0,02 Å	0,07 Å	0,05 Å

7 Étude de la « corrugation » sur la surface de KBr(001):

Dans cette partie nous allons nous intéresser à l'étude de la corrugation sur la surface de KBr(001). L'objectif principal de cette étude sera de voir si le cation peut être mis clairement en évidence à travers la forme du potentiel que nous pouvons tirer du profil de diffraction. Des surfaces proches de KBr(001) en termes d'arrangements atomiques, LiF(001) et NaCl(001), ont déjà été étudiées par Partrick Rousseau et A. Schüller [1][2][57]. Le choix de renouveler cette étude sur une surface de KBr est motivé par le fait qu'elle pourra apporter un point de comparaison supplémentaire avec les deux autres surfaces. Le rapport des rayons ioniques, c'est-à-dire, r_{cation}/r_{anion} étant plus important pour la surface (0,7) que ceux des cristaux NaCl : ou LiF (0,56 pour les deux), nous nous attendons donc à observer une contribution plus importante du cation dans le relief de surface que perçoit l'atome incident au « rumpling près ».

7.1 Principe de la mesure :

L'objectif du travail présenté dans les prochains paragraphes est d'étudier la corrugation le long des directions cristallographiques majeures de la surface de KBr(001).

Comme nous l'avons vu dans la section traitant du modèle "hard wall", nous pouvons trouver à partir de la forme de la corrugation d'une surface, la distribution d'intensité entre les pics de diffraction. La démarche de notre travail consiste donc à chercher les coefficients de la série de Fourier qui produisent la distribution d'intensité la plus fidèle à nos mesures et la plus vraisemblable compte tenu l'arrangement atomique de la direction cristallographique dans laquelle est orientée le faisceau. On peut alors obtenir une « image du potentiel » sur lequel les atomes ont diffracté. Notre travail consiste donc à « sonder » le potentiel pour différentes énergies normales afin d'obtenir les corrugations des directions $\langle 100 \rangle$ et $\langle 010 \rangle$ et leurs variations en fonction de l'énergie normale.

En partant de l'hypothèse que la corrugation de la surface présente une forme simple décomposable en un nombre réduit de fonction cosinus (décomposition simplifiée en séries de Fourier comme l'expression ci-après), le travail d'analyse se réduit donc à trouver le jeu d'amplitudes de corrugation h_i qui donne la distribution d'amplitudes des pics de diffraction qui modélisent le mieux les mesures expérimentales.

7.1 Principe de la mesure :

$$z(y) = \xi(y) = \sum_{i=0}^N h_i \cos\left(\frac{2\pi}{a_{rangées}} i y\right)$$

Pour analyser les motifs de diffraction, nous utilisons le logiciel d'analyse développé par l'équipe aux cours des dernières années. Cet outil informatique permet à partir d'un cliché de diffraction brut d'effectuer des opérations de traitement telles que des soustractions de fond, des opérations d'extraction de données comme des projections d'intensité le long du cercle de conservation d'énergie. Il permet aussi de réaliser des modélisations des données expérimentales à partir d'associations de fonctions comme des fonctions gaussiennes et même d'ajuster les profils observés avec différents modèles tel que celui du Hard-Wall et d'un développement harmonique de la forme du potentiel.

- Méthode algorithmique :

La méthode algorithmique utilisée lors de ce travail pour trouver la forme mathématique de la courbe modèle qui représente le mieux les mesures expérimentales repose sur la méthode des moindres carrés. Elle permet d'optimiser un paramètre de modélisation θ en ajustant au mieux la courbe de la fonction de modélisation : $f(x_i, \theta)$ au contour esquissé par les N données expérimentales et leurs valeurs y_i par la minimisation de la somme des carrés des résidus :

$$S(\theta) = \sum_{i=1}^N (y_i - f(x_i; \theta))^2 = \sum_{i=1}^N r_i(\theta)^2$$

L'algorithme implémenté dans le programme est de type Levenberg-Marquardt.

7.2 Extraction du signal cohérent :

Un cliché de diffraction est la superposition d'un motif de pics obéissant aux lois de Bragg engendré par les atomes qui ont diffracté de manière cohérente entre plusieurs rangées, et d'un fond diffus classique produit par les atomes n'ayant pas diffracté de manière cohérente. Cette décohérence peut être due au fait que les projectiles ne possèdent pas une largeur de cohérence assez grande pour « voir » plusieurs rangées ou bien elle peut être engendrée lors de la diffusion sur la surface par les excitations électroniques, les défauts de surface ou encore les vibrations thermiques. Ces dernières sont décrites par le facteur d'atténuation de Debye Waller. Dès lors que sur les isolants ioniques, les excitations électroniques sont quasi absentes (à faible énergie normale),

7.2 Extraction du signal cohérent :

les autres causes de décohérence ne dépendent pas de la température et très peu de l'angle d'incidence.

Dans le cadre de cette étude, seule la partie cohérente du signal nous intéresse, il est donc nécessaire lors de l'analyse de nos clichés de pouvoir distinguer l'intensité provenant du signal cohérent de la fraction incohérente. Une méthode empirique utilisée par le groupe consiste à modéliser l'intensité de chaque pic de diffraction par une association de deux gaussiennes centrées toutes les deux à la position théorique du pic de diffraction sur le cercle de conservation de l'énergie [97]. La première, de largeur étroite, représente la partie cohérente tandis que la deuxième a une largeur supérieure à la distance entre deux ordres de diffraction (Gy) de telle façon qu'elle ne peut pas donner lieu à une structuration à l'échelle de ces pics. L'intensité d'un ordre n est modélisée en suivant la formulation :

$$I_n(x) = A_n \cdot \left(R \cdot e^{-\frac{1}{2} \cdot \left(\frac{x-x_0}{\sigma_{\text{quantique}}} \right)^2} + (1-R) \cdot e^{-\frac{1}{2} \cdot \left(\frac{x-x_0}{\sigma_{\text{classique}}} \right)^2} \right)$$

Le premier terme correspond à la gaussienne « quantique » et le second terme à la gaussienne « classique » avec $\sigma_{\text{quantique}} \ll \sigma_{\text{classique}}$.

Le facteur R est fixé pour tous les pics de sorte que la fraction de l'intensité cohérente sur la somme (l'intensité totale) correspond à la définition du facteur de cohérence tel que celui de Debye-Waller:

$$R = \frac{I_{\text{cohérent}}}{I_{\text{totale}}}$$

Les rapports R sont identiques pour tous les pics de diffractions modélisés. Cela revient à définir un profil de raie commun à tous les pics de Bragg observés. Nous devons garder en tête que cette approche n'est pas justifiée a priori mais en revanche elle fonctionne bien car le fond classique est bien réparti sur tout le cliché.

Remarquons que deux choix se présentaient, optimiser indépendamment l'intensité de chaque pic et interpréter ensuite les intensités relatives ou bien ajuster directement l'ensemble du spectre avec un modèle contraignant les intensités relatives. La seconde option offre l'avantage de réduire considérablement le nombre de degrés de liberté mais elle n'a de sens que si l'accord est raisonnablement bon, faute de quoi l'interprétation serait éronnée car l'ajustement produirait un nombre sans lien avec le modèle. Dans le traitement que nous allons présenter, c'est cette dernière approche qui a été retenue. Les rapports entre les amplitudes des gaussiennes sont donc donnés indirectement par les amplitudes de corrugation h_i qui décrivent la forme de la surface "vue" par les particules.

7.3 Résultats. Étude le long des directions <100> et <110>

Les figures 70 et 69 représentent des motifs de diffraction obtenus pour un échantillon clivé de KBr le long de deux de ces directions avec un faisceau d'hélium neutre possédant une énergie de 500 eV arrivant avec un angle d'incidence de $0,67^\circ$. Les deux profils de diffraction diffèrent clairement, tant en ce qui concerne le nombre de pics de diffraction présents que de l'espacement entre les pics ou la distribution d'intensité le long du profil de diffraction, ce qui montre bien que les surfaces que perçoit le projectile le long de ces deux directions sont différentes.

Nous mesurons pour chaque image le profil de l'intensité située sur le cercle de conservation de l'énergie en fonction de la position azimutale, comme le montre la figure 71 pour la direction <100>. Les profils d'intensité obtenus montrent clairement des pics d'intensités régulièrement espacés correspondant aux ordres de diffraction. En mesurant l'espacement angulaire azimutal entre les pics de diffraction, nous calculons à partir de la formule : $\Delta \varphi_{\text{Bragg}} \approx \lambda_{\text{atome}} / a_{\text{rangées}}$ respectivement des paramètres inter-rangées de $a_{<100>} = 3,29 \text{ \AA}$ pour la direction <100> et de $a_{<110>} = 4,67 \text{ \AA}$ pour le motif de diffraction de la direction <110>. Ces valeurs sont très proches des valeurs théoriques pour ces deux directions qui sont respectivement de $3,3 \text{ \AA}$ et $4,67 \text{ \AA}$ (moins de 0,5% d'erreur).

7.3 Résultats. Étude le long des directions $\langle 100 \rangle$ et $\langle 110 \rangle$

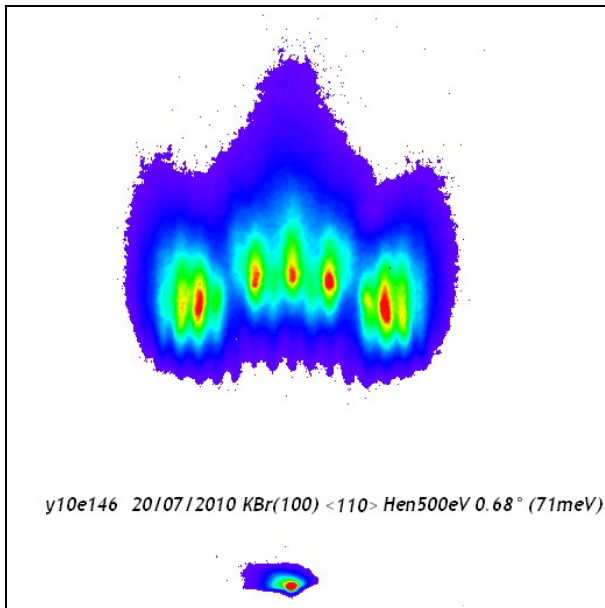


Fig 70: Motif de diffraction obtenu le long de la direction $\langle 110 \rangle$ de KBr(001) pour un faisceau d'hélium neutre de 500 eV arrivant avec un angle d'incidence de $0,68^\circ$. L'énergie normale vaut alors 71 meV

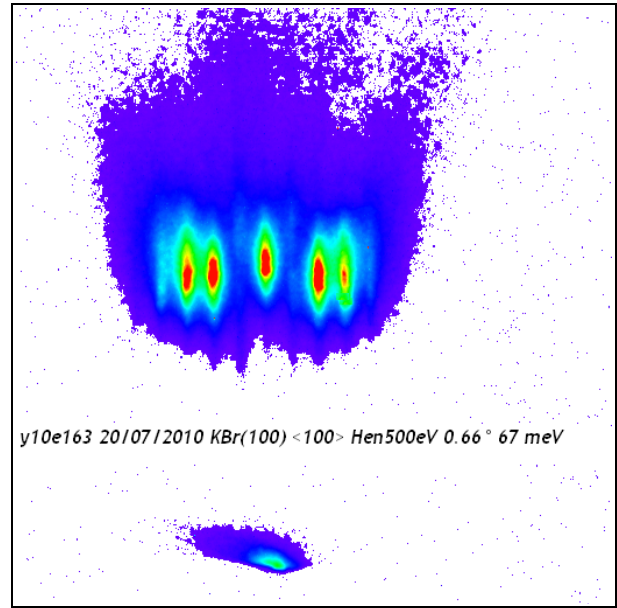


Fig 69: Motif de diffraction obtenu le long de la direction $\langle 100 \rangle$ de KBr(001) pour un faisceau d'hélium neutre de 500 eV arrivant avec un angle d'incidence de $0,66^\circ$, soit une énergie normale de 67 meV

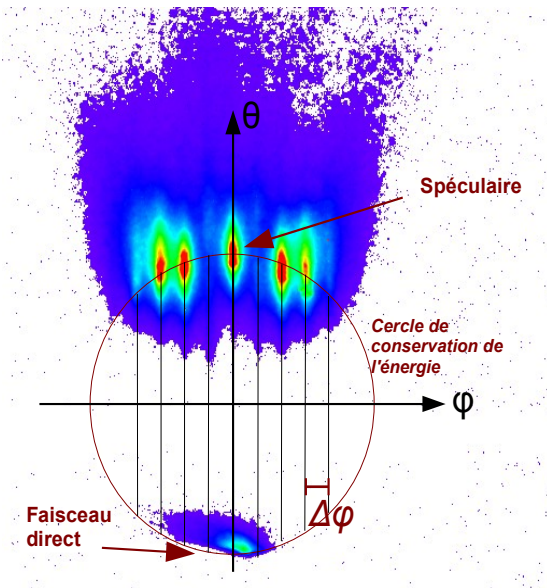
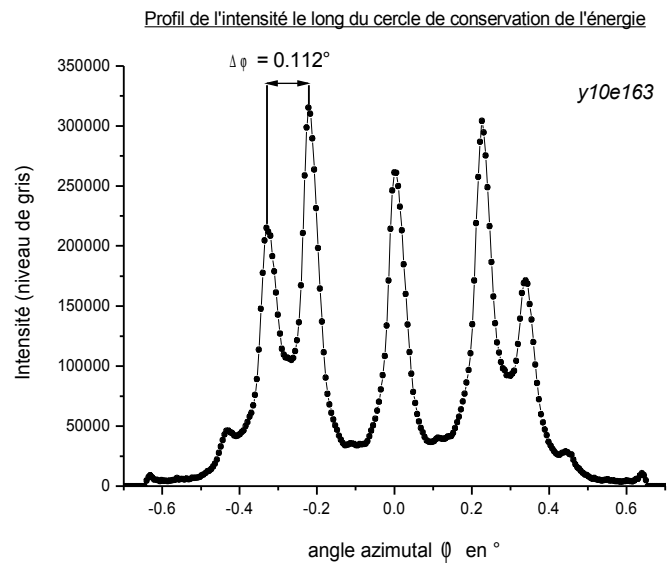


Fig 71: intensité le long du demi-cercle supérieur du cercle de conservation de l'énergie en fonction de l'angle azimutal



7.3.1 Étude de la direction <100>

La figure 72 présente les résultats de la modélisation du profil d'intensité le long du cercle de Laue du cliché de diffraction obtenu le long de la direction <100> pour une énergie normale de 67 meV. Elle repose sur le modèle d'une surface dont le relief du potentiel est une fonction purement sinusoidale, c'est-à-dire de la forme.

$$\xi(y) = \frac{h_{\text{top to bottom}}}{2} \cos\left(\frac{2\pi}{a_{<100>}} y\right) \quad (29)$$

Le choix d'une telle forme est motivé par le fait que dans cette direction, les atomes incidents voient des rangées d'atomes identiques où les ions potassium sont masqués par les bromures de très fortes densités électroniques. Par ailleurs, l'ajout d'une deuxième composante pour modéliser nos résultats donnerait une amplitude $h_{2\text{top to bottom}}$ très proche de 0.

Modélisation des pics d'intensité le long du cercle de conservation de l'énergie

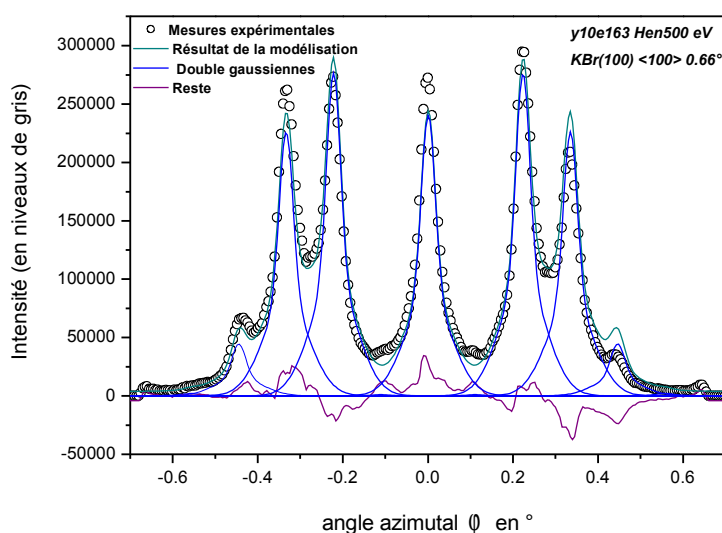


Fig 72: modélisation du profil d'intensité le long du cercle de conservation de l'énergie pour la direction <100>

Pour un relief de potentiel de forme sinusoïde, les amplitudes des gaussiennes modélisant la fraction cohérente du signal sont données par des fonctions de Bessel (voir section HCW). Sur la figure, les pics de diffraction présentent une base élargie qui correspond à la modélisation du fond incohérent par une gaussienne plus large. On peut voir de la courbe résultant de l'optimisation de la forme du relief représente assez bien la forme du profil d'intensité que nous mesurons. Cette courbe

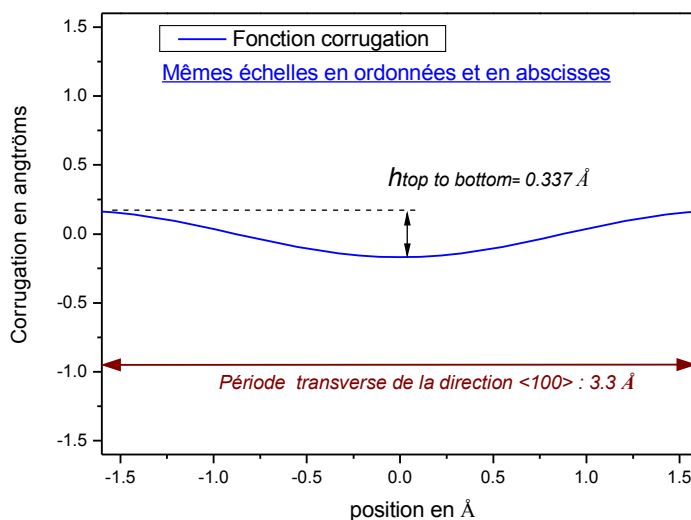
7.3 Résultats. Étude le long des directions <100> et <110>

correspond à un paramètre :

$$h_{\text{top to bottom}} = 0,337 \text{ \AA}$$

À partir du paramètre $h_{\text{top to bottom}}$ mesuré nous pouvons représenter la corrugation de la surface. On peut voir sur la figure 73 que pour l'énergie normale considérée, le relief du potentiel perçu par les atomes d'hélium est relativement doux.

Corrugation de la surface de KBr(100) le long de la direction <100> pour $E_n = 67 \text{ meV}$



Corrugation de la surface de KBr(100) le long de la direction <100> pour $E_n = 67 \text{ meV}$

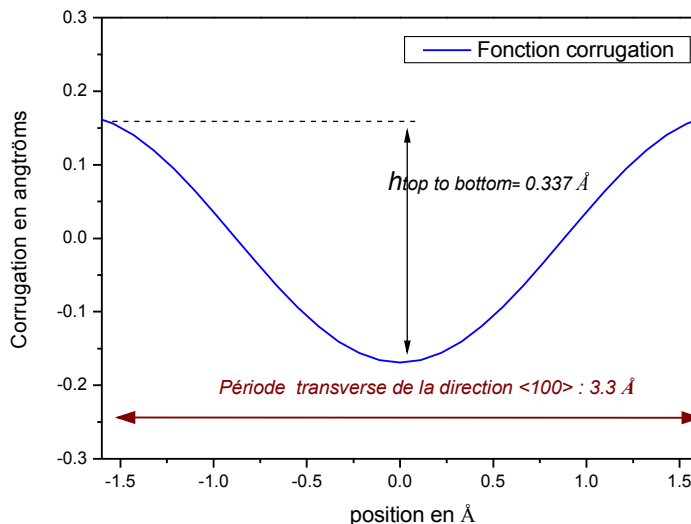


Fig 73: Corrugation de la surface de KBr (100) le long de la direction <100> pour des atomes d'hélium de 67 meV. L'image de dessus montre la corrugation à l'échelle d'une maille. . Dans l'image du bas l'échelle des ordonnées est augmentée d'un facteur 5

7.3 Résultats. Étude le long des directions $\langle 100 \rangle$ et $\langle 110 \rangle$

Nous répétons cette opération pour différentes énergies normales le long de la direction $\langle 001 \rangle$, en changeant l'angle d'incidence (entre 0,3 et 1°) et en maintenant l'énergie du faisceau constante à 500 eV.

Pour l'ensemble des images traitées le long de cette direction, une modélisation à l'aide d'une seule composante de corrugation suffit à bien représenter les mesures expérimentales. La figure 74 présente les profils d'intensité de deux motifs de diffraction obtenus le long de la direction $\langle 100 \rangle$ pour deux énergies normales "extrêmes" : 22 meV et 132 meV.

A grande énergie normale, la fraction incohérente de l'intensité devient très importante, et il est alors beaucoup plus difficile d'isoler le signal cohérent. Comme le montre la figure de droite correspondant à l'énergie normale de 132 meV, les amplitudes des bases "larges" des doubles gaussiennes modélisant les pics de diffraction sont plus importantes que celles des gaussiennes étroites, ce qui signifie que le fond diffus est dominant. À titre d'illustration, nous pouvons comparer les rapports $a = I_{\text{cohérent}} / I_{\text{totale}}$ calculés à partir des résultats des modélisations : à 132 meV, la fraction cohérente de l'intensité ne représente plus que 11% de l'intensité totale alors qu'elle est de 35% lorsque l'énergie normale est de 67 meV.

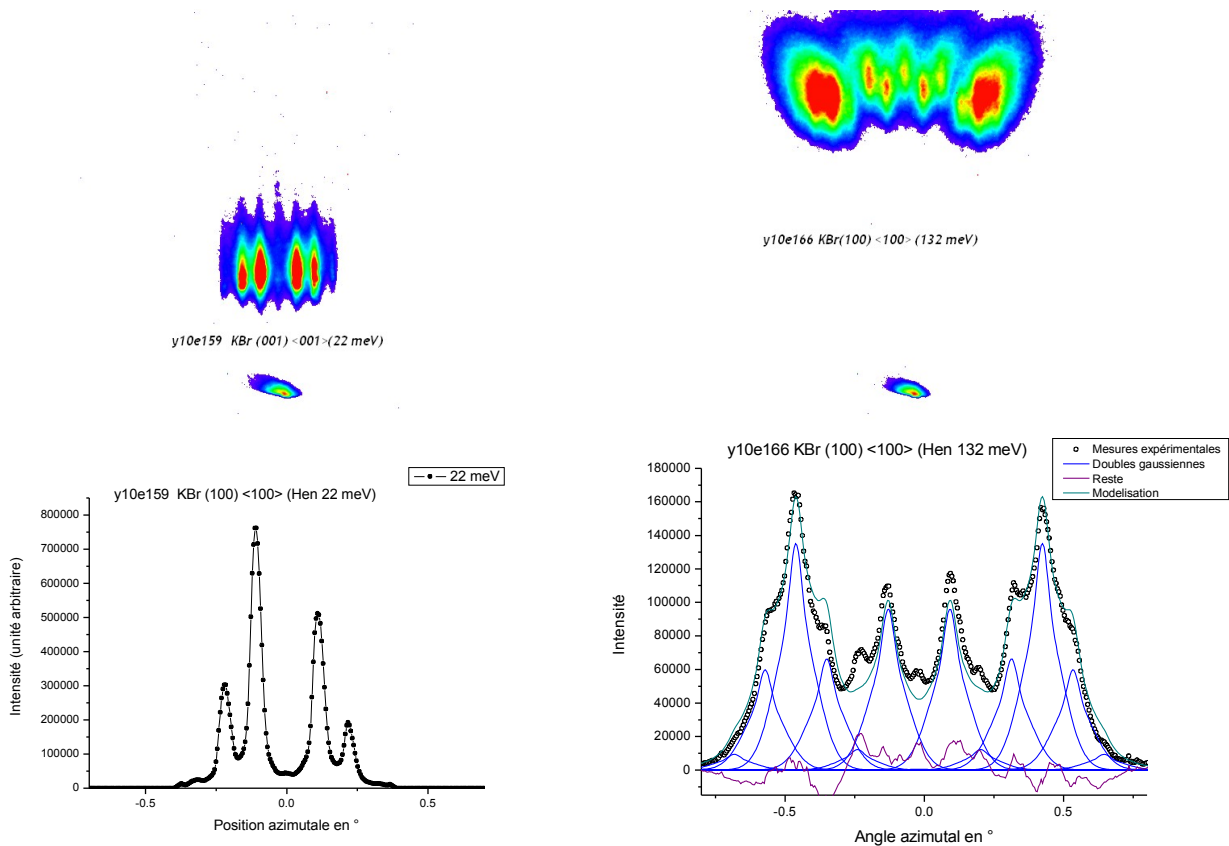


Fig 74: Analyse des profils d'intensité le long du cercle de Laue de motif de diffraction obtenu le long de la direction $\langle 100 \rangle$ pour des énergies normales de 22 meV (à gauche) et 132 meV (à droite)

7.3 Résultats. Étude le long des directions <100> et <110>

Evolution du rapport R en fonction de l'énergie normale le long de la direction <100>

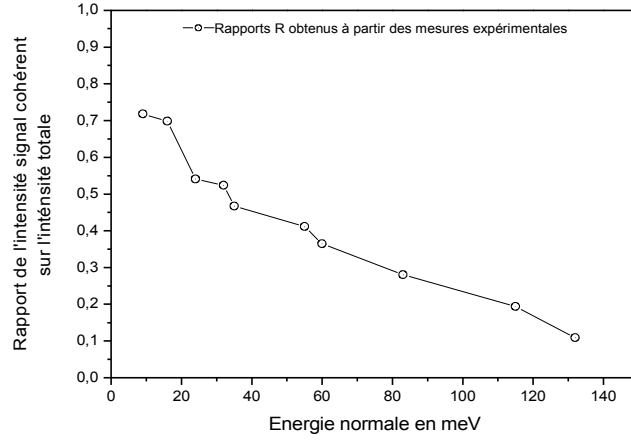


Fig 75: Évolution du paramètre R en fonction de l'énergie normale

En relevant le paramètre R pour les clichés étudiés, on peut obtenir la variation de la fraction cohérente du signal dans l'intensité totale en fonction de l'angle de l'énergie normale. Cette dernière est représentée par la figure Fig 75. Ce graphe montre clairement une diminution de la fraction cohérente avec l'augmentation de l'énergie normale, et les structures discrètes résolues, disparaissent au-delà de 130 meV.

Cette atténuation est due aux vibrations thermiques des atomes de la surface. Nous avons vu que pour les atomes rapides, l'atténuation de Debye-Waller suit une loi exponentielle décroissante dont l'exposant varie avec le cube de l'angle d'incidence :

$$I/I_0 = \exp(-\beta \theta^3) \quad \text{avec} \quad \beta = \frac{4M_p E_0 \Gamma a T}{m_s k_B \Theta_D^2} \quad (30)$$

Afin de comparer nos résultats à ce modèle théorique, nous traçons donc les valeurs du paramètre β mesuré en fonction du cube de l'angle d'incidence. Le graphe Fig 76 montre la modélisation de son évolution par une fonction exponentielle décroissante du premier ordre. On peut voir que les résultats sont assez bien reproduits par la courbe d'expression :

$$R(\theta) = 0,69 \exp(-2,38 \theta^3) .$$

À partir de la valeur de l'exposant trouvé on calcule en partant : $\Theta_{D(KBr)} = 100K$, $m_s = m_{Br} = 79 u.m.a$ (le long de cette direction, les ions potassium sont masqués par les ions bromure et la diffusion a lieu majoritairement sur ces derniers), $a_{<100>} = 3.3 \text{ \AA}$, $T = 300 K$, une raideur de potentiel de : $\Gamma = 3,9 \text{ \AA}^{-1}$. Cette valeur semble cohérente si on la compare avec celle de $\Gamma = 2 \text{ \AA}^{-1}$ de LiF(001) [49].

7.3 Résultats. Étude le long des directions <100> et <110>

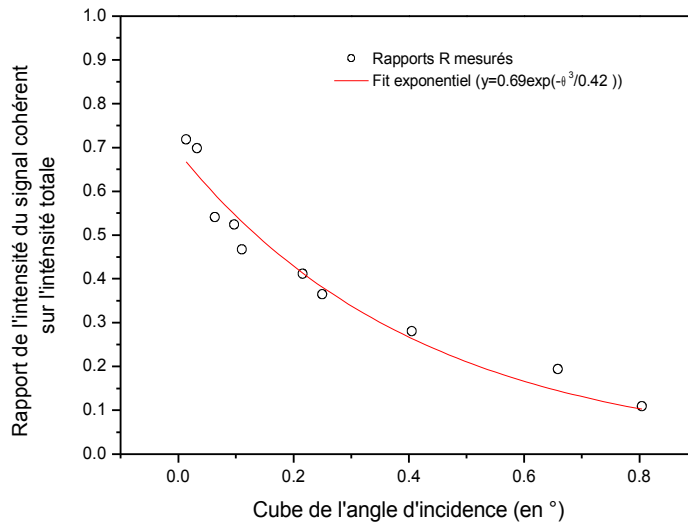


Fig 76: Évolution du rapport R avec le cube de l'angle d'incidence

D'autre part, pour chaque énergie normale, on relève l'amplitude de corrugation qui donne la meilleure modélisation des mesures expérimentales. La figure 77 présente les résultats obtenus pour la variation d'angle que nous venons de réaliser le long la direction <001>. Nous constatons que celle-ci varie très peu avec l'angle d'incidence (cf l'énergie normale). Ceci signifie que la corrugation que perçoit le projectile ne dépend pas de la distance de rebroussement par rapport à la surface.

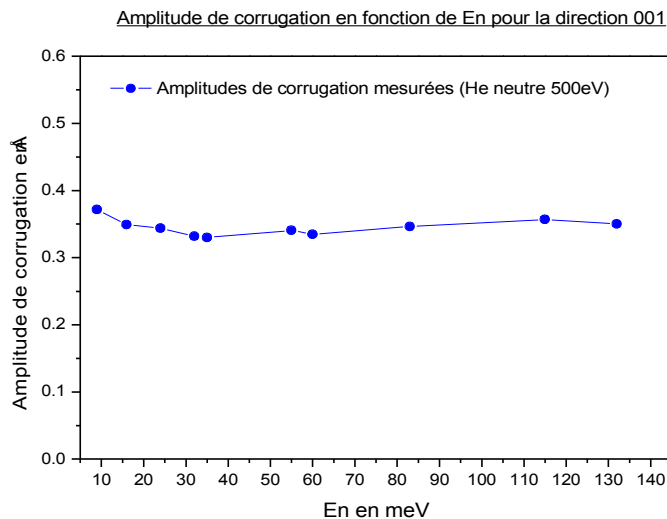


Fig 77: Évolution de l'amplitude de corrugation mesurée pour la série de variation de l'angle d'incidence

7.3.2 Étude de la direction $\langle 110 \rangle$

Nous reproduisons une même étude de variation de l'énergie normale pour la direction $\langle 110 \rangle$. Dans un premier temps, nous essayons de modéliser le profil d'intensité en considérant que la corrugation de la surface puisse être représentée par une fonction sinusoïdale, ce qui revient à ne considérer qu'une seule composante de Fourier. La figure 78 montre le profil d'intensité prise à partir de l'image y10e146 de la figure 70 et la meilleure modélisation obtenue avec une seule composante de corrugation. On constate que la modélisation ne reproduit que médiocrement nos données expérimentales, en particulier pour les ordres de faibles déviations angulaires : 0, -1, 1, -2 et 2 dont l'intensité est sous estimée. Afin d'améliorer la modélisation de nos mesures, nous choisissons une forme de potentiel un peu plus complexe dont la silhouette est décrite par la fonction :

$$\xi(y) = \frac{h_{\text{top to bottom 1}}}{2} \cos\left(\frac{2\pi}{a_{\langle 110 \rangle}} y\right) + \frac{h_{\text{top to bottom 2}}}{2} \cos\left(\frac{4\pi}{a_{\langle 110 \rangle}} y\right) \quad (31)$$

Cette forme de potentiel correspond à l'expression précédemment utilisée à laquelle nous avons ajoutée une deuxième fonction cosinus d'amplitude $h_{\text{top to bottom 2}}$ et de période deux fois plus petite.

