

THESE de DOCTORAT de l'UNIVERSITE PARIS VI

Spécialité :

Physique Expérimentale des Atomes
et des Molécules et Applications.

Présentée par
Eric LE GOFF

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

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

Soutenue le 29 octobre 1999 devant le jury composé de :

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

THESE de DOCTORAT de l'UNIVERSITE PARIS VI

Spécialité :

Physique Expérimentale des Atomes
et des Molécules et Applications.

Présentée par
Eric LE GOFF

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

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

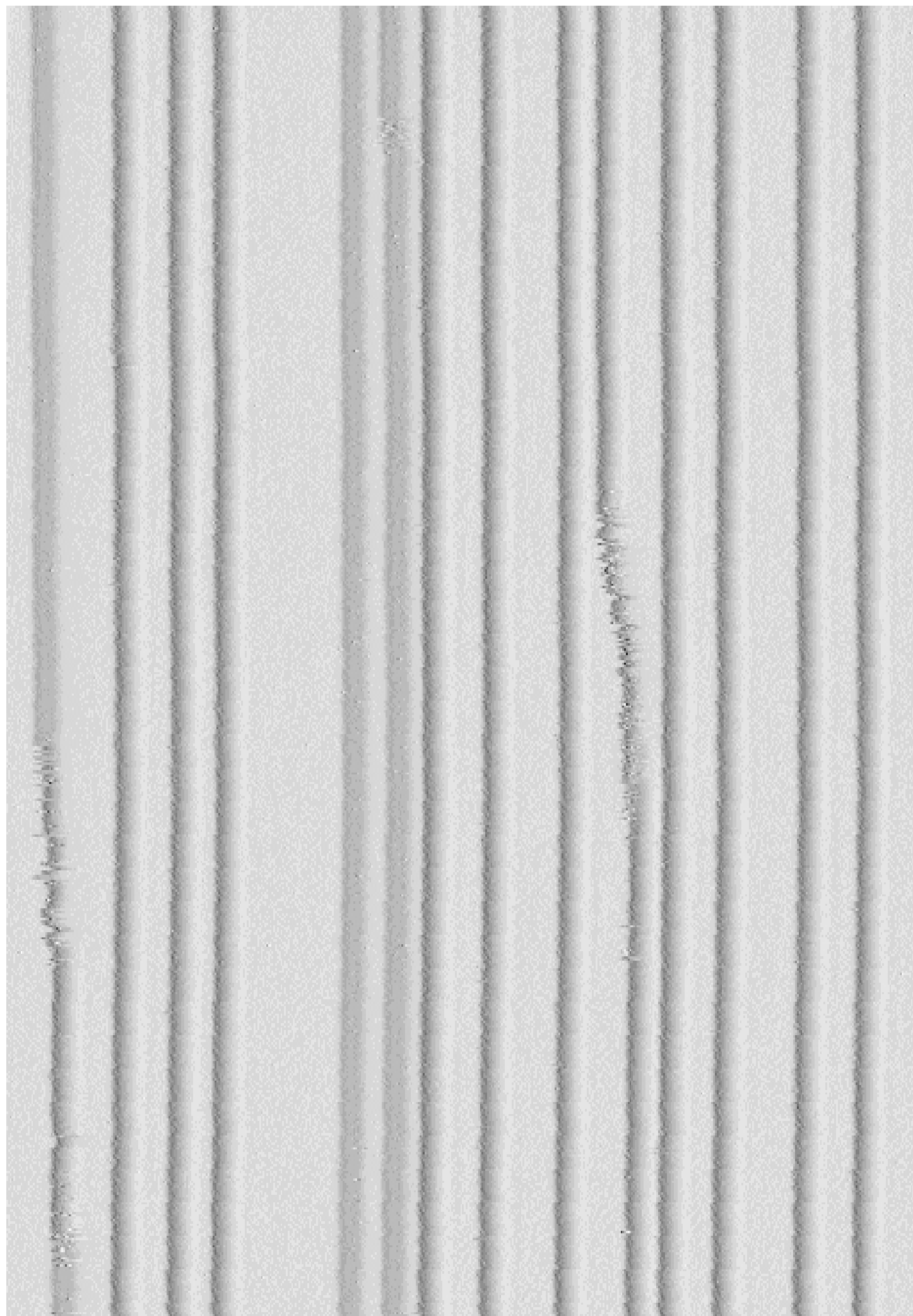
Soutenue le 29 octobre 1999 devant le jury composé de :

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

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

Eric LE GOFF

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



A mes parents.

Remerciements

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

Alice in Wonderland

By Lewis Carroll

TABLE DES MATIERES

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

PREMIERE PARTIE

Morphologie des surfaces vicinales.

Transition rugueuse.

CHAPITRE I

<i>Généralités</i>	11
--------------------	----

I-A. <u>Faces Cu(1,1,n) idéales</u>	13
--	----

I-B. <u>Interaction entre marches</u>	14
--	----

I-B.1. Interaction entropique	15
-------------------------------	----

I-B.2. Interaction élastique	15
------------------------------	----

I-B.3. Interaction dipolaire électrique	16
---	----

I-C. <u>Représentation microscopique d'une surface vicinale</u>	18
--	----

I-D. <u>La transition rugueuse</u>	19
---	----

I-D.1. Notion de transition rugueuse	19
--------------------------------------	----

I-D.2. La transition rugueuse sur les surfaces vicinales	20
--	----

I-E. <u>Conclusion</u>	22
-------------------------------	----

BIBLIOGRAPHIE	23
----------------------	----

CHAPITRE II

Modélisation des surfaces vicinales 25

II-A. Introduction 27

II-B. Modèles à marche unique 28

II-B.1. Introduction 28

II-B.2. La marche libre 28

II-B.3. Une marche plongée dans un potentiel 30

II-B.3.1. Les murs durs 30

II-B.3.2. Méthode de l'approximation harmonique 31

II-B.3.3. Potentiel quelconque : méthode de la matrice de transfert à une marche 32

Fonction de partition, énergie libre

Distribution des largeurs de terrasses

Fonction de corrélation le long du bord de marche

II-B.3.4. Comparaison avec les résultats expérimentaux de la face Cu(1,1,11) 35

II-B.3.5. Conclusion : les modèles à une marche sont insuffisants 37

II-C. Modèles à plusieurs marches 38

II-C.1. Présentation des modèles 38

II-C.2. Equivalence avec le modèle des fermions en interaction 41

II-C.2.1. Energie libre 41

II-C.2.2. Distribution des largeurs de terrasses 45

II-C.3. Le modèle des ondes capillaires 47

II-C.3.1. Cas rugueux ($T^3 T_R$) 48

II-C.3.2. Cas non rugueux ($T < T_R$) 51

II-C.4. La simulation Monte Carlo 53

II-C.4.1. Généralités 53

II-C.4.2. Cas des surfaces vicinales 55

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

CHAPITRE III

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

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

CHAPITRE IV

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

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

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

SECONDE PARTIE

Morphologie des surfaces vicinales d'alliages.

Transition chimique.

CHAPITRE V

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

CHAPITRE VI

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

CHAPITRE VII

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

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

VII-F. <u>Conclusion de l'étude de la face Cu₃Au(1,1,11)</u>	259
--	------------

BIBLIOGRAPHIE	260
----------------------	------------

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

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

ANNEXE I

ANNEXE II

ANNEXE III

ANNEXE IV

Introduction générale

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

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

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

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

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

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

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

^{*} du latin *vicinus* voisin.

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

BIBLIOGRAPHIE

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

- [16] H. Reichert, P.J. Eng, H. Dosch et I.K. Robinson Phys. Rev. Lett. **78** (1997) 3475.
- [17] L. Masson, thèse l'Université Paris XI (1994) ; L. Barbier, L. Masson, J. Cousty et B. Salanon, Surf. Sci. **345** (1996) 197.

PREMIERE PARTIE

Morphologie des surfaces vicinales.

Transition rugueuse.

CHAPITRE I :

Généralités

I-A. Faces Cu(1,1,n) idéales

Une **face vicinale** est obtenue en taillant un cristal avec un certain angle f_0 par rapport à un plan dense. Une face vicinale idéale présente donc un réseau régulier de marches équidistantes, les terrasses séparant deux marches étant orientées selon la face dense.

Les faces vicinales de type Cu(1,1,2n+1) sont constituées d'une succession de terrasses orientées selon la face dense (0,0,1) et présentant, en surface, un réseau carré de paramètre de maille $a_0 = \frac{a}{\sqrt{2}}$ avec $a=3.61 \text{ \AA}$. Chacune de ces terrasses de largeur $\ell_0 = (2n+1) \cdot \frac{a_0}{2}$ sont séparées par une marche de hauteur $h = \frac{a}{2}$.

L'angle de coupe est relié à l'indice n de la face vicinale par la relation $\tan f_0 = \frac{\sqrt{2}}{2n+1}$. Les marches sont orientées parallèlement à la direction $[\bar{1},1,0]$. Le paramètre a_0 de la maille de surface sera pris, dans toute la suite, comme unité de longueur.

La Figure I-1 montre une représentation de la face Cu(1,1,5) étudiée expérimentalement au cours ce travail de thèse.

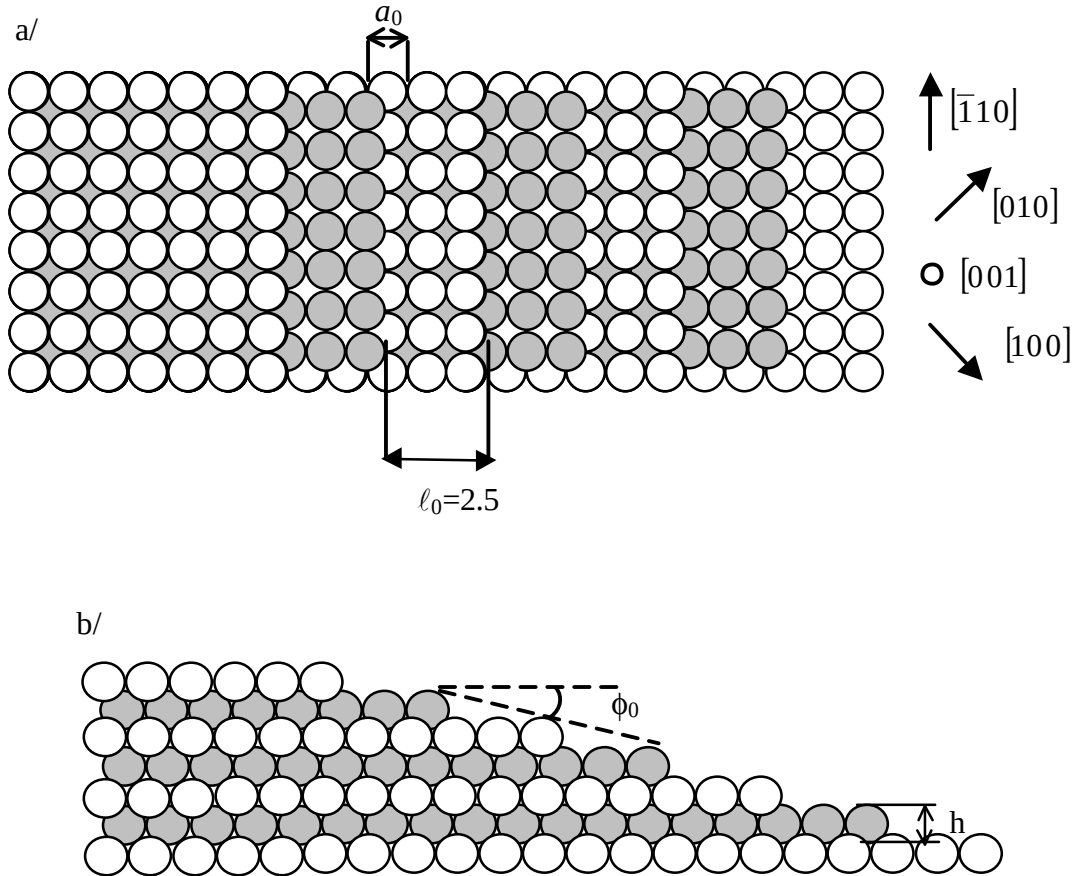


Figure I-1: Face Cu(1,1,5), les atomes de couleurs différentes symbolisent les différentes couches.

a/ vue de dessus b/ vue de profil.

Remarque : les faces vicinales de type Cu(1,1,2n) ne présentent pas un réseau régulier de marches mais une alternance de terrasses de largeur $\ell_0 = (2n-1) \cdot \frac{1}{2}$ et $\ell_0 = (2n+1) \cdot \frac{1}{2}$.

I-B. Interaction entre marches

Sur la Figure I-1 la surface vicinale est représentée à température nulle ($T=0$ K) c'est à dire que tous les atomes sont alignés sur des rangées régulières. A température non nulle, les atomes sont thermiquement excités, ce qui se traduit par une fluctuation des marches. On observe alors la formation de crans en bord de marches, les fluctuations étant limitées par les interactions répulsives entre marches.

Les interactions présentes entre les marches sont de trois origines : entropique, élastique et dipolaire. Les deux premières sont répulsives, tandis que la dernière peut être attractive ou répulsive selon la nature des dipôles présents en bord de marches.

I-B.1. Interaction entropique

Les marches ne pouvant pas se croiser sur une surface, leur déplacement est limité par la position des marches voisines. L'équilibre est déterminé par le minimum d'énergie libre du système. Contraindre une marche dans une région limitée de l'espace réduit l'entropie, ce qui augmente l'énergie libre. Fisher et Fisher [1] ainsi que Bartelt *et al.* [2] ont estimé ce coût énergétique associé à la condition de non croisement.

Considérons une marche fluctuant librement entre deux marches adjacentes, avec pour seule contrainte la condition de non croisement. Chaque collision entre marches réduit le nombre de configurations accessibles à la marche par un facteur deux, d'où une diminution de l'entropie de l'ordre de $k_B T \ln 2$. Une distance caractéristique de collisions y_{coll} entre marches peut être estimée connaissant $b^2(T)$, la longueur quadratique moyenne des crans en chaque site. Il se produit une collision pour une distance y_{coll} (dans la direction parallèle au bord de marche, $[1,1,0]$ dans notre cas) où la marche aura fluctué en moyenne de $\frac{\ell_0}{2}$:

$$(I-1) \quad y_{coll} \approx \frac{\ell_0^2}{4b^2(T)},$$

L'accroissement d'énergie libre par site le long du bord de marche est alors donné par $\frac{4k_B T b^2(T) \ln 2}{\ell_0^2}$. L'interaction entropique varie donc en $1/\ell^2$, avec ℓ la distance entre marches.

La distance y_{coll} diminuant lorsque les fluctuations augmentent, l'interaction va croître avec la température.

I-B.2. Interaction élastique

La relaxation du réseau cristallin au voisinage d'une marche conduit à un champ de déformation élastique dans le cristal. Si deux marches sont suffisamment proches l'une de l'autre, leurs champs de déformation interfèrent, donnant naissance à l'interaction élastique

[3]. La Figure I-2 tirée de [3] suggère les déformations élastiques possibles au voisinage (a) d'une paire de marches de même signe et (b) d'une paire de marches de signes opposés.

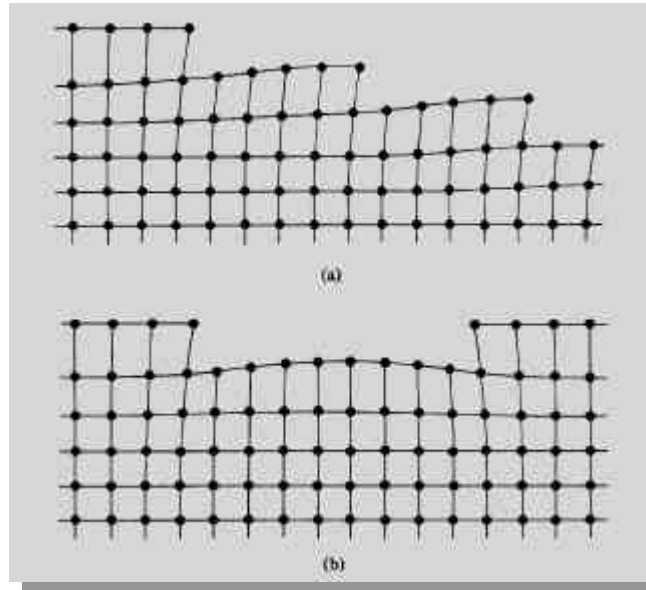


Figure I-2 : suggestions de déformations élastiques tirées de [3] : (a) près d'une paire de marches de même signe et (b) près d'une paire de marches de signes opposés.

Ce terme d'interaction élastique a été calculé dans la limite du milieu élastique continu par Marchenko *et al.* [4]. Ils ont montré que cette interaction est inversement proportionnelle au carré de la distance séparant deux marches voisines. Elle est répulsive pour des marches de même signe tandis qu'elle peut être attractive ou répulsive, suivant la nature des atomes, dans le cas de marches de signes opposés.

I-B.3. Interaction dipolaire électrique

Pour une surface métallique, la distorsion de la densité de charge électronique au voisinage d'une marche conduit à une augmentation du moment dipolaire par rapport à la face dense [5]. Cette ligne supplémentaire de dipôles a été mise en évidence théoriquement par simulation dans le cadre du formalisme de la fonctionnelle densité [6] et expérimentalement par mesure du travail de sortie [7,8]. On observe, en effet, que le travail de sortie des faces vicinales varie linéairement avec la densité de marches, ce qui est la signature de la présence d'un moment dipolaire en bord de marche. Par cette méthode, L. Peralta [8] a mesuré la composante perpendiculaire $d_{\perp}$ du moment dipolaire sur un échantillon cylindrique de cuivre :

$$d_{\perp} = 0.41 \cdot 10^8 \text{ D/m}$$

$$1D = 3.336 \cdot 10^{-30} \text{ C.m.}$$

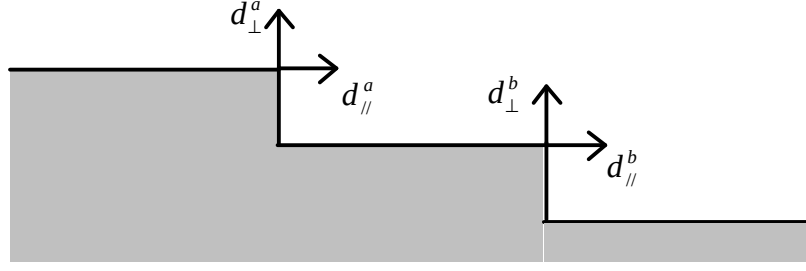


Figure I-3 : Face vicinale vue de profil avec les composantes parallèle et perpendiculaire à la surface du moment dipolaire.

L'énergie d'interaction par unité de longueur, de deux lignes de dipôles séparées par la distance ℓ (exprimée en unité atomique), s'écrit en fonction de leurs composantes parallèles $d_{//}$ et perpendiculaires $d_{\perp}$ à la surface [9] (dans le plan normal à $[1,1,0]$, voir Figure I-3) :

$$(I-2) \quad E_{dip}(\ell) = \frac{1}{2pe_0a_0^2} [d_{\perp}^a d_{\perp}^b - 2d_{//}^a d_{//}^b] \frac{1}{\ell^2} = \frac{1}{2pe_0a_0^2} [d_{\perp}^2 - 2d_{//}^2] \frac{1}{\ell^2} .$$

L'interaction dipolaire électrique varie donc, comme les interactions entropique et élastique, en $1/\ell^2$. Elle peut être soit attractive soit répulsive suivant l'intensité relative des composantes parallèle et perpendiculaire à la surface.

En exprimant l'énergie d'interaction dipolaire par site sous la forme $\frac{A_{dip}}{\ell^2}$, où ℓ est la distance entre marches, la contribution à la constante d'interaction A due à la composante perpendiculaire du moment dipolaire s'écrit :

$$A_{dip} = \frac{d_{\perp}^2}{2pe_0a_0^2} a_0 = 0.095K .$$

En supposant que la contribution de la composante parallèle soit du même ordre, l'interaction dipolaire est faible en comparaison avec la valeur obtenue, par exemple, pour la face de Cu(1,1,11) ($\ell_0=5.5$) pour laquelle l'interaction totale (élastique et dipolaire) est $A=70$ K [10].

En conclusion, dans le cas du cuivre, les interactions répulsives entropique et élastique sont dominantes. Il est également important de remarquer que bien que d'origines différentes, ces trois types d'interactions présentent la même dépendance en A/ℓ^2 .

I-C. Représentation microscopique d'une surface vicinale

La description microscopique des faces vicinales est basée sur le modèle TSK (Terrace Step Kink) introduit par E. E. Gruber *et al.* [11]. Ce modèle est une adaptation du modèle SOS (Solid On Solid) [5, 11 et leurs références] dans lequel les atomes d'une surface sont empilés comme des cubes sur des sites j formant ainsi des colonnes de hauteur z (Voir Figure I-4). Dans ce modèle, les surplombs sont interdits, car ils correspondent à une énergie trop élevée.

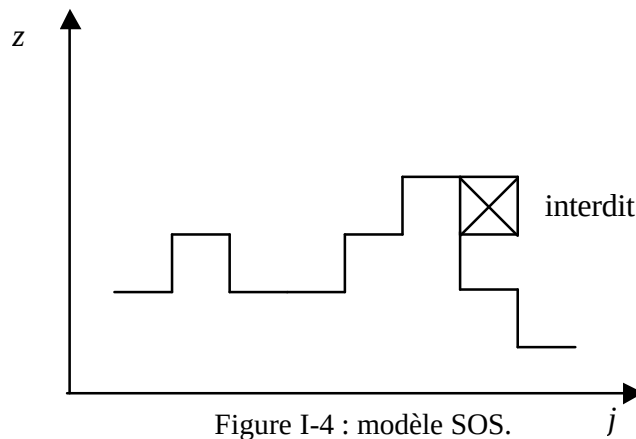


Figure I-4 : modèle SOS.

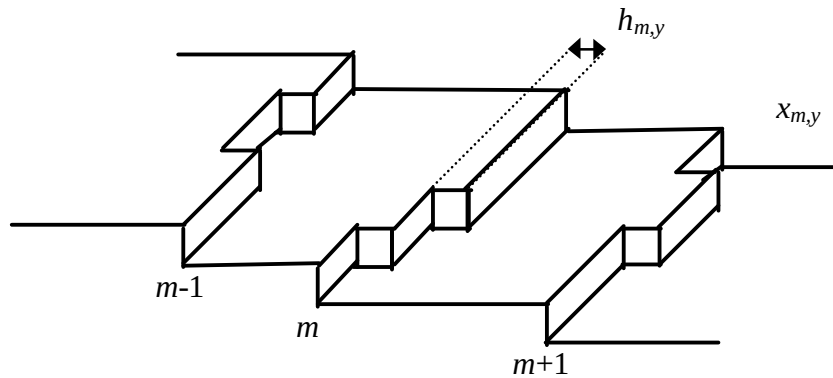


Figure I-5 : modèle TSK.