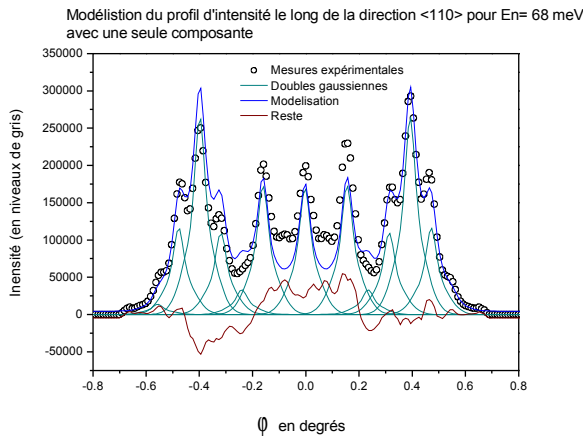


Fig 78: modélisation du profil d'intensité obtenu pour des atomes d'hélium possédant une énergie d'approche de 68 meV le long de la direction $\langle 110 \rangle$ avec une seule composante de Fourier

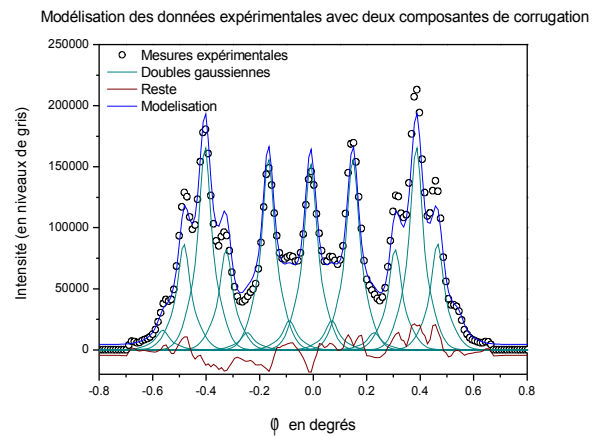


Fig 79: modélisation du profil d'intensité obtenu pour des atomes d'hélium possédant une énergie d'approche de 69 meV le long de la direction $\langle 110 \rangle$ avec deux composantes de Fourier

La figure 79 présente le résultat obtenu de la modélisation à deux composantes. Les intensités des premiers ordres sont mieux reproduites que dans le cas où une seule composante est utilisée. En revanche, les intensités des ordres 5 et 6 semblent être moins bien reproduites. Il faut

relativiser ces écarts. En effet, il apparait que la distribution d'intensité n'est pas tout à fait symétrique. Cette dissymétrie, assez flagrante pour les ordres -5 et -6 et 5 et 6 , peut être due au fait que le faisceau est légèrement désaligné par rapport à la direction $\langle 110 \rangle$, causant ainsi une sur-intensité des ordres 5 et 6 (voir la section 4.1.3 traitant du dés-alignement). De manière générale, il apparait que pour la gamme d'énergies normales explorée, une modélisation à partir de deux composantes de corrugation reproduit mieux les mesures des données expérimentales que si une seule composante est utilisée. Nous allons présenter les résultats obtenus avec ce modèle de potentiel lors de la variation de l'énergie normale. Les mesures ont été réalisées avec un faisceau d'atomes d'hélium d'énergie de 500 eV, en faisant varier l'angle d'incidence entre $0,3^\circ$ et $0,9^\circ$ pour des énergies normales allant de 15 meV à 117 meV.

La figure 80 présente l'évolution des amplitudes des deux composantes de Fourier décrivant la forme du potentiel (cf eq (31)) en fonction de l'énergie normale. Elle montre une diminution de ces deux amplitudes en fonction de l'énergie normale. Elles varient assez fortement entre 15 et 60 meV avant de décroître plus lentement à partir de 60 meV.

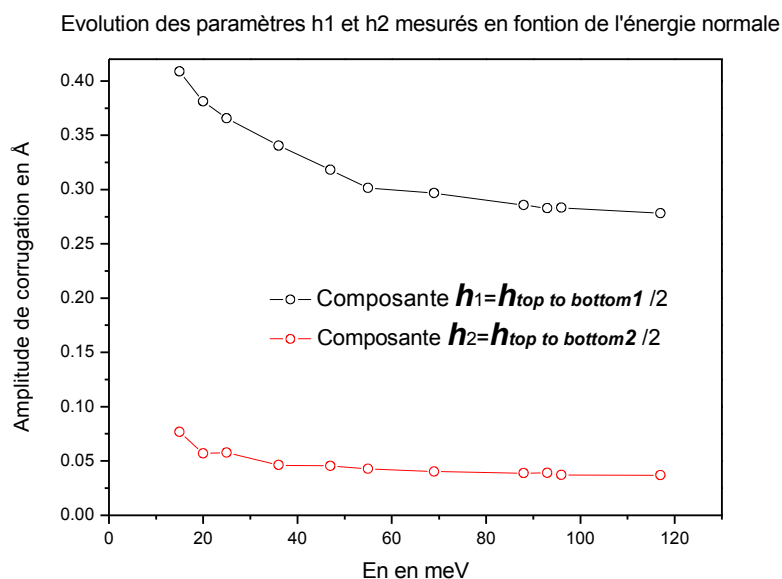


Fig 80: Composantes h_1 et h_2 mesurées en fonction de l'énergie normale

La figure 81 montre la corrugation de la surface obtenue pour chaque énergie normale à partir des paramètres h_1 et h_2 mesurés. Contrairement à la direction $\langle 100 \rangle$ la forme du potentiel n'est pas une sinusoïde parfaite, elle présente notamment un fond plat au centre de la période, c'est-à-dire au niveau de la position de la rangée d'ions potassium, mettant en évidence leur présence. La

7.3 Résultats. Étude le long des directions $\langle 100 \rangle$ et $\langle 110 \rangle$

forme du fond de la corrugation change peu avec l'énergie normale ce qui nous amène donc à constater que la corrugation de la surface ne fait pas clairement « ressortir » les ions potassium par une bosse de potentiel, et ce même à grande énergie normale, contrairement à ce qu'on aurait pu attendre.

Nous remarquons aussi que cette direction est caractérisée d'autre part par des valeurs de corrugation importantes par rapport à celles qui avaient été mesurées dans le cas de la direction $\langle 001 \rangle$. En effet, nous mesurons à 15 meV une "différence d'altitude entre les sommets de la rangée et le fond" valant 0.82 Å (alors que dans la direction $\langle 100 \rangle$ sa valeur était proche de 0,34 Å). Cette corrugation "peak to valley" diminue fortement avec l'énergie normale, et on mesure une différence d'altitude entre le fond et les sommets de 0.55 Å à 117 meV.

Corrugation de la surface le long de la direction $\langle 110 \rangle$ en fonction de l'énergie normale

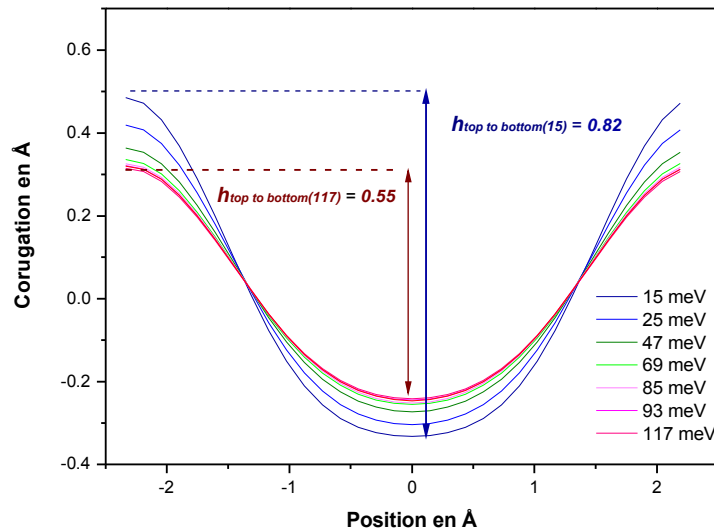


Fig 81: Corrugation le long de la direction $\langle 110 \rangle$

Dans notre étude, nous n'avons pu explorer que des énergies normales inférieures à 117 meV. Au-delà, la fraction incohérente de l'intensité devient beaucoup plus importante que le signal cohérent. Cette diminution de la fraction cohérente due à la plus grande sensibilité aux vibrations thermiques est explicitée par la figure Fig 82

De même que pour la direction $\langle 100 \rangle$, nous comparons les variations du paramètre a en fonction du cube de l'angle d'incidence avec une courbe exponentielle décroissante de premier ordre. Nous constatons que les mesures sont assez bien reproduites par la courbe d'équation :

$$R(\theta) = 0,75 \exp(-3,9\theta^3)$$

7.3 Résultats. Étude le long des directions <100> et <110>

À partir de la valeur de l'exposant trouvé on calcule en partant : $\Theta_{D(KBr)} = 100\text{K}$,
 $m_s = (m_{Br} + m_K) / 2 = 37 \text{ u.m.a}$, $a_{<110>} = 4.67 \text{ \AA}$, $T = 300 \text{ K}$, une raideur de potentiel de :
 $\Gamma = 4,2 \text{ \AA}^{-1}$. Cette valeur est du même ordre de grandeur que celle mesurée dans la direction <100>.

On remarquera toutefois que contrairement à la direction <100>, la direction <110> possède en fait deux raideurs: une associée à la rangée de potassium et une à la rangée de brome. La valeur ici trouvée est une « estimation simultanée » des deux.

Evolution de la fraction d'intensité cohérente sur l'intensité totale pour la direction <110>

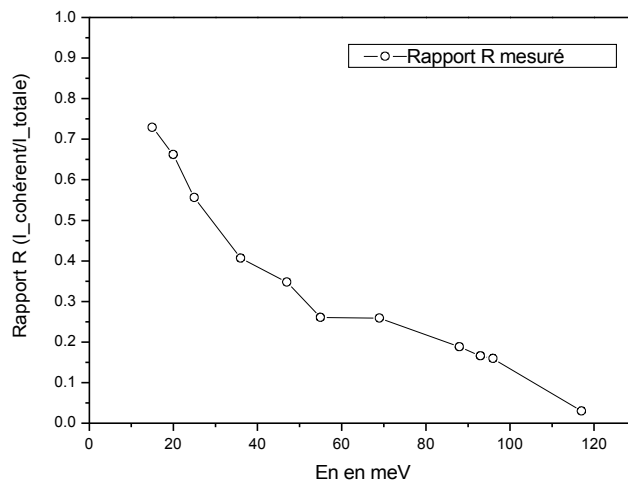


Fig 82: Évolution de la fraction cohérente de l'intensité en fonction de l'énergie normale pour la direction <110>

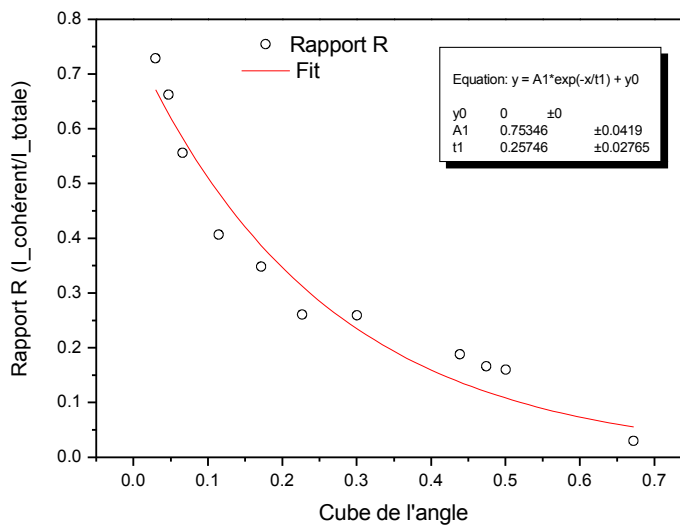


Fig 83: Évolution du rapport R avec le cube de l'angle d'incidence

7.4 Interprétation des résultats

Nous avons obtenu au cours de cette étude la corrugation en fonction de l'énergie normale pour deux directions cristallographiques majeures de KBr(001) : la direction $\langle 100 \rangle$ et la direction $\langle 110 \rangle$. Les énergies normales mises en jeu vont de 10 meV à 130 meV. Pour cette gamme d'énergies, nous observons des structures discrètes résolues correspondant à la diffraction cohérente entre plusieurs rangées. Nous avons pu constater que les distributions d'intensité que nous donne le modèle Hard Corrugated Wall et la méthode empirique basée sur une association de doubles gaussiennes permet de bien reproduire nos mesures expérimentales dans les deux directions et pour la gamme d'énergies normales que nous avons étudiés.

D'autre part, les rapports R de l'intensité du signal cohérent sur l'intensité totale que nous avons obtenu avec la modélisation des doubles gaussiennes semblent diminuer pour les deux directions en suivant une évolution en $\exp(-\beta\theta^3)$, comme énoncé précédemment, et nous calculons à partir des paramètres mesurés des valeurs de la raideur de potentiel du même ordre de grandeur ($\Gamma_{100}=3,9 \text{ \AA}^{-1}$ et $\Gamma_{110}=4,2 \text{ \AA}^{-1}$)

En ce qui concerne l'étude de la corrugation, nous avons vu que les résultats obtenus le long de la direction $\langle 100 \rangle$ sont bien reproduit par un potentiel de forme sinusoïdale. Un constat similaire avait été fait par Patrick Rousseau lors de son étude des surfaces de NaCl(001) et LiF(001) pour cette même direction dans une gamme d'énergie proche [57].

Nous avons mesurées à 68 meV une amplitude de corrugation $h_{\text{top to bottom}}=0,337 \text{ \AA}$. Cette mesure est en bon accord avec le résultat d'une étude réalisée en TEAS par Chern et Skofronik [98] qui ont mesuré une corrugation "peak to valley" de 0.3 Å avec des atomes d'hélium thermiques de longueur d'onde 7 \AA^{-1} et d'énergie normale équivalente proche de 25 meV. La valeur de l'amplitude de corrugation varie par ailleurs peu avec l'énergie normale.

Dans le cas de la direction $\langle 110 \rangle$, les mesures sont bien reproduites par une forme de potentiel dont la description mathématique comporte deux composantes de Fourier. Cet ajout d'une deuxième composante par rapport à la direction $\langle 100 \rangle$ s'avère aussi nécessaire pour les surfaces de LiF(100) et de NaCl(100) pour ce même type de direction [57]. Elle met en évidence la présence du cation au centre de la rangée. Cette direction $\langle 110 \rangle$ est très fortement corruguée par rapport à la direction $\langle 100 \rangle$ et nous mesurons une corrugation "peak to valley" de 0,8 Å à 15 meV.

La figure 84 résume les mesures de la corrugation réalisées pour les deux directions en

7.4 Interprétation des résultats

fonction de l'énergie normale. On constate une diminution de la corrugation le long de la direction $\langle 110 \rangle$ avec l'augmentation de l'énergie normale et une relative stabilité de la corrugation de la direction $\langle 100 \rangle$.

Ces comportements peuvent s'expliquer ainsi : le long de la direction $\langle 100 \rangle$, le projectile voit essentiellement les atomes de Brome. Ces atomes sont très « durs » dans le sens où ils possèdent une très forte densité électronique, et malgré l'augmentation de son énergie normale, le projectile peu difficilement déformer « le relief » de potentiel (la raideur est importante). En revanche dans la direction $\langle 110 \rangle$, le projectile voit des rangées d'atomes de Brome et des rangées de potassium. A faible énergie, c'est-à-dire à grande distance de la surface, il ressent surtout les densités électroniques des bromures, et très faiblement celle du potassium. Lorsqu'on augmente son énergie, il peut en revanche s'enfoncer davantage entre les deux rangées de bromures et s'approcher du sommet de la rangée de potassium. Le relief de la corrugation est donc déformé avec l'énergie normale jusqu'à ce que la densité électronique des potassium qu'il ressent devienne trop importante. La forme du relief de potentiel est alors peu déformable, expliquant ainsi la stabilisation de la corrugation aux grandes énergies normales.

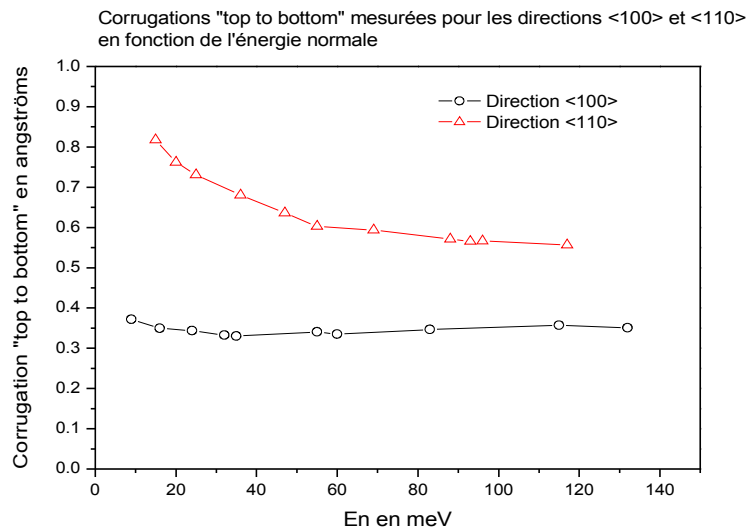


Fig 84: Corrugations "top to bottom" mesurées pour les directions $\langle 100 \rangle$ et $\langle 110 \rangle$ en fonction de l'énergie normale.

Il est intéressant de comparer ces résultats avec ceux obtenus sur des systèmes similaires, comme ceux obtenus par le groupe sur une surface de LiF (001) avec la diffraction d'atomes rapides. La figure ci-dessous (Fig 85) présente les résultats d'une étude réalisée avec des atomes d'hélium de 400 eV pour une gamme d'énergies allant de quelques dizaines de meV à 450 meV.

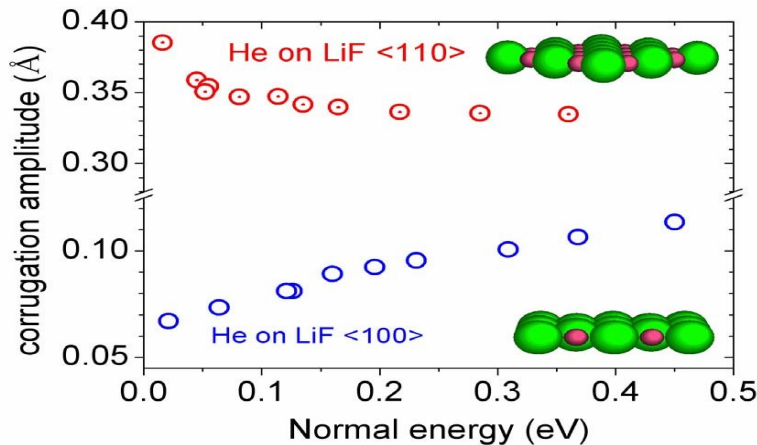


Fig 85: Corrugations mesurées sur une surface de LiF(001) (publication : Rousseau & al -surface analysis with GIFAD)

La première chose que l'on remarque sur ce graphe est la différence importante entre les amplitudes de corrugation le long des directions $\langle 100 \rangle$ et $\langle 110 \rangle$. La direction $\langle 110 \rangle$ est beaucoup plus corruguée de la direction $\langle 100 \rangle$; à 40 meV, une corrugation de 0.33 Å a été mesurée [63], là encore en bon accord avec une mesure en TEAS à 25 meV : $0.31 \pm 0.01 \text{Å}$ ([99]). Dans le domaine d'énergies normales allant de 0 à 150 meV, la figure montre une diminution de l'amplitude de la corrugation avec l'énergie normale alors que celle de la direction $\langle 100 \rangle$ augmente.

En comparant ces comportements à nos résultats obtenus sur la surface de KBr(001) dans leur gamme d'énergies normales communes, on peut constater des similarités entre la surface de KBr et la surface de LiF(001). Il apparaît pour ces deux surfaces que la direction $\langle 110 \rangle$ est beaucoup plus corruguée que la direction $\langle 100 \rangle$. D'autre part, on observe pour ces deux échantillons une diminution de la corrugation en fonction de l'énergie normale entre 0 et 150 meV pour la direction $\langle 110 \rangle$. En revanche, une augmentation de la corrugation dans la direction $\langle 100 \rangle$ est mesurée dans le cas de LiF(001) alors que dans le cas de KBr cette valeur ne semble pas (ou très peu) évoluer avec l'augmentation de l'énergie normale.

Si on considère qu'une forme de potentiel peu déformable traduit le fait que la raideur du potentiel est très importante et que les densités électroniques sondées sont très élevées, le fait que l'amplitude de corrugation se stabilise rapidement dans la direction $\langle 110 \rangle$ pour KBr autour de 0,55 Å tend à montrer que le « sommet » de l'ion potassium situé au centre des rangées est ressenti à plus faible énergie normale que pour LiF. Ceci va donc dans le sens de la comparaison entre les rapports des rayons ioniques : 0,7 pour KBr, 0,56 pour LiF. On remarquera par ailleurs que l'amplitude de corrugation de 0,55 Å mesurée est très proche de la différence de taille entre les rayons ioniques du

7.4 Interprétation des résultats

brome et du potassium : $R_{Br} - R_K = 0,58 \text{ \AA}$. La légère différence entre ces deux valeurs pourrait même suggérer qu'on puisse sentir le « rumpling ». Cependant, pour s'assurer que c'est bien le cas, des mesures à plus hautes énergies normales via l'étude des « supernumerary rainbows » ainsi que des comparaisons de nos données avec des simulations numériques seraient nécessaires. De telles études ont été réalisées par le groupe de Berlin pour LiF(001) et plus récemment pour KCl(001) [100] en comparant leurs mesures et des simulations.

Comme nous pouvons nous en rendre compte en étudiant le graphique présentant les résultats obtenus sur LiF. Une différence importante entre cette étude et celle sur la surface de KBr(100) que nous venons de présenter est la gamme d'énergie normale dans laquelle les mesures ont été réalisées. Dans le cas de la surface de LiF(001) des pics de diffraction ont été enregistrés pour des énergies de plusieurs centaines de meV alors que dans le cas de KBr(001), le signal cohérent provenant de la diffraction entre les rangées disparaît au-delà de 120-130 meV. Cette atténuation du signal cohérent provient, comme nous l'avons vu, des vibrations thermiques des atomes de la surface et sa variation en fonction de l'angle d'incidence selon :

$$I/I_o = \exp(-\beta \theta^3) \quad \text{avec} \quad \beta = \frac{4 M_p E_0 \Gamma a T}{m_s k_B \Theta_D^2} .$$

On peut comprendre la différence entre les deux surfaces en comparant les facteurs d'atténuation que l'on aurait sur KBr et sur LiF à une même température et une même énergie de faisceau. Leur rapport est donné par l'expression :

$$\frac{\beta_{KBr}}{\beta_{LiF}} = \frac{\Gamma_{KBr} a_{KBr} m_{LiF} \Theta_{D_{KBr}}^2}{\Gamma_{LiF} a_{LiF} m_{KBr} \Theta_{D_{LiF}}^2}$$

En considérant la direction $\langle 100 \rangle$ et en prenant les valeurs des températures de Debye :

$$\Theta_{D(LiF)} = 550\text{K} \quad \text{et} \quad \Theta_{D(KBr)} = 100\text{K} \quad \text{on a} :$$

$$a_{KBr}/a_{LiF} = 6,6/4,04 = 1,63 \quad \text{et} \quad m_{LiF}/m_{KBr} = 19/79 = 0,24 \quad (\text{rapport des masses des anions}) \quad \text{et}$$

$$\Theta_{D(LiF)}^2/\Theta_{D(KBr)}^2 \approx 25$$

Ce qui nous donne donc un rapport des exposants :

$$\frac{\beta_{KBr}}{\beta_{LiF}} \approx 10 \frac{\Gamma_{KBr}}{\Gamma_{LiF}}$$

À travers cette formulation nous pouvons voir que le cas où les constantes de raideur sont du même ordre de grandeur, le facteur d'atténuation de l'intensité dans le cas de KBr est beaucoup plus important que dans le cas de LiF, et par conséquent pour un même angle d'incidence, la fraction

d'intensité cohérente sera bien plus faible. On comprend donc mieux pourquoi l'étude de la surface de KBr est limitée à de plus faibles valeurs de l'énergie normale.

7.4.1 Conclusion de l'étude et perspectives

Nous venons de présenter une étude des corrugations de la surface de KBr(001) en fonction de l'angle d'incidence. Nous avons mesuré que la corrugation de la direction $\langle 100 \rangle$ varie peu (pour la gamme d'énergie normale étudiée) et reste proche de 0,34 Å. Nous mesurons en revanche que cette dernière est très marquée le long de la direction $\langle 110 \rangle$ mais diminue avec l'énergie normale (0,8 Å à 15 meV) avant de se stabiliser autour de 0,55 Å. Des études à plus grandes énergies normales permettraient de vérifier le comportement de la corrugation le long de la direction aux plus grands angles. Cependant, compte tenu du fait que le signal provenant de la diffraction cohérente entre plusieurs rangées est très faible au-delà des énergies que nous avons étudiées, de telles mesures devraient être réalisées via une étude des « supernumerary rainbows » dont les conditions de cohérence sont moins restrictives.

Par ailleurs il serait intéressant de comparer les résultats que nous avons obtenus dans notre étude avec ceux de simulations afin d'estimer le « rumpling » de la surface de KBr, et compléter ainsi les mesures réalisées en diffraction d'atomes rapides sur LiF et KCl.

7.4 Interprétation des résultats

8 Étude des composantes d'un profil de diffraction

8.1 Introduction : premières analyses

Lors des études des surfaces de KBr(001) et NaCl(001) avec notre nouveau dispositif, nous avons été surpris d'observer sur les ordres de diffraction de nos clichés des pics très fins et très intenses à l'intersection des raies de Bragg et du cercle de Laue (conservation de l'énergie) ! La figure 86 montre un cliché de diffraction où apparaissent de tels pics. Cette observation fut d'autant plus étonnante que des études sur les surfaces de KBr(001) et sur NaCl(001) avaient été déjà réalisées sans que soient mis en évidence de tels pics (voir Fig 87). Les pics de diffraction observés jusqu'à présent montraient au contraire une distribution d'intensité polaire assez large. Ces structures, que nous appellerons « raies de Bragg » afin de bien les différencier des pics très fins (que nous appellerons aussi « pics de Bragg »), avaient été jusqu'à maintenant interprétées comme étant le résultat de la diffraction sur des rangées juxtaposées d'une onde transverse transportée par un mouvement longitudinal « classique » (voir section 4.1.1). Ces « raies de Bragg » sont encore présentes sur les clichés de diffraction où apparaissent les pics fins, comme le montre l'image 86 et leur coexistence avec les « pics de Bragg » suggère que nous sommes en présence de deux régimes de diffraction. Ce résultat à de quoi surprendre ! En effet compte-tenu du découplage entre les mouvements parallèle et normal (voir les parties sur les principes de diffusion et de la diffraction), on supposait que le mouvement parallèle devait être classique. De ce point de vue, l'observation de distribution angulaire log-normale identique à celle établie dans le régime classique ([45][31][42]) était une indication (voir section 3.4.2.2). De plus un mouvement parallèle quantique semblait fortement improbable à cause de la vitesse très élevée, et de sa longueur d'onde associée très faible (inférieure au picomètre) par rapport au paramètre de maille d'une part et surtout à l'amplitude de vibration des atomes de surface (de l'ordre de la centaine de picomètres).

Sur les nouvelles images, la présence de pics fins situés à l'intersection des ordres de diffraction et du cercle de conservation de l'énergie présente les caractéristiques du régime élastique. Cela nous amène donc à nous demander si le mouvement dans la direction longitudinale ne présente pas lui aussi un caractère quantique ? Ce chapitre s'efforce de caractériser ce pic fin et les conditions d'observation.

Remarque: Sur les images présentées dans ce chapitre, la gamme de couleurs permettant de représenter l'intensité a été modifiée, afin de faire ressortir le « pic fin ». Les couleurs vives (jaune) montrent les zones de fortes intensités alors que les zones sombres représentent les faibles intensités.

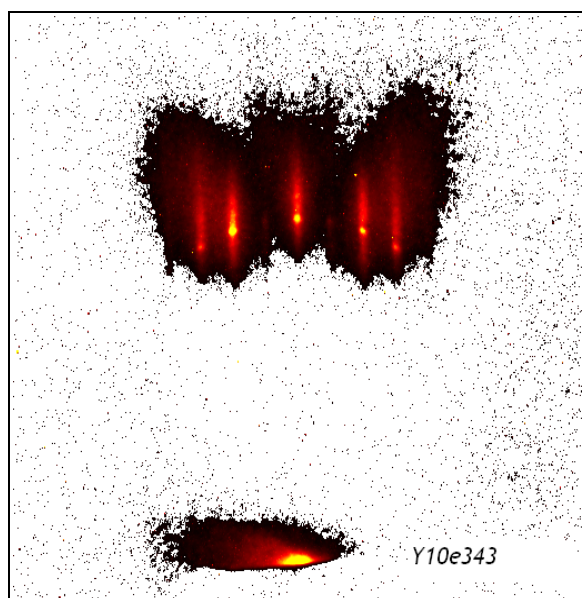


Fig 86: Image enregistrée sur KBr(001) avec des atomes d'hélium de 300 eV le long de $\langle 001 \rangle$ (angle : $0,76^\circ$).

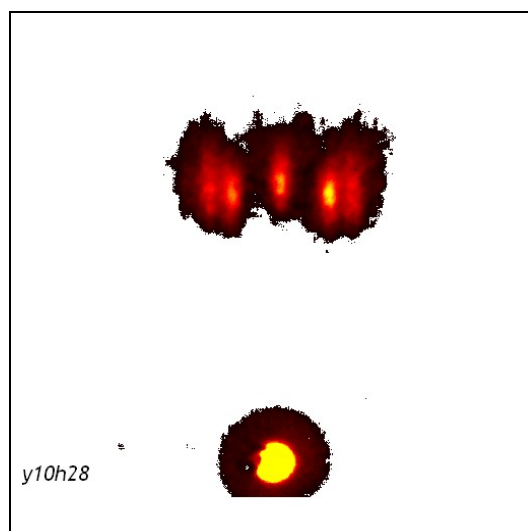


Fig 87: Image enregistrée sur KBr(001) avec des atomes d'hélium de 400eV le long de $\langle 001 \rangle$ (angle: $0,74^\circ$). Sur cette image nous n'observons pas de pic fin

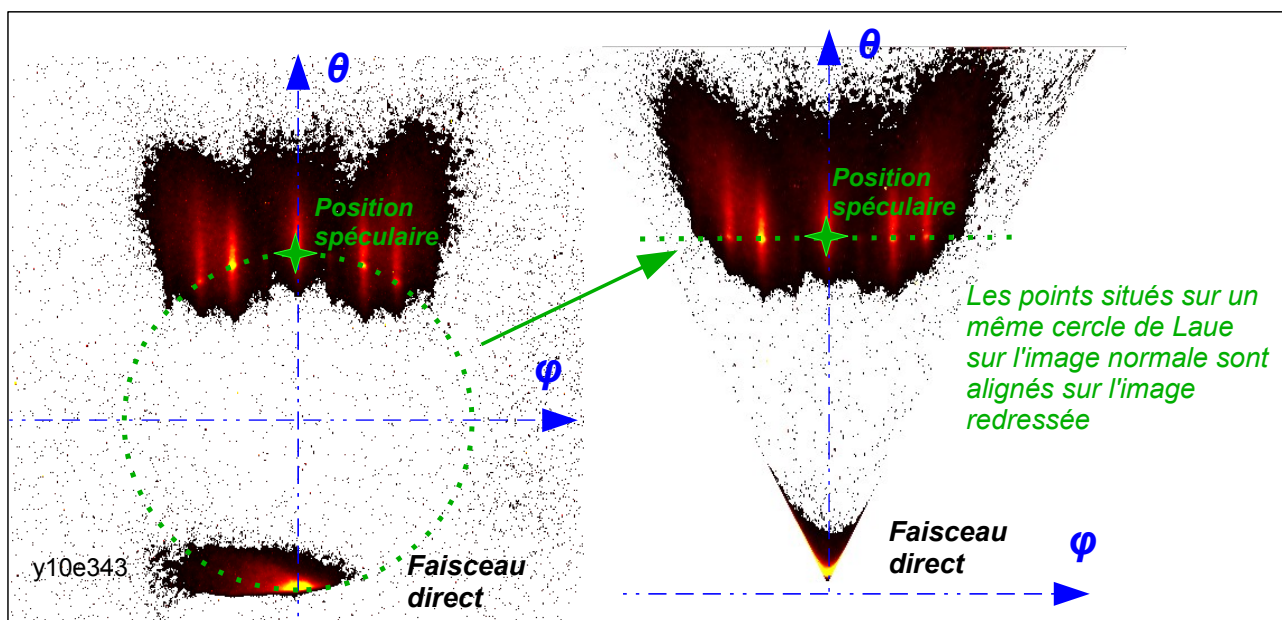


Fig 88: Principe du redressement d'image. Cette transformation place les points situés sur un même cercle de Laue le long d'une droite dont l'ordonnée est fixée par le position du spéculaire. Elle conserve la position des points situés sur l'axe polaire (donc le spéculaire et le faisceau direct) ainsi que le parallélisme des raies de Bragg.

8.2 Premières analyses

8.2.1 Profil polaire

Les pics de Bragg que nous venons de présenter peuvent être clairement mis en évidence, tout comme la forme allongée « des raies de Bragg », par une projection polaire de l'ensemble du profil, comme le montre l'image 89. Ce graphe présente les projections de l'image précédente (Fig 86) ainsi que de celle d'une image enregistrée sur KBr(001) (Fig 87) pour un angle d'incidence proche. Ce graphe montre clairement que le pic fin pousse sur la « raie de Bragg ». Remarquons que de telle projection requiert un redressement de l'image qui place les points situés sur un même cercle sur une droite d'ordonnée constante égale à la position radiale du spéculaire. Cette transformation est très appropriée pour étudier la distribution en intensité radiale du profil puisqu'elle permet d'aligner tous les ordres d'un même cercle et de conserver le parallélisme des raies de Bragg. Le principe de cette transformation est rappelé par la figure 88.