Dans le modèle TSK, les colonnes z ne sont plus considérées comme des hauteurs par rapport aux terrasses mais comme la position des marches $x_{m,y}$ le long des terrasses (voir Figure I-5). Les marches se déplacent de $h_{m,y} = x_{m,y} - m\ell_0$ en formant des crans. Si seuls les

crans simples de longueur $a_{\perp} = a_0$ sont autorisés, on parle alors du modèle RSOS (Restricted Solid On Solid), dans le cas où toutes les tailles de crans sont autorisées, il s'agit du modèle ASOS (Absolute Solid On Solid). Dans le modèle TSK, la création d'adatomes sur les terrasses est interdite, tout comme les "surplombs" ou crans parallèles aux bords de marches. Le modèle TSK est donc correct jusqu'à la température où les excitations de terrasses apparaissent.

La position des marches par rapport à leur position moyenne est décrite par $h_{m,y}$. L'énergétique des marches est pilotée par deux paramètres :

- l'énergie E_k de formation d'un cran simple,
- la constante d'interaction entre marches A (pour une interaction en $\frac{A}{\ell^2}$).

Les valeurs de ces paramètres peuvent être obtenues à partir de grandeurs statistiques telles que la distribution des largeurs de terrasses ou les fonctions de corrélation :

$$(I-3) \quad G(m, y) = \left\langle (h_{m,y} - h_{0,0})^2 \right\rangle$$

où $h_{0,0}$ est la position du site pris comme origine.

A partir de cette représentation microscopique, on peut élaborer des modèles permettant de décrire les faces vicinales. Ces modèles peuvent présenter une transition de phase, la transition rugueuse, que je vais maintenant présenter.

I-D. La transition rugueuse

I-D.1. Notion de transition rugueuse

Sur une face dense, à température nulle, la surface est plate. A température non nulle, il se forme des lacunes et des adatomes. A plus haute température, il apparaît à la surface des domaines plats à différentes hauteurs et délimités par des marches.

L'énergie libre d'une marche isolée sur une face dense s'écrit :

$$(I-4) \quad F = E_{\text{int}} - T.S$$

avec E_{int} l'énergie interne et S l'entropie. A suffisamment haute température, le terme entropique va compenser voire dépasser en valeur absolue le terme d'énergie interne. L'énergie libre d'une marche devenant négative, elles prolifèrent à la surface : c'est la **transition rugueuse** [12,13]. Pour une face dense, cette transition a été mise en évidence expérimentalement dans le cas de l'hélium solide en contact avec le superfluide [14,15].

I-D.2. La transition rugueuse sur les surfaces vicinales

Dans le cas des surfaces de haute symétrie, la transition rugueuse se produit à haute température (de l'ordre de grandeur de la température de fusion). Les faces vicinales ont une énergie de formation de défauts (0.13 eV pour la formation de crans sur les marches du Cu [16]) beaucoup plus faible que les faces denses (0.52 eV pour l'énergie de formation d'une lacune sur le Cu(100) [17]). Les surfaces vicinales peuvent donc être rugueuses pour des températures très inférieures à la température de fusion. On observe ainsi que la face Cu(1,1,11) est rugueuse à la température ambiante [10, 16].

A basse température (sous la température de transition rugueuse notée T_R) les marches sont pratiquement droites et équidistantes. A haute température (au dessus de T_R), les marches fluctuent fortement sous l'effet de l'excitation thermique. Ces deux régimes sont illustrés sur la Figure I-6 et la Figure I-7.

La transition rugueuse est une transition de phase appartenant à la classe d'universalité de Kosterlitz-Thouless [18]. De façon générale, les propriétés critiques de la transition rugueuse se résument en trois points [19] :

- La divergence logarithmique de la fonction de corrélation [12,20], qui pour un système isotrope, s'écrit :

$$(I-5) \quad \lim_{R \rightarrow \infty} G(R) \approx \begin{cases} \text{const} & \text{pour } T < T_R \\ K(T) \ln(R) & \text{pour } T \geq T_R \end{cases},$$

avec R la distance séparant deux points de la surface.

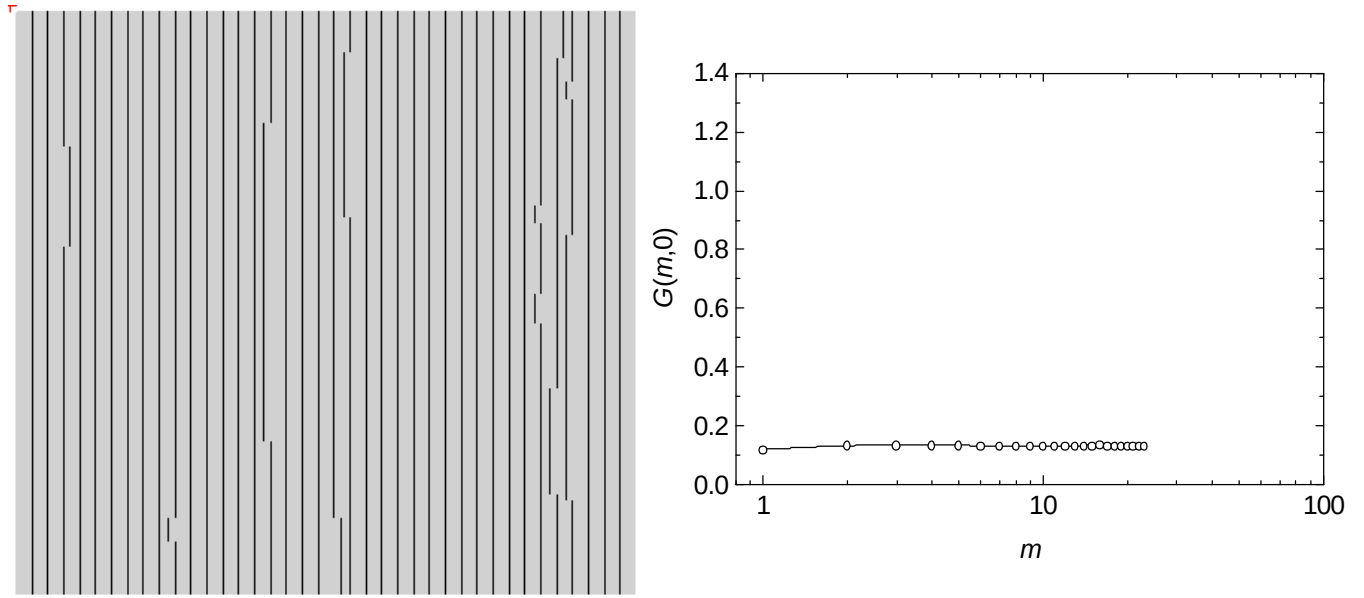


Figure I-6 : $T < T_R$

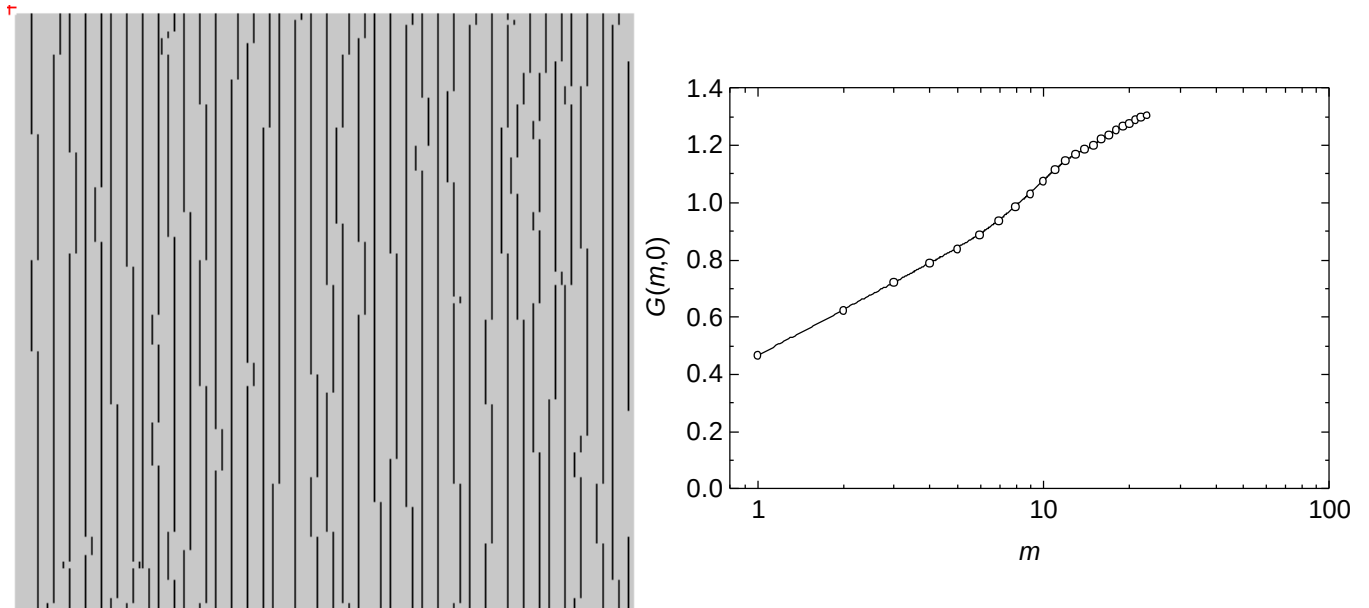


Figure I-7 : $T > T_R$

Gauche : Image 250ÅX250Å obtenue par simulation Monte Carlo. Les traits noirs représentent la position des bords de marches sur une face (1,1,5). Les bords de marches sont orientés vers la droite.

Droite : Fonction de corrélation $G(m,0)$ mesurée sur l'image Monte Carlo adjacente. L'abscisse m est portée en échelle logarithmique

La constante $K(T)$ a une valeur bien définie à T_R [20] :

$$(I-6) \quad K(T) = \frac{2}{p^2} \quad .$$

- L'invariance d'échelle est réalisée pour toutes les températures supérieures à T_R .
- L'énergie libre F de formation des parois limitant les domaines de même hauteur est nulle pour $T \geq T_R$. De plus, F ainsi que toutes ses dérivés par rapport à T sont continues à la transition. Cette transition est d'ordre infini.

Afin de fixer les idées sur la transition rugueuse et plus particulièrement sur le lien entre la fonction de corrélation et l'aspect de la surface, des images d'une surface de Cu(1,1,5) obtenues par simulation Monte Carlo (cf. § II-C.4.) sont représentées Figure I-6 et Figure I-7 pour $T < T_R$ et $T > T_R$. Les paramètres énergétiques choisis pour ces simulations sont $A=70$ K et $E_k=1430$ K. La fonction de corrélation associée, dans la direction perpendiculaire aux marches, est également représentée.

On retrouve bien à partir de ces images la divergence logarithmique de la fonction de corrélation pour $T > T_R$, et la saturation pour $T < T_R$ (cf. Eq (I-5)). On peut également remarquer que la densité de crans augmente avec la température, mais l'aspect de la surface n'évolue pas de façon spectaculaire lors du passage de la transition.

I-E. Conclusion

Dans ce chapitre, une description à $T=0$ K a permis de définir les paramètres géométriques d'une surface vicinale. Du point de vue énergétique, le désordre thermique nécessite de prendre en compte l'énergie de formation d'un cran et les interactions entre marches que nous venons d'introduire.

La transition rugueuse a également été présentée car elle sera au centre de l'interprétation des résultats expérimentaux obtenus sur le Cu(1,1,5).