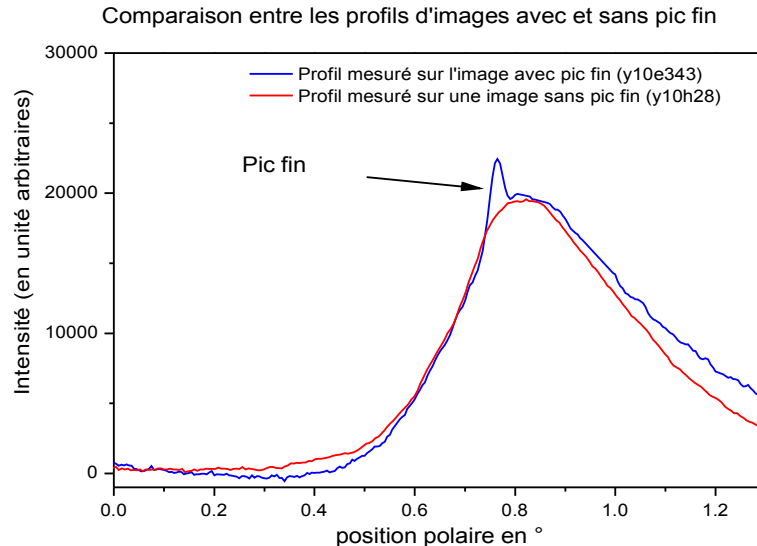


Fig 89: Projections polaires des intensités des images y09h28 et y10e343

De même, lorsque nous mesurons les distributions d'intensité le long de la direction polaire pour un ordre de diffraction donné (ordre 1 sur Fig 90) et celle de l'intensité entre deux ordres (entre l'ordre 0 et 1) d'une même image (ayant été auparavant redressée), nous constatons que le pic très

intense est bien absent entre deux ordres de diffraction, ce qui confirme que ce signal provient bien d'une diffraction entre plusieurs rangées juxtaposées. L'intensité que nous mesurons entre les ordres provient essentiellement du fond classique diffus (incohérent) dont la distribution polaire est de forme log-normale[45] avec une extension vers les grands angles (voir section 3.4.2.2). Par ailleurs, nous constatons que l'intensité du pic très intense sur l'ordre de diffraction considéré est très importante, beaucoup plus que ne le laisse paraître la figure 89. Cela s'explique par le fait qu'en projetant l'intensité de l'ensemble du profil, nous avons projeté aussi l'intensité du fond diffus entre les ordres qui ne fait pas apparaître de surintensités marquées.

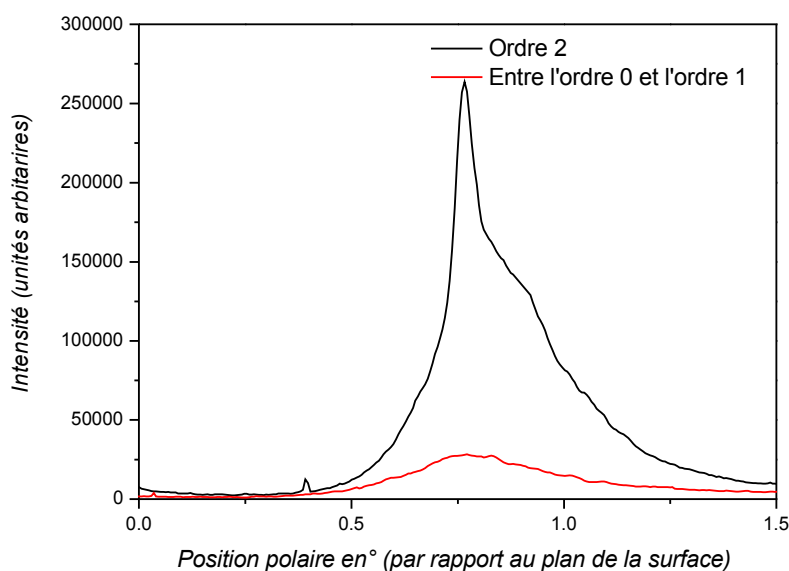


Fig 90: Intensité entre les ordres

8.2.2 Profil azimuthal

Les distributions d'intensités entre les ordres de diffractions sont-elles les mêmes pour les pics fins que pour les raies de Bragg ? Autrement dit, les atomes qui ont formé les pics fins ont-ils vu la même surface que ceux qui ont formé les raies de Bragg. Les figures 91 et 92 montrent les profils d'intensité que l'on obtient lorsqu'on projette l'intensité du cliché de diffraction de la figure 86 préalablement redressé le long de la droite le long de laquelle les pics fins sont alignés (énergie

8.2 Premières analyses

normale de 53 meV) et le long d'une zone de l'image très proche de la précédente mais ne contenant pas de pics fins (énergie normale de 55 meV). On constate que les deux distributions d'intensité sont très similaires et par ailleurs on mesure la même corrugation pour les deux zones :

$h_{\text{topbottom}} \approx 0,36 \text{ \AA}$, ce qui signifie que les atomes des pics de fins et les raies de Bragg voient la même surface « corruguée ».

En revanche, les rapports de l'intensité du signal cohérent sur l'intensité totale R que nous mesurons pour ces deux zones sont différents : nous mesurons $R=0,40$ sur le cercle de Laue, et $R=0,25$ pour la zone ne contenant pas de pics fins. Cette différence entre les deux facteurs de cohérence mesurés peut se comprendre si on prend en compte que sur le cercle de Laue, le signal cohérent correspond aux pics très fins et aux raies de Bragg alors qu'il n'est constitué que des raies de Bragg hors du cercle. Dans ce cas, dans la zone contenant les pics ce rapport est donnée :

$$R_{\text{Laue}} = \frac{I_{\text{cohérent}}}{I_{\text{totale}}} = \frac{(I_{\text{Raie}} + I_{\text{picfin}})}{(I_{\text{Raie}} + I_{\text{picfin}} + I_{\text{classique}})}$$

alors que dans pour la zone sans les pics, il vaut :

$$R_{\text{HorsLaue}} = \frac{I_{\text{cohérent}}}{I_{\text{totale}}} = \frac{I_{\text{Raie}}}{(I_{\text{Raie}} + I_{\text{classique}})}$$

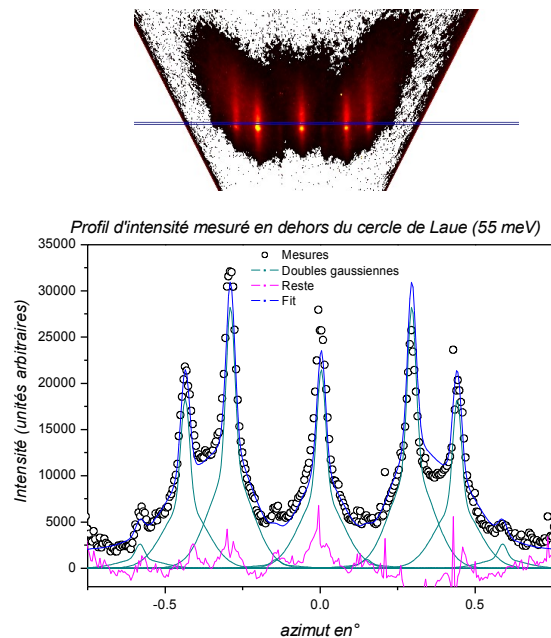
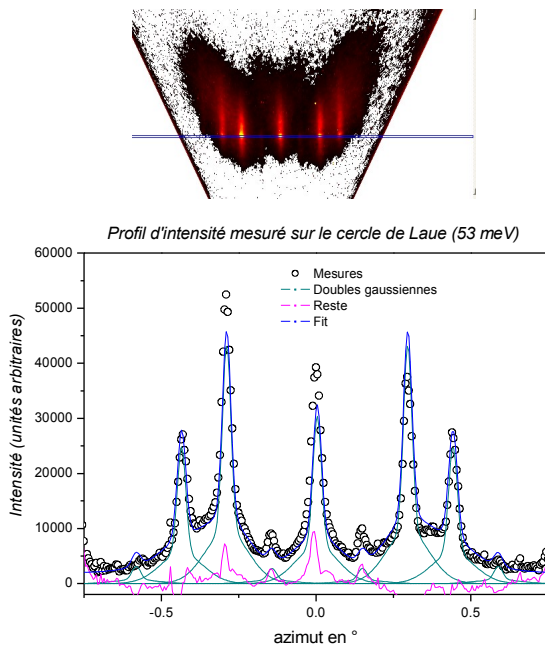


Fig 91: Profil d'intensité mesuré le long du cercle de Laue de la figure 86

Fig 92: Profil d'intensité mesuré hors du cercle de Laue

Ainsi comme nous venons de le voir, la présence de pics fins est caractérisée par un facteur

8.2 Premières analyses

de cohérence R particulier. En revanche, la corrugation mesurée reste la même. La figure 93 résume ces aspects. Elle montre les évolutions du rapport R et de la corrugation lorsqu'on fait un balayage des raies de Bragg à différents angles de sortie pour le même cliché de diffraction (celui de l'image 87). Le profil d'intensité polaire y est par ailleurs représenté.

La figure 94 présente une modélisation de l'évolution du facteur de cohérence à l'aide d'une double gaussienne. La gaussienne la plus étroite ($w=0.073^\circ$) mettant en évidence la présence du pic fin.

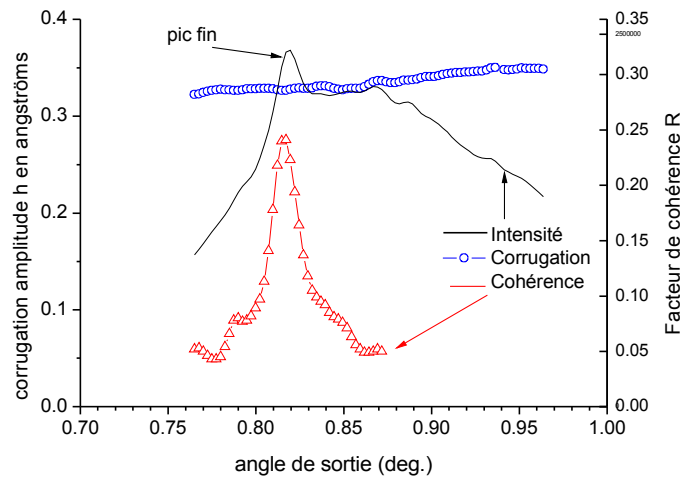


Fig 93: Mesures du facteur de cohérence R et de la corrugation pour différents angle de sorties

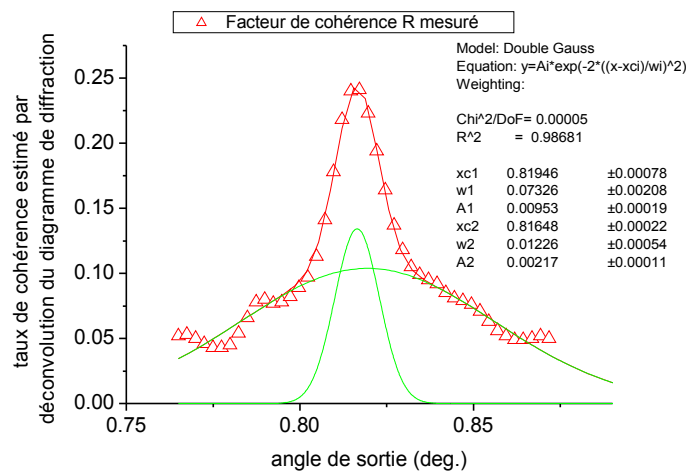


Fig 94: Modélisation de l'évolution du facteur de cohérence en fonction de l'angle de sortie à l'aide d'une double gaussienne

8.3 Principe de la mesure

Afin de chercher à caractériser davantage ce pic fin, nous avons cherché à connaître l'évolution de sa largeur et de son intensité lors de deux types de séries de mesures : une mesure de variation de l'angle d'incidence, et une variation de la température. Par ces expériences nous espérons tirer des informations concernant sa distribution d'intensité, et savoir si ce « pic de Bragg » présente le même comportement que les « raies de Bragg » jusque là observées. Les mesures que nous allons présenter ont été faites sur une surface de NaCl(001) avec des atomes d'hélium de 450 eV le long d'une direction $\langle 100 \rangle$ pour laquelle les pics de Bragg présentant des intensités particulièrement marquées ont été observés.

8.3.1 Méthode d'analyse

Nous avons vu dans la partie traitant de l'effet « local tilt » (section 3.4.3) que pour un angle d'incidence donné, l'angle effectif pour un angle de sortie quelconque est $\theta_{eff} = (\theta_{inc} + \theta_{out})/2$. D'autre part nous avons vu que l'intensité entre les ordres de diffraction varie avec l'énergie normale. Si on considère donc un ordre donné, tout se passe comme si l'intensité de cet ordre à un angle de sortie quelconque provenait de la diffraction d'une onde normale dont la longueur d'onde effective serait reliée à l'angle effectif de diffusion $\theta_{eff} = (\theta_{inc} + \theta_{out})/2$. Cela signifie que le profil angulaire d'une raie de Bragg est affecté d'un facteur de forme qui dépend fortement de la longueur d'onde normale et donc de l'angle de sortie. En revanche la somme des intensités diffractées n'est pas affectée, puisque pour une énergie normale donnée, la somme des intensités relatives de tous les ordres d'un motif de diffraction vaut 1 (Pour tous les ordres n : $\sum P_n = 1$). D'où la stratégie suivie ici de travailler sur **le profil complet** plutôt que sur un ordre donné.

Afin de pouvoir isoler les pics fins, il est nécessaire de chercher à modéliser au mieux leur environnement, c'est-à-dire la base élargie sur laquelle ils reposent. Nous pouvons remarquer que cette dernière présente une forme très proche de celle que l'on mesure pour la projection polaire d'intensité d'un motif de diffraction sur lequel il n'y aurait pas de pic fin. Dans un travail préliminaire, nous avons donc recherché quelle est la modélisation la plus appropriée pour représenter le profil de la projection d'intensité d'un motif de diffraction le long de la direction polaire.

A l'issue de notre travail, nous avons retenu une association de deux fonctions log-normales de largeurs différentes, qui pourraient correspondre au fond incohérent pour la plus large et au

signal des raies de Bragg pour la plus étroite. Nous allons voir les arguments supportant cette hypothèse.

En ce qui concerne la forme de la distribution du signal purement classique, elle est connue dans le cas d'une direction aléatoire où elle est bien représentée par une fonction lognormale dont la largeur dépend de la température[45]. Nous avons également vérifié qu'une lognormale modélise assez bien le fond classique dans le cas d'une direction de canalisation.

En ce qui concerne le signal cohérent, nous avons vu que son intensité varie avec l'angle d'incidence et que son atténuation est donnée par un facteur de Debye-Waller effectif (pour le cercle de Laue). Pour un même cliché de diffraction, lorsqu'on se déplace le long de l'axe polaire, et qu'on relève l'intensité relative du signal cohérent par rapport à l'intensité totale, on constate que le rapport :

$$R'(\theta_{out}) = \frac{I_{cohérent}(\theta_{out})}{I_{totale}(\theta_{out})}$$

varie selon l'angle d'observation θ et décrit une courbe en cloche présentant un maxima à l'angle spéculaire comme on peut le voir sur la figure 95 qui montre des mesures de ce rapport sur un cliché enregistré sur LiF(001). Si on considère qu'en absence de diffraction (diffusion parfaitement classique) la distribution de l'intensité est de forme lognormale $I(\theta) = \text{Lognormale}(\theta)$, on peut essayer de définir une fonction $R'(\theta_{out})$ telle à ce que l'intensité des raies de Bragg suive une distribution du type :

$$I_{raie}(\theta) \approx \text{Lognormale}(\theta) * R'(\theta) \tag{32}$$

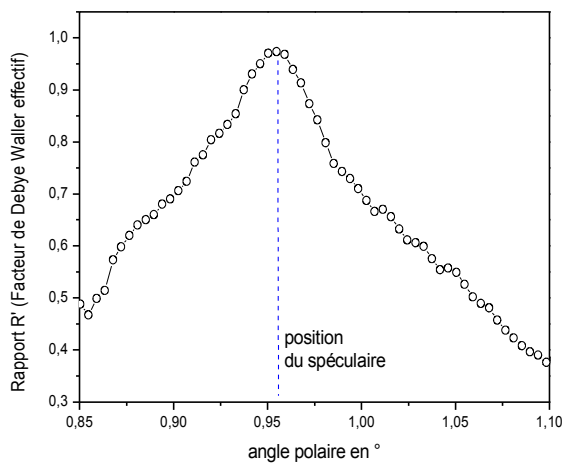


Fig 95: Mesures du facteur de Debye Waller effectif pour différents angles sur un même cliché de diffraction enregistré sur LiF(001)

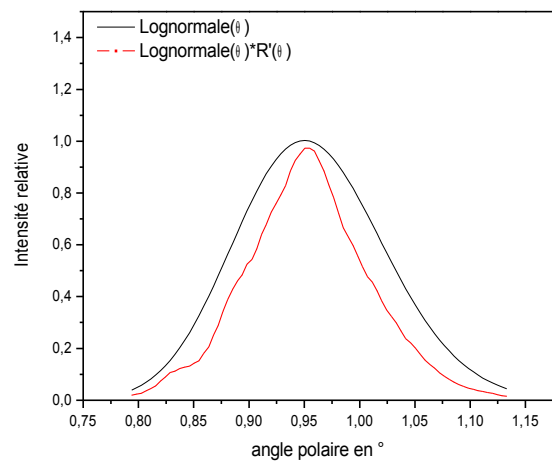


Fig 96: Résultat du produit de la log-normale et des facteurs d'atténuation de ma figure 110

La pondération de la lognormale par cette fonction en cloche produit donc un profil plus étroit que nous modélisons dans cette étude par une lognormale plus étroite, comme on peut le voir sur la figure 96.

- **Modélisation**

Pour chaque cliché de diffraction (préalablement redressé) nous nous sommes intéressés à la projection d'intensité de la totalité du cliché le long de la direction polaire. A partir des profils polaires d'intensité obtenus, nous avons cherché à décomposer la silhouette esquissée par les données expérimentales avec l'association de 2 fonctions lognormales modélisant le fond incohérent et les raies de Bragg auxquelles s'ajoute une gaussienne modélisant l'intensité due aux pics fins. Pour améliorer la modélisation, nous avons ajouté une quatrième lognormale de très grande largeur par rapports aux deux autres afin de représenter le « piédestal » d'intensité que l'on peut observer aux petits angles et qui sont imputés aux défauts de surface [32]. Remarquons tout de même que sa contribution dans le profil est très faible par rapport aux autres composantes.

Les distributions lognormales que nous avons utilisées pour modéliser nos données expérimentales possèdent une expression de la forme :

$$P_{\ln}(\theta_{diff}) = \frac{A}{\sigma_{\ln} x} \exp\left(\frac{-\ln^2(x)}{2\sigma_{\ln}^2}\right) \quad \text{Avec} \quad x = \frac{(\theta_{diff} - \theta_{eq})}{(\theta_{spec} - \theta_{eq})} \quad (33)$$

Dans cette formule : A est l'amplitude, θ_{diff} l'angle de diffusion, θ_{spec} la position du spéculaire, et θ_{eq} la position de l'équateur, et le paramètre σ_{\ln} correspond à l'écart type relatif de la log-normale. Selon les conditions expérimentales, l'équateur qui correspond au plan macroscopique de l'échantillon, n'est pas toujours directement observable. Dans ce cas, l'équateur est définie à partir du cercle de Laue comme le plan situé à mi distance entre le faisceau direct et le spéculaire. Sa position polaire correspond au plan de surface, au-dessous duquel aucune particule ne peut diffuser.

La distribution de la gaussienne que nous avons utilisée est de la forme :

$$P_{gaussienne}(\theta_{diff}) = \frac{A}{\sigma_{gauss}(\theta_{diff} - \theta_{spec})} \exp\left(\frac{-(\theta_{diff} - \theta_{spec})^2}{2\sigma_{gauss}^2}\right) \quad (34)$$

Nous remarquerons que pour la distribution gaussienne, l'écart type correspond à une

« largeur angulaire ». Il est directement lié à la largeur à mi-hauteur par la relation :

$$LMH = 2\sqrt{(2 \ln(2))} \sigma_{gauss} \approx 2,3548 \sigma_{gauss} \quad (35)$$

8.3.2 Points d'intérêt.

Dans les deux études que nous allons présenter, nous nous intéresserons particulièrement aux deux paramètres que sont : la fraction de l'intensité associée au pic très fin et à son écart type. Nous regarderons par ailleurs avec attention :

- Les intensités relatives des trois composantes log-normales.
- L'évolution des largeurs des différentes composantes. Pour les log-normales, le paramètre auquel nous nous intéresserons est l'écart type relatif σ_{ln} . Celui-ci varie peu avec l'angle d'incidence, contrairement la largeur à mi hauteur.

8.4 Résultats

8.4.1 Étude en fonction de l'angle d'incidence :

Nous avons étudié l'évolution d'un motif de diffraction le long d'une direction $\langle 100 \rangle$ de la surface de NaCl(001) pour une gamme d'angles d'incidence allant de 0.25° à 0.9° , ce qui correspond pour des atomes d'hélium de 450 eV d'énergie cinétique à la gamme d'énergies normales de 10 meV à 113 meV. La figure 97 présente quelques images de la série sur laquelle se base notre étude. Pour réaliser cette série de mesures, les paramètres du faisceau ont été maintenus constants et nous avons changé l'angle d'incidence par rotation de la cible avec le manipulateur.

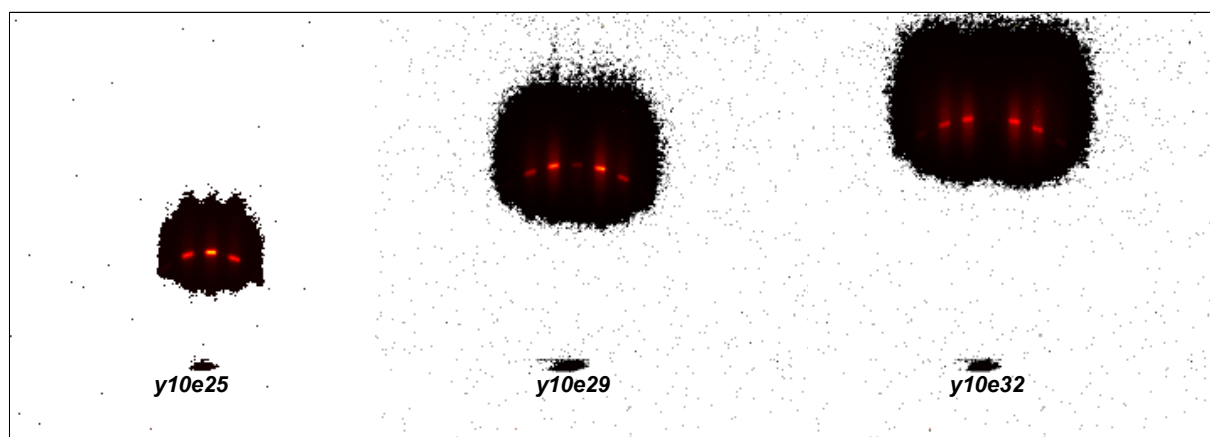


Fig 97: Quelques images enregistrées lors de la variation de l'angle d'incidence

Remarquons que sur ces images les spots fins présentent une largeur azimutale importante, qui nous le verrons dans la suite du manuscrit est attribuée à un type de défauts de surface : la **mosaïcité**. (voir chapitre 9)

Les illustrations 98, 99 et 100 montrent la projection de l'intensité le long de la direction polaire pour deux images prises respectivement avec un « petit » angle d'incidence et un « grand » angle ainsi que leur modélisation avec les fonctions lognormales et la fonction gaussienne pour des ordonnées linéaires et logarithmiques. Pour ces deux cas de figure, nous pouvons voir que la modélisation avec l'association de fonctions proposées permet de reproduire relativement bien le contour des points expérimentaux. Nous remarquerons que les représentations en coordonnées logarithmiques, permettent de mettre en évidence l'utilité de l'ajout d'une troisième fonction lognormale très large pour modéliser le pied à petit angle.

8.4 Résultats

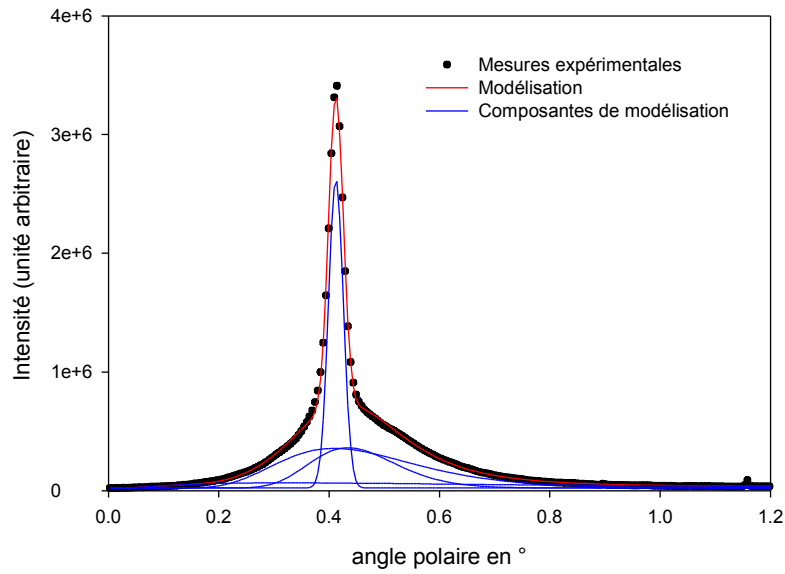


Fig 98: Traitement du profil d'intensité d'une image prise sur NaCl(001) le long de la direction $\langle 100 \rangle$ avec des atomes d'hélium de 450 eV arrivant avec $0,42^\circ$ d'angle d'incidence polaire. Ordonnées en échelle linéaire

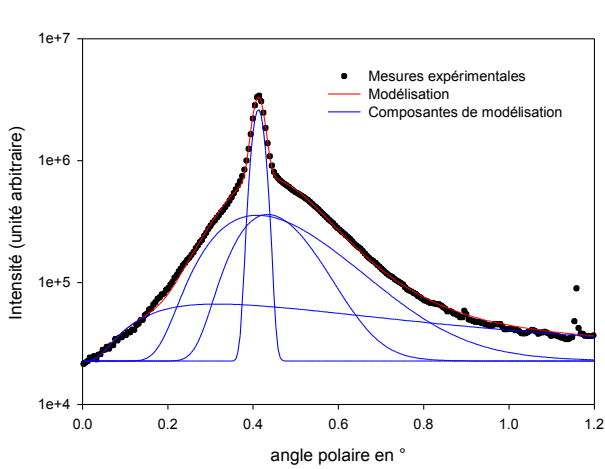


Fig 100: Profil de la même image que celle de la figure 102 mais en échelle logarithmique.

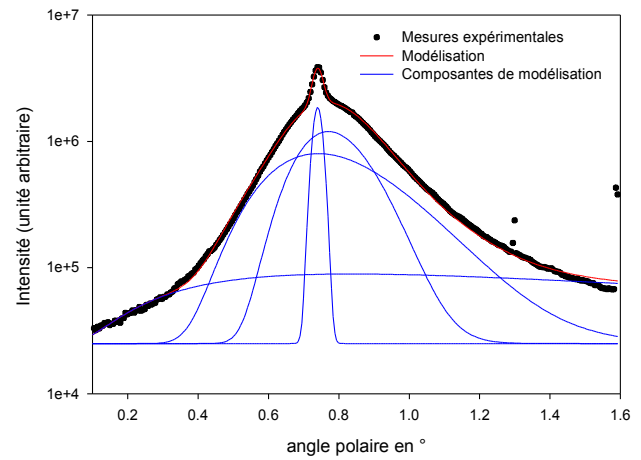


Fig 99: Profil d'intensité pour une image à plus grand angle ($0,75^\circ$). Les ordonnées sont en échelle logarithmique.

8.4.1.1 Variations de l'écart type de la gaussienne modélisant le pic de Bragg

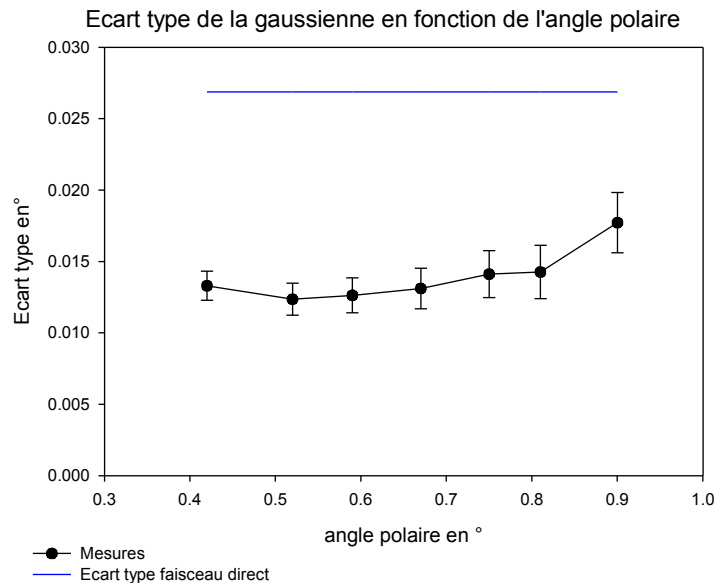


Fig 101: Écart type du pic gaussien en fonction de l'angle d'incidence.

Le graphique précédent (Fig 101) présente l'évolution de l'écart type mesuré pour le pic fin en fonction de l'angle d'incidence. Nous constatons que hormis le dernier point de mesure, l'écart type et donc la largeur à mi-hauteur du pic fin observé évolue très peu avec le changement d'angle. Ce paramètre de la fonction gaussienne est directement proportionnel à la largeur à mi hauteur (voir l'équation (35)). Nous trouvons une valeur moyenne de l'écart type de : $\sigma = 0.013^\circ$, ce qui correspond à une largeur à mi hauteur de 0.031° . Par ailleurs, nous remarquons un rapport 2 entre la valeur de l'écart type du faisceau direct total $\sigma_{direct} = 0.027^\circ$ (c'est-à-dire la largeur du faisceau direct mesurée lorsque la cible est retirée) et celui mesuré pour les pics de Bragg.

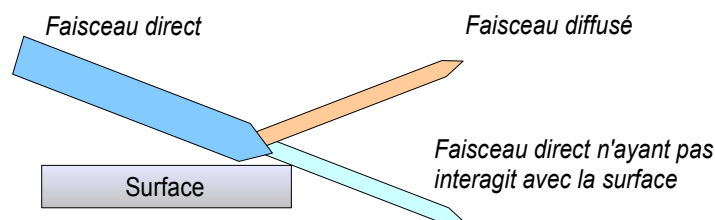


Fig 102: Interprétation du facteur 2 entre l'écart type du pic fin et celui du faisceau direct.

Nous l'expliquons par le fait que la surface intercepte seulement une partie du faisceau direct, qui pourrait correspondre ici à une valeur proche de la moitié. L'autre explication, plus vraisemblable,

est que la résolution près du bord du détecteur, où se trouve le point d'impact du faisceau direct est moins bonne, et la largeur mesurée est plus importante qu'elle ne l'est réellement. Nous retenons surtout que nous ne mesurons pas d'élargissement du pic fin.

8.4.1.2 Évolution des écart-types relatifs des lognormales

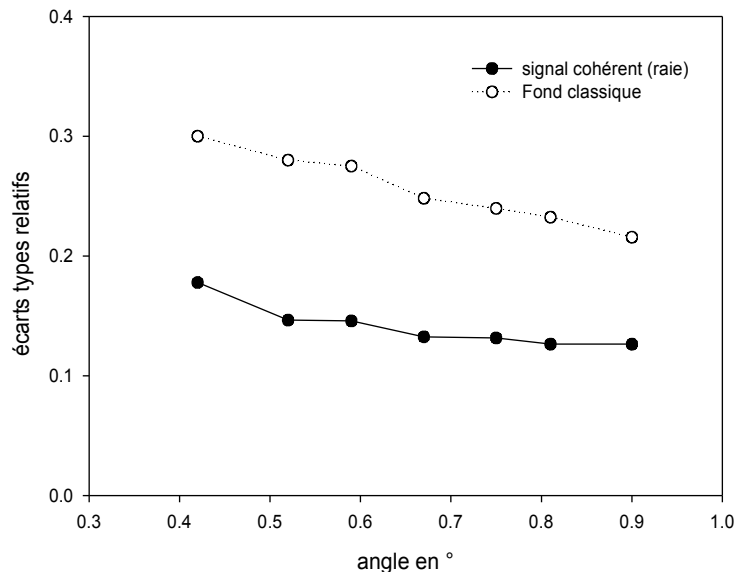


Fig 103: Évolution de l'écart type relatif pour les composantes lognormales associées au fond classique et aux raies de Bragg

La figure 103 montre l'évolution des écarts types relatifs des lognormales avec l'angle d'incidence. Nous constatons à partir de ce graphique que les écarts-types des deux composantes (fond incohérent + raie de Bragg) diminuent avec l'angle d'incidence.

Nous pouvons comparer cette diminution de la largeur lognormale (donc relative) qui s'écarte du modèle dit de la longueur effective d'interaction qui prédit des distributions radiales lognormales de largeur constante donnée par le produit $\Gamma \cdot \sigma$ (section 3.4.2.2) où dans l'approximation haute température σ est l'agitation thermique donnée par :

$$\sigma^2 = \langle u_z^2 \rangle = \frac{3 * \left(\frac{h}{2\pi}\right)^2 T}{Ms k_B \Theta_D^2} \quad (36)$$

Dans cette expression Γ correspond à la raideur du potentiel qui ne dépend que de la surface

et de la direction étudiée, M_s est la masse de la surface, et Θ_D est sa température de Debye.

Compte-tenu du nombre important de paramètres ajustables lors de la modélisation de la base avec deux lognormales (6 au total), et de la présence de mosaïcité (cf chapitre 9) l'analyse présentée ici ne permet pas de conclure mais la décroissance observée mérite sans doute d'être étudiée plus en détail.

En revanche, contrairement à la modélisation des composantes diffuses ci dessus, la modélisation du pic fin est très reproductible (il est facilement isolable), du moins, dans la gamme d'angle où il est encore très intense, et par conséquent les résultats le concernant sont assez « robustes ».

8.4.1.3 Variation de l'intensité relative du pic fin

Nous avons vu dans la partie « corrugation » ainsi que dans la partie « présentation de la diffraction d'atomes rapides » que l'intensité du signal cohérent diminue avec l'augmentation de l'énergie normale en raison d'une sensibilité accrue aux vibrations thermiques de la surface. Comment évolue l'intensité des pics fins observés ? La figure 104 montre les intensités relatives que nous avons calculées à partir de nos mesures à différents angles d'incidence. On constate une forte diminution de l'intensité relative du pic fin avec l'augmentation de l'angle d'incidence, passant de 30% aux alentours de $0,4^\circ$ (30 meV) à quelques % pour les angles supérieurs à $0,9^\circ$, c'est-à-dire pour les énergies normales supérieures à 110mV.

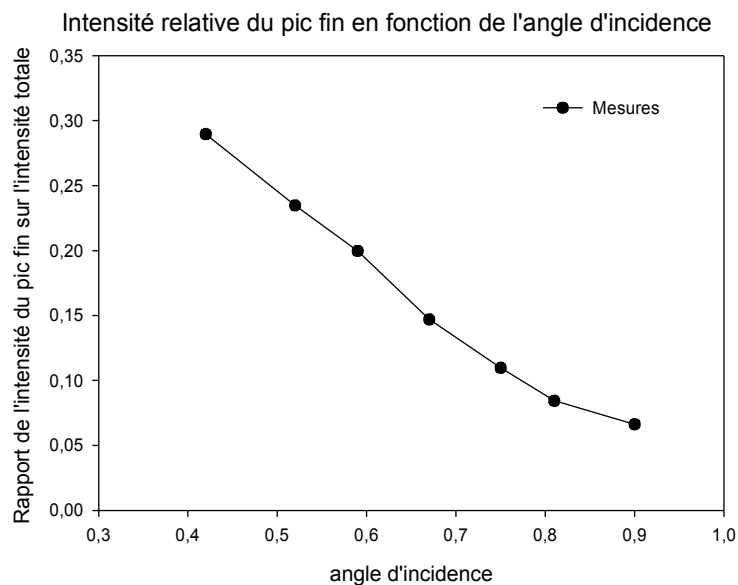


Fig 104: Évolution de l'intensité relative du pic

Dans un premier temps, nous pouvons nous contenter de trouver une description analytique de cette évolution. La figure 105 montre les résultats du fit par des exponentielles décroissantes dont l'exposant varie linéairement avec l'angle d'incidence pour l'une et avec le cube de l'angle pour l'autre et dont les expressions sont respectivement :

$$y = \alpha_1 \exp(-\beta_1 \theta) \quad \text{et} \quad y = \alpha_2 \exp(-\beta_2 \theta^3)$$

On obtient que les fonctions représentant au mieux nos données sont celles dont les paramètres sont $\alpha_1 = 1.03$ et $\beta_1 = 2.9$ et $\alpha_2 = 0.34$ et $\beta_2 = 2.6$

Nous remarquerons que nous avons déjà utilisé une exponentielle dont l'exposant varie avec le cube de l'angle d'incidence pour modéliser l'atténuation de l'intensité cohérente avec l'angle d'incidence dans notre étude de la corrugation sur la surface de KBr(001)

Une régression linéaire de nos données est aussi présentée. Le meilleur fit est obtenu par la fonction :

$$y = 0,486 - 0,487 \cdot \theta$$

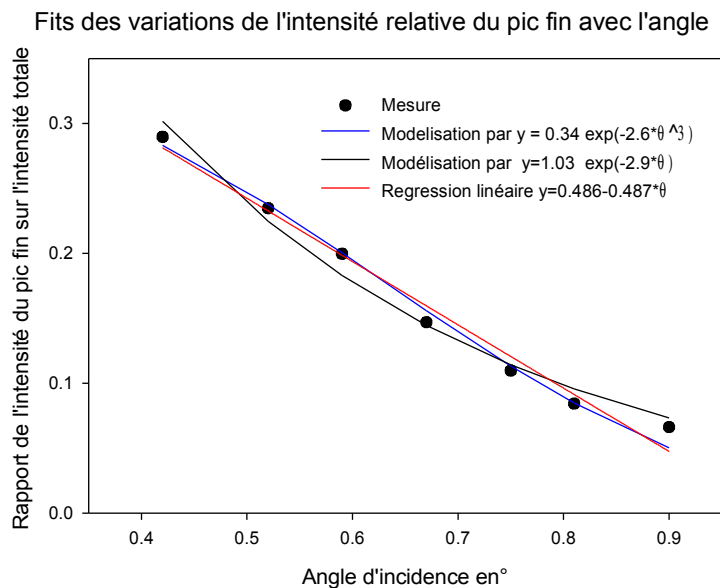


Fig 105: Modélisation des variations de l'intensité relative du pic fin avec l'angle

8.4.1.4 Variations des intensités relatives des autres composantes de la modélisation

La figure 106 montre l'évolution des intensités relatives des différentes composantes. Ces

dernières sont calculées à partir des rapports des intégrales de chaque composante sur l'intensité totale. Nous pouvons remarquer des fluctuations assez brutales des valeurs des intensités relatives pour certaines composantes. Elles soulignent la difficulté à bien déterminer la hauteur du fond et à discerner les deux lognormales formant le socle d'intensité sur lequel repose le pic fin. Aussi pour ces composantes ainsi que pour la modélisation des défauts, nous chercherons davantage à dégager une tendance globale plutôt qu'à trouver une forme mathématique décrivant leurs évolutions.

On peut voir que la part du pic fin dans l'intensité totale, importante au départ, chute de manière très significative avec l'augmentation de l'angle d'incidence alors que dans un même temps, les fractions associées au signal cohérent du signal et au fond classique augmentent. En ce qui concerne la proportion des défauts, nous noterons que, hormis quelques fluctuations, leur proportion semble rester à peu près constante avec l'angle d'incidence. À noter que la séparation des raies de Bragg et du fond classique est ici sommaire car nous travaillons sur la projection. Il faudrait analyser plus en détail la composante qui est ici projetée pour bien séparer la partie cohérente du fond. Cette décomposition fine n'a pas été réalisée faute de temps mais ne remet pas en cause la variation observée sur le pic fin.

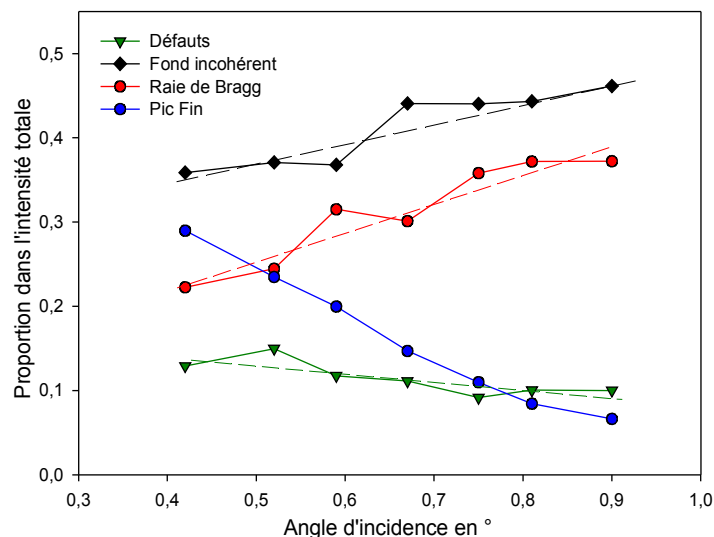


Fig 106: Intensités relatives des différentes composantes

8.4.2 Étude en fonction de la température

Dans les prochains paragraphes, nous allons présenter les résultats obtenus lors d'une variation en température, le long de la même direction et avec la même énergie de faisceau que l'étude présentée précédemment. Pour ces mesures, nous nous sommes positionnés à un angle d'incidence constant : $0,63^\circ$ (57 meV) et nous avons enregistré les profils de diffraction lors d'une augmentation par paliers de la température de la cible. L'échantillon est chauffé par le filament situé en dessous du porte-échantillon et la température est mesurée avec le thermocouple du manipulateur (voir partie concernant le dispositif expérimental). La méthode utilisée pour interpréter nos profils est la même que celle mise en œuvre lors de la variation de l'angle d'incidence présentée précédemment. L'illustration suivante montre un profil d'intensité que nous avons mesurée à la température de 358 K et sa modélisation avec notre méthode.

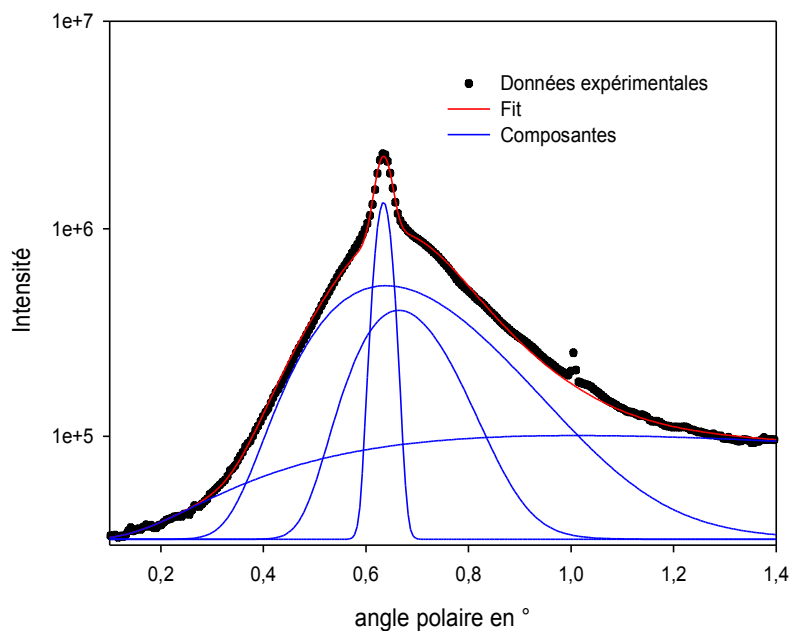


Fig 107: Profil d'intensité le long de la direction polaire d'un cliché de diffraction enregistré à 360 K

8.4.2.1 Variation de la largeur du pic de Bragg

Le graphique ci-dessous (Fig 108) montre l'évolution de la largeur du pic fin que nous avons mesurée. La largeur totale du faisceau direct est aussi représentée. Nous constatons que l'écart-type du pic fin (et donc sa largeur) varie peu lors de l'augmentation de la température et reste à peu près égale à la moitié de la largeur du faisceau direct mesuré. Les fluctuations que l'on peut voir sur le graphe peuvent être expliquées par des considérations expérimentales : le chauffage de l'échantillon engendre sa dilatation thermique mais aussi celle du support. Celle-ci peut entraîner une modification de l'angle d'incidence ainsi que la proportion du faisceau incident interceptée par la cible. Aussi, nous avons dû réajuster la position du faisceau sur la cible à plusieurs reprises de lors de la série de mesures, et il est possible que plusieurs domaines mosaïques aient été éclairés par le faisceau.

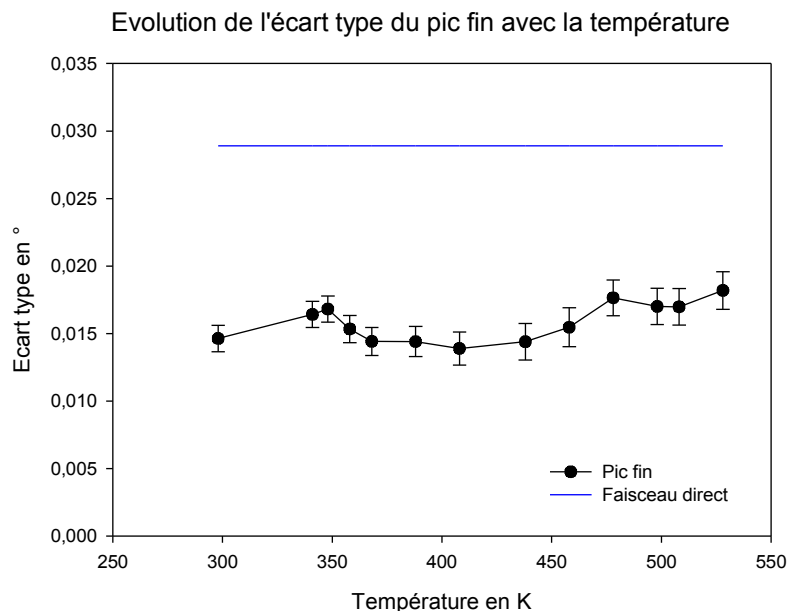


Fig 108: Écart type du pic fin en fonction de la température

8.4.2.2 Variation des écarts types des lognormales modélisant les raies de Bragg et le fond diffus.

Le graphe suivant présente les évolutions des écart-types relatifs des lognormales associées au fond diffus et aux raies de Bragg que nous avons mesurés. On peut voir sur cette figure que ces derniers augmentent avec la température. Cette évolution peut être comparée avec l'expression de

leur écart-type résultant du modèle de la longueur effective. (l'écart type des distributions lognormales est proportionnel au produit $\Gamma \cdot \sigma$). Comme on peut le voir en comparant les expressions (33), et (36), l'écart type des lognormales est proportionnel à la racine carrée de la température :

$$\sigma_{\log} \propto \Gamma \sigma = \Gamma \sqrt{\frac{3 \cdot \hbar^2}{M_S k_B \Theta_D^2}} \sqrt{T} \quad (37)$$

Les résultats des modélisations des évolutions des écart-types des lognormales du fond diffus et des raies de Bragg avec la température par des fonctions proportionnelles à la racine carrée de la température (expression du type : $y = \alpha \sqrt{T}$) sont présentés sur le graphe Fig 109. On peut voir que cette modélisation reproduit assez bien nos mesures dans le cas du fond classique. Nous mesurons des facteurs de proportionnalité très proches valant respectivement : $\alpha_{classique} = 0.0118$ pour le fond classique et $\alpha_{raie} = 0.0073$ pour les raies de Bragg.

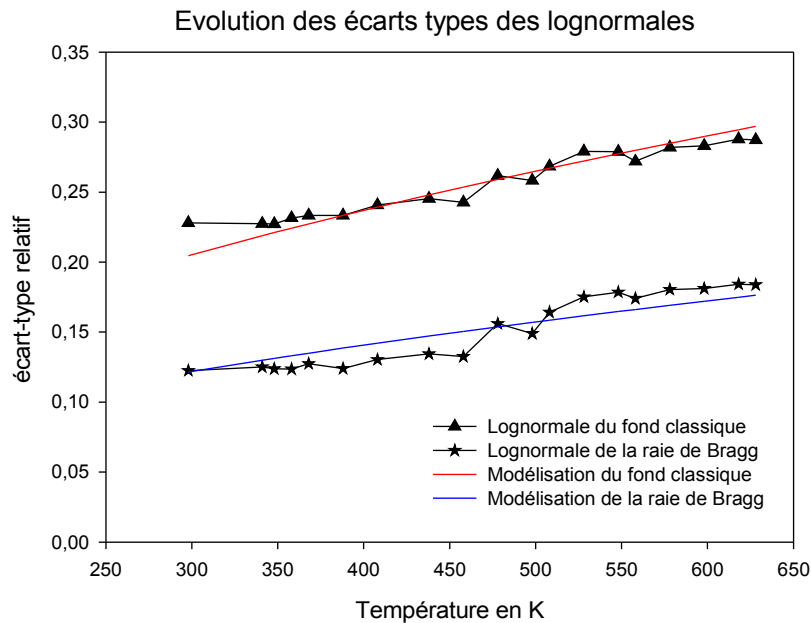


Fig 109:

8.4.2.3 Intensités relatives des différentes composantes

Le graphique suivant montre l'évolution des intensités relatives en fonction de la

température. Avant de s'intéresser plus en détails aux variations des différentes composantes, nous pouvons en premier abord constater une dispersion des mesures assez importante pour les composantes lognormales modélisant le fond incohérent et la partie cohérente du signal. Nous pouvons voir aussi que la proportion des défauts fluctue. Ces variations d'intensités ne sont pas dues directement à la température. Elles témoignent du fait que nous avons du réajuster par moments la position du faisceau sur la cible en raison de sa dilatation thermique. Ces modifications apparaissent très clairement sur la courbe des défauts à travers les 3 paliers que nous pouvons voir. Théoriquement, pour une position fixe de la cible et un angle d'incidence ne variant pas, la proportion des défauts ne devrait pas varier.

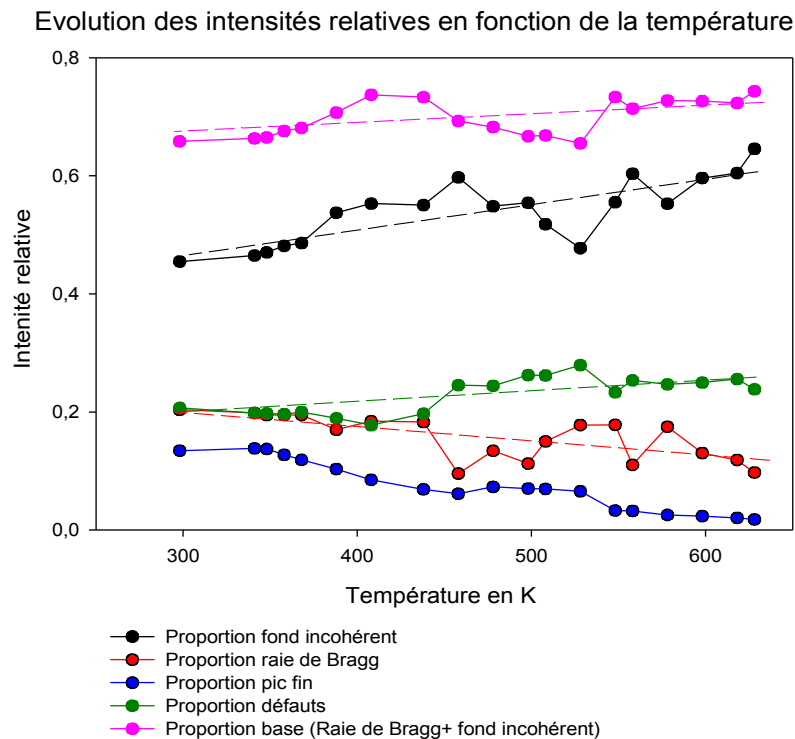


Fig 110: Intensités relatives des différentes composantes

Si nous faisons abstraction des fluctuations mentionnées, nous pouvons déterminer des tendances globales. Notamment, nous pouvons voir que la proportion des défauts reste à peu près constante et que l'intensité du socle (fond classique + signal cohérent) varie peu. En revanche, nous constatons que la proportion du fond incohérent augmente avec la température alors que celle du signal cohérent semble diminuer. Ces évolutions sont proches de ce qu'on était en mesure d'attendre pour ces composantes, c'est-à-dire dire d'observer une diminution du signal cohérent et une augmentation du fond classique incohérent avec la température.

8.4.2.4 Intensité relative du pic fin

En ce qui concerne l'intensité du pic fin, nous pouvons voir sur le graphe suivant Fig 111, que son intensité chute rapidement avec la température. Nous pouvons aussi voir la présence d'un « palier » entre 450 et 550 K. Il correspond à une diminution de l'angle d'incidence causée par la dilatation thermique de la cible. Aux alentours de 550 K, nous avons rétabli l'angle initial, suite à l'observation du décalage.

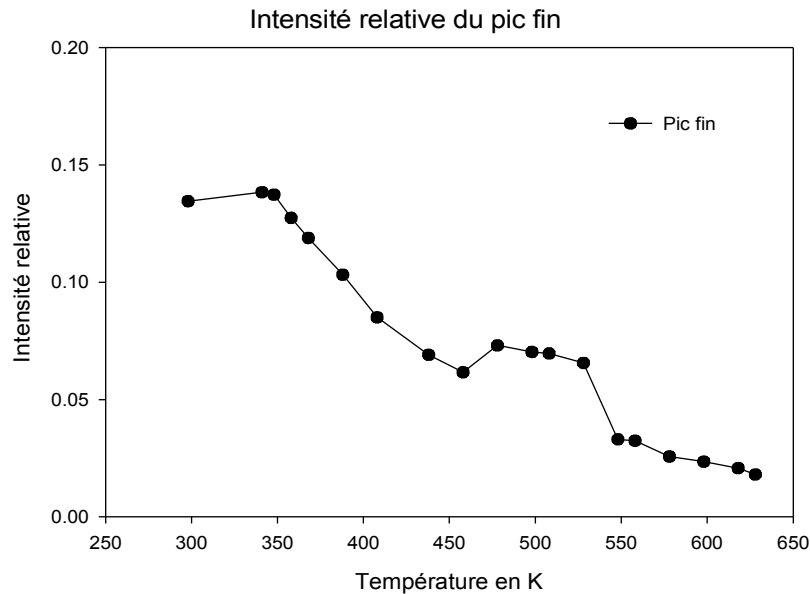


Fig 111: Intensité relative du pic fin

Le graphe 112 montre le résultat obtenu lorsqu'on modélise nos mesures avec une formule

$$\frac{I_{picfin}}{I_{totale}} = A \exp(-BT) \quad \text{pour lesquels un poids moins important a été affecté à la première mesure}$$

ainsi qu'aux points expérimentaux situés entre 450 et 525 K du fait que les angles d'incidence correspondants sont différents des autres points. Nous constatons que les mesures expérimentales semblent assez bien reproduites par une fonction exponentielle décroissante de premier ordre pour laquelle le facteur vaudrait : $A=1.6$ et l'exposant : $B = 7.1 \cdot 10^{-3} T$.

Il est intéressant de mettre en parallèle cette évolution avec l'expression théorique de l'atténuation du *signal cohérent* (sur le cercle de Laue) par les vibrations thermiques (introduite dans la partie théorique) dont l'évolution en fonction de la température est donnée par une exponentielle décroissante :

8.4 Résultats

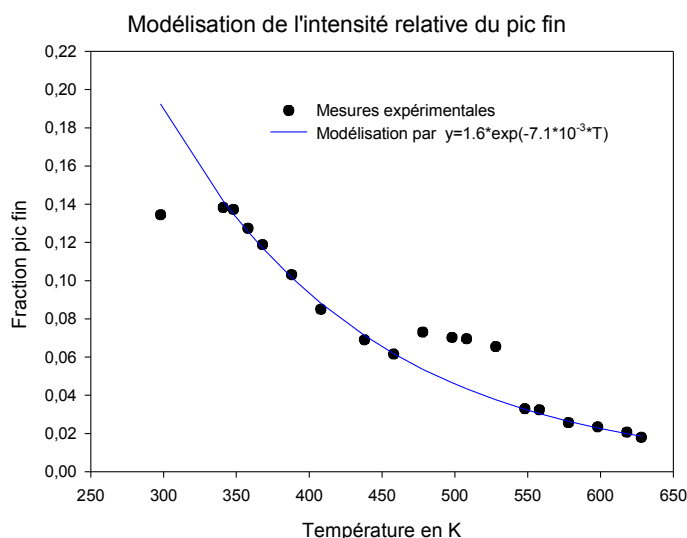


Fig 112: Modélisation de l'intensité relative

$$\frac{I}{I_0} = \exp(-\beta T) \quad \text{avec} \quad \beta = 4 \Gamma a \frac{M_p}{M_s} \frac{E_0 \theta^3}{k_B \Theta_D^2}$$

Il est important de remarquer que l'expression précédente dérive du facteur de Debye-Waller qui porte sur l'atténuation du *signal cohérent*, qui dans notre cas correspond aux *pics fins et aux raies de Bragg*. L'évolution de ce signal en fonction de la température est représentée par la figure 98. Malheureusement, en raisons des fortes fluctuations de l'intensité des raies de Bragg, il est très difficile de tirer d'autres informations que l'atténuation de ce signal avec la température.

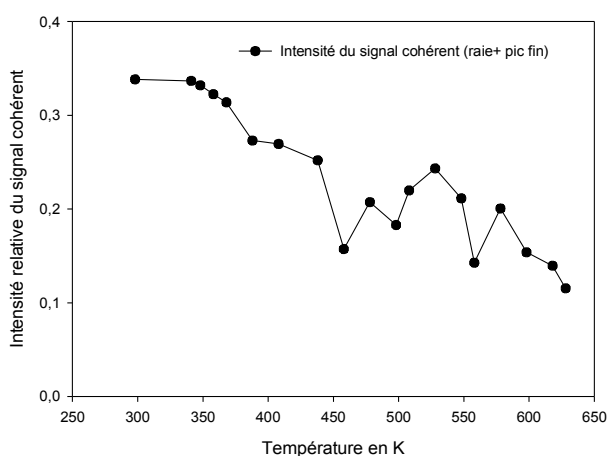


Fig 113: Intensité du signal cohérent (raie+pic fin) en fonction de la température

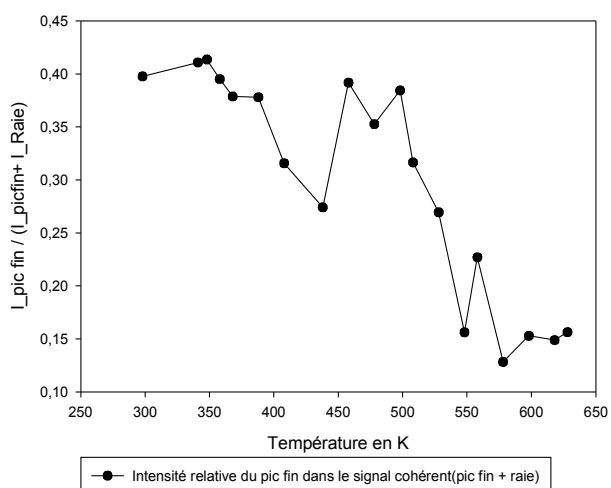


Fig 114: Intensité relative du pic fin dans le signal cohérent (pic fin + raie)

8.5 Discussion des résultats

Nous venons de présenter les résultats de deux études portant sur une variation d'angle d'incidence et une variation en température au cours desquelles nous avons étudié le comportement des pics intenses. Nous retiendrons que contrairement au raies de Bragg et au fond classique, sa largeur reste quasi constante et semble indépendante de la température et de l'angle d'incidence. Ce comportement contraste avec l'évolution observée pour le fond classique et les raies de Bragg, dont les écarts-types augmentent avec la température, et montre la singularité des pics de Bragg. Nous avons remarqué dans les deux études présentées que sa largeur semble valoir la moitié de celle du faisceau direct, ce que nous avons expliqué par des considérations géométriques. Cependant, une étude rigoureuse en fonction de la taille de faisceau direct et de la position de la cible serait nécessaire pour établir s'il existe un lien entre la taille du faisceau direct et la largeur du pic fin.

Il serait par ailleurs intéressant de pouvoir comparer l'atténuation de l'intensité du pic fin avec celle de l'autre signal cohérent que sont les raies de Bragg. En effet, pour décrire l'évolution de l'intensité nous nous sommes servis de la loi de Debye Waller; cette dernière donne une loi d'atténuation de l'intensité du cohérent (sur le cercle de Laue) mais elle ne donne pas de réponses sur ce que devient l'intensité perdue. Dans le cas où on observe sur nos clichés de diffraction deux signaux cohérents correspondant à deux régimes distincts, peut-il y avoir un « report » d'intensité du régime le plus cohérent vers le régime le moins cohérent ? Les évolutions des intensités des raies de Bragg et du pic fin (Diminution de l'intensité relative du pic fin et augmentation de celle des raies de Bragg. Voir le graphique 106) que nous avons observées lors du changement d'angle d'incidence semble suggérer que oui. En effet, on serait en mesure d'attendre que l'intensité des raies de Bragg diminuent en raison de la plus grande sensibilité aux vibrations thermiques à grand angle, un report de l'intensité du pic fin pourrait alors expliquer l'augmentation observée.

Dans l'étude présentée, nous ne nous sommes pas intéressés à l'origine des pics de Bragg que nous avons mis en évidence. Comment expliquer que ces structures puissent être observées maintenant alors que les précédentes études n'avaient pas révélé leur présence ? Est-ce du à une meilleure cohérence du faisceau ? Une comparaison pour un même dispositif expérimental des cohérences de faisceau entre des situations où on relève la présence des pics fins et celles où seules

les raies de Bragg sont observées pourraient donner des éléments de réponses. Une telle étude pourrait être réalisée assez facilement en étudiant la largeur et l'intensité relative des pics de Bragg sur nos clichés de diffraction pour différentes divergences angulaires du faisceau obtenues par des changements de combinaisons de diaphragmes (comme celles décrites dans la partie traitant du dispositif expérimental).

8.6 Conclusion

L'étude que nous avons présentée a permis la mise en évidence d'un nouveau régime de diffraction que nous avons nommé « pic de Bragg » par opposition aux « raie de Bragg » jusque-là observées. Ce pic de Bragg pourrait correspondre au régime de diffraction cohérent le long de la direction normale et dans la direction longitudinale décrit par le professeur Manson [49] mais qui n'a auparavant jamais été mis en évidence expérimentalement. Nous avons vu au cours de notre étude que le pic de Bragg est caractérisé par un pic fin très intense situé à l'intersection des cercles de conservation de l'énergie et des ordres de diffraction. Sa largeur polaire ne dépend pas de l'angle d'incidence ni de la température, contrairement au régime classique et aux raies de Bragg, et prouve ainsi la singularité de ce régime. L'origine de ce « pic-fin » est encore très mal comprise et d'autres études sont nécessaires pour éclaircir les nombreux points d'ombres le concernant.

8.6 Conclusion

9 Mise en évidence et étude de défauts topologiques avec la diffraction d'atomes rapides : la mosaïcité de surface.

9.1 Introduction :

Lors des premiers tests de notre nouveau dispositif expérimental avec la surface de KBr(001), nous avons été très étonnés d'observer pour les faibles angles d'incidence des images présentant des motifs de diffraction que l'on peut qualifier "d'atypiques". En effet, nous avons enregistré des clichés présentant des largeurs polaires très importantes, et ce même à bas angle d'incidence. Nous avons déjà rencontré cette situation avec la surface d'Ag(110) (section 10.3) sans pouvoir l'expliquer. Ici la situation s'est débloquée car nous avons fini par trouver des sous structures discrètes nous mettant sur la piste de la présence de plusieurs domaines sur la surface. Nous présenterons trois situations différentes de démultiplication des pics de diffraction :

- *Cas 1 : plusieurs cercles de Laue dont les centres sont alignés perpendiculairement à la surface.*
- *Cas 2 : plusieurs cercles de Laue se chevauchent.*
- *Cas 3 : les pics de diffraction d'un même cercle de Laue sont démultipliés.*

Ces profils particuliers ne sont propres à la surface de KBr(001). En effet dans la suite de notre étude nous avons observé des structures similaires sur des surfaces de CaF₂(111) et de NaCl(001). Dans cette partie, nous allons donc présenter les principales caractéristiques des motifs de diffraction "atypiques" que nous avons observés et les études que nous avons réalisées afin de déterminer leurs origines.

9.2 Présentation et étude des "motifs atypiques" relevés sur la surface de KBr(001)

Dans cette partie, nous présentons les 3 grands types de clichés remarquables que nous avons pu identifier lors de notre étude de la surface de KBr(001). Nous comparerons ces résultats par la suite à ceux obtenus pour les échantillons de NaCl(001) et avec CaF₂(111)

9.2.1 Cas 1 : d'une largeur radiale importante à la mise en évidence de plusieurs cercles de pics de diffraction

Une des premières surprises que nous avons rencontrées en étudiant la surface de KBr(001) fut d'observer que des clichés de diffraction enregistrés à bas angles d'incidence (i.e entre 0,2° et 0,7°) présentaient des largeurs polaires très importantes par rapport aux images que nous avons observées jusqu'à présent. Ces observations sont d'autant plus étonnantes qu'une surface de KBr(001) clivée présente de grandes terrasses de plusieurs centaines d'angströms de largeur [101], et que par conséquent la probabilité qu'un atome rencontre dans sa trajectoire un bord de marche et soit défléchi à grand angle est faible. Par ailleurs, nous avons constaté que ces largeurs polaires persistaient malgré des cycles de bombardement et de recuits. Il semble donc improbable qu'elles soient dues à la diffusion des particules incidentes par des ad-atomes.