Différents modèles ont été proposés pour décrire les surfaces vicinales, le chapitre suivant sera consacré à la présentation de ces modèles et aux méthodes mises en œuvre pour les résoudre.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] M. E. Fisher et D. S. Fisher, Phys. Rev. **B 25** (1981) 3192.
- [2] N. C. Bartelt, J.L. Goldberg, T. L. Einstein et E. D. Williams, Surf. Sci. **273** (1992) 252.
- [3] J.M. Blakely et R.L. Schwoebel, Surf. Sci. **26** (1971) 321.
- [4] V. I. Marchenko et A. Ya. Parshin, Sov. Phys. JETP **52** (1980) 129.
- [5] C. Jayapraksh, C. Rottman, et W. F. Saam, Phys. Rev. **B 30** (1984) 6549.
- [6] M. D. Thompson et M. B. Huntington, Surf. Sci. **116** (1982) 522.
- [7] B. Krah-Urban, E. A. Niekisch et H. Wagner, Surf. Sci. **64** (1977) 52.
- [8] L. Peralta, Thèse, Paris (1979).
- [9] Mécanique Quantique C . Cohen-Tannoudji, B. Diu et F. Laloë, page 1122.
- [10] L. Barbier, L. Masson, J. Cousty et B. Salanon, Surf. Sci. **345** (1996) 197.
- [11] E. E. Gruber et W. W. Mullins, J. Phys. Chem. Solids. **28** (1967) 875.
- [12] J. Villain et A. Pimpinelli : Physique de la croissance cristalline, éd. Eyrolles (Aléa Saclay 1995), p1.
- [13] J. Lapujoulade, Surf. Sci. Rep. **20** (1994) 191.
- [14] J. E. Avron, L. S. Balfour, G. G. Kuper, J. Landau, S. G. Lipson et L. S. Shulman, Phys. Rev. Lett. **45** (1980) 814.
- [15] S. Balibar et B. Castaing, J. Phys. Lett. **41** (1980) L329.
- [16] L. Masson, Thèse de l'Université Paris XI (1994).
- [17] P. Hecquet et B. Salanon, (communication privée)
- [18] F. Gallet, S. Balibar et E. Rolley, J. Phys. **48** (1987) 369.
- [19] B. Loisel, Thèse de l'Université Paris VII (1989).
- [20] J. Villain, D. R. Grempel et J. Lapujoulade, J. Phys. **F 15** (1985) 809.

CHAPITRE II :

Modélisation des surfaces vicinales

II-A. Introduction

Dans ce chapitre, les modèles utilisés pour décrire les surfaces vicinales existant dans la littérature sont tout d'abord présentés ainsi que les méthodes permettant de les résoudre.

Il existe deux grandes familles de modèles : les *modèles à marche unique* dans lesquels on ne considère qu'une seule marche plongée dans un potentiel extérieur, et les *modèles à plusieurs marches* en interaction. Ces deux types de modèles sont décrits successivement.

Les modèles à plusieurs marches ont initialement été développés pour traiter une surface au-dessus de T_R . L'observation par microscopie à effet tunnel d'une surface sous T_R nous a obligé à **développer l'application de ces modèles en-dessous de la transition rugueuse.**

Une méthode puissante, **la méthode du cylindre**, utilisable à toute température, a été appliquée ici, pour la première fois, à l'étude des faces vicinales.

II-B. Modèles à marche unique

II-B.1. Introduction

Les modèles "marche unique" sont encore actuellement largement utilisés pour l'étude des surfaces vicinales [1,2,3,4]. Par cette approche, on traite le problème en ne considérant qu'une seule marche dans un potentiel représentant l'interaction avec toutes les autres marches. Ces modèles permettent une première interprétation de deux grandeurs aisément mesurables sur les images STM : la distribution des largeurs de terrasses (TWD, Terrace Width Distribution) et la densité de crans.

L'hamiltonien associé au modèle ASOS est de la forme :

$$(II-1) \quad H_{ASOS} = \sum_y E_k |h_{y+1} - h_y| + V(h_y)$$

où h_y est le déplacement de la marche au site y par rapport à sa position d'équilibre et E_k est l'énergie d'un cran simple. Le potentiel $V(h_y)$ décrit l'influence des marches voisines, il ne dépend que de la position de la marche au site y . Les interactions entre crans ne sont pas prises en compte.

Après un rappel des résultats pour les formes simples du potentiel ($V=0$, potentiel harmonique), le cas des potentiels plus physiques, solubles par la méthode de la matrice de transfert, sera exposé.

II-B.2. La marche libre

Pour des marches suffisamment éloignées tel que l'on puisse négliger leurs interactions, l'approximation de marche libre est justifiée. L'énergie de cran E_k peut être déterminée à partir de la densité de crans mesurée sur des images STM ou plus précisément de la mesure de la diffusivité $b^2(q_0, E_k, T)$ (ou moyenne quadratique des déplacements $\Delta h = h_{y+1} - h_y$ de la marche) [5,6] :

$$(II-2) \quad b^2(q_0, E_k, T) = \left\langle (\Delta h)^2 \right\rangle - \langle \Delta h \rangle^2 ,$$

où q_0 ($\tan(q_0) = \langle \Delta h \rangle$) est la désorientation possible de la marche par rapport à la direction cristallographique idéale (cf. Figure II-1).

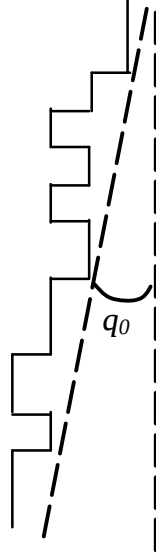


Figure II-1 : Vue de dessus d'une marche isolée, q_0 est la désorientation de la marche par rapport à la direction des rangées denses d'atomes ($[110]$ pour les faces Cu(1,1,n)).

Pour une meilleure détermination de l'énergie de cran, il est préférable de mesurer la fonction de corrélation des déplacements de la marche définie par :

$$(II-3) \quad G(y) = \langle [h_y - h_0]^2 \rangle.$$

Tous les sites étant indépendants et équivalents, la fonction peut se réécrire [7] :

$$(II-4) \quad G(y) = \langle (\Delta h^2) \rangle y + y(y-1) \langle \Delta h \rangle^2 = b^2(q_0, E_k, T) y + y^2 \langle \Delta h \rangle^2$$

La fonction de corrélation comprend donc une partie linéaire et une partie quadratique fonction de la désorientation.

Dans le cas le plus simple où la marche est parfaitement orientée ($q=0$) la diffusivité s'écrit :

$$(II-5) \quad b^2(q_0 = 0, E_k, T) = b^2(E_k, T) = \frac{2 \sum_{n=1}^{\infty} n^2 e^{-\frac{nE_k}{k_B T}}}{1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} e^{-\frac{nE_k}{k_B T}}} ,$$

$$(II-6) \quad b^2(E_k, T) = \frac{2}{e^{\frac{E_k}{k_B T}} + e^{-\frac{E_k}{k_B T}} - 2} = \frac{1}{\cosh\left(\frac{E_k}{k_B T}\right) - 1} ,$$

avec k_B la constante de Boltzmann.

La diffusivité de la marche peut également être reliée à la rigidité du bord de marche $\tilde{b}(q_0, T)$ [5,6] :

$$(II-7) \quad b^2(q_0, T) = \frac{k_B T}{(\cos(q_0))^3 \tilde{b}(q_0, T)} ,$$

où $\tilde{b}(q_0, T)$ est définie par :

$$(II-8) \quad \tilde{b}(q_0, T) = b(q_0, T) + \frac{d^2 b(q_0, T)}{dq_0^2} ,$$

et $b(q_0, T)$ est l'énergie libre d'une marche libre par unité de longueur qui s'écrit :

$$(II-9) \quad b(q_0 = 0, T) = -k_B T \ln \left(\tanh \frac{E_k}{2k_B T} \right) .$$

Ce modèle permet d'obtenir des énergies de cran correctes à condition que la distance moyenne entre marches soit suffisante pour négliger leur interaction [7,8].

II-B.3. Une marche plongée dans un potentiel

II-B.3.1. Les murs durs

Ce modèle, introduit par Grubber et Mullins [9], est constitué d'une marche qui serpente librement entre deux marches voisines immobiles localisées sur leurs positions moyennes ($-\ell_0$ et $+\ell_0$). La seule interaction qui existe entre les marches est la condition de non

croisement. Cette condition limite le déplacement de la marche ce qui s'accompagne d'une diminution de son entropie créant ainsi une répulsion "*entropique*" effective entre les marches. Ce problème est équivalent au problème d'une particule dans une boîte à une dimension. Cette approximation est supposée être valable lorsque les autres interactions (élastique et dipolaire) sont faibles. La probabilité $P(h)$ que la marche soit à la position h , par rapport à sa position d'équilibre, est donnée par [2] :

$$(II-10) \quad P(h) = \frac{1}{\ell_0^2} \cos^2 \left(\frac{ph}{2\ell_0} \right)$$

on a alors,

$$(II-11) \quad \langle h^2 \rangle = \ell_0^2 \cdot \left[1 - \frac{6}{p^2} \right] .$$

On remarque que cette distribution est indépendante de la température T et présente une loi d'échelle $P(h)\ell_0 = f\left(\frac{h}{\ell_0}\right)$.

II-B.3.2. Méthode de l'approximation harmonique

Généralement l'interaction entre marches ne peut pas être négligée. Dans le cas d'une forte interaction élastique une solution peut être obtenue dans le cadre de ***l'approximation harmonique***.

Considérons une marche placée entre deux marches droites distantes de $2\ell_0$ et plongée dans le potentiel créé par ces deux marches. Comme nous l'avons vu précédemment (cf. chapitre I-B.) pour une interaction de type élastique ou dipolaire, le potentiel d'interaction entre marches, par unité de longueur de marche, s'écrit :

$$(II-12) \quad V(\ell) = \frac{A}{\ell^2} .$$

Le potentiel ressenti par la marche placée en h , s'écrit donc :

$$(II-13) \quad U(h, \ell_0) = \frac{A}{(h - \ell_0)^2} + \frac{A}{(h + \ell_0)^2} ,$$

En se plaçant à suffisamment basse température ($T \ll E_k$), afin que les fluctuations de la marche soient limitées ($h \ll \ell_0$), le potentiel devient dans l'approximation harmonique :

$$(II-14) \quad U(h, \ell_0) \approx U(0) + C(\ell_0)h^2 \quad \text{pour } h \ll \ell_0,$$

$$\text{avec} \quad C(\ell_0) = \frac{U''(0)}{2} = \frac{6A}{\ell_0^4}.$$

La distribution des probabilités $P(h)$ est Gaussienne et s'écrit [1, 3] :

$$(II-15) \quad P_{har}(h) = \frac{1}{w_{har} \sqrt{2p}} \exp\left(-\frac{h^2}{2 w_{har}^2}\right),$$

où la largeur de la distribution w_{har} , qui dépend de la température et du potentiel d'interaction, est donnée par :

$$(II-16) \quad w_{har} = \left(\frac{k_B T b^2(T)}{8 C(\ell_0)}\right)^{\frac{1}{4}} = \left(\frac{k_B T b^2(T)}{48 A}\right)^{\frac{1}{4}} \cdot \ell_0,$$

avec $b^2(T)$ la diffusivité de la marche libre décrite par l'équation (II-5).

Cette approximation harmonique du potentiel limitée au cas des basses températures ne permet pas de séparer les interactions élastique et entropique. Ceci conduit donc à surestimer le potentiel élastique réel. On peut remarquer de nouveau que la distribution des probabilités $P_{har}(h)$ suit une loi d'échelle $P_{har}(h)\ell_0 = f\left(\frac{h}{\ell_0}\right)$.

II-B.3.3. Potentiel quelconque : méthode de la matrice de transfert à une marche

Lorsque les interactions élastique et entropique sont du même ordre de grandeur, aucune approche analytique n'est, à notre connaissance, possible pour résoudre ce problème. C'est une méthode numérique appelée **matrice de transfert** [10] qui est employée. Cette méthode très générale permet de résoudre tout système unidimensionnel d'objets en interaction (modèle d'Ising, chaîne de polymère). Le potentiel d'interaction peut prendre a priori n'importe quelle forme. Cette méthode étant classique, j'en rappellerai ici uniquement les grandes lignes, le détail des calculs étant reporté dans l'annexe I.