La figure 115 montre un exemple de cliché de diffraction présentant une grande largeur polaire. Contrairement à ce qu'on pourrait observer dans le cas d'une diffusion à grand angle résultant de collisions inélastiques (adatoms, bords de marches), la figure présente pour toute la gamme d'angles de sortie comprise entre 0,4° et 1° (ces angles sont définis par rapport à l'équateur) des pics de diffraction bien définis et régulièrement espacés d'un "vecteur du réseau réciproque associé à la périodicité transverse des rangées" qui suggèrent que la diffusion reste "élastique" et cohérente. En projetant les intensités de l'image le long de la direction radiale, nous observons un profil d'intensité présentant "deux bosses" d'intensité. Ce profil est très différent par sa forme des distributions lognormales et gaussiennes sur lesquelles nous avons jusqu'à présent fait reposer nos interprétations (voir chapitre 8).

Nous remarquons qu'il est par ailleurs impossible de déterminer avec certitude quel est l'angle d'incidence à partir de la projection d'intensité, comme nous avons pu le faire auparavant.

9.2 Présentation et étude des "motifs atypiques" relevés sur la surface de KBr(001)

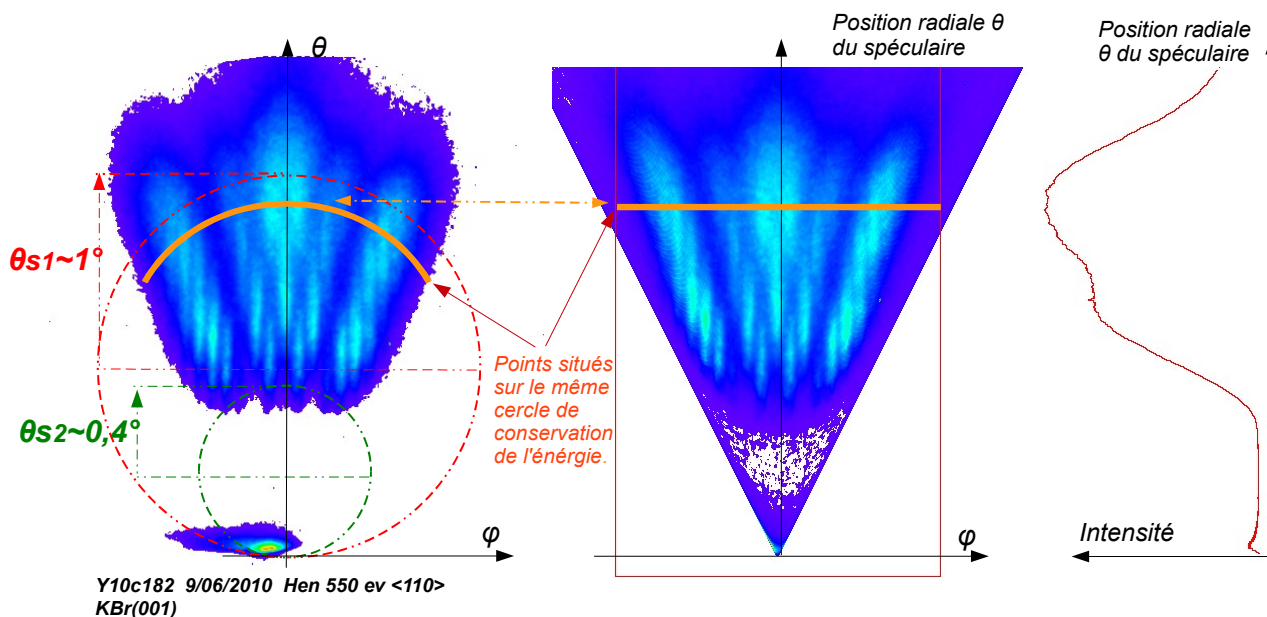


Fig 115: **A gauche:** cliché de diffraction enregistré le long de la direction <110> de KBr(001) avec des atomes d'hélium de 550 eV. **Au centre:** Redressement de l'image **A droite:** La projection de l'intensité de l'ensemble du cliché de diffraction le long de la direction polaire. La forme du profil avec deux bosses d'intensité est très différente de ce que nous avons pu voir auparavant.

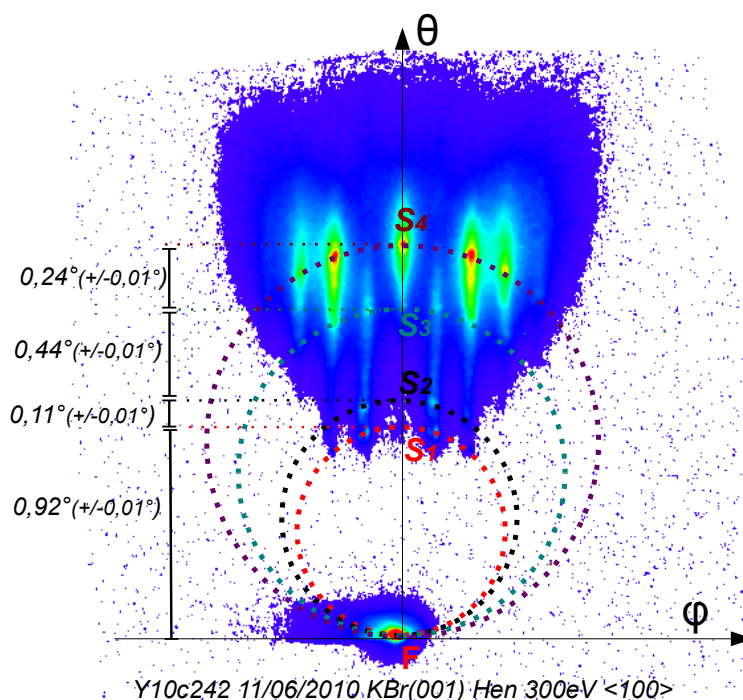


Fig 116: Cliché de diffraction enregistré sur KBr le long d'une direction de type <100> avec un faisceau d'hélium de 200 eV. Sur cette image nous pouvons distinguer plusieurs cercles de diffraction dont les positions spéculaires sont repérées par S1, S2, S3 et S4

Sur certaines images mieux résolues, où des pics de diffraction très fins sont observés (voir deuxième partie des résultats), il est même possible de distinguer plusieurs cercles de Laue comme on peut le voir en exemple sur la figure 116. La projection de l'intensité de tels clichés le long de la direction polaire montre un profil de largeur importante sur lequel apparaît clairement une suite de maxima de forme gaussienne correspondant aux multiples cercles de pics de diffraction observés (voir Fig 117). Une telle image a de quoi surprendre quand on sait qu'il est très improbable d'observer plusieurs cercles de Laue dans le cas d'une surface idéale, le coût en énergie normale étant trop grand et le couplage trop faible pour qu'on puisse observer la diffraction le long de la direction longitudinale. En esquissant le contour de ces cercles, nous remarquons qu'ils passent tous bien par le faisceau direct dont la position est marquée par le point F et que leurs "spéculaires" S1, S2, S3 et S4 (et leurs centres) sont alignés le long de l'axe polaire.

9.2.1.1 Cas 1 : évolution avec l'énergie totale du faisceau

Nous avons vu dans la partie présentant les principes de la diffraction d'atomes rapides que dans le cas d'un cliché normal, le cercle de conservation de l'énergie passe par le faisceau direct et la position de réflexion "spéculaire". Cette position est déterminée directement par l'angle d'incidence et est indépendante de l'énergie. Par contre, un changement d'énergie totale à angle constant fait varier la distance entre les ordres et induit par un changement d'énergie normale qui a pour effet de modifier la distribution d'intensité entre les différents ordres. Dans le cas d'un motif de diffraction "atypique", qu'advient-il des multiples cercles lorsque nous changeons l'énergie du faisceau ?

Lorsque nous diminuons l'énergie du faisceau en maintenant l'angle d'incidence constant, nous observons premièrement que la distance entre les pics de diffraction de chaque cercle varie linéairement avec l'énergie en suivant la loi de Bragg énoncée dans la "partie diffraction". D'autre part, nous observons que la distribution d'intensité entre les ordres des différents cercles change du fait du changement d'énergie normale induit. La figure 117 montre l'évolution de la position polaire des différents cercles de Laue en fonction de l'énergie le long de la direction $\langle 100 \rangle$ pour la même position du faisceau sur l'échantillon et le même angle d'incidence que le cliché de la figure 116. Afin de mieux faire ressortir les pics de diffraction, nous avons projeté uniquement l'intensité de l'ordre -1 . Sur cette figure, nous pouvons distinguer des maxima locaux d'intensité correspondant aux pics d'intensité que nous observons à l'intersection des ordres de diffraction et avec les différents cercles de conservation de l'énergie, et que nous avons noté : S1, S2, S3 et S4.

9.2 Présentation et étude des "motifs atypiques" relevés sur la surface de KBr(001)

Nous constatons que les rayons des cercles observés ne changent pas avec l'énergie et que les écarts entre les positions spéculaires des différents cercles $\Delta\theta S_i = \theta S_{i+1} - \theta S_i$ restent donc constantes. Le pic associé au troisième cercle est absent pour les énergies comprises entre 500 et 400 eV, du fait que l'ordre -1 est éteint pour les énergies normales correspondantes. En revanche, il apparaît pour les énergies plus basses.

Etude de la distribution polaire des pics de diffraction de l'ordre -1 en fonction de l'énergie

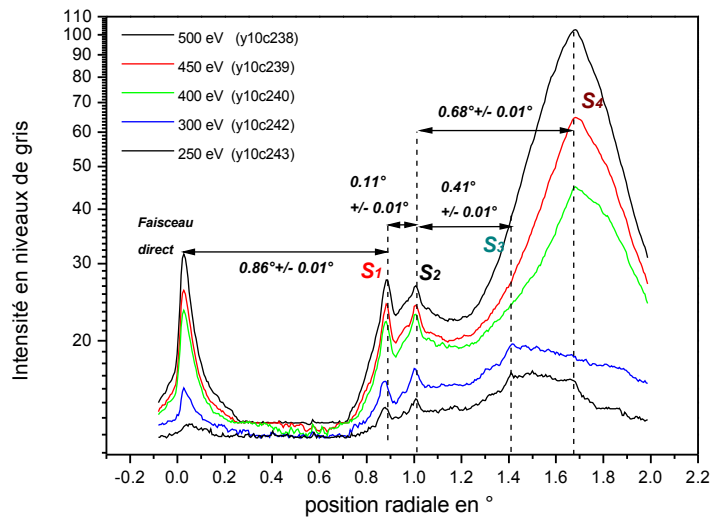


Fig 117: Évolution de la position des cercles de Laue lors d'une variation de l'énergie totale

Remarque : Nous expliquons que la variation d'intensité globale observée entre les différentes énergies est due au fait que l'efficacité d'extraction de la source diminue avec l'énergie.

9.2.1.2 Cas 1 : évolution en fonction de l'angle d'incidence

Comme nous l'avons mentionné précédemment, les images très structurées que nous présentons dans cette partie sont observées lorsque l'angle d'incidence est petit. À grand angle ($\theta_{incidence} > 0,8^\circ$) nous mesurons des motifs de diffraction très similaires à ceux que nous avons présentés dans notre étude de la corrugation. En revanche, en partant d'un motif de diffraction "normal", la diminution de l'angle d'incidence, peut faire apparaître des cercles de pics de diffraction comme on peut le voir sur la série d'images de la figure 118. Lorsque plusieurs cercles

9.2 Présentation et étude des "motifs atypiques" relevés sur la surface de KBr(001)

de pics sont observés sur notre détecteur, nous constatons que le changement d'angle d'incidence fait varier linéairement les diamètres des cercles présents de telle manière que les écarts angulaires entre leurs positions spéculaires respectives restent constantes, comme le montre la figure 119. De part leur comportement, les figures de diffraction où apparaissent plusieurs cercles semblent donc être le résultat d'une superposition d'un certain nombre d'images qui auraient été prises à différents angles d'incidence.

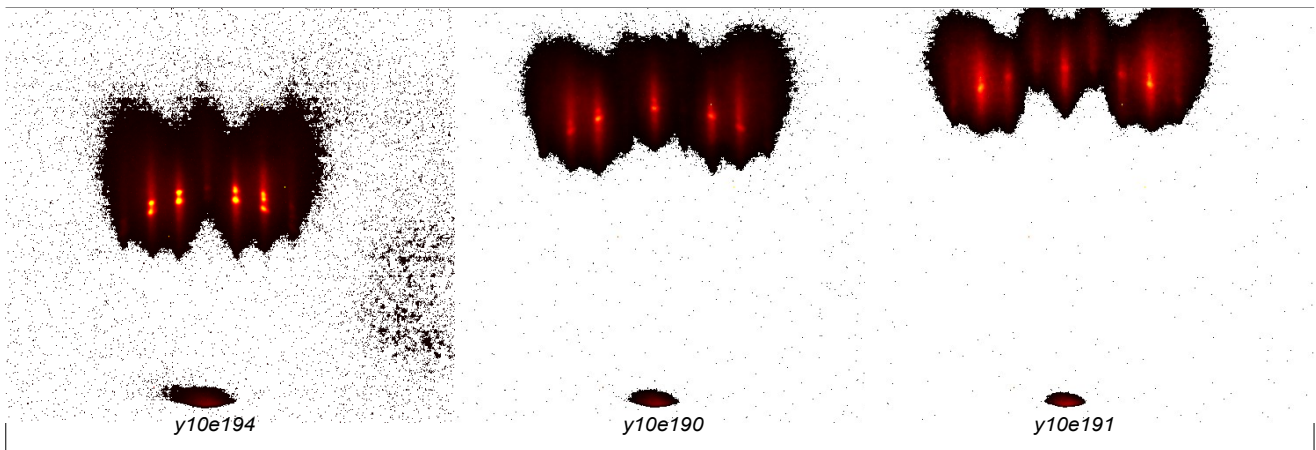


Fig 118: Série d'images prises lors d'une variation d'angle d'incidence dans la direction $\langle 100 \rangle$ de KBr(001) avec des atomes d'hélium de 250 eV

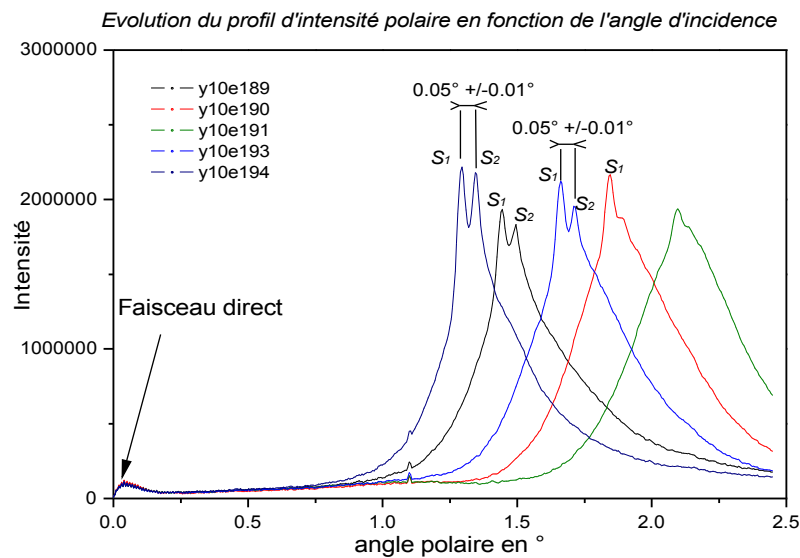


Fig 119: Évolution du profil d'intensité radiale d'un cliché de diffraction où l'on peut distinguer deux cercles de pics lors d'une variation d'angle d'incidence. Nous constatons que l'écart entre leurs positions spéculaires notés S1 et S2 reste constant et égal à 0,05°.

9.2.1.3 Cas 1 : évolution avec la position du faisceau sur l'échantillon

Nous venons de voir dans la précédente partie que la variation d'angle d'incidence permettait de modifier le nombre de cercles de pics visibles, et de faire apparaître ou disparaître différents cercles sans pour autant modifier les écarts entre eux. Afin de mieux comprendre cet aspect, il faut tenir compte du fait qu'à très faible angle d'incidence, les dimensions de l'espace de l'échantillon "éclairé" par le faisceau varient fortement avec l'angle d'incidence, comme le montre la figure 120. A titre d'exemple : la longueur projetée d'un faisceau de diamètre 50 μm arrivant avec un angle d'incidence de $0,5^\circ$ est de : 5,73 mm alors qu'avec un angle de 1° , cette longueur vaut : 2,87 mm. En revanche sa largeur projetée reste inchangée et reste quelque soit l'angle d'incidence de l'ordre du diamètre du dernier diaphragme traversé. En partant de cette constatation, on peut émettre l'hypothèse que cette multiplicité de cercles soit directement liée à la taille de la zone de l'échantillon couverte par le faisceau ; en d'autres termes qu'elle ait une origine topologique. Une manière simple de conforter ou d'infirmer cette hypothèse en s'affranchissant d'une taille projetée à prendre en compte, est de changer de zone explorée par le faisceau en déplaçant celui-ci sur l'échantillon.

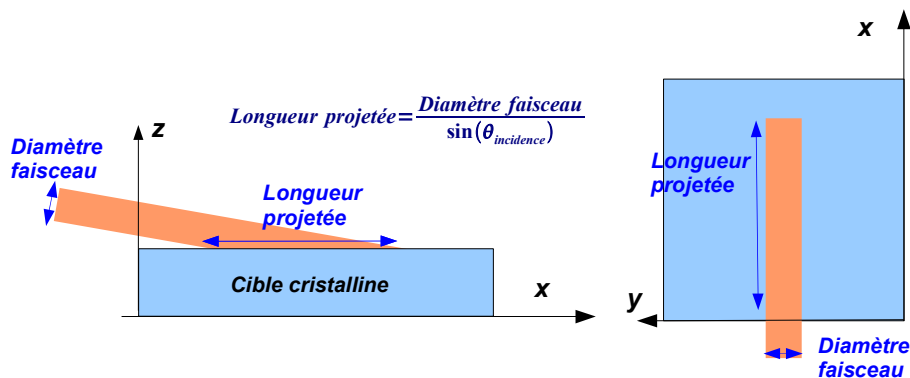


Fig 120: Dimensions du faisceau projetées sur la surface

Une telle étude a été réalisée en déplaçant le faisceau le long de la direction transverse. À son issue, nous avons constaté de fortes variations du motif de diffraction observé. Nous remarquons d'une part, l'apparition et la disparition de cercle de pics de diffraction avec le changement de position. D'autre part, en suivant deux cercles particuliers, nous avons observé que l'écart entre ces cercles reste constant et ce jusqu'à la disparition du premier d'entre eux.

9.2.1.4 Résumé de l'étude du cas 1

Dans les paragraphes précédents, nous avons étudié la situation où on a sur un même profil de diffraction plusieurs cercles de Laue dont les centres et les positions spéculaires sont alignés le long de l'axe polaire. Compte tenu des observations que nous venons de faire, il semble que les multiples cercles que nous observons aient bien une origine topologique. Tout semble se passer comme si au lieu d'avoir une seule surface, le faisceau arrive simultanément sur un certain nombre de petites surfaces légèrement inclinées les unes par rapport aux autres avec des angles d'incidence différents, donnant ainsi plusieurs cercles de conservation de l'énergie sur notre détecteur

9.2.2 Cas 2 : Des pics de diffraction démultipliés

Sur certains clichés de diffraction, nous avons été surpris d'observer que les pics de diffraction situés sur un même cercle apparaissaient très larges. Lorsque ces images ont été suffisamment résolues, nous avons même été en mesure d'observer des pics de diffraction distincts au sein d'un même ordre de diffraction, pour un même cercle de conservation d'énergie. La figure 122 montre une série d'images et de projections réalisées à partir d'un même cliché de diffraction (image 1 de Fig 122). Sur ce cliché, on peut voir la présence de différents cercles le long de l'axe radial (situation décrite dans le cas 1). On remarque aussi que pour le cercle situé au plus bas angle polaire, les ordres de diffraction sont constitués de pics démultipliés : au lieu d'avoir 1 seul pic par ordre, il nous semble en voir 2. Ce dédoublement est clairement visible lorsqu'on fait la projection de l'intensité le long du cercle de Laue comme présentée sur la figure 121. On peut voir sur le graphe ci-dessus que les deux pics présents au sein d'une même raie ne présentent pas tout à fait la même intensité. En nommant "*pic de gauche*" le pic situé vers les ordres négatifs " et "*pic de droite*" celui situé vers les ordres positifs, nous constatons que l'intensité du pic de gauche apparaît plus faible que celui de droite pour tous les ordres de diffraction observés. Afin de "quantifier" l'écart angulaire et la différence d'intensité entre les pics de diffraction de la figure 121, nous modélisons chaque ordre de diffraction à l'aide d'une association de **trois gaussiennes : deux gaussiennes fines de même largeur** représentent les pics cohérents et une troisième **gaussienne** de largeur plus importante représente le **fond incohérent**. Nous justifions ce choix de modélisation par les bons résultats que nous avons obtenus en modélisant les pics de diffraction "normaux" par la méthode des doubles gaussiennes (voir section 7.2). Nous mesurons que hormis pour *l'ordre-1*, les rapports

9.2 Présentation et étude des "motifs atypiques" relevés sur la surface de KBr(001)

d'intensité entre les gaussiennes de gauche et les gaussiennes de droite sont quasiment identiques pour tous les ordres observés et valent environ 70%. Nous mesurons par ailleurs la séparation angulaire entre "les pics de gauche" et "les pics de droite" de chaque ordre et nous trouvons des valeurs respectives de : $0,13^\circ$ et $0,12^\circ$ (à plus ou moins $0,01^\circ$). Ces valeurs sont très proches de

l'écart angulaire théorique entre deux ordres donné par la formule : $\Delta\phi = a \tan\left(\frac{\lambda_{\text{atomes}}}{a_{100}}\right)$ qui vaut pour des atomes d'hélium de 500 eV arrivant le long de la direction $\langle 100 \rangle$: $0,112^\circ$. On mesure par ailleurs que la distance entre les deux pics situés au sein d'une même raie vaut $0,04^\circ$ et que cet écart est identique pour tous les ordres du profil d'intensité de la figure 121.

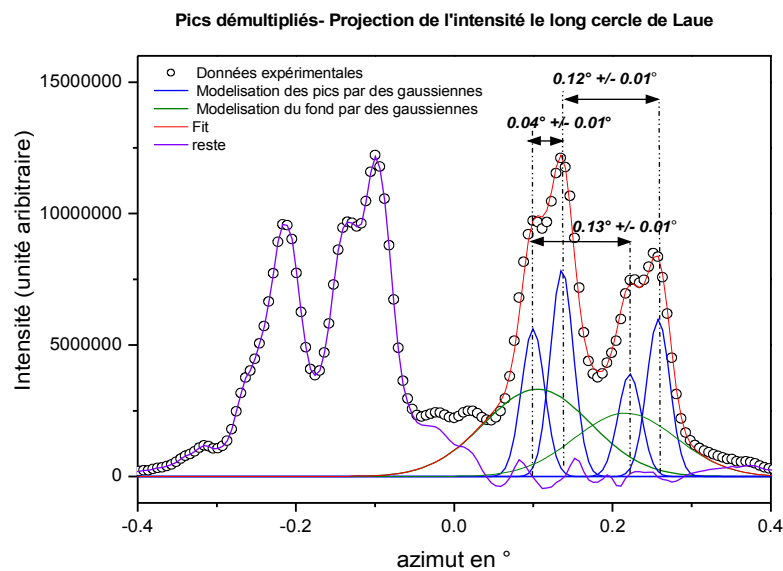


Fig 121: Projection de l'intensité le long du cercle de l'image 3 de la figure 122. Afin de mettre en évidence le dédoublement, nous avons modélisé les pics dédoublés à l'aide de 3 gaussiennes: deux gaussiennes fines de même largeur représentant les pics cohérents et une représentant le fond incohérent

9.2 Présentation et étude des "motifs atypiques" relevés sur la surface de KBr(001)

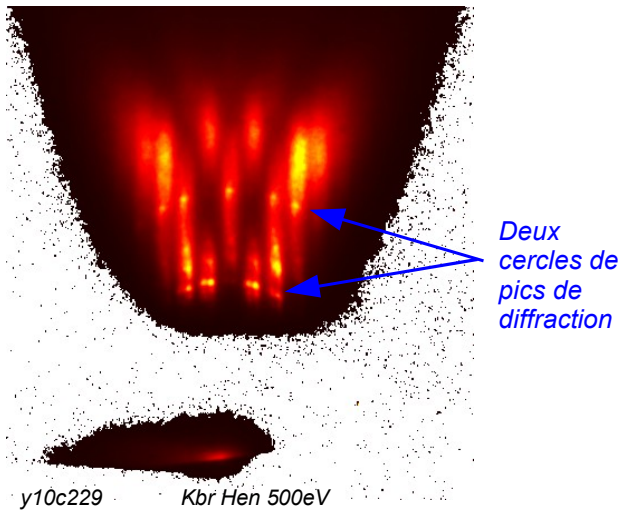


Image 1: Cliché enregistré sur une surface de KBr(001) avec des atomes d'hélium de 500eV sur lequel on peut distinguer plusieurs cercles de conservation de l'énergie et des pics de diffraction démultipliés aux faibles angles

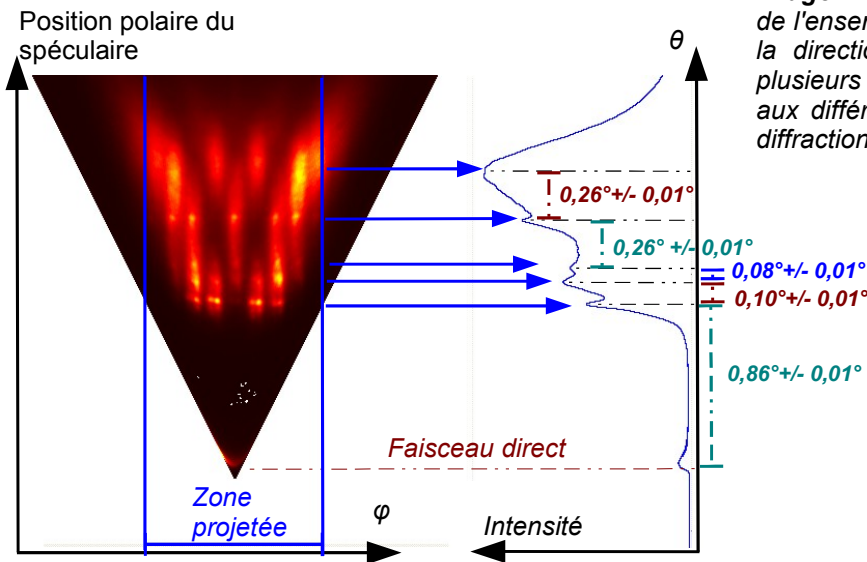


Image 2: Projection de l'intensité de l'ensemble du cliché le long de la direction radiale. On observe plusieurs maxima correspondant aux différents cercles de pics de diffraction

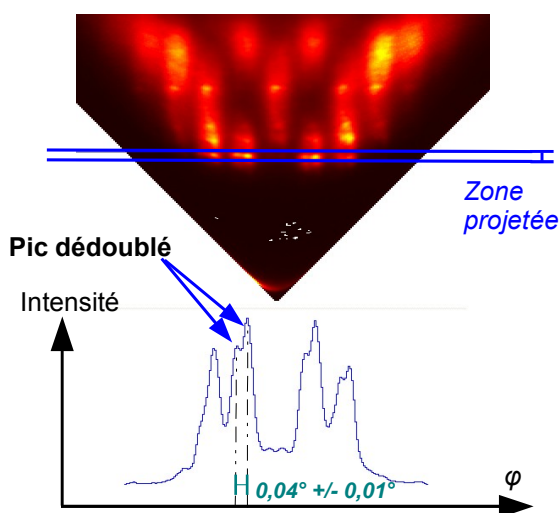


Image 3: Image agrandie de la zone à bas angles du cliché de diffraction. Projection de l'intensité le long d'un cercle de conservation de l'énergie pour lequel les pics apparaissent dédoublés. On observe deux maxima distincts dans "les raies de Bragg".

Fig 122: Cliché de diffraction présentant plusieurs cercles de Laue dont certains avec des pics démultipliés au sein d'une même raie de Bragg

9.2.2.1 Cas 2 : Évolution en fonction de l'énergie

Afin de comprendre l'origine de cette démultiplication des pics de diffraction, nous avons réalisé des études de variation de l'énergie totale. Lors d'une telle étude, l'angle d'incidence est maintenu constant et on change l'énergie du faisceau. Nous relevons pour chaque énergie le profil d'intensité le long d'un cercle de Laue où apparaissent des pics démultipliés. L'illustration suivante (Fig 123) présente des profils d'intensité mesurés le long d'un cercle de conservation de l'énergie présentant des pics démultipliés. La gamme d'énergie que nous présentons se situe entre 500 eV et 300 eV. Lors de cette série de mesures, nous avons modélisé les ordres de diffraction avec une association de 3 gaussiennes, telle que décrite auparavant.

Evolution du profil d'intensité d'un cercle avec des pics dédoublés en fonction de l'énergie

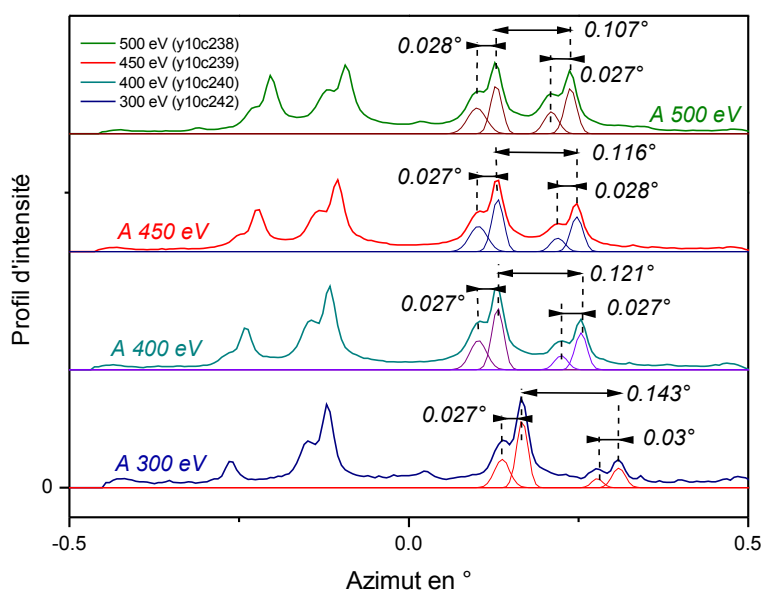


Fig 123: Évolution d'un profil d'intensité mesuré le long d'un cercle de conservation de l'énergie présentant des pics dédoublés lors d'une variation d'énergie totale. Les pics sont modélisés à partir d'une association de 3 gaussiennes. Seules les gaussiennes modélisant la partie cohérente du signal ont été représentées pour des raisons de clarté.

Au premier abord, nous pouvons voir à partir de cette illustration d'une part que la distribution d'intensité entre des pics de diffraction démultipliés situés au sein d'un même ordre évolue peu contrairement à la distribution d'intensité entre les différents ordres. Pour cet exemple, nous mesurons que pour chaque ordre, quelque soit l'énergie (*normale et totale*), l'intensité des pics de droite (aire) valent environ 40 %-45% de celles des pics de gauche. Par ailleurs, nous constatons que les distances entre deux pics au sein d'un même ordre ne changent contrairement à la distance

entre les ordres qui varie en suivant la formule de Bragg : $\Delta \phi = a \tan\left(\frac{\lambda_{\text{atomes}}}{a}\right)$. Bien que nous ayons reposé notre exposé sur un exemple particulier, nous retrouvons ce résultat pour d'autres séries de mesures et il semble donc que cette démultiplication soit indépendante de l'énergie et donc de la longueur d'onde de la particule incidente.

9.2.2.2 Cas 2 : Évolution en fonction de la position du faisceau sur la cible

Nous observons que la démultiplication des pics de diffraction au sein d'un même ordre de diffraction dépend fortement de la position du faisceau sur la cible. Lorsque nous baladons le faisceau sur la cible le long de la direction transverse, la distribution des intensités des pics au sein d'un même ordre évolue, certains pics peuvent disparaître, et d'autres apparaître. Nous constatons en revanche que pour deux pics donnés au sein d'un même ordre, l'écart angulaire qui les sépare reste constant lors du changement de position du faisceau sur la cible, et ce jusqu'à ce que le premier d'entre eux disparaisse.

9.2.2.3 Résumé de l'étude du cas 2

Comme pour le premier cas de structure que nous avons étudié, il semble que l'origine de la démultiplication des pics soit topologique. Tout semble se passer comme si au lieu d'avoir un cercle de Laue avec 1 seul pic pour chaque ordre, nous avions N cercles de Laue superposés et légèrement tournés les uns par rapport aux autres, donnant ainsi N pics dans chaque ordre de diffraction.

9.2.3 Des cercles de Laue qui se croisent

En plus des deux cas de motifs de diffractions anormaux que nous venons de présenter dans les précédents paragraphes, nous relevons un troisième type de structure exceptionnelle : sur certaines images, nous observons des cercles de conservation de l'énergie qui se croisent ! La figure 124 montre un cliché présentant une telle particularité et son image redressée.

En esquisissant le contour des cercles, nous pouvons remarquer d'une part que les cercles ont des diamètres légèrement différents et que leurs centres (C1 et C2 sur la figure ci-dessous) ne sont plus situés sur le même axe polaire. Ils se situent sur l'axe équatorial (marquant le plan de la surface) et sont décalés l'un par rapport à l'autre. Sur la figure 133, ce décalage entre les centres des deux cercles vaut : $0,11^\circ$ ($\pm 0,01^\circ$).

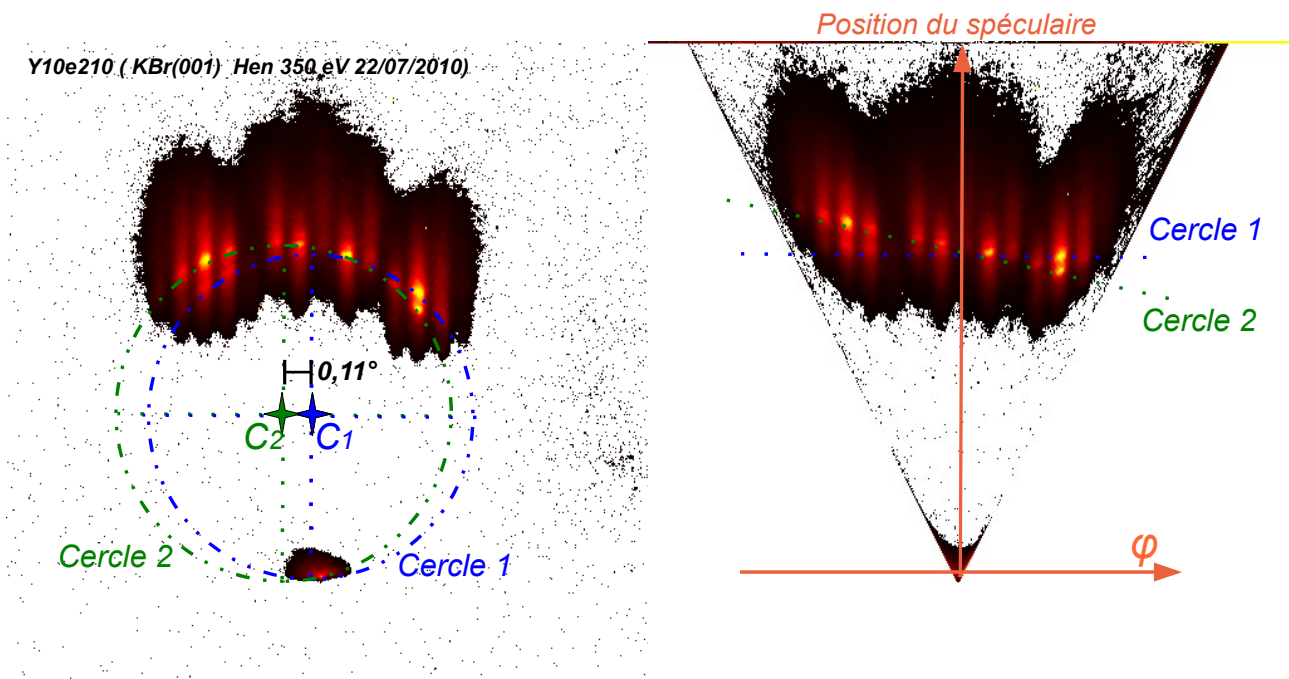


Fig 124: Cliché de diffraction faisant apparaître deux cercles de pics qui se croisent

9.2.3.1 Comportements

Comme nous l'avons fait dans les autres cas, nous avons étudié le comportement de ce motif de diffraction particulier lors des variations des différents paramètres. Nous constatons lorsque nous changeons l'angle d'incidence que les écarts angulaires entre les centres des cercles restent constants

bien que leurs diamètres augmentent.

Lorsque nous changeons d'énergie nous observons d'une part que les diamètres des deux cercles observés ne changent pas. D'autre part, nous observons que le décalage entre les centres des deux cercles ne varie pas non plus et semble donc indépendant de l'énergie.

Enfin, comme pour les autres structures, nous observons en revanche que ce type de structure dépend en revanche fortement de la position du faisceau sur la cible. Ces observations semblent plaider pour l'hypothèse que ce dernier cas de structure soit d'origine topologique.

9.2.4 Remarques

9.2.4.1 *Peut-on voir les trois cas de figures pour toutes les directions cristallographiques ?*

Les images dont nous nous sommes servis pour illustrer nos propos lors de la présentation des 3 cas de structures atypiques ont toutes été enregistrés le long des directions cristallographiques majeures dites de canalisation. Ce n'est pas pour autant que ces structures sont propres à des directions particulières. En effet, nous avons observé les structures décrites précédemment dans les deux types de directions de canalisation ainsi que dans des directions de type "aléatoire" comme le montre la figure 125. Elles sont en revanche plus faciles à mettre en évidence expérimentalement dans le cas des directions de canalisation en raison de la plus grande ouverture angulaire présentée par ce type de direction.

9.2.4.2 *Série arithmétique*

Lors de l'analyse de clichés de diffraction où apparaissaient plusieurs cercles de Laue de même axe polaire (cas de figure 1), il nous a semblé que les décalages entre les différents cercles semblent suivre des suites arithmétiques. La figure 125 illustre bien ces propos. Elle montre que l'écart entre deux positions spéculaires successives est à peu près le même pour tous et vaut 0,05-0,06°. Afin de mettre en évidence ce résultat pour la figure 125, nous avons modélisé le profil à l'aide d'un peigne de gaussiennes espacées de 0,06°.

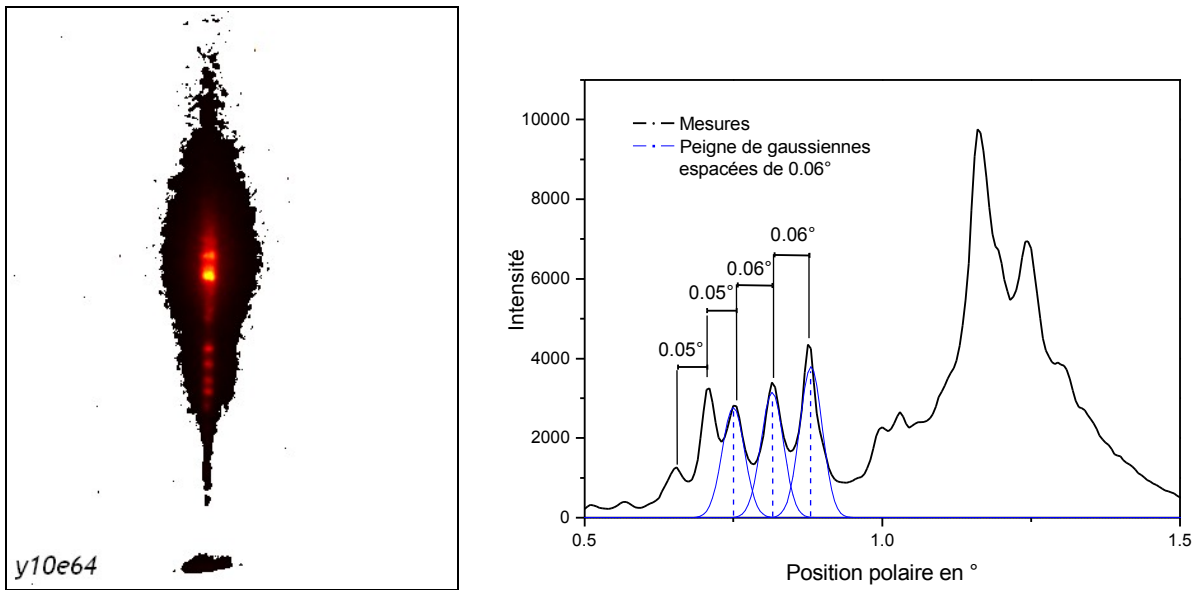


Fig 125: Cliché de diffraction pris le long d'une direction random de la surface de NaCl(001). La projection de l'intensité de l'ordre 0 le long de la direction radiale montre une série de maximas.

9.2.4.3 Influence de la taille du faisceau

Nous avons mentionné lors de notre étude du premier cas de structuration la notion de taille de faisceau projetée pour expliquer les variations du nombre de cercle de notre motif de diffraction lors d'une variation d'angle. Cette taille dépend directement du dernier diaphragme traversé et nous pouvons voir expérimentalement les répercussions d'une plus grande taille de faisceau. En effet, pour un même angle d'incidence et une même position du faisceau sur la cible, nous observons qu'en augmentant la taille du faisceau en changeant le dernier diaphragme, davantage de structures (des 3 cas de figures) sont visibles sur le motif de diffraction. Cet aspect est encore plus remarquable pour les grands angles d'incidence pour lesquels, on peut voir un seul cercle de Laue avec un seul pic dans chaque ordre lorsque la taille du faisceau avoisine les 20 μm alors que pour des tailles plus importantes comme 100 μm , le motif de diffraction apparaît très structuré. Cet aspect peut être compris si l'on part de l'hypothèse (confortée par nos précédentes études) que les structures que l'on observe sont dues à différents domaines topologiques de la surface. Dans un tel cas, un faisceau de grand diamètre possède une largeur et une longueur projetée très importante qui lui

permet de voir davantage de domaines qu'un faisceau de taille plus petite.

Remarque : nous noterons que l'augmentation de taille du dernier diaphragme peut impliquer aussi une augmentation de la divergence du faisceau et une diminution de la cohérence transverse, et de ce fait est susceptible de réduire la résolution de nos pics de diffraction.

9.2.5 Comparaison avec les clichés obtenus sur les autres échantillons

Les images que nous avons présentées jusqu'à maintenant pour illustrer les trois cas de structures atypiques ont été toutes réalisées lors de l'étude de la surface KBr(001). "Historiquement parlant", c'est sur cet échantillon que nous les avons identifiées. Lors de la poursuite de nos travaux, nous avons retrouvé des structures similaires sur les surfaces de NaCl(001) ainsi que sur la surface de CaF₂(111), un autre isolant ionique que nous avons étudié. Dans cette sous partie nous allons brièvement évoquer les similitudes et les différences que nous avons observées pour ces échantillons par rapport à KBr(001).

9.2.5.1 Comparaison entre NaCl(001) et KBr(001)

Les structures que nous pouvons observer sur la surface de NaCl(001) sont très similaires à celles mises en évidence sur KBr(001). Nous avons en effet observé les trois types de structures présentées précédemment et ces dernières présentent les mêmes comportements (indépendance vis à vis de l'énergie totale, origine topologique supposée...). Les illustrations 126 et 127 présentent des images que nous avons enregistrées sur cette surface où l'on peut distinguer les deux premiers cas de figure, c'est-à-dire : présence de plusieurs cercles de Laue le long de l'axe polaire et des pics démultipliés au sein de chaque ordre de diffraction. Nous constatons par ailleurs que les écarts angulaires mesurés et pour les cercles multiples sont du même ordre de grandeur que ceux mesurés sur KBr(001) et sont de l'ordre de 0.05° pour les pics démultipliés et de quelques 0.03° à quelques dixièmes de degrés pour le cas des cercles multiples.

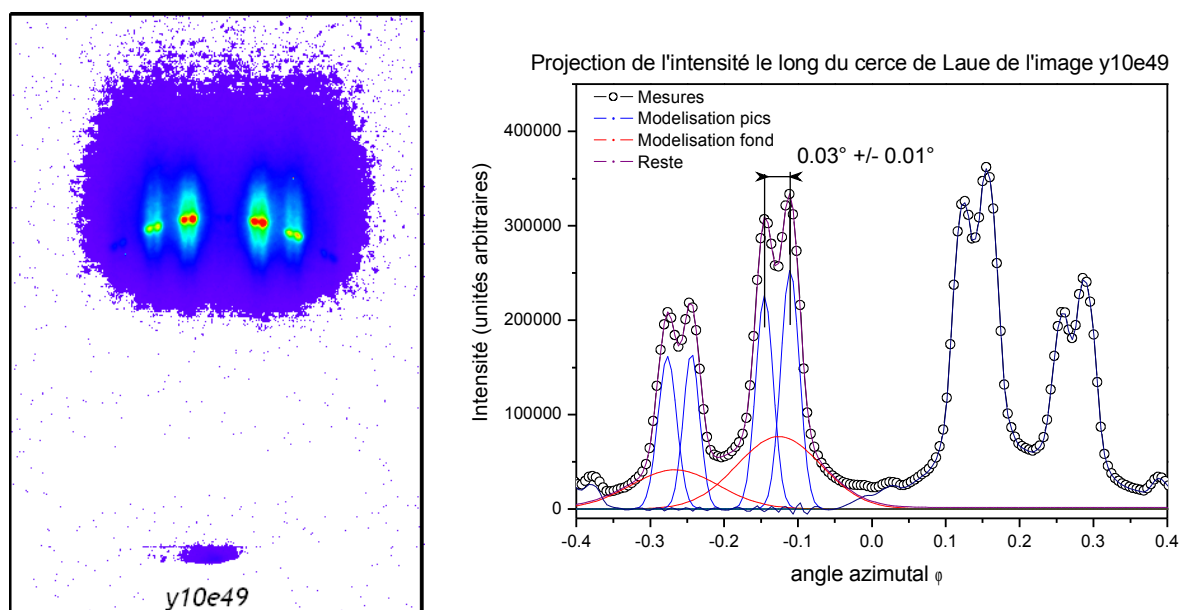


Fig 126: A gauche: Cliché de diffraction enregistré sur NaCl(001) avec des atomes d'hélium de 450 eV le long de la direction $\langle 100 \rangle$ A droite : Projection de l'intensité le long du cercle de Laue. On peut voir sur cette image des pics dédoublés (cas de figure 2)

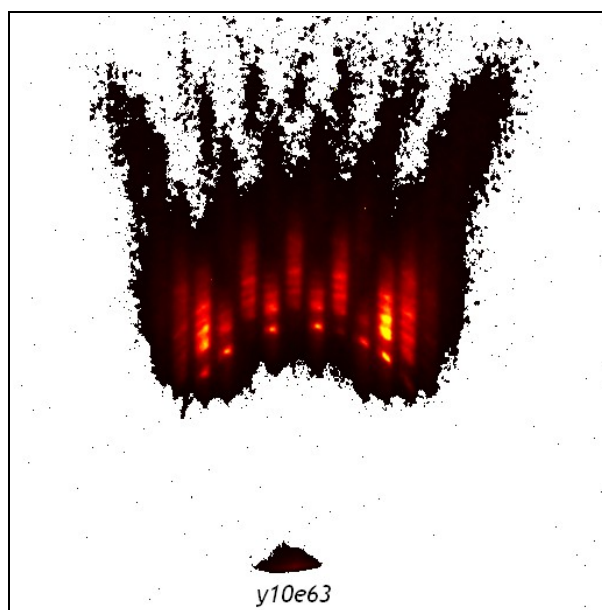


Fig 127: Image prise sur NaCl où apparaissent de nombreuses structures parmi lesquelles on peut distinguer plusieurs cercles le long de l'axe radial.

9.2.5.2 Comparaison entre CaF₂(111) et KBr(001)

La Lors de notre étude de la surface de CaF₂(111), un autre isolant ionique (pour sa structure voir :[102]), nous avons observé sur certaines images des pics de diffraction démultipliés au sein d'un même ordre comme le montre l'image suivante. En revanche, contrairement aux surfaces de KBr et de NaCl nous n'avons pas pu mettre en évidence de manière significative les deux autres cas de figure (bien que la préparation de l'échantillon ait été faite dans des conditions similaires (clivage)).

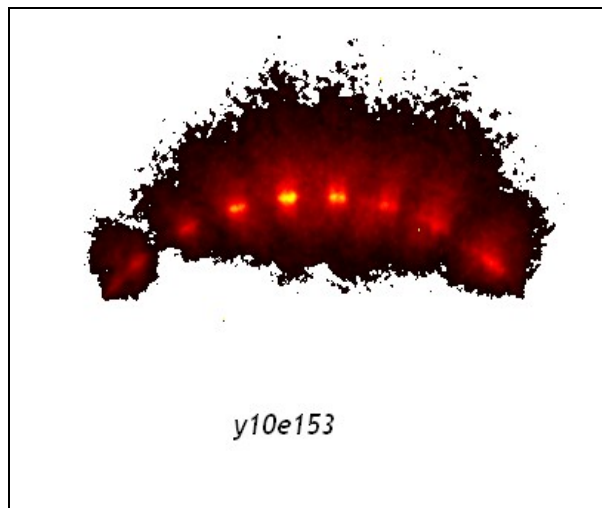


Fig 128: Cliché de diffraction pris sur une surface de CaF₂ sur lequel on peut distinguer des pics de diffraction dédoublés

9.3 Interprétation des résultats :

Nous avons présenté dans la précédente partie une étude des trois grands cas de figures d'anormalités que nous avons observées sur les surfaces de NaCl(001), KBr(001) et CaF₂(001). Suite à nos observations, nous avons formulé l'hypothèse que les structures observées pourraient être d'origine topologique. Bien que notre échantillon soit un mono-cristal, l'existence de multiples cercles de conservation de l'énergie et de pics de diffraction démultipliés semblent indiquer que la surface est constituée de différents domaines légèrement inclinés les uns par rapport aux autres. Cet aspect peut être compris si on tient compte du fait qu'un cristal réel n'est pas parfait et qu'il présente

9.3 Interprétation des résultats :

toujours des défauts. Leur présence crée des distorsions locales et perturbe l'arrangement périodique parfait du cristal. Ces défauts se présentent sous différentes formes. Ils peuvent être ponctuels (atomes interstitiels, lacune), linéaire (mosaïcité, dislocations), à deux dimensions ou encore à trois dimensions (grains amorphes, précipités).[103][104][105][106][107]

La mosaïcité est l'un des défauts fondamentaux. Il est présent aussi bien sur les cristaux ioniques que sur les métaux. La notion de mosaïcité a été introduite par Paul Ewald pour expliquer la décroissance observée de l'intensité lors des mesures de réflectivité[108][109][110]. La mosaïcité décrit le fait que le cristal est constitué d'un grand nombre de petits cristaux parfaits de taille microscopiques orientés dans la même direction, mais que ces derniers sont légèrement désorientés les uns par rapport aux autres[111][112]. Remarquons que lorsque ce décalage angulaire vaut moins de $0,2^\circ$ on parle de mosaïcité alors que lorsqu'elle est supérieure on parle de "texture" .

La mosaïcité d'un cristal peut provenir de la croissance elle même ou être induite par les contraintes. On relève deux types de mosaïcité : une *mosaïcité dans le plan* et une *mosaïcité hors du plan*. [113] [114][115]

Dans les paragraphes suivants, nous proposons une interprétation des structures que nous avons observées en partant de l'hypothèse qu'elles sont dues à des domaines mosaïques légèrement désorientés les uns par rapport aux autres. Nous allons voir comment cette approche peut nous permettre de comprendre nos résultats expérimentaux.

9.3.1 Mosaïcité dans le plan

La mosaïcité dans plan ou "*twist mosaicity*" correspond au cas où deux domaines proches apparaissent légèrement "tournés" l'un par rapport à l'autre dans le plan de la surface.

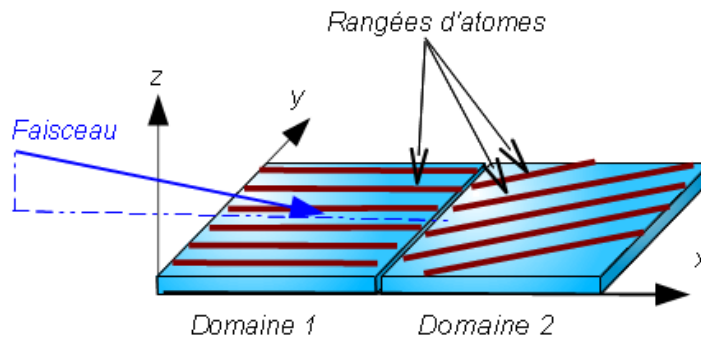


Fig 129: Mosaïcité dans le plan : deux domaines désorientés

Afin de comprendre les répercussions de tels défauts sur nos profils de diffraction, nous considérons le cas où le faisceau est aligné le long d'une direction cristallographique majeure et que la surface se compose de domaines légèrement désorientés les uns par rapport aux autres comme illustré sur la figure 129. Certains domaines présentent des rangées d'atomes parfaitement alignés dans l'axe du faisceau, d'autres en revanche sont légèrement tournés et les atomes diffusant sur ces domaines arrivent avec un léger dés-alignement azimutal par rapport aux rangées. Les motifs de diffraction résultants correspondent alors exactement au cas traité dans la section 1,3 de la partie diffraction.

Dans le cas d'un domaine désorienté de l'angle β par rapport au faisceau, le centre du cercle de conservation de l'énergie se situe toujours sur la médiatrice de l'axe "faisceau direct-spéculaire", mais il est décalé approximativement de la quantité $-\beta$ (approximation des petits angles) comme on peut le voir sur la figure 130. Dans le cas où le faisceau éclaire N domaines de la surface, l'image que nous obtenons sur le détecteur correspond à la superposition de N figures de diffraction correspondant aux N domaines.

9.3 Interprétation des résultats :

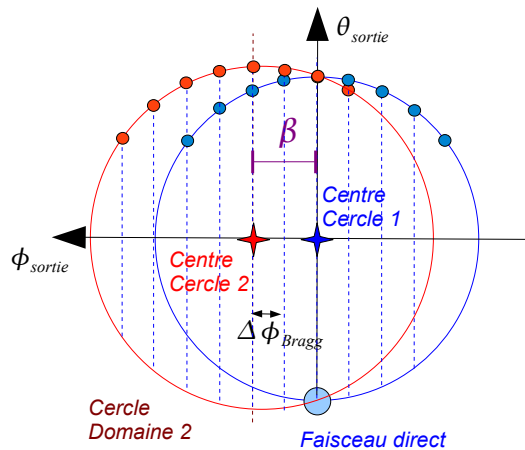
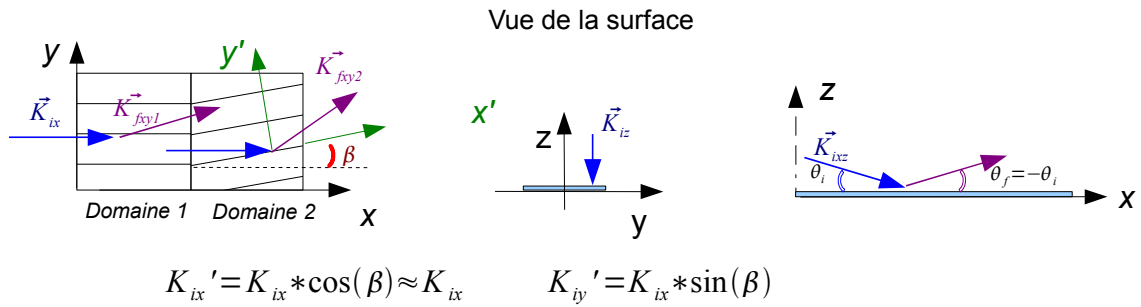


Fig 130: Motif de diffraction obtenu dans le cas d'une surface composée de deux domaines mosaïques légèrement tournés l'un par rapport à l'autre dans le plan (x,y)

- **Similarités avec le troisième cas de structures observées**

Le cas de figure que nous venons d'évoquer présente des ressemblances évidentes avec le troisième cas de structure que nous avons étudié (section 9.2.3). Nous remarquons par ailleurs que les résultats des études que nous avons réalisées (c'est-à-dire l'invariance de la position des centres des cercles avec l'angle d'incidence et avec l'énergie) semblent compatibles avec cette proposition d'interprétation. En partant de l'hypothèse que la figure 133 soit bien le fait de deux domaines mosaïques, nous pouvons donc déduire que le décalage angulaire entre les deux domaines vaut : $0,11^\circ$

9.3.2 Mosaïcité hors du plan :

La mosaïcité hors du plan peut être comprise comme le fait que des domaines sont légèrement inclinés par rapport au plan médian macroscopique de la surface. Pour comprendre comment se répercute une mosaïcité hors du plan sur un motif de diffraction, nous considérons le cas idéal où la surface est composée de domaines inclinés le long d'une seule direction (X ou Y) : Nous pouvons alors distinguer deux cas particuliers en fonction de l'alignement du faisceau.

9.3.2.1 Les inclinaisons ont lieu dans le plan (X, Z).

Il s'agit peut être du cas le plus facile à comprendre. La surface est constituée de domaines de tailles variables légèrement inclinés les uns par rapport aux autres et répartis le long de laquelle les atomes du faisceau se propagent (axe X).

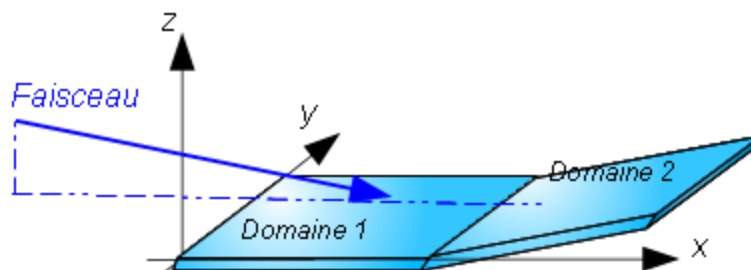


Fig 131: Plans inclinés le long de la direction du faisceau

Les atomes incidents diffusent indépendamment les uns des autres sur ces surfaces inclinées. Les angles d'inclinaisons étant très faibles, on peut considérer qu'un atome ne peut diffuser que sur un seul domaine. En considérant le cas simple où la surface n'est constituée que de deux domaines, comme montré sur la figure 131, nous comprenons que pour une telle surface, des atomes qui arrivent avec le même angle d'incidence par rapport au plan médian de la surface n'auront pas le même angle d'incidence effectif s'ils ne diffusent pas sur le même domaine. Par conséquent, le motif de diffraction observé sur notre détecteur correspondra à la superposition de deux cercles de conservation de l'énergie associés à la réflexion spéculaire des projectiles sur chacun des domaines.

9.3 Interprétation des résultats :

On retrouve par cette approche simple le cas de structuration traité dans la section 9.2.1 : c'est-à-dire l'observation de plusieurs cercles de Laue le long de la direction polaire . Remarquons que ce modèle simple basé sur la notion de mosaïcité permet de comprendre pourquoi l'écart angulaire entre les positions spéculaires des cercles de Laue ne varie pas avec l'énergie et avec l'angle d'incidence. En partant de l'écart mesuré entre les deux cercles de la figure 119, nous calculons que l'angle entre les deux domaines correspondant est de : 0.025° . Pour la figure 125 enregistrée sur NaCl, nous trouvons que l'angle entre deux domaines vaut : 0.03° . Elle est du même ordre de grandeur que celle trouvé par Kashihara et ses collaborateurs qui avait mesuré pour une surface de NaCl(001) clivée à l'air une mosaïcité hors du plan de 0.05° [116].

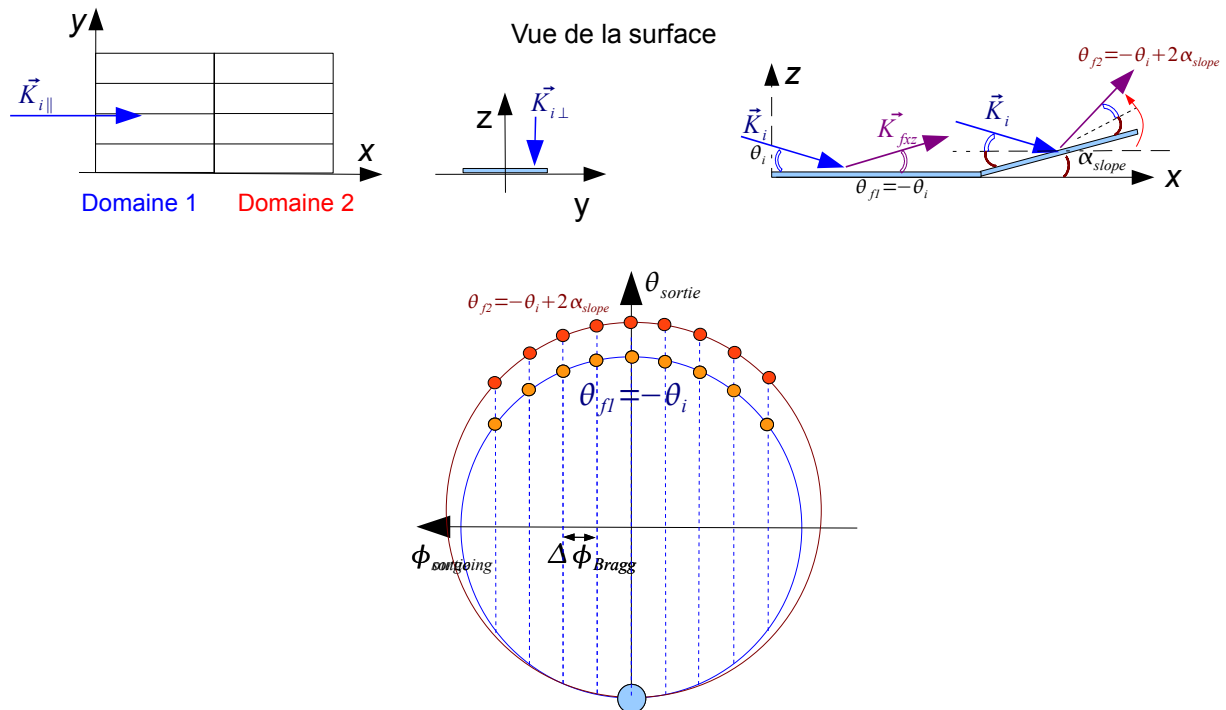


Fig 132: Motif de diffraction obtenu dans le cas de deux domaines inclinés le long de la direction du faisceau

9.3.3 Les inclinaisons ont lieu dans le plan (Y, Z).

Pour ce type de mosaïcité, nous considérons que la surface est constituée de plans légèrement inclinés le long de la direction transverse. Le long de la direction de propagation, le faisceau voit une série de domaines de même orientation et pour lesquels il possède le même angle d'incidence polaire, comme on peut le voir sur le schéma de la figure 133.

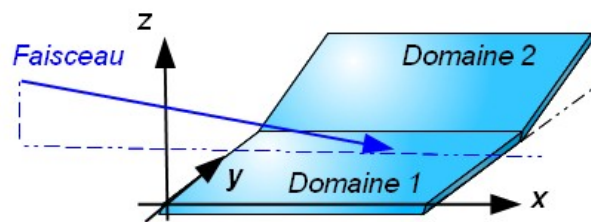


Fig 133: Domaines inclinés le long de la direction transverse

Considérons le cas d'un atome du faisceau parfaitement aligné (trajectoire incidente dans le plan x,z) arrivant sur un plan légèrement incliné par rapport au plan moyen de la surface. Du fait de l'inclinaison, l'atome possède une vitesse transverse dans le repère associé au plan incliné (domaine 2 sur la figure 133) et sa vitesse normale dans ce repère est différente de celle qu'il a dans le repère du domaine 1. Le cercle de pics de diffraction qu'il donne présente le même diamètre que dans le cas d'un domaine d'inclinaison nulle par rapport au plan moyen, mais réflexion spéculaire oblige, la position du spéculaire (ordre 0) et des ordres de diffraction sont légèrement tournés de l'angle γ qui correspond à l'angle d'inclinaison des domaines. Dans le cas où la surface est constituée de deux domaines inclinés l'un par rapport à l'autre, nous obtenons alors une superposition de deux cercles de pics de diffraction tournés l'un par rapport à l'autre de γ (voir illustration 134) et les pics de diffraction apparaissent dédoublés au sein d'un même ordre de diffraction.

Nous retrouvons ainsi le second cas de motifs particuliers observé. Nous remarquerons que cette approche peut nous permettre d'expliquer pourquoi la distribution d'intensité entre deux pics au sein du même ordre reste constante malgré les modifications de l'angle d'incidence ou de l'énergie totale.

Nos mesures montrent que sur un même cercle de conservation de l'énergie, les pics dédoublés sont espacés de la même distance pour les ordres étudiés (-1,+1,-2,+2). Dans le cas de l'interprétation proposée, nous retrouvons ce résultat pour les premiers ordres dans le cas où le

9.3 Interprétation des résultats :

diamètre du cercle est grand et pour laquelle la courbure est faible aux ordres considérés.