Fonction de partition, énergie libre

On considère toujours une marche fluctuant dans le potentiel créé par les deux marches voisines supposées droites et localisées en $h=-\ell_0$ et $h=+\ell_0$. La position de la marche sur un site y , par rapport à sa position d'équilibre, est donnée par h_y . Cette marche comporte N_s sites avec la condition aux limites périodiques $h_{N_s} = h_0$. L'hamiltonien symétrisé d'un tel système, dans le cas du modèle ASOS, est donné par :

$$(II-17) \quad H_{ASOS} = \sum_{y=0}^{N_s-1} H(h_{y+1}, h_y) \quad \text{avec :}$$

$$(II-18) \quad H(h_{y+1}, h_y) = E_k |h_{y+1} - h_y| + \frac{1}{2} [V(h_{y+1}) + V(h_y)] .$$

Une configuration de la marche est complètement décrite par l'ensemble des positions $\{h_0, \dots, h_{N_s-1}\}$. Dans la notation bracket, qui sera largement utilisée ici, la position de la marche au site y sera notée $|h_y\rangle$.

La fonction de partition Z s'écrit sous la forme de la trace d'une matrice :

$$(II-19) \quad Z = \text{Tr}(\hat{T}^{N_s}) ,$$

où $\hat{T}$ est la **matrice de transfert** dont les éléments sont définis par :

$$(II-20) \quad \langle h' | \hat{T} | h \rangle = e^{-\frac{H(h', h)}{k_B T}} ,$$

où $|h'\rangle$ et $|h\rangle$ sont les positions de la marche sur deux sites adjacents.

Cette matrice est une matrice $m \times m$, m étant le nombre de valeurs possibles de h .

Soit $\{\Lambda_p\}$ l'ensemble des valeurs propres de $\hat{T}$ et $\{\Psi_p\}$ l'ensemble des vecteurs propres associés. La fonction de partition (II-19) s'écrit :

$$(II-21) \quad Z = \sum_{k=1}^m (\Lambda_k)^{N_s} .$$

Pour une marche de longueur infinie ($Ns \rightarrow \infty$) Z devient, en utilisant la valeur propre maximale $\Lambda_{\max}$ de $\hat{T}$ (voir Eq. (7) annexe I),

$$(II-22) \quad Z = \lim_{Ns \rightarrow \infty} (\Lambda_{\max})^{Ns} .$$

L'énergie libre par site et par unité d'aire projetée sur le plan des terrasses est donnée par :

$$(II-23) \quad F = -\frac{k_B T}{2 \ell_0} \ln(\Lambda_{\max}) .$$

Distribution des largeurs de terrasses

La distribution des largeurs de terrasses est déterminée par la probabilité $P(h)$ que la marche soit à la position h sur un site y quelconque. Cette probabilité est donnée par le module carré des composantes du vecteur propre associé à la valeur propre maximale :

$$(II-24) \quad P(h) = |\langle h | \Psi_{\max} \rangle|^2 = |(\Psi_{\max})_h|^2 .$$

On en déduit donc simplement la distribution $D(\ell)$ des largeurs de terrasses :

$$(II-25) \quad D(\ell) = P(\ell - \ell_0) .$$

On remarque que de par la symétrie du problème, la distribution obtenue est symétrique par rapport à la distance moyenne ℓ_0 . Cette particularité est contraire aux distributions réelles qui, comme nous le verrons par la suite, sont asymétriques.

Fonction de corrélation le long du bord de marche

La fonction de corrélation des déplacements du bord de marche h est définie par,

$$(II-26) \quad G(y) = \langle (h_y - h_0)^2 \rangle = 2 \langle h_0^2 \rangle - 2 \langle h_0 h_y \rangle ,$$

on note que $\langle h_0^2 \rangle = \langle h_y^2 \rangle$, tous les sites de la marche étant équivalents.

La fonction de corrélation des déplacements du bord de marche s'écrit (cf. Eq. (21) annexe I) :

(II-27)

$$G(y) = 2 \sum_h h^2 \left| \langle h | \Psi_{\max} \rangle \right|^2 - 2 \frac{\sum_{h_0, h_y} h_0 h_y \left[\sum_p \langle \Psi_{\max} | h_0 \rangle \langle h_0 | \Psi_p \rangle (\Lambda_p)^y \langle \Psi_p | h_y \rangle \langle h_y | \Psi_{\max} \rangle \right]}{(\Lambda_{\max})^y}.$$

Pour $y \rightarrow \infty$, $G(y) = 2 \langle h_0^2 \rangle$. Dans ce modèle, l'écart maximum de la marche à sa position moyenne est $(\ell_0 - 1)$ et la fonction de corrélation sature à une valeur finie. Ce modèle à une marche ne présente donc pas de transition rugueuse (caractérisée par la divergence logarithmique de la fonction de corrélation). Cette approche ne peut être valable qu'à basse température $T < T_R$.

II-B.3.4. Comparaison avec les résultats expérimentaux de la face Cu(1,1,11)

Afin d'illustrer les résultats qui peuvent être obtenus en utilisant les modèles à une marche, nous les avons appliqués aux résultats expérimentaux pour Cu(1,1,11) ($\ell_0 = 5.5$) obtenus par Masson *et al* [7] pour lesquels les valeurs $E_k = 1430$ K et $A = 70$ K (voir Figure II-2) ont été déterminées par simulation Monte Carlo (modèle à plusieurs marches) [6]. Ces résultats sont en accord avec d'autres expériences [1, 11].

Sur la Figure II-2 la distribution obtenue dans le cas du modèle des murs durs est comparée à la TWD expérimentale de la face de Cu(1,1,11). Le désaccord flagrant montre que l'interaction élastique est non négligeable.

Les procédures suivantes permettent d'obtenir E_k et A à partir de l'analyse d'images STM en utilisant les modèles à une marche :

- E_k est déterminée en ajustant la diffusivité de la marche libre (Eq. (II-4)) sur la mesure de $G(y=1)$. Connaissant E_k , A est obtenu en ajustant la variance w_{har}^2 de la TWD, calculée dans le cadre de l'approximation harmonique (Eq. (II-16)), sur la TWD expérimentale.
- E_k et A sont ajustés simultanément de façon à reproduire par un calcul de matrice de transfert à une marche la mesure de w^2 et de $G(y=1)$.

Par la première méthode l'énergie de cran de la face Cu(1,1,11) est estimée à $E_k = 1470$ K [6] et $A = 33$ K. La méthode de la matrice de transfert à une marche conduit à

$E_k=1350$ K et $A=24$ K. Les ajustement correspondants sur la TWD expérimentale sont représentés Figure II-3.

Les valeurs de E_k , proches des résultats de Masson *et al.*, semblent raisonnables. La diffusivité de la marche libre donne une bonne estimation de l'énergie de cran, tant que la distance moyenne entre marches est suffisamment grande pour négliger l'effet de l'interaction. La constante d'interaction obtenue par les modèles à une marche est sous-estimée d'un facteur deux à trois.

Il faut rappeler que l'approximation harmonique ne sépare pas les interactions entropique et élastique. La simplicité de l'approximation harmonique en a fait son succès, elle est encore utilisée [1] bien qu'elle conduise à une mauvaise estimation de l'interaction. Dans le cas de la matrice de transfert, les deux interactions sont bien séparées mais l'interaction est sous-estimée par la présence des marches voisines fixes.

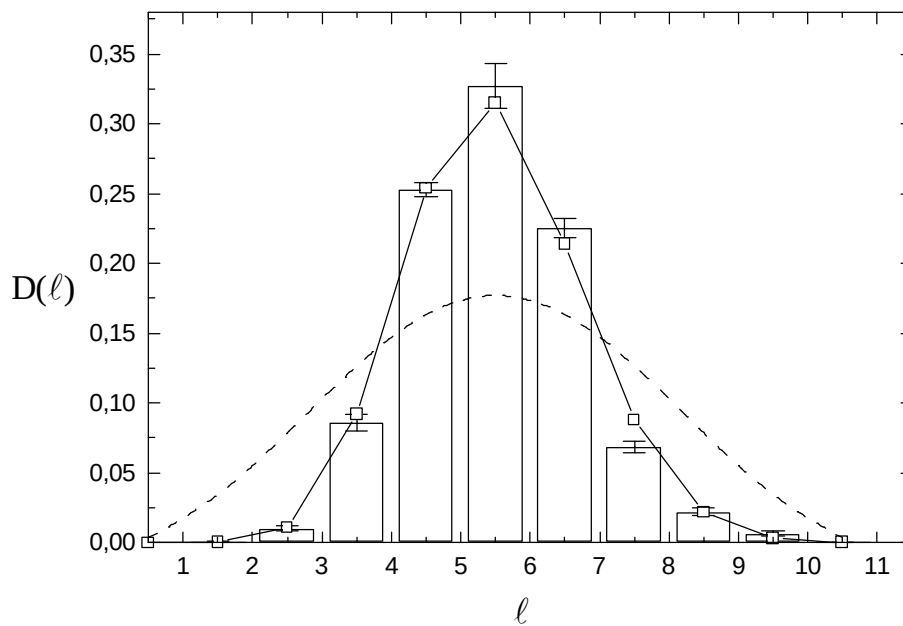


Figure II-2 : Histogramme : TWD expérimentale pour Cu(1,1,11). (?) simulation Monte Carlo ($A=70$ K et $E_k=1430$ K) [6], (--) TWD pour un potentiel murs durs (Eq. (II-10)).

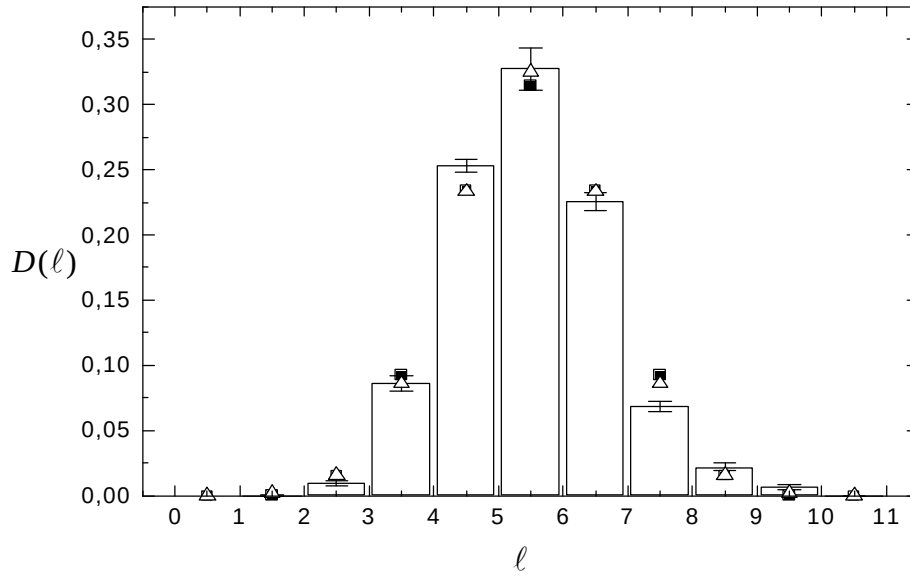


Figure II-3 : Histogramme : TWD expérimentale pour Cu(1,1,11). (■) TWD obtenue par la méthode de la matrice de transfert une marche ($E_k=1350$ K et $A=24$ K). (Δ) TWD obtenue par l'approximation harmonique ($E_k=1470$ K et $A=33$ K).

II-B.3.5. Conclusion : les modèles à une marche sont insuffisants

Les modèles à marche unique permettent de déterminer un ordre de grandeur de l'énergie de cran E_k et de la constante d'interaction A , tout en étant simple à mettre en œuvre.

Cependant :

- L'approximation de la marche libre surestime l'énergie de cran car elle ne tient pas compte, par définition, de l'interaction entre marches.
- L'approximation harmonique ne permet pas de séparer l'interaction entropique de l'interaction élastique.
- L'analyse par la méthode de la matrice de transfert à une marche est a priori meilleure puisque les deux interactions, entropique et élastique, sont bien séparées. Cependant les marches voisines fixes entraînent une sous-estimation (d'un facteur ~ 3) de A .
- Enfin, le modèle à marche unique ne présente pas de transition rugueuse.

Ces modèles sont donc tout à fait insuffisants pour obtenir des valeurs des paramètres énergétiques avec la qualité nécessaire pour comparer les résultats sur deux faces vicinales différentes ou en faisant varier la température.

Des modèles comportant plusieurs marches, qui sont plus proches d'une surface réelle, sont donc nécessaires à une bonne interprétation des résultats expérimentaux.

II-C. Modèles à plusieurs marches

II-C.1. Présentation des modèles

La description d'une surface vicinale peut se faire suivant deux échelles : "*de près*" à l'aide d'un modèle discret qui prend en compte tous les sites atomiques de la surface ou "*de loin*" par l'intermédiaire d'un modèle où la surface est considérée comme une interface continue.

Il existe deux modèles discrets permettant de décrire la surface :

- Dans le premier, le réseau de marches en interaction mutuelle est décrit par l'Hamiltonien :

$$(II-28) \quad H = \sum_{m,y} \left[|h_{m,y+1} - h_{m,y}| E_k \right] + \sum_{y,m>m'} V(h_{m,y}, h_{m',y}) ,$$

où $h_{m,y}$ est la position, par rapport à sa position d'équilibre, de la marche m au site y . Les marches sont séparées en moyenne par ℓ_0 sites.

Le premier terme du membre de droite de l'équation (II-28) correspond à l'énergie de formation d'un cran qui est ici proportionnelle à sa longueur (modèle ASOS). Le second terme reflète l'interaction entre marches incluant la condition de non croisement. Il faut bien noter que seules les interactions dans la direction perpendiculaire aux marches sont prises en compte, un site y n'interagit qu'avec les sites des autres marches à la même position y . Il n'y a pas d'interaction entre les crans d'une même marche, ou entre les crans de différentes marches. Cet hamiltonien est bien adapté au domaine de température où seules les marches sont

thermiquement excitées ($T < E_k$, pas d'excitation de terrasses ni formation de crans en surplomb (crans parallèles et non perpendiculaires à la direction $[\bar{1}10]$ du bord de marches moyen)).

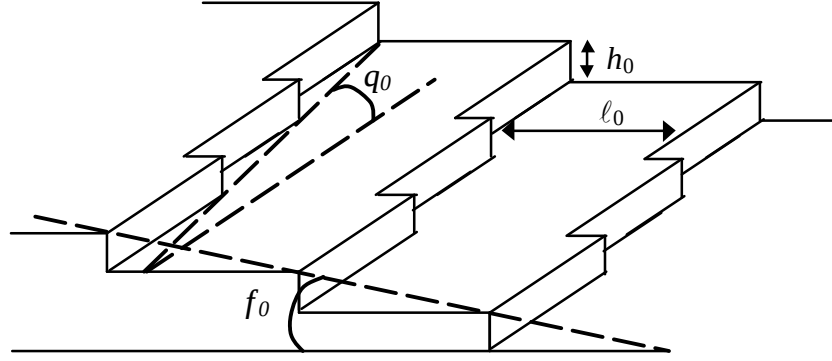


Figure II-4 : Définition des différentes notations introduites dans le texte: f_0 l'angle de coupe, q_0 la désorientation des marches par rapport à la direction des rangées denses d'atomes ($[\bar{1}10]$ pour les faces Cu(1,1,n)), h_0 et ℓ_0 la hauteur des marches et la distance moyenne entre marches respectivement.

- Le second modèle discret est basé sur le développement de l'énergie libre, en fonction de la pente de la surface par rapport à la direction des terrasses $p = \tan(f_0) = h_0/\ell_0$. Il a été initialement proposé par Jayaprakash *et al.* [12]. Pour un potentiel en A/ℓ^2 , l'énergie libre par unité d'aire projetée sur le plan de référence ($f_0=0$) d'un réseau de marches avec l'orientation q_0 , s'écrit [9,12,13] :

$$(II-29) \quad f(q_0, f_0, T) = f_0(T) + \frac{b(q_0, T)}{h_0 \cos(q_0)} |p| + \frac{F_{\text{int}}(q_0, T)}{(h_0)^3} |p|^3.$$

Le premier terme correspond à l'énergie libre des terrasses. Le second terme est l'énergie libre de création des marches. Il est linéaire avec la pente p . Le coefficient $b(q_0, T)$ est l'énergie libre par unité de longueur d'une marche libre (cf. Eq. (II-9)). Le troisième terme $\frac{F_{\text{int}}(q_0, T)}{(h_0)^3} |p|^3$ est l'énergie libre d'interaction entre marches. Il est remarquable que ce

développement ne fait pas apparaître de terme en p^2 (pas de terme d'interaction en $1/\ell$). La Figure II-4 précise toutes les notations introduites ici.

- Dans le cas du modèle continu, encore appelé **modèle des ondes capillaires**, l'interface solide/vide est considérée comme une membrane fluctuante. J. Villain *et al.* [14] et José *et al.* [15] ont introduit l'idée que l'énergie libre de cette membrane F_{cap} pouvait s'écrire :

$$(II-30) \quad F_{cap} = \sum_{m,y} \left[\frac{h_x}{2} (h_{m+1,y} - h_{m,y})^2 + \frac{h_y}{2} (h_{m,y+1} - h_{m,y})^2 \right] + V_{loc}(T) \sum_{m,y} 2(1 - \cos(2p h_{m,y})),$$

où h_x (respectivement h_y) est la rigidité de la membrane dans la direction perpendiculaire aux marches (respectivement parallèle aux marches) et $V_{loc}(T)$ est un potentiel de localisation qui favorise les valeurs entières du déplacement des marches $h_{m,y}$. (Ce potentiel de localisation $V_{loc}(T)$ s'annule pour toute température supérieure ou égale à la température de transition rugueuse T_R).

En fonction des composantes de Fourier h_q , de grandes longueurs d'onde, du déplacement $h_{m,y}$ de la marche :

$$(II-31) \quad h_{m,y} = \frac{1}{\sqrt{N_x N_y}} \sum_{q_x < q_{xc}, q_y < q_{yc}} h_q \exp(i q_x m + i q_y y),$$

où q_{xc} et q_{yc} sont des fréquences de coupure, N_x et N_y sont respectivement le nombre de marches et le nombre de sites par marche, on obtient pour l'énergie libre (voir annexe II Eq. (9)) :

$$(II-32) \quad F_{cap} = \sum_{q_x < q_{xc}, q_y < q_{yc}} \left[h_x (1 - \cos(q_x)) + h_y (1 - \cos(q_y)) \right] |h_q|^2 + V_{loc}(T) \sum_{q_x < q_{xc}, q_y < q_{yc}} 4p^2 |h_q|^2.$$

Différentes méthodes sont utilisées pour traiter ces modèles. Pour le modèle discret décrit par l'hamiltonien (II-28) deux méthodes étaient précédemment utilisées : **l'équivalence avec un modèle de fermions** ou **les simulations Monte Carlo**. Une troisième méthode appelée **méthode du cylindre** sera appliquée ici pour la première fois au cas des faces vicinales. Elle permet de déterminer exactement l'énergie libre, la distribution des largeurs de terrasses et la fonction de corrélation dans la direction parallèle aux marches, et ce, quelle que soit la température du système et le potentiel considéré. Concernant le modèle capillaire, l'interprétation des résultats expérimentaux de la face Cu(1,1,5) nécessitant la connaissance des fonctions de corrélations au-dessus et en-dessous de T_R , le calculs de ces fonctions a été étendu sous T_R .

Nous aurons donc à notre disposition quatre approches permettant d'interpréter les résultats expérimentaux obtenus sur une surface vicinale :

- l'équivalence avec un modèle de fermions,
- les simulations Monte Carlo,
- la méthode du cylindre,
- le traitement du modèle capillaire.

II-C.2. Equivalence avec le modèle des fermions en interaction

II-C.2.1. Energie libre

Le comportement d'un ensemble de marches décrit par l'hamiltonien (II-28) est équivalent, du fait de la condition de non croisement, à l'évolution au cours du temps d'une assemblée de fermions en interaction sur une ligne. Cette équivalence obtenue initialement par P. G. De Gennes [16] dans le cas d'objets linéaires sans interaction est donnée dans l'annexe III pour un ensemble de marches en interaction.

Dans ce modèle de fermions, appelé également modèle de *Calogero-Sutherland* [17,18,19], l'hamiltonien s'écrit :

$$(II-33) \quad H = -\frac{\hbar^2}{2m} \sum_{i=1}^N \frac{\partial^2}{\partial x_i^2} + \sum_{i>j} \frac{g}{(x_i - x_j)^2} ,$$

avec x_i la position du fermion i et g la constante d'interaction.

Ce modèle est très important car il est exactement soluble, il permet donc de valider toute nouvelle méthode de résolution du système décrit par l'hamiltonien (II-28). Cependant, il faut noter qu'il existe une grande différence entre le modèle de Calogero-Sutherland et un système de marches : les positions des marches sont discrètes (sites atomiques) tandis que le modèle des fermions est continu. Sans sites discrets, le modèle des fermions ne présente pas de transition rugueuse pour une interaction répulsive. Il n'est a priori valable que pour $T > T_R$. Cette absence de sites introduira aussi un comportement radicalement différent dans le cas d'une interaction attractive. Ce cas fera l'objet du chapitre III-A.3. .

Le calcul de l'énergie d'une assemblée de fermions sans interaction ne pose pas de difficulté. Considérons N fermions disposés sur un anneau de circonférence $L=N.\ell_0$, ℓ_0 étant la distance moyenne entre fermions. Les fonctions d'ondes sont des ondes planes de vecteur d'onde :

$$(II-34) \quad k = n \frac{p}{N\ell_0} \quad \text{et d'énergie} \quad E(k) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} .$$

L'énergie du système par unité de longueur dans l'état fondamental s'écrit :

$$(II-35) \quad E_{fond} = \frac{1}{N\ell_0} \int_0^N E(n) dn$$

qui devient,

$$(II-36) \quad E_{fond} = \frac{1}{N\ell_0} \int_0^{k_F} \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \frac{N\ell_0}{p} dk$$

où $k_F = \frac{p}{\ell_0}$ est le vecteur d'onde associé au niveau de Fermi.

On obtient :

$$(II-37) \quad E_{fond} = \frac{p^2}{3\ell_0^3} \frac{\hbar^2}{2m} .$$

On retrouve bien la dépendance en $1/\ell_0^3$ de l'énergie libre d'interaction entre marches (cf. Eq. (II-29)).

La solution du problème de fermions en interaction est plus complexe. Elle a été obtenue par Sutherland [19]. Pour ceci, il considère le même système de N fermions disposés sur un anneau de circonférence $L=N.\ell_0$. Ces fermions interagissent via un potentiel périodique en $\frac{g}{r^2}$ de la forme [19] :

$$(II-38) \quad V(r) = g \sum_{n=-\infty}^{\infty} (r + nL)^{-2} = \frac{gp^2}{L^2} \left[\sin\left(\frac{pr}{L}\right) \right]^{-2} .$$

Pour un système suffisamment grand ($L \rightarrow \infty$) les termes additionnels correspondant à plus d'un tour d'anneau ($n \neq 0$) deviennent négligeables. Néanmoins, le traitement mathématique est considérablement simplifié en partant d'équations périodiques.

L'Hamiltonien du système périodique s'écrit :

$$(II-39) \quad H = -\frac{\hbar^2}{2m} \sum_{i=1}^N \frac{\partial^2}{\partial x_i^2} + \frac{gp^2}{L^2} \sum_{i>j} \left[\sin\left(\frac{p(x_i - x_j)}{L}\right) \right]^{-2}.$$

Sutherland a obtenu pour l'état fondamental associée à cet Hamiltonien, l'énergie par unité de longueur [19] :

$$(II-40) \quad E_f(N) = \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{1}{3} \frac{l^2 p^2}{\ell_0^3} - \frac{1}{3} \frac{l^2 p^2}{\ell_0^3} \frac{1}{N^2} \right).$$

où le paramètre l est relié à la constante d'interaction g par ($g \geq -1/2$) :

$$(II-41) \quad 2l(l-1) = g \quad \text{ou} \quad l = \frac{1}{2} [1 + \sqrt{1+2g}].$$

Dans l'article de Sutherland [19], le potentiel d'interaction périodique est incomplet : l'interaction entre un fermion et ses propres images après n tours d'anneau est manquante. Toutes les interactions qui doivent être prises en compte sont représentées schématiquement Figure II-5. L'expression (II-38) pour $r=0$ donne :

$$(II-42) \quad V(r=0) = \frac{1}{2} g \sum_{\substack{n=-\infty \\ n \neq 0}}^{\infty} (nL)^{-2} = g \sum_{n=1}^{\infty} (nL)^{-2} = \frac{p^2}{6} \frac{g}{L^2}.$$

Le facteur $1/2$ est nécessaire afin de ne compter qu'une seule fois l'interaction d'un fermion avec chacune de ses images.

L'énergie par site comprend donc le terme additionnel suivant :

$$(II-43) \quad \frac{\hbar^2}{2m} \frac{N}{L} \frac{p^2}{6} \frac{g}{L^2} = \frac{\hbar^2}{2m} \frac{p^2}{3} \frac{l(l-1)}{\ell_0 L^2}.$$

ce qui conduit pour l'énergie à :

$$(II-44) \quad E_f(N) = \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{1}{3} \frac{l^2 p^2}{\ell_0^3} - \frac{1}{3} \frac{l p^2}{\ell_0^3} \frac{1}{N^2} \right) .$$

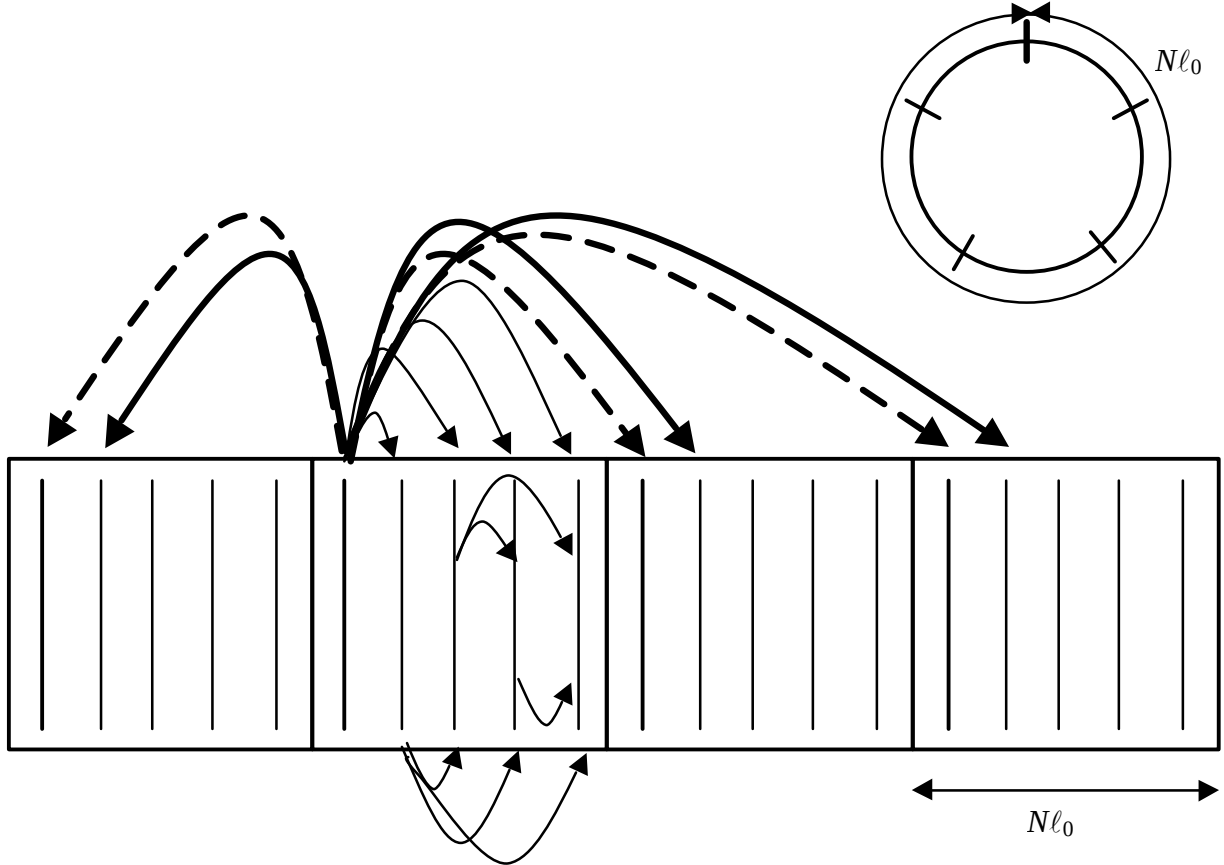


Figure II-5 : Représentation schématique des fermions en interaction : (—) interaction entre les fermions sur l'anneau; (???) exemple d'interaction entre un fermion de l'anneau et une image périodique d'un autre fermion. (? ?) interaction entre un fermion et son image périodique non comptabilisée dans la solution originale de Sutherland. La somme des interactions d'un fermion avec ses images périodiques doit être divisée par 2 afin de ne pas compter deux fois l'interaction. En haut à droite, représentation d'une coupe du cylindre de circonférence $N\ell_0$.

On voit que ce terme n'affecte pas l'énergie pour $N \rightarrow \infty$ mais modifie sa convergence en fonction de la taille du système. Bien que ce terme paraisse anodin, nous verrons par la suite qu'il est essentiel pour obtenir l'accord avec les autres approches (voir méthode du cylindre II-C.5).

L'équivalence avec le système de marches est obtenue en identifiant la rigidité du bord de marches $\tilde{b}(q=0, T) = k_B T / b^2(T)$ à la masse m des fermions, la direction le long des marches à un temps imaginaire découpé en intervalle $a_{//}$ et la température $k_B T$ à la constante

de Planck $\hbar$ (voir annexe III). Avec cette équivalence, l'énergie de l'état fondamental du système de fermions devient l'énergie libre d'interaction entre marches à la température T :

$$(II-45) \quad F_{\text{int_mar}}(T) = \frac{1}{3} \frac{(l_{\text{mar}})^2 p^2}{\ell_0^3} \frac{k_B T b^2(T)}{2} ,$$

avec

$$(II-46) \quad l_{\text{mar}} = \frac{1}{2} \left[1 + \sqrt{1 + \frac{4A}{k_B T b^2(T)}} \right] .$$

La solution n'est donc connue que dans le domaine $A \geq -\frac{k_B T b^2(T)}{4}$.

Par la suite on utilisera la notation :

$$(II-47) \quad F_{\text{int_mar}}(T) = \frac{d_{\text{mar}}(T)}{(\ell_0)^3} ,$$

où

$$(II-48) \quad d_{\text{mar}}(T) = \frac{p^2}{6} k_B T b^2(T) (l_{\text{mar}})^2 .$$

II-C.2.2. Distribution des largeurs de terrasses

Connaissant la solution exacte du modèle des fermions en interaction donnée par Sutherland [19], et les fonctions de corrélation à n corps obtenues pour trois valeurs particulières de l'interaction $g=-1/2$, 0 et 4 (Dyson [20]), Joós *et al.* [21] ont déterminé la distribution des largeurs de terrasses. Pour le système de marches, ces trois valeurs particulières de l'interaction deviennent :

$$(II-49) \quad A_{\text{Suth-}} = -\frac{1}{4} k_B T b^2(T), A=0, \text{ et } A_{\text{Suth+}} = 2k_B T b^2(T).$$

Joós *et al.* [21] ont montré que les distributions des largeurs de terrasses obtenues suivaient une loi d'échelle (voir Figure II-6) :

$$(II-50) \quad \ell_0 D_i(\ell) = f_i\left(\frac{\ell}{\ell_0}\right).$$

Les détails sur le calcul des distributions, sur la justification de ces trois valeurs particulières de l'interaction, ainsi que sur l'origine de la loi d'échelle sont explicités dans l'annexe IV.

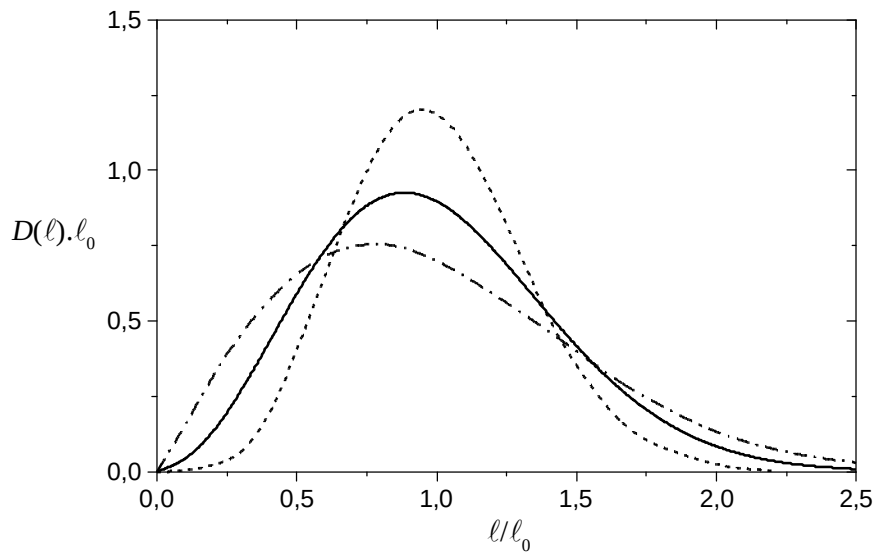


Figure II-6 : Distributions des largeurs de terrasses pour les trois valeurs de l'interaction : A_{Suth+} (---), $A=0$ (—) et A_{Suth-} (-·-·-·-). Joós *et al.* [21] ont montré que ces distributions suivent une loi d'échelle $\ell_0 D_\lambda(\ell) = f_\lambda(\ell/\ell_0)$.

Le modèle des fermions en interaction est un modèle de référence, car c'est une solution exacte. Il permet d'obtenir une expression pour l'énergie libre d'interaction entre marches et l'histogramme des largeurs de terrasses pour trois valeurs particulières de l'interaction.

Il faut cependant rappeler que ce modèle est un modèle continu, contrairement au système de marches cristallines. Nous verrons que cette différence conduit à des comportements contrastés dans le cas d'une interaction attractive.

II-C.3. Le modèle des ondes capillaires

Dans le cadre de ce modèle, décrit par l'expression (II-32) de l'énergie libre, on peut déterminer, en suivant la méthode de J. Villain *et al.* [14], les expressions analytiques des fonctions de corrélation dans les directions perpendiculaire et parallèle aux bords de marches (Les détails des calculs sont précisés dans l'annexe II). On obtient pour $G(m,0)$ et $G(0,y)$:

$$(II-51) \quad G(m,0) = \frac{4k_B T}{(2p)^2} \int_0^p \int_0^p \frac{1 - \cos(q_x m)}{h_x (1 - \cos(q_x)) + h_y (1 - \cos(q_y)) + 4p^2 V_{loc}(T)} dq_x dq_y$$

$$= \frac{k_B T}{p} \int_0^p \frac{1 - \cos(q_x m)}{\sqrt{h_x (1 - \cos(q_x)) + 4p^2 V_{loc}(T)} \sqrt{2h_y + h_x (1 - \cos(q_x)) + 4p^2 V_{loc}(T)}} dq_x$$

$$(II-52) \quad G(0,y) = \frac{4k_B T}{(2p)^2} \int_0^p \int_0^p \frac{1 - \cos(q_y y)}{h_x (1 - \cos(q_x)) + h_y (1 - \cos(q_y)) + 4p^2 V_{loc}(T)} dq_x dq_y$$

$$= \frac{k_B T}{p} \int_0^p \frac{1 - \cos(q_y y)}{\sqrt{h_y (1 - \cos(q_y)) + 4p^2 V_{loc}(T)} \sqrt{2h_x + h_y (1 - \cos(q_y)) + 4p^2 V_{loc}(T)}} dq_y$$

L'évaluation numérique de ces intégrales d'une fonction régulière ne pose pas de difficultés particulières.

Le modèle capillaire est un modèle continu, il ne tient pas compte de la structure microscopique de la surface, qui est considérée comme une membrane. Ce modèle paraît donc plus approprié pour les surfaces ayant une distance moyenne entre marches ℓ_0 grande. Néanmoins, comme nous le verrons par la suite dans le cas du Cu(1,1,5) ($\ell_0=2.5$), les résultats obtenus avec ce modèle pour les petits ℓ_0 restent très satisfaisants.

Les expressions (II-51) et (II-52) sont valables aussi bien au-dessus qu'en-dessous de T_R , mais le comportement des fonctions de corrélation est singulièrement différent suivant que la surface est rugueuse ou non. Il est nécessaire, à présent, de préciser les propriétés des fonctions de corrélation ainsi que les expressions des rigidités de surface h_x et h_y suivant le domaine de température ($T < T_R$ et $T > T_R$) dans lequel on se place.

II-C.3.1. Cas rugueux ($T^3 T_R$)

Dans le cas d'une surface rugueuse le potentiel de localisation $V_{loc}(T)$ est nul, l'expression (II-32) se réduit alors à :

$$(II-53) \quad F_{cap} = \sum_{q_x < q_{xc}, q_y < q_{yc}} \left[h_x (1 - \cos(q_x)) + h_y (1 - \cos(q_y)) \right] |h_q|^2, \quad ,$$

de même $G(m,0)$ et $G(0,y)$ deviennent :

$$(II-54) \quad G(m,0) = \frac{k_B T}{p} \int_0^p \frac{1 - \cos(q_x m)}{\sqrt{h_x (1 - \cos(q_x))} \sqrt{2h_y + h_x (1 - \cos(q_x))}} dq_x$$

$$(II-55) \quad G(0,y) = \frac{k_B T}{p} \int_0^p \frac{1 - \cos(q_y y)}{\sqrt{h_y (1 - \cos(q_y))} \sqrt{2h_x + h_y (1 - \cos(q_y))}} dq_y .$$

Les rigidités de surface h_x et h_y ont été déterminées par L. Barbier *et al.* [6] dans le cas d'une surface rugueuse :

$$(II-56) \quad h_x = \frac{6F_{int}(q_0, T)}{(\ell_0)^4}$$

$$(II-57) \quad h_y = [\tilde{b}(q_0, T)] \cos^3(q_0) + \frac{1}{(\ell_0)^2} \frac{d^2 F_{int}(q_0, T)}{d(\tan q)^2}$$

h_x et le second terme de h_y dépendent de l'énergie libre d'interaction $F_{int}(q_0, T)$. Ce terme comprend à la fois la répulsion entropique (condition de non croisement entre les marches) et l'interaction entre marches de type élastique. Ces deux interactions ne s'ajoutent pas linéairement. On peut utiliser comme expression analytique pour l'énergie d'interaction totale, celle donnée par Sutherland [19] (voir chapitre II-C.2)

$$(II-58) \quad F_{int}(q, T) = d_{mar}(q, T) = \frac{p^2}{6} k_B T b^2(q, T) (l_{mar})^2, \quad ,$$

avec

$$l_{mar} = \frac{1}{2} \left[1 + \sqrt{1 + \frac{4A}{k_B T b^2(q, T)}} \right] .$$

Il apparaît clairement dans ces expressions que la dépendance en q et T provient de $b^2(q, T)$. Pour $q=0$, $b^2(q, T)$ est déterminée par l'expression (II-6), tandis que pour $q \neq 0$, il est nécessaire d'utiliser l'expression donnée par Barbier *et al.* [6]. Connaissant $b^2(q, T)$, les expressions (II-7) et (II-58) de $\tilde{b}(q, T)$ et de $F_{\text{int}}(q, T)$, les rigidités de surface h_x et h_y peuvent être obtenues par les équations (II-56) et (II-57).

Ces expressions analytiques des rigidités obtenues à l'aide du modèle des fermions auront les mêmes caractéristiques que celui-ci : elles ne sont valables que pour $T^3 T_R$ et pour une interaction $A \geq -\frac{k_B T b^2(T)}{4}$.

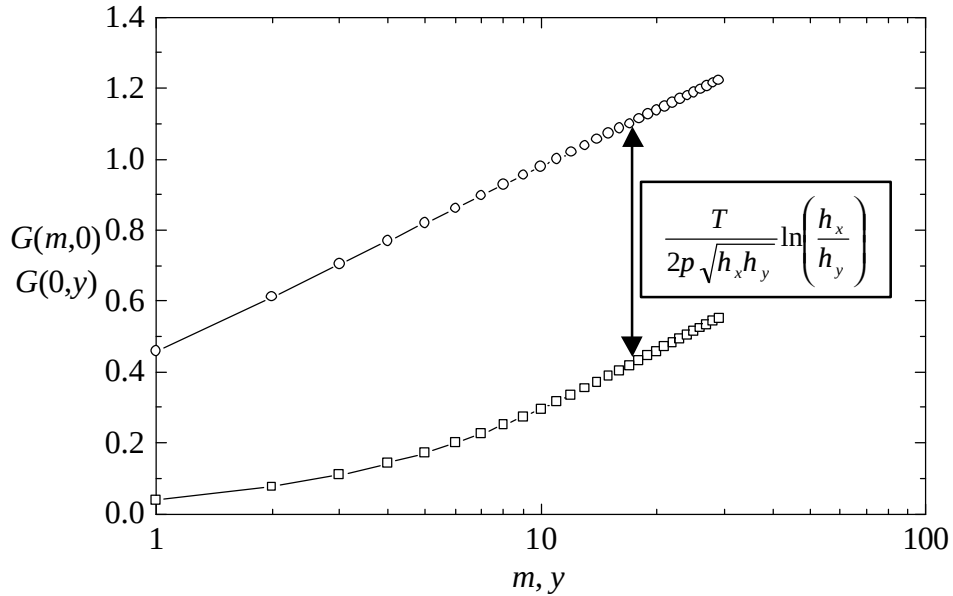


Figure II-7 : Fonctions de corrélation dans le cadre du modèle capillaire pour $\ell_0=2.5$ (face Cu(1,1,5)), $E_k=1430$ K, $A=70$ K et $T=400$ K ($>T_R=340$ K). (o) $G(m,0)$ Eq. (II-54), (?) $G(0,y)$ Eq. (II-55).

Les intégrales (II-54) et (II-55) peuvent, à présent, être calculées numériquement. On obtient (voir Figure II-7) pour $G(0, y)$ un comportement linéaire aux courtes distances. On

* Il n'existe pas non plus de solution analytique dans le cas d'une interaction limitée aux marches premières voisines.

note que la pente initiale, égale à la diffusivité d'une marche sur la surface $G(0,1) = \langle (h_{0,1} - h_{0,0})^2 \rangle$, dépend de l'interaction entre marches. Dans le cas des surfaces très anisotropes ($h_y \gg h_x$), $G(0,1)$ se réduit simplement à :

$$(II-59) \quad G(0,1) = \frac{k_B T}{h_y} .$$

Pour les grandes valeurs de y , on retrouve le comportement logarithmique attendu pour une surface rugueuse et la différence entre les fonctions de corrélation dans les deux directions peut s'écrire [6] :

$$(II-60) \quad G(0, y = m) - G(m, 0) = \frac{T}{2p \sqrt{h_x h_y}} \ln \left(\frac{h_x}{h_y} \right) .$$

De plus, pour les surfaces très anisotropes ($h_y \gg h_x$), $G(m, 0)$ se réduit à [6] :

$$(II-61) \quad G(m, 0) = \frac{T}{p \sqrt{h_x h_y}} [\ln(m) + 2] \quad \text{pour } m > 0 \quad \text{et} \quad G(0, 0) = 0 ,$$

soit :

$$(II-62) \quad G(m, 0) = \frac{G(1, 0)}{2} [\ln(m) + 2]$$

Cette formule montre que la connaissance du premier point de la fonction de corrélation détermine toute la courbe et que le préfacteur du logarithme est la moitié de la variance des largeurs de terrasses : $G(1, 0) = \langle (h_{1,0} - h_{0,0})^2 \rangle$. Ce dernier point est un critère important pour savoir si les fluctuations des marches observées sur les images STM sont des fluctuations thermiques ou non [6,22].

A la température de transition rugueuse T_R , le préfacteur des fonctions de corrélation est universel et égal à $\frac{2}{p^2}$, donc [14] :

$$(II-63) \quad \frac{k_B T_R}{p \sqrt{h_x(T_R) h_y(T_R)}} = \frac{2}{p^2}$$

Pour des interactions de type élastiques et des rigidités de surfaces telles que ($h_y \gg h_x$), le second terme $\left(\frac{1}{(\ell_0)^2} \frac{d^2 F_{\text{int}}(q_0, T)}{d(\tan q)^2} \right)$ dans h_y peut être négligé, alors l'équation (II-63) se réécrit en tenant compte des équations (II-56) et (II-57) :

$$(II-64) \quad b^2(q_0, E_k, T_R) k_B T_R = \frac{4A}{\left((\ell_0)^2 - 1 \right)^2 - 1}.$$

Cette équation permet d'estimer la température de transition rugueuse pour un système de marches. Pour les petites distances moyennes entre marches ou pour des interactions fortes, il est nécessaire de résoudre numériquement l'équation (II-63).

Le modèle capillaire, associé au calcul des rigidités de surface dérivant du modèle des fermions, permet donc de déterminer les fonctions de corrélation dans les directions parallèle et perpendiculaire aux bords de marches pour une surface rugueuse, quelle que soit la distance moyenne entre marches ℓ_0 .

II-C.3.2. Cas non rugueux ($T < T_R$)

Pour les besoins de l'interprétation des expériences sur Cu(1,1,5), j'ai étendu le calcul précédent au cas d'une surface non rugueuse. Le potentiel de localisation $V_{loc}(T)$ est maintenant non nul. L'énergie libre et les fonctions de corrélation dans les directions parallèle et perpendiculaire aux marches sont données respectivement par les équations (II-32), (II-51) et (II-52). Pour ($T < T_R$), le modèle des fermions n'est plus valable, les rigidités de surface ne sont plus déterminées par les expressions (II-56) et (II-57). Il n'existe pas, à ma connaissance, d'expression analytique pour les rigidités de surface dans cette gamme de température.

Il apparaît clairement dans les équations (II-51) et (II-52) que la présence du potentiel de localisation V_{loc} détruit la divergence due aux courtes longueurs d'onde et supprime donc la divergence logarithmique. Ceci s'observe très bien sur la Figure II-8, où sont représentées les fonctions de corrélation calculées à $T=400$ K en utilisant les équations (II-54) et (II-55) (valable pour $T \geq T_R$) et les équations (II-51) et (II-52) (