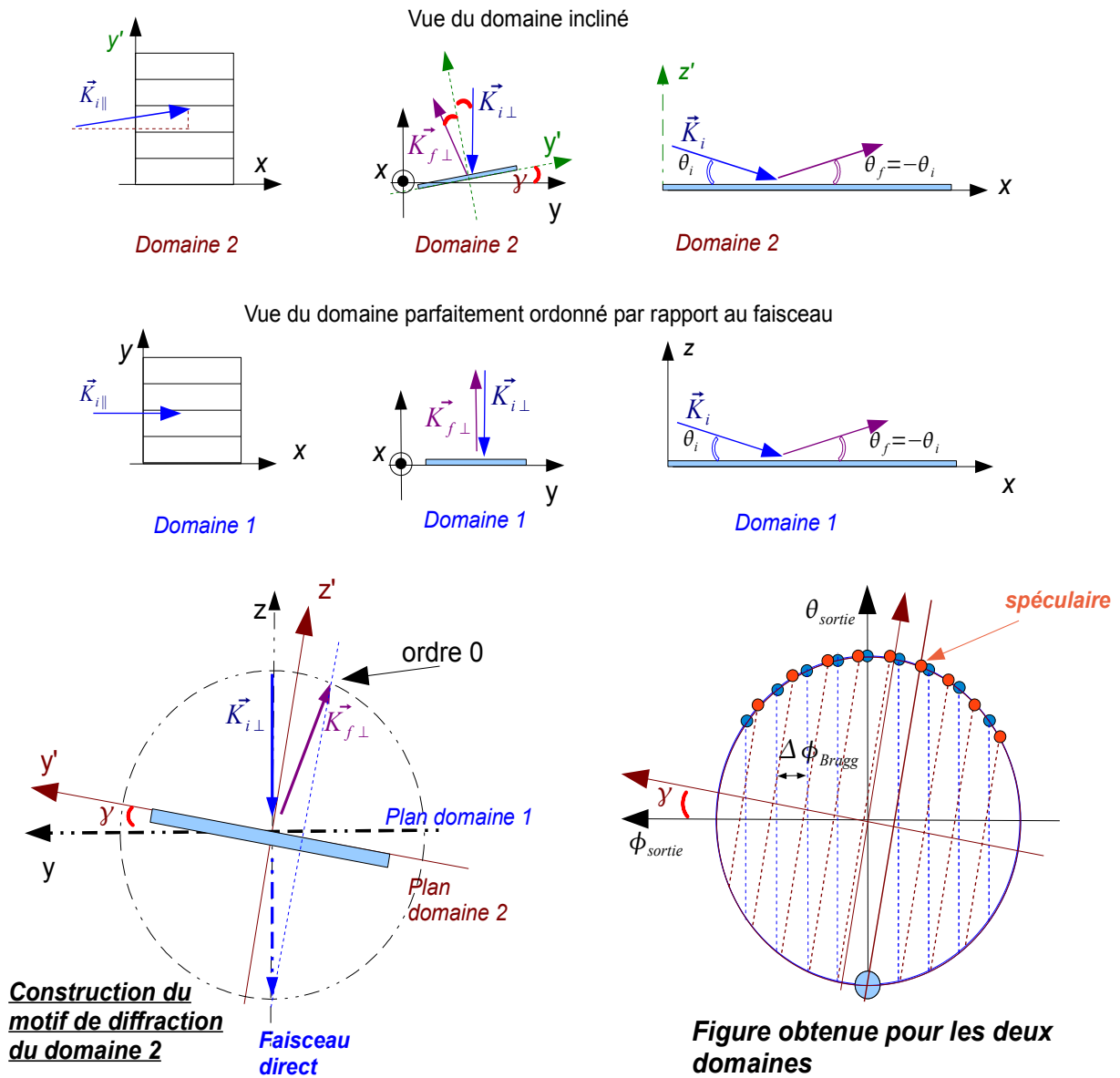


Fig 134: Construction du motif de diffraction obtenu dans le cas de deux domaines inclinés l'un par rapport à l'autre

9.3.4 Hypothèse sur l'origine de la mosaïcité

Dans la précédente partie, nous avons vu que l'approche consistant à attribuer l'origine des structurations des motifs de diffraction observés à la mosaïcité semblait bien reproduire nos résultats expérimentaux. Compte tenu de ce résultat, il est légitime de s'interroger sur l'origine de cette mosaïcité. Elle peut être induite lors de la croissance même du cristal [117] ou être créée par des contraintes extérieures.

En ce qui concerne la mosaïcité créée lors de la croissance du cristal, il est difficile d'obtenir des informations qui nous permettrait d'évaluer sa proportion dans le cas des échantillons NaCl, KBr et CaF₂. En revanche, le fait que nous ayons clivé nos échantillons peut avoir été une source de mosaïcité importante (de part le choc). Afin d'obtenir une idée "de la mosaïcité" générée par clivage, nous avons effectué une série de mesures sur un échantillon de KBr(001) poli. Nos observations nous ont montré que sur ce type d'échantillon "les structurations des motifs de diffraction imputées" à la mosaïcité sont beaucoup moins présentes, et de plus faible amplitude (démultiplications de pics moins présentes, moins de cercles multiples). Même si il ne nous est pas possible de conclure de manière certaine à partir de cette comparaison (**Aucune information sur les processus de croissance des deux échantillons**), nous avons en revanche avancé des arguments supportant l'hypothèse que l'origine des structures observées puisse être mosaïque.

9.4 Conclusion

Dans cette partie, nous venons voir que la diffraction d'atomes rapides permet de mettre en évidence la présence de la mosaïcité à la surface d'un cristal et permet même de quantifier ces défauts. D'autres études seront nécessaires pour établir s'il existe une corrélation entre la direction de clivage et le type de mosaïcité observée. En effet, si on considère que la direction de clivage correspond à une direction cristallographique bien connue (comme cela peut être le cas pour des échantillons de section rectangulaire), alors on peut s'attendre à ce que des dislocations des domaines soient favorisées dans cette direction, et que les motifs de diffraction dans cette direction portent l'empreinte de la mosaïcité induite. Par ailleurs, on peut se demander plus simplement (sans faire intervenir de processus de clivage), si compte tenu de l'arrangement atomique du cristal

9.4 Conclusion

certaines directions cristallographiques ne favorisent pas certains types de mosaïcité.

En ce qui concerne la désorientation hors du plan des domaines, un aspect est à élucider : sur certaines images, il semble que l'inclinaison entre les différents domaines suit une suite arithmétique, suggérant ainsi que les domaines successifs ne peuvent être inclinés que d'un même angle (comme sur la figure 125 du paragraphe), comment expliquer cela ?

Par ailleurs, des comparaisons avec d'autres échantillons sont nécessaires pour nous permettre de comprendre pourquoi nous avons observé les 3 types de mosaïcité sur KBr et NaCl alors que seule la démultiplication des pics de diffraction au sein d'un même ordre (sections 9.2.2 et 9.3.3) a été observée avec CaF₂.

9.4 Conclusion

10 Étude des processus décohérents dus aux excitations électroniques sur une surface d'Ag(110)

10.1 Introduction et problématiques

La diffraction d'atomes rapides a été mise en évidence sur des surfaces d'isolants ioniques. C'est ce même type de surfaces dont se sont servis Stern et Estermann pour démontrer expérimentalement, dès 1930, la nature ondulatoire de l'atome. Ces matériaux ont la caractéristique de présenter une structure électronique avec un très grand "gap" d'énergie entre la bande de valence pleine et la bande de conduction vide. L'excitation des électrons a donc un coût énergétique important ($E_g > 3 \text{ eV}$). De ce fait, compte tenu des faibles énergies normales mises en jeu dans la diffraction d'atomes rapides (maximum quelques centaines de meV), il est peu probable d'exciter des électrons lors de la diffusion [118]. Par conséquent, sur de telles surfaces, la principale source de décohérence est due aux déplacements thermiques aléatoires des atomes de la surface. Des résultats similaires ont été par la suite obtenus avec une surface de semi-conducteur ZnSe(100) [3] suggérant qu'une différence d'énergie de bande de 2.6 eV est suffisante pour que la probabilité d'exciter des électrons soit faible.

En ce qui concerne les surfaces métalliques, la situation est très différente, et elle apparaît en premier abord, défavorable à l'observation de la diffraction. En effet, dans ce type de matériau, les électrons occupent des états de la bande de conduction et il n'y a pas de seuil énergétique pour exciter un électron proche du niveau de Fermi. Des mesures réalisées par S.Lederer et ses collaborateurs sur une surface de Al(110) ont montré que les pertes d'énergies pour un faisceau d'hélium de 1keV était de l'ordre de 10-15 eV[119]. En considérant qu'un seul électron est excité, ceci correspond à un transfert de moment de près de 2 \AA^{-1} , une valeur qui excède la valeur typique d'un vecteur du réseau réciproque, suggérant que le signal provenant de la diffraction devrait être complètement brouillé.

Compte-tenu de ces remarques, il apparaît donc remarquables que l'on ait pu observer la diffraction d'atomes rapides sur les métaux ([4])([5]) et elles amènent la question suivante : comment les excitations électroniques influencent-elles la diffraction ? Dans ce chapitre, nous présentons donc

une étude d'une surface d'argent Ag(110) qui a été réalisée avec le dispositif expérimental sur lequel Patrick Rousseau a réalisé sa thèse. Les études ont été menées par Nenad Bundaleski, en post-doc dans le groupe, et m'ont permis de me familiariser avec l'ancien dispositif avant de prendre en charge la réalisation du nouveau. Nous axerons particulièrement notre présentation sur les processus décohérents dus aux excitations électroniques.

10.2 Conditions expérimentales

10.2.1 Présentation de la surface d'argent Ag(110)

La surface sur laquelle repose notre étude est la face d'argent Ag(110). Cet échantillon a été préparé par des cycles de bombardement à grand angle par des ions d'Argon de 500 eV suivis de recuits à 600 K auquel se sont succédés des bombardements en incidence rasante par des ions argons de 5 keV.

En ce qui concerne sa géométrie, la surface Ag(110) présente 3 directions cristallographiques majeures : les directions de type $\langle 001 \rangle$, $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ et $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ le long desquelles la surface présente des rangées d'atomes bien alignés le long de la direction transverse et qui sont espacées respectivement de $a_{\langle 001 \rangle} = 2.89 \text{ \AA}$, $a_{\langle 1\bar{1}2 \rangle} = 2.36 \text{ \AA}$ et de $a_{\langle 1\bar{1}0 \rangle} = 4.09 \text{ \AA}$ comme le montre la figure 135 ci-dessous.

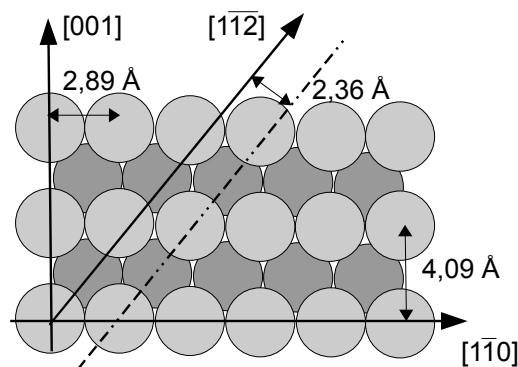


Fig 135: Vue de la surface d'Ag(110)

10.2.2 Faisceau

Les mesures ont été réalisées avec un faisceau d' ^3He obtenu à partir du faisceau de la source à résonance cyclotronique (ECR) du dispositif présenté brièvement en introduction du chapitre 5 qui est neutralisé par échange de charge résonant lors de son passage à travers une cellule contenant

une cible gazeuse d'hélium. Les énergies cinétiques auxquelles ont été réalisées cette étude se situent entre 0.3 et 2 keV et la gamme d'angle d'incidence polaire avec lequel les atomes incidents arrivent sur la surface se situe entre 0.5 et 2°.

Dans le dispositif utilisé pour réaliser cette étude, l'image du faisceau diffusé est recueillie en aval de la cible par un détecteur compteur sensible en position basé sur une technologie d'anode résistive (voir thèse de Patrick Rousseau [57]). Afin de mesurer précisément l'angle d'incidence, la cible n'est pas totalement insérée dans le faisceau et les projectiles non interceptés viennent alors marquer la position angulaire du faisceau direct sur le détecteur.

10.3 Profils de diffraction

Les images de la figure 136 présentent des clichés de diffraction que nous avons enregistrés le long des 3 directions cristallographiques majeures "dites" de canalisation sur lesquelles on observe clairement des maxima d'intensité correspondant à des pics de diffraction. En mesurant la distance entre deux ordres de diffraction, on calcule les périodicités des rangées : $a_{<001>} = 2.82 \text{ \AA}$, $a_{<111>} = 2.36 \text{ \AA}$ et $a_{<110>} = 4.11 \text{ \AA}$. Ces valeurs sont en bon accord avec les paramètres de structure cristalline de l'argent (2.89Å, 2.36Å et 4.09Å).

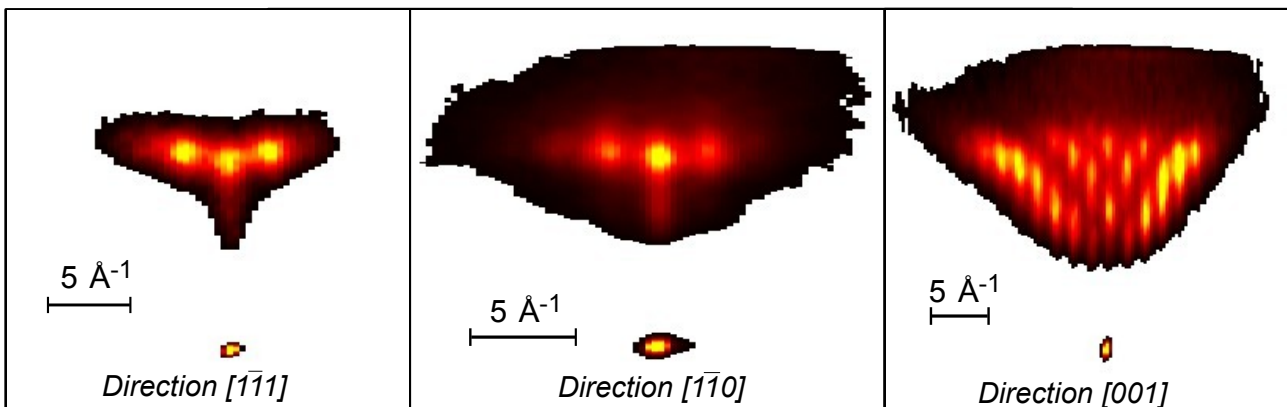


Fig 136: Images redressées de clichés de diffraction enregistrées le long des 3 directions de la surface d'Ag(110) avec un faisceau d'1keV pour l'image de la direction $[1\bar{1}1]$ et avec un faisceau de 500 eV pour les deux autres.

Comme nous l'avons évoqué précédemment dans la partie "diffraction", le cliché de diffraction que l'on observe est interprété comme une superposition d'un fond incohérent "classique" et du signal cohérent donnant les pics de diffraction. En modélisant les pics de diffraction à l'aide d'une association de deux gaussiennes de largeurs différentes (méthode présentée section 7.2), nous pouvons estimer comme nous l'avons fait dans notre étude des isolants ioniques la contribution du

fond incohérent à partir du profil d'intensité représenté sur la figure 137. Nous mesurons que celui-ci est de l'ordre de 36%. Cette valeur est comparable avec celles mesurées sur les isolants ioniques mesurées par Schüller et Rousseau et celles obtenues dans le cadre de nos travaux, ce qui suggère que les contributions inélastiques des excitations électroniques ont un effet limité sur la cohérence du signal.

À partir de l'étude des profils d'intensités des images enregistrées et en nous servant de l'approche Hard Wall, nous pouvons mesurer la profondeur de la corrugation de potentiel pour les trois types de directions. Pour les trois directions, la distribution d'intensité est relativement bien reproduite par un potentiel de forme sinusoïdale et nous mesurons que l'amplitude de corrugation (hauteur entre le fond et le sommet des rangées) pour la direction [001] vaut 0.25 Å à 30 meV et 0.31 Å à 86 meV. Ces valeurs sont proches de celles mesurées en TEAS : 0.27 à 63 meV ([120]).

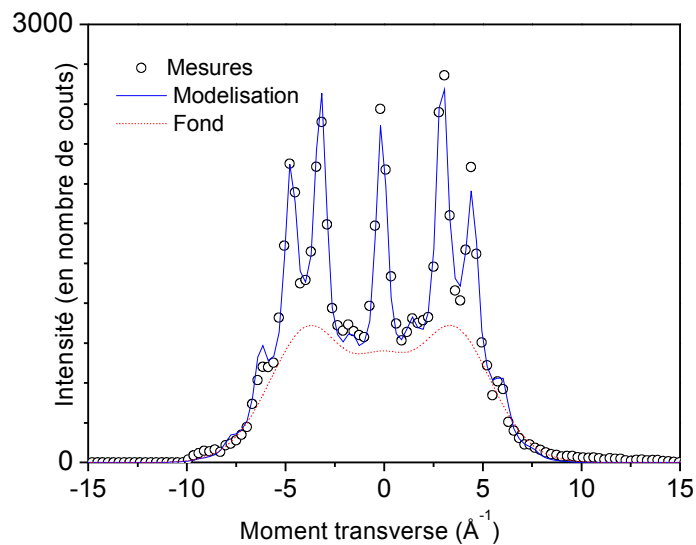


Fig 137: Projection de l'intensité le long d'un cercle de conservation de l'énergie pour une image enregistrée le long de la direction [001] avec des atomes de 500eV et angle d'incidence de 0.75°. La modélisation des pics de Bragg avec une association de deux gaussiennes permet une estimation du fond classique (courbe en rouge)

Le fait que nous observons des clichés de diffraction bien résolus semble donc montrer que l'influence des excitations électroniques sur la cohérence n'est pas si dramatique que ce que nous aurions pu craindre.

Nous remarquerons au passage que le motif de diffraction enregistré le long de la direction

[001] présente une largeur dans la direction polaire importante, comme nous avons pu le voir sur les clichés présentés dans l'étude de la mosaïcité (section 9.2.1).

10.4 Mesures de pertes d'énergie

Contrairement au dispositif conçu durant la thèse, le précédent dispositif sur lesquelles a été réalisé cette étude nous offrait la possibilité de pulser le faisceau d'ions incidents avant la cellule de neutralisation, en balayant celui-devant un diaphragme de petite taille. Des mesures de pertes d'énergies par temps de vol ont alors été possibles, en comparant la distribution énergétique de la portion du faisceau direct non interceptée par la cible et celle du faisceau diffusé. Les graphiques de la figure 138 représentent les spectres des pertes d'énergies mesurées pour des faisceaux de 1 keV et de 2 keV le long de la direction $[1\bar{1}0]$.

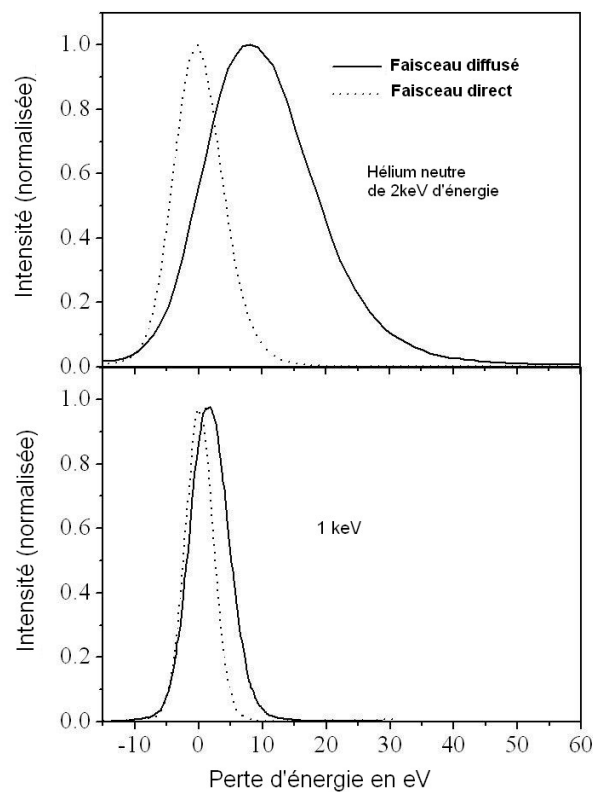


Fig 138: Spectres de pertes d'énergie mesurés pour des faisceaux de 1 et 2 keV le long de la direction $[1\bar{1}0]$

On peut voir que des distributions de pertes d'énergie assez larges dont les moyennes sont de 3 eV

pour des projectiles d'énergie 1keV et de 11 eV pour des atomes de 2 keV. Ce résultat est remarquable car nous attendions des pertes d'énergies bien plus élevées, compte tenu du fait que très peu d'énergie est nécessaire pour exciter un électron proche du niveau de Fermi. Pour faire passer un électron au-dessus du niveau de Fermi, il suffit, à priori, de lui donner un peu d'impulsion. Analysons plus en détail comment ce transfert peut avoir lieu lorsque l'atome d'hélium s'approche de la surface.

On peut à l'inverse imaginer un atome d'hélium placé sur la surface et imaginer un électron qui s'approche.

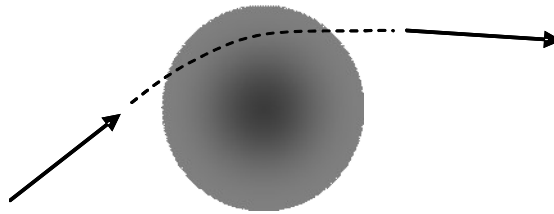


Fig 139:

En supposant que l'atome d'hélium ne perturbe pas trop la densité électronique, l'électron incident verra surtout un potentiel coulombien écranté, de sorte que si l'électron passe d'un côté de l'atome d'hélium il a de bonne chance d'être légèrement dévié. On peut, en première approche considérer que ce processus correspond à la section efficace de diffusion élastique mesurée en phase gazeuse. Il ne nous reste plus qu'à tenir compte du mouvement d'entraînement de l'atome d'hélium et de l'état d'occupation des niveaux électroniques. L'état initial doit être occupé (au-dessous du niveau de Fermi) et l'état final doit être libre (au-dessus du niveau de Fermi). C'est la combinaison de ces deux conditions qui permet de comprendre à l'ordre zéro, comment l'atome d'hélium agit sur les électrons de la surface. C'est sur ces hypothèses que Nenad Bundaleski modélise la décohérence [97]. Les effets à prendre en compte sont la densité et la distribution d'impulsion des électrons à l'endroit de la collision e-hélium. En effet, ces interactions ont lieu à quelques angströms de la surface et concernent donc la partie de la densité électronique qui a réussi à s'échapper du volume. Même dans un modèle simple, de type Jellium, la surface joue un rôle particulier car de par leur masse plus faible les électrons sortent du bain de charges positives qui définit le volume. Comme l'énergie doit être conservée, les électrons qui sortent le plus sont ceux qui ont concentré leur énergie le long de la direction normale à la surface. La situation est donc complexe mais les mesures de décohérence offrent la possibilité de mesurer simultanément la densité électronique (le motif de diffraction) et la densité d'impulsion selon les trois directions grâce à la mesure simultanée de la perte d'énergie et de

la décohérence. Nenad Bundalseki continue de développer, avec nous et Andrei Borisov un modèle dans cette direction.

10.5 Conclusion

Cette étude a permis de démontrer que, contre toute attente, la diffraction des atomes rapides en incidence rasante peut être observée sur des métaux. Le contraste des motifs de diffraction obtenus sur la surface d'Ag(110) est voisin de celui que nous obtenons avec des surfaces d'isolants ioniques, ce qui suggère que les processus d'excitations électroniques ont un impact limité sur la cohérence. En revanche, la cohérence diminue très vite avec la vitesse de collision. Paradoxalement, nous mesurons que des pertes d'énergies dues aux excitations électroniques qui pourraient être suffisantes pour nous faire perdre le motif de diffraction. Nous avons avancé une explication à partir d'un modèle simple de collision binaire entre un électron et un atome. Cependant, d'autres mesures expérimentales et des travaux théoriques plus consistants prenant en compte l'anisotropie de la densité et des moments électroniques en surface sont nécessaires pour mieux comprendre ce phénomène.

10.5 Conclusion

11 Premiers résultats de GIFAD en tant que technique de suivi de croissance de couches minces par épitaxie

Dans ce chapitre, nous allons présenter brièvement les premiers résultats obtenus sur le suivi de croissance avec la diffraction des atomes rapides. Ces premiers résultats ont une importance capitale puisqu'ils viennent démontrer que la technique GIFAD (Grazing Incidence Fast Atom Diffraction) peut être utilisée avec succès pour contrôler la croissance de couches minces par épitaxie et de ce fait, ils valident donc le brevet posé par l'équipe et constituent un pas en avant important pour sa valorisation.

11.1 Présentation du dispositif

Dans le cadre d'un projet ANR, une collaboration avec l'équipe « croissance et propriétés de systèmes hybrides en couches minces » de l'INSP a permis d'acquérir une chambre de croissance Riber (de type compact 21) pour la croissance des semi-conducteurs III-IV. Ce bâti commercial a été modifié afin de pouvoir accueillir, en plus du canon RHEED qui équipe généralement ce type de bâti, un canon GIFAD et son détecteur, comme le montre le schéma ci-dessous (Fig 140)

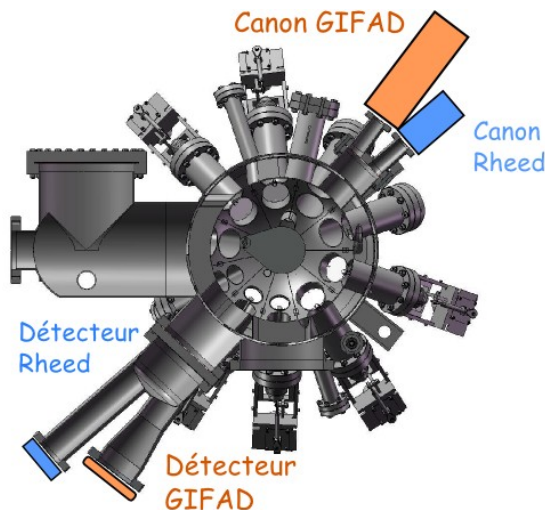


Fig 140: Agencement du canon GIFAD et du RHEED sur le bâti d'épitaxie

Sur ce bâti, le détecteur du RHEED et le détecteur GIFAD sont montés sur une même bride et ils sont décalés d'un angle de 12°. Remarquons que le canon GIFAD utilisé est le même que celui

11.1 Présentation du dispositif

conçu durant la thèse et qui a permis d'obtenir les résultats présentés dans ce manuscrit (section 5.2.5).

Lors de la croissance, le substrat est maintenu dans une position fixe. Si le changement d'angle d'incidence en RHEED se fait par l'action de simple déflecteurs, les atomes neutres ne peuvent pas être déviés sous l'action d'un champ électrique. Par conséquent, afin de pouvoir modifier l'angle d'incidence de GIFAD sur l'échantillon, nous avons dû concevoir un système mécanique d'ajustement de la position du faisceau d'atomes. La ligne de faisceau est donc montée sur un support mobile qui permet de modifier son inclinaison par rapport à une référence (dans notre cas l'entrée du bâti d'épitaxie) grâce à l'action de moteurs pas à pas. Un troisième moteur permet d'ajuster la position horizontale de l'ensemble du support. Ces 3 degrés de liberté permettent ainsi de balayer le faisceau d'atomes sur une large zone de l'échantillon.

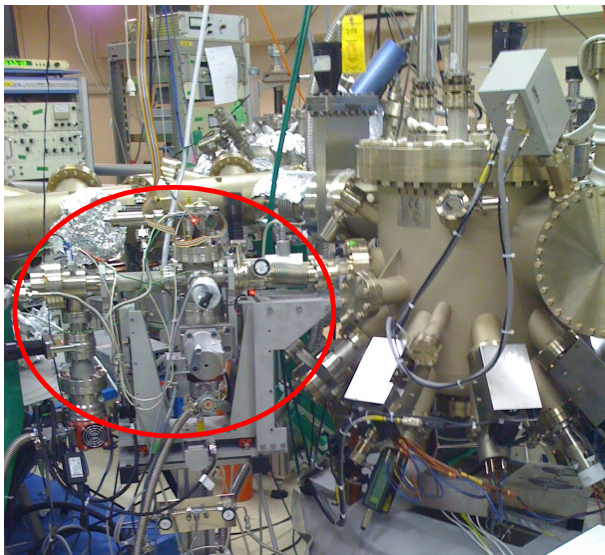


Fig 142: Dispositif GIFAD monté en entrée du bâti d'épitaxie.

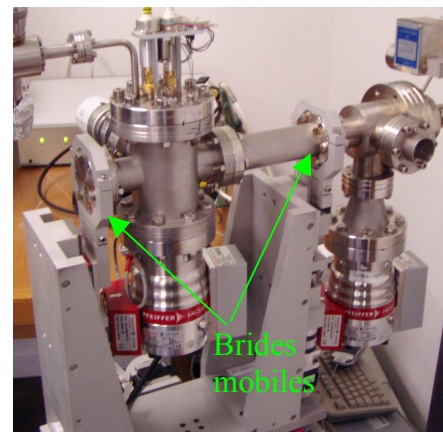


Fig 141: Support mobile de GIFAD.

On reconnaît en vert les brides mobiles, montées sur des moteurs pas à pas, permettant d'ajuster la position verticale ainsi que l'angle d'incidence.

11.2 Premiers tests

Les premières mesures-test de GIFAD dans le bâti d'épitaxie ont été réalisées sur des surfaces de GaAs(001). Elles ont été menées en plusieurs étapes, la première étant bien entendu de vérifier qu'on observe bien la diffraction et avec quelle qualité.

- **Premières images :**

Les premières images sont obtenues très rapidement après la mise en marche du canon. Nous avons utilisé un substrat de GaAs(001) sur lequel, après désorption de la couche d'oxyde, nous avons fait croître une couche homoépitaxiée de plusieurs dizaines de monocouches. La première bonne surprise fut d'observer des profils de diffractions très bien résolus. Nous avons observé que la direction $[-110]$ de GaAs(001) dans la reconstruction (2×4) (figure 143.a) fait apparaître des pics bien séparés par environ 0.4 \AA^{-1} , ce qui correspond bien à 4 fois le paramètre de maille de GaAs(001) dans cette direction.

La deuxième bonne surprise est apportée par la bonne qualité de ces images à des températures élevées ; la figure 143.b montre une image obtenue dans la même direction mais à une température d'environ 500°C . Sachant que la croissance des éléments III-IV est optimale à des températures généralement proches de 500°C , ce résultat est d'importance pour le champ d'application de GIFAD.

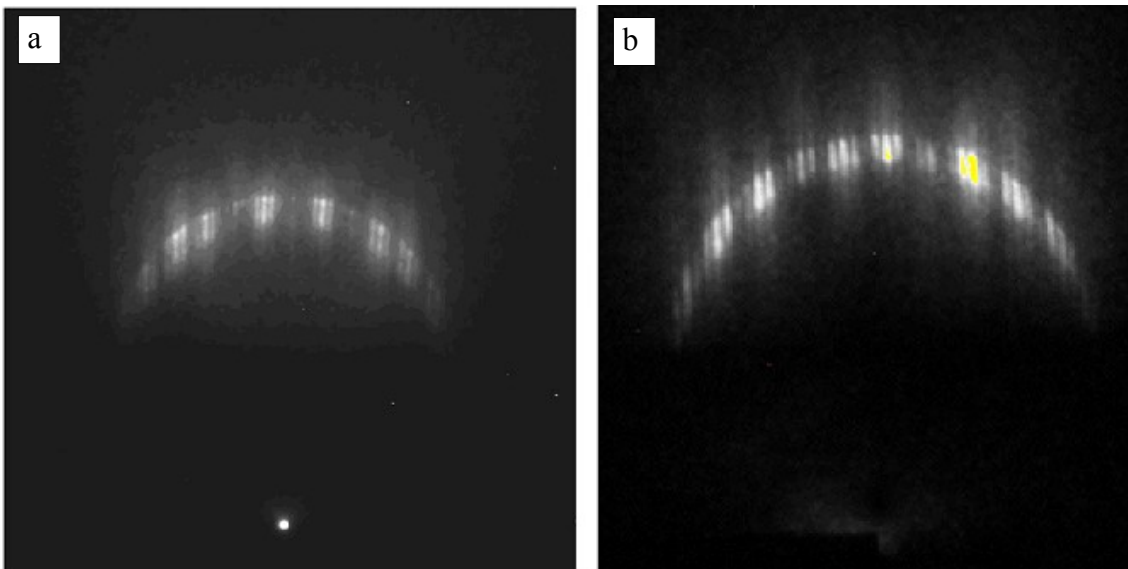


Fig 143: Images obtenues par He à 400 eV sur (2×4) GaAs(001) pour la direction $[-110]$; la température de la surface est de 200°C gauche (a) et de 500°C à droite (b).

- **Suivi de croissance :**

Le RHEED, outil incontournable dans le suivi de croissance en épitaxie, est en premier lieu utilisé pour la mesure du taux de croissance. En épitaxie, la croissance a généralement lieu dans le mode couche par couche, c'est-à-dire qu'une couche doit être quasi complète avant d'initier la couche supérieure (voir section 2.3.3). On a ainsi une modification périodique de la topographie de

la dernière couche dont le taux de remplissage varie de 0 à 1 sur une période. Même si l'origine exacte pose en encore quelques questions, l'intensité du spot spéculaire du RHEED suit assez bien le taux de remplissage de la dernière couche de la surface. Le deuxième test majeur de GIFAD était donc de vérifier sa capacité à mesurer le taux de croissance. Pour mener à bien cette expérience, nous avons du utiliser des flux moléculaires (Ga et As) suffisamment faibles, équivalents à environ 30s par couche, pour pouvoir suivre la croissance avec des images exploitables. En effet, l'intensité du faisceau d'hélium nous limite à environ une 2 à 3 secondes d'acquisition par image.

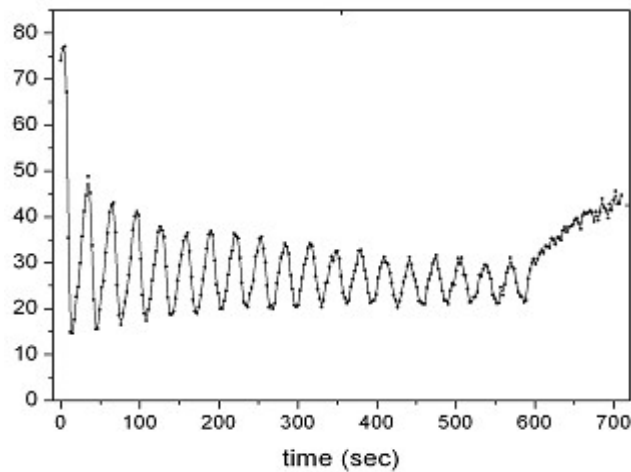


Fig 144: Évolution de l'intensité diffusée lors de l'homoépitaxie de GaAs(001), le faisceau de He à 300 eV sonde la direction [100] dans la reconstruction (2x4)

La figure 144 montre l'évolution de l'intensité diffusée lors de l'homoépitaxie de GaAs(001). On observe bien des oscillations de période correspondant à la durée de croissance d'une couche.

La croissance est stoppée à 600s par la fermeture du cache général qui les jets moléculaires. Dès lors, les phénomènes de diffusion induisent des réarrangements qui améliorent l'état de la surface ; ceci explique la remontée du signal que l'on observe après la croissance. Ultérieurement, un léger recuit supplémentaire permet d'obtenir une surface de très grande qualité du point de vue de la planéité.

Ce résultat représente un aspect essentiel pour la capacité de GIFAD à répondre aux besoins de « épitaxieurs » car les composants élaborés en MBE sont le plus souvent constitués de couches minces successives d'épaisseurs bien déterminées.

- **Reconstructions – comparaison entre RHEED et GIFAD :**

	RHEED			GIFAD		
	c(4x4)	$\gamma(2x4)$	$\beta 2(2x4)$	c(4x4)	$\gamma(2x4)$	$\beta 2(2x4)$
[110]						
$[\bar{1}10]$						

Fig 145: Comparaison des images de diffraction, mesurées en RHEED et par GIFAD, pour les 3 reconstructions principales de GaAs(001) et pour deux directions cristallographiques

De manière générale, GIFAD permet de distinguer les différentes reconstructions de GaAs(001) de manière beaucoup plus évidente que ne le permet le RHEED. La figure 142 montre une comparaison des images correspondant aux reconstructions principales, obtenues par RHEED et GIFAD. On note que les caractéristiques visuelles sont bien plus nettes en GIFAD et permet en un coup d'œil d'identifier la reconstruction imagée.

- **Meilleure sensibilité de GIFAD à la qualité de la dernière couche atomique :**

Une des informations qui ressort également nettement de ces premières mesures et la sensibilité accrue de GIFAD par rapport au RHEED vis-à-vis de la qualité de la couche terminale. Par exemple, lorsqu'on refroidit la surface de GaAs sous une température d'environ 100°C, le profil de diffraction GIFAD se détériore et sous 60°C perd toute cohérence. Dans le même temps, les clichés RHEED ne montrent pas de variation notable. Cette hyper-sensibilité à la qualité de la première couche est indéniablement un plus car elle peut permettre de répondre aux problèmes de variabilité de la qualité des couches épitaxiées.

11.3 Conclusion de ces premiers résultats

Comme nous venons de le voir, les premiers tests obtenus par GIFAD dans un bâti d'épitaxie sont très encourageants, que ce soit pour la qualité des images à haute température, le suivi de croissance à travers les oscillations RHEED ou encore pour la facilité à distinguer les reconstructions avec GIFAD. Ces bons résultats viennent ainsi valider le brevet posé par l'équipe et

11.3 Conclusion de ces premiers résultats

constitue un pas important vers la valorisation de cette technique. Par ailleurs, ils justifient à posteriori les choix techniques qui ont été fait lors de la conception du prototype expérimental durant la thèse (technologies de détecteur, sources...).

Des tests récents réalisés sur MnAs montrent que le suivi de croissance par GIFAD fonctionne aussi sur les semi-métaux. Il n'y a à priori donc aucune limite physique à l'utilisation de GIFAD pour l'étude de surfaces lors de croissances.

L'objectif principal est maintenant d'essayer de réduire le temps d'obtention des images GIFAD afin que l'on puisse observer des croissances à plus hauts flux moléculaires, et observer la croissance en vrai temps réel. Une solution actuellement à l'étude est d'augmenter le flux d'atomes incidents en passant à une nouvelle technologie de source (une source ECR).

12 Conclusion

Les études expérimentales présentées dans ce manuscrit ont été réalisées grâce à un dispositif spécialement dédié à la diffraction d'atomes dont le développement a constitué une part importante de mon travail. Ce dispositif a été ensuite testé au cours d'une étude de surfaces d'isolants ioniques .

Au cours de cette étude, nous nous sommes intéressés à la corrugation de la surface de KBr(100). Elle nous a permis de montrer que cette surface présente une corrugation très marquée le long de la direction $\langle 110 \rangle$ pour laquelle le projectile voit des rangées de potassium et des rangées de bromures, et que l'atome de potassium est ressenti pour des faibles énergies normales (comparé à LiF).

Lors de cette étude, nous avons aussi mis en évidence un nouveau régime de diffraction qui apparaît sous la forme d'un pic fin sur le cercle de Laue. Il est caractérisé par une largeur qui ne varie ni avec l'angle d'incidence ni avec la température, contrairement aux raies de Bragg, et par un facteur de cohérence particulier. Il semble correspondre à un régime où la diffusion serait cohérente dans la direction longitudinale et dans la direction normale.

En étudiant les isolants ioniques, nous avons aussi vu que les atomes rapides permettent de mettre en évidence un type de défauts topologiques : la mosaïcité de surface, qui fait apparaître sur nos motifs des structurations facilement reconnaissables. L'analyse des clichés peut alors fournir des informations sur la distribution des décalages angulaires entre les différents domaines. Ces résultats montrent que GIFAD est aussi bien sensible à l'échelle atomique qu'à l'échelle macroscopique. Du fait qu'il soit possible d'observer avec les atomes rapides des défauts jusque-là étudiés par diffraction de rayons X, un nouveau champ d'application s'ouvre donc à cette technique.

Nous nous sommes intéressés à la diffraction des atomes rapides sur l'argent (110). Contre toute attente nous observons des motifs de diffraction bien résolus sur cette surface, ce qui montre que les excitations électroniques ont un impact limité sur la décohérence du motif de diffraction, et ce, bien que paradoxalement nous mesurons des pertes d'énergies importantes.

Nous avons aussi présenté les premiers résultats de GIFAD sur un bâti d'épitaxie avec des échantillons de GaAs(110). Les images obtenues sont très résolues, y compris à haute température.

12 Conclusion

La croissance couche par couche peut être suivie avec les atomes rapides à travers les oscillations comme pour le RHEED, et permet de distinguer des reconstructions de surface de manière beaucoup plus évidente que la diffraction électronique de haute énergie. Ces premiers résultats sont très encourageants. Ils ont une grande importance dans le sens où ils permettent de valider le brevet posé par l'équipe et montre que GIFAD est une technique efficace pour le suivi de croissance.

De manière générale, les résultats obtenus dans le cadre de mes travaux (sur les isolants ioniques et en bâti d'épitaxie) montre la qualité du dispositif expérimental conçu durant la thèse et valident les choix technologiques qui ont été fait.

13 Bibliographie

- 1: **P. Rousseau, H. Khemliche, A. G. Borisov, and P. Roncin**, Quantum Scattering of Fast Atoms and Molecules on Surfaces, *Physical Review Letter*, volume 98 (2007), issue 1, number : 016104
- 2: **A. Schüller, S. Wethekam, and H. Winter**, Diffraction of Fast Atomic Projectiles during Grazing Scattering from a LiF(001) Surface, *Physical Review Letter*, volume 98 (2007), issue 1, number : 016103
- 3: **H. Khemliche, P. Rousseau, P. Roncin, V. H. Etgens, and F. Finocchi**, Grazing Incidence Fast Atom Diffraction: An Innovative Approach to Surface Structure Analysis, *Applied Physics Letters*, volume 95 (2009), issue 15, number : 151901
- 4: **N. Bundaleski, H. Khemliche, P. Soullisse, and P. Roncin**, Grazing Incidence Diffraction of keV Helium Atoms on a Ag(110) Surface, *Physical Review Letter*, volume 101 (2008), issue 17, number : 177601
- 5: **M. Busch, A. Schüller, S. Wethekam, H. Winter**, Fast Atom Diffraction at Metal Surface, *Surface Science Letters*, volume 603 (2009), issue 3, pages L23-L26
- 6: **A. Schüller, M. Busch, S. Wethekam, and H. Winter**, Fast Atom Diffraction from Superstructures on a Fe(110) Surface, *Physical Review Letter*, volume 102 (2009), issue 1, number : 017602
- 7: **A. Momeni, P. Soullisse, P. Rousseau, H. Khemliche, P. Roncin**, Grazing Incidence Fast Atom Diffraction (GIFAD): Doing RHEED with Atoms, *e-Journal of Surface Science and Nanotechnology*, volume 8 (2010), pages : 101-104
- 8: **Louis de Broglie**, Recherches sur la Théorie des Quanta, *Thèse de doctorat*, 1924
- 9: **C. Davisson and L. H. Germer**, Diffraction of Electrons by a Crystal of Nickel, *Physical review*, volume 30 (1927), issue 6, pages :705–740
- 10: **I. Estermann, O. Stern**, Beugung von Molekularstrahlen, 1929
- 11: **E. O. Wollan and C. G. Shull**, The Diffraction of Neutrons by Crystalline Powders, *Physical*.

Review, volume 73 (1948), issue 8, pages :830–841

12: **Markus Arndt, Olaf Nairz, Julian Vos-Andreae, Claudia Keller, Gerbrand van der Zouw & Anton Zeilinger**, Wave–particle duality of C60 molecules, Letters to Nature, volume 401 (1999), pages : 680–682

13: **Abbé René Juste Haüy**, Taité de Cristallographie, 1822

14: **Aguste Bravais**, Etudes Cristallographiques, 1866

15: **Giacinto Scoles, Derek C. Lainé, Ugo Valbusa**, Atomic and Molecular Beam Methods, Oxford University Press, 1992; **ISBN-10 : 0195042808** , **ISBN-13: 978-0195042801**

16: **D. P. Woodruff, T. A. Delchar**, Modern Techniques of Surface Science, Cambridge University Press, 1986, **ISBN-10: 0521424984**, **ISBN-13: 978-0521424981**

17: **H. Hoinkes**, The physical interaction potential of gas atoms with single-crystal surfaces, determined from gas-surface diffraction experiments, Review of Modern Physics, volume 52 (1980), issue 4, pages : 933–970

18: **Daniel Farias, Karl-Heinz Rieder**, Atomic Beam Diffraction from Solid Surfaces, Report on Progress in Physics, volume 61 (1998), issue 12, pages : 1575–1664

19: **L. Glebov, J. P. Toennies, J. G. Skofronick, J. R. Manson**, Defect-mediated Elastic Resonances in He-atom Scattering from Single-crystal Surfaces, Physical Review B, volume 58 (1998), issue 15, pages : 10012–10024

20: **D. Farias, C. Diaz, P. Rivière, H. F. Busnengo, P. Nieto, M. F. Somers, G. J. Kroes, A. Salin, and F. Martin**, In-Plane and Out-of-Plane Diffraction of H2 from Metal Surfaces, Physical Review Letter volume 93 (2004), issue 24, number: 246104

21: **J Peter Toennies**, Measurement of Surface Phonon Dispersion Curves of Alkali Halide Single Crystals by Time of Flight Spectroscopy of He Atom Beams, Physica Scripta, volume 1982 (1982), issue T1

22: **J. W. M. Frenken, B. J. Hinch, J. P. Toennies, and Ch. Wöll** , Anisotropic diffusion at a melting surface studied with He-atom scattering, Physical Review B, volume 41 (1990), issue 2,

pages : 938-946

23: **A P Jardine, J Ellis and W Allison**, Quasi-elastic Helium-atom Scattering from Surfaces: Experiment and Interpretation, *Journal of Physics: Condensed Matter*, volume 14 (2002), issue 24, pages : 6173–6191

24: **Scheibner, E. J.; Germer, L. H.; Hartman, C. D**, Apparatus for Direct Observation of Low Energy Electron Diffraction Patterns, *Review of scientific instruments*, volume 31 (1960), issue 2

25: **Y. Hisada, Y. Mitsuoka, S. Mukainakano, T. Aoyama and A. Ichimiya**, Reactions of 6H-SiC(0001) 3×3 Surfaces with Oxygen Molecules at High Temperature, *e-Journal of Surface Science and Nanotechnology*, volume 1 (2003), pages : 1-6

26: **B A Joyce**, Molecular Beam Epitaxy , *Report Progress in Physics*, volume 48 (1985), issue 12

27: **Arthur, J. R.; LePore, J. J.**, GaAs, GaP, and GaAs_xP_{1-x} Epitaxial Films Grown by Molecular Beam Deposition, *Journal of Vacuum Science and Technology*, volume 6 (1969), issue 4

28: **Van Hove, J. M. ; Lent, C. S. ;Pukite, P. R. ;Cohen, P. I. ,** Damped Oscillations in Reflection High Energy Electron Diffraction during GaAs MBE, *Journal of Vacuum Science & Technology B*, volume 1 (1983), issue 3, pages 741-746

29: **Ayahiko Ichimiya et Philip I.Cohen**, Reflection High Energy Electron Diffraction, *Cambridge University Press*, 2004, **ISBN-10: 0521184029 , ISBN-13: 9780521184021**

30: **H. Winter**, Collisions of Atoms and Ions with Surfaces Under Grazing Incidence, *Physics Reports*, volume 367 (2002), issue 5, pages :387-582

31: **Anouchah Momeni**, Étude Expérimentale des Processus Multi-électroniques lors de Collisions d'Ions en Incidence Rasante sur une Surface de LiF(001), *Thèse de doctorat (Université Paris Sud 11)*, 2003

32: **R. Pfandzelter**, Effects of Defect Structures at Surfaces and Thin Films on Grazing Scattering of Fast Ions, *Physical Review B*, volume 57 (1998), issue 24, pages : 15496–15506

33: **E. Kiersten and K.H. Rieder**, Determination of the Full He-Pt(110)(1 × 2) Interaction Potential from Analyses of Helium diffraction Intensities, *Surface Science Letters*, volume 222 (1989), issue

2-3, pages : L837-L844

34: **Marco B. Nardelli**, A Density-functional Study of Van der Waals Forces: He Interaction with a Semiconductor Surface., *Solid State Communications*, volume 97 (1996), issue 3, pages : 215-219

35: **L. Miglio, F. Quasso, G. Benedek**, On the Helium Alkali Halide Surface Potential: Surface corrugation vs Ionic Size, *The Journal of Chemical Physics*, volume 83 (1985), issue 1, pages : 417-422

36: **J. Perreau, J. Lapujoulade**, The Determination of the He-Cu Interaction Potential by Atomic Beam Scattering, *Surface Science Letters*, volume 119 (1982), issue 1, pages : L292-L298

37: **T. Engel, K.H. Rieder**, A Molecular-beam Diffraction Study of H₂ Adsorption on Ni(110), *Surface Science*, volume 109 (1981), issue 1, pages : 140-166

38: **N. Esbjerg, J.K. Norskov**, Dependence of the He scattering Potential on the Surface Electron Density Profile, *Physical Review Letters*, volume 45 (1980), issue 10, pages : 807-810

39: **U. Garibaldi, A.C. Levi, R. Spadacini and G.E. Tommei**, Quantum Theory of Atom-surface Scattering : Diffraction and Rainbow, *Surface Science*, volume 48 (1975), issue 2, pages : 649-675

40: **W. D. Wilson and L. G. Hagmark, J. P. Biersack**, Calculations of Nuclear Stopping, Ranges, and Straggling in the Low-Energy Region, *Physical review B*, volume 15 (1977), issue 5, pages : 2458-2468

41: **J. Villette, A. G. Borisov, H. Khemliche, A. Momeni, and P. Roncin**, Subsurface-Channeling-Like Energy Loss Structure of the Skipping Motion on an Ionic Crystal, *Physical Review Letter*, volume 85 (2000), issue 15, pages : 3137-3140

42: Kristel Cordier, *Manuscrit de stage (non publié)*, 2000

43: **A. Mertens and H. Winter**, Energy Transfer from Fast Atomic Projectiles to a Crystal Lattice under Channeling Conditions, *Physical Review Letter*, volume 85 (2000), issue 13, pages : 2825-2828

44: **D. Danailov, J.-H. Rehtien and K.J. Snowdon**, Scattering of Energetic Beams at Glancing Incidence from Crystal Surfaces: a Molecular Dynamics Simulation, *Surface Science*, volume 259

(1991) , issue 3, pages : 359-370

45: **Jérôme Villette**, Étude Expérimentale de l'Interaction Rasante d'Atomes et d'Ions sur les Surfaces Isolantes, *Thèse de doctorat (Université Paris-Sud 11)*, 2000

46: **William H. Press, Saul A. Teukolsky, William T. Vetterling, Brian P. Flannery**, Numerical Recipes in C, *Cambridge University Press*, 1992 ; **ISBN-10** : 0521431085

47: **QT Jiang, P Fenter, T Gustafsson**, Geometric Structure and Surface Vibration of Cu(001) determined by Medium Energy Ion Scattering, *Physical Review B*, volume 44 (1991), issue 11, pages: 5773–5778

48: **A. Schüller, H. Winter**, Diffraction of Fast Atoms under Axial Surface Channeling Conditions, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, volume 267 (2009), issue 4, pages : 628-633

49: **J.R Manson, Hocine Khemliche and Philippe Roncin**, Theory of Grazing Incidence Diffraction of Fast Atoms and Molecules from Surfaces, *Physical Review B*, volume 78 (2008), issue 15

50: **Ralph M. Aten and Thomas Engel** , Mapping a Hard Wall Potential into a Soft Wall Potential for Helium Diffraction from surfaces , *Journal of Chemical Physics*, volume 84 (1985), issue 1, pages : 434-439

51: **J. Harris and A. Liebsch** , Interaction of Helium with a Metal Surface : Determination of Corrugation Profile of Cu(110), *Physical Review Letters*, volume 49 (1982), issue 5, pages : 341-344

52: **Masel, R. I.; Merrill, R. P.; Miller, W. H**, Semi-classical Theories and Quantum Hard Wall Calculation of Atom Surface Scattering, *Journal of Vacuum Science and Technology* , volume 13 (1976), issue 1, pages : 355-359

53: **G. Armand, J. R. Manson** , Scattering of Neutral Atoms by an Exponential Corrugated Potential, *Physical Review Letter* , volume 43 (1979), issue 24, pages : 1839-1842

54: **K. H. Rieder, N. Garcia**, Energy Dependence and Softness of the Potential for He Scattering from Ni(110), *Physical Review Letter*, volume 49 (1982), issue 1, pages : 43-46

- 55: **Richard I. Masel, P. Merrill, William H. Miller**, Quantum Scattering from a Sinusoidal Hard Wall, *Physical Review B*, volume 12 (1975), issue 12, pages : 5545-5551
- 56: **P. Cantini, E. Cevasco**, The MgO(001) Surface Studied by Helium Diffraction, *Surface Science*, volume 148 (1984), issue 1, pages : 37-41
- 57: **Patrick Rousseau**, Collisions Rasantes d'Ions ou d'Atomes sur les Surfaces : de l'Echange de Charge à la Diffraction Atomique, *Thèse de doctorat (Université Paris Sud II)*, 2006
- 58: **A. Schüller and H. Winter**, Supernumerary Rainbows for Grazing Scattering of Fast Atoms from LiF(001) Surface, *Physical Review Letter*, volume 100 (2008), issue 1, number 097602
- 59: **Andreas Schüller**, Quanten-Regenbogenstreuung bei axialer Oberflächen-Gitterführung schneller Atome, *Thèse de doctorat (Humbolt Universität Berlin)*, 2010
- 60: **A. Schüller, K. Gartner and H. Winter**, Interaction Potential for Fast Ne Atoms in Front of LiF(001) Surface, *Europhysics Letters*, volume 81 (2008), issue 3, number : 37007
- 61: **A. Schüller and H. Winter**, Supernumerary Rainbows for Grazing Scattering of Fast Atoms from LiF(001) Surface, *Physical Review Letter*, volume 100 (2008), issue 1, number : 097602
- 62: **M.S. Gravielle, A. Schüller, H. Winter, J.E. Miraglia**, Fast Atom Diffraction for Grazing Scattering of Ne Atoms from a LiF(0 0 1) Surface , *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions in Physics Research B*, volume 269 (2011), issue 11, pages : 1208-1211
- 63: **H. Lüth**, Surfaces and Interfaces of Solids (second Edition) , *Springer Verlag*, 1993; **ISBN-10:** 3540568409
- 64: **Charles Kittel**, Introduction to solid state physics, 1986, **ISBN-10:** 0471874744
- 65: **S. Wethekam, H. Winter**, Effect of Thermal Vibrations and Their Correlations on Grazing Scattering of Atoms from Crystal Surfaces, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, volume 258 (2007), issue 1, pages : 48-51
- 66: **J L Beeby**, The Scattering of Helium Atoms from Surfaces, *Journal of Physics C : solid state physics*, volume 4 (1971), issue 18, number : L359

- 67: **W.H Weinberg**, Atomic Helium Scattering and Diffraction from Solid Surfaces, *Journal of physics C: Solid State Phys*, volume 5 (1972), issue 16
- 68: **P. Rousseau, H. Khemliche, N. Bundaleski, P. Soullisse, A. Momeni, P. Roncin**, Surface Analysis with Grazing Incidence Fast Atom Diffraction (GIFAD), *Journal of Physics : Conference Series*, volume 133 (2008), number : 012013
- 69: **V.A. Morosov, A. Kalinin, Z. Szilagyi, M. Barat, P. Roncin**, 2pi Spectrometer: a New Apparatus for the Investigation of Ion Surface Interaction, *Review of scientific instruments*, volume 67 (1996), issue 6, pages : 2163-2170
- 70: **Ulanovskiy A. A. ; Medvedev V. A. ; Nenashev S. N. ; Sild Yu. A. ; Matveyev M. S. ; Pokhodun A. I. ; Oleynikov P. P.** , Thermoelectric Characteristic of High-Temperature Thermocouples W5%RE/W20%RE, *International journal of thermophysics*, volume 31 (2010), issue 8-9, pages : 1573-1582
- 71: **Ladislav Wiza**, Microchannel Plates Detectors *Nuclear Instruments and Methods*, volume 162 (1979), pages : 587-601
- 72: **R. S. Gao, P. S. Gibner, J. H. Newman, K. A. Smith, and R. F. Stebbings**, Absolute and Angular Efficiencies of a Microchannel Plate Position Sensitive Detector , *Review of scientific instruments*, volume 55 (1984), issue 11, pages : 1756-1789
- 73: **T.M Stephen, B.L Peko**, Absolute Detection Efficiencies of Low Energy H, H+, H-, H2+ and H3+ Incident Ions on a Multichannel Plate Detector, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, volume 171 (2000), issue 4, pages : 597-604
- 74: **T. M. Stephen and B. L. Peko**, Absolute Calibration of a Multichannel Plate Detector for Low Energy O, O⁻, and O⁺, *Review of scientific instruments*, volume 71 (2000), issue 3, number: 1355
- 75: Document online sur les écrans P20 du fournisseur Proxitronics.
<http://www.finesensing.com/proxitronic/doc/PhosphorScreen.pdf>
- 76: **J R Janesick**, Scientific Charge-Coupled Devices, *The International Society of Optical Engineering*, 2001, **ISBN-10: 0819436984, ISBN-13: 9780819436986**

- 77: **A. Ciccarelli, B. Davis, W. Des Jardin, H. Doan, E. Meisenzahl, L. Pace, G. Putnam**, Front-Illuminated Full-Frame Charge-Coupled Device Image Sensor achieves 85% Peak Quantum Efficiency, (*Eastman Kodak Company*), *SPIE Proceeding series.*, volume 4669 (2002), pages : 153-160
- 78: **Myun-Sik Kim, Toralf Scharf, and Hans Peter Herzig**, Small-size Microlens Characterization by Multiwavelength High-resolution Interference Microscopy, *Optics Express*, volume 18 (2010), issue 14, pages : 14319-14329
- 79: **Grant J. Lockwood, Herbert F. Helbig, and Edgar Everhart**, Measurements of Resonant Electron Capture in He⁺ on He Collisions, *Physical Review*, volume 132 (1963), issue 5, pages : 2078-2082
- 80: **R W McCullough, T V Goffe and H B Gilbody**, Formation of Fast Metastable Helium Atoms in Electron Capture by He⁺ ions in Alkalimetal Vapours, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, volume 11 (1978), issue 13, number: 2333
- 81: **E A Hinds and R Novick**, Precise Resonant Charge-transfer Cross Sections for He-He⁺ Between 2 and 100 eV, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, volume 11 (1978), issue 12
- 82: **J C Brenot, J Pommier, D Dhuicq and M Barat**, Direct and Exchange Processes in Ion-atom Collisions. I. He⁺-He , *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, volume 8 (1975), issue 3
- 83: **R. S. Gao, L. K. Johnson, D. A. Schafer, J. H. Newman, K. A. Smith, and R. F. Stebbings** , Absolute Differential Cross Sections for Small-angle He⁺-He Elastic and Charge-transfer Scattering at keV Energies, *Physical Review A*, volume 8 (1988), issue 3
- 84: **Joël Arianer**, Cours de technique du vide, 2007
- 85: **A. Roth**, Vacuum Technology, 1982, **ISBN-10: 0444860274**
- 86: **S. Sgobba**, Materials for High Vacuum Technology: an Overview, 2006, *CAS-CERN Accelerator School and ALBA Synchrotron Light Facility: Course on vacuum in accelerator*, pages 117-144

- 87: **Murari, A.; Barzon, A.**, Ultra High Vacuum Properties of some Engineering Polymers, *Dielectrics and Electrical Insulation*, volume 11 (2004), issue 4, pages : 613-619
- 88: **J.M Ziman**, Principles of the Theory of Solids, (second edition) 1999, **ISBN-10: 0521297338**
- 89: **P W Tasker**, The Stability of Ionic Crystal Surfaces, *Journal of Physics C: Solid State Physics*, volume 12 (1979), issue 22
- 90: **S Sawada and K Nakamura**, Theory of Surface Rumpling in Rock-salt Structured Ionic Crystals , *Journal of Physics C: Solid State Physics*, volume 12 (1979), issue 6
- 91: **J.Vogt , H.Heiss**, The Structure of NaCl(100) and KCl(100) Single Crystal Surfaces : a Tensor LEED Analysis, *Surface Science*, volume 491 (2001), issue 1-2, pages :155-168
- 92: **J.Vogt , H.Heiss**, The Structure of KBr(100) and LiF(100) Single Crystal Surfaces: a Tensor Low Energy Electron Diffraction Analysis , *Surface Science*, volume 501 (2001), issue 3, pages 203-213
- 93: **A. Schüller, S. Wethekam, D. Blauth and H. Winter**, Rumpling of LiF(001) Surface from Fast Atom Diffraction, *Physical Review A*, volume 82 (2010), issue 6, number : 062902
- 94: **J. G. Skofronick, G. G. Bishop, W. P. Brug, G. Chern, J. Duan and S. A. Safron, J.R Manson**, Temperature Dependence of He Atom Scattering from NaCl(OOl), *Superlattices and Microstructures*, volume 7 (1990), issue 3, pages: 239-245
- 95: **Caracciolo, G. ; Iannotta, S. ; Scoles, G. ; Valbusa U. ,** Diffractive Scattering of H Atoms from the (001) Surface of LiF at 78 K, *Journal of Chemical Physics*, volume 72 (1980) , issue 8
- 96: **F. Aigner, N. Simonovic', B. Solleder, L. Wirtz, and J. Burgdorfer**, Suppression of Decoherence in Fast-Atom Diffraction at Surfaces, *Physical Review letters*, volume 101 (2008), issue 25, number: 253201
- 97: **N. Bundaleski, P. Soullisse, A. Momeni, H. Khemliche, P. Roncin**, Decoherence in Fast Atom Diffraction From Surfaces, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, volume 269 (2010), issue 11, pages : 1216-1220
- 98: **G. Chern and J. G. Skofronick , W. P. Brug and S. A. Safron ,** Surface-Phonon Dispersion

Curves of KBr(001) via Helium-Atom Scattering: Comparison with Calculations, *Physical Review B*, volume 39 (1989), issue 17, pages : 18828-12837

99: **G Boato, P Cantini, L Mattera**, A Study of the (001)LiF Surface at 80 K by Means of Diffractive Scattering of He and Ne Atoms at Thermal Energies, *Surface Sciences*, volume 55 (1976), issue 1, pages : 141-178

100: **U. Specht, M. Busch, J. Seifert, H. Winter, K. Gärtner, R. Włodarczyk, M. Sierka and J. Sauer**, Classical and Quantum Mechanical Rainbow-Scattering of Fast He Atoms from a KCl(001) Surface, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, volume 269 (2010), issue 9, pages : 799-803

101: **R.W. Carpick, Q. Dai, D.F. Ogletree and M. Salmeron**, Friction Force Microscopy Investigations of Potassium Halide Surfaces in Ultrahigh Vacuum: Structure, Friction and Surface Modification, *Tribology Letters*, volume 5 (1998), issue 1, pages : 91-102

102: **Franz J Giessibl and Michael Reichling**, Investigating Atomic Details of theCaF₂(111) Surface with a qPlus Sensor, *Nanotechnology*, volume 16 (2005), issue 3, pages : S118-S124

103: **N. D. Mermin**, The Topological Theory of Defects in Ordered Media, *Reviews of Modern Physics*, volume 51 (1979), issue 3, pages : 591-648

104: **G.I Taylor**, Plastic Strain in Metals, *Journal of the Institute of Metals*, 1938

105: **J. F. W. Bishop; R. Hill**, A Theory of the Plastic Distortion of a Polycrystalline Aggregate under Combined Stresses, *Philosophical Magazine*, volume 42 (1951), issue 327, pages : 414-427

106: **Anthony R. West**, Solid State Chemistry and its Applications, 1984, **ISBN-10: 0471908746, ISBN-13: 9780471908746**

107: **F. Zwicky**, Secondary Structure and Mosaic Structure of Crystals, *Physical Review*, volume 40 (1932), issue 1, pages: 63-77

108: **C. G. Darwin**, The Theory of X-ray Reflexion, *Philosophical Magazine*, part 2, volume 27 (1914)

- 109: **C. G. Darwin**, The Reflexion of X-rays from Imperfect Crystals, *Philosophical Magazine. Series 6*, volume 43 (1922), issue 257
- 110: **Paul Peter Ewald** , Zur Begründung der Kristalloptik. Teil III, *Annal Physics Leipzig*, 1917
- 111: **M. F. Ashby**, The Deformation of Plastically Non-homogeneous Materials, *Philosophical Magazine*, volume 24 (1970), issue 2, pages : 289-301
- 112: **A.M.Kosevich**, Dislocations in the Theory of Elasticity, 1978
- 113: **J. Kozłowski, R. Paszkiewicz, M. Tłaczala**, Structure Characterization of (Al,Ga)N Epitaxial Layers by Means of X-Ray Diffractometry, *Physica Status Solidi*, volume 228 (2001), issue 2, pages : 415-418
- 114: **R. Chierchia, T. Böttcher, S. Figge, M. Diesselberg, H. Heinke, D. Hommel** , Mosaicity of GaN Epitaxial Layers: Simulation and Experiment, *Physica Status Solidi*, volume 228 (2001), issue 2, pages : 403-406
- 115: **R. Chierchia, T. Böttcher, H. Heinke, S. Einfeldt, S. Figge, and D. Hommel** , Microstructure of Heteroepitaxial GaN Revealed by x-ray Diffraction, *Journal of Applied Physics*, volume 93 (2003), issue 11
- 116: **Y. Kashihara, S. Kimura and J. Harada**, X-ray Measurements of the Crystal Truncation Rodscattering from Cleavage Surfaces of Ionic Crystals, *Surface Science*, volume 214 (1989), issue 3, pages: 477-492
- 117: **B. G. Ivanov, E. S. Kaeva**, Block (Mosaic) Structure as an Indicator for Cooling of Crystals Grown from a Melt, *Crystallography Reports*, volume 50 (2005), supplement 1, pages: S22-S27
- 118: **H. Winter, H. P. Winter**, Classical Model of Kinetic Electron Emission Near Threshold Induced by Impact of Atomic Projectiles on a Free-electron Gas Metal , *Europhysics Letter*, volume 62 (2003), issue 5, pages : 739-745
- 119: **S. Lederer, H. Winter, and H. P. Winter**, Energy Loss and Electron Emission during Grazing Scattering of Fast Noble Gas Atoms from an Al(111) Surface, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research section B*, volume 258 (2007), issue 1, pages: 87-90

120: **A. Luntz, L. Mattera, M. Rocca, S. Terreni, F. Tommasini, U. Valbusa**, Study of the Ag(110) Surface by He Diffraction, *Surface Science*, volume 126 (1983), issue 1-3, pages : 695-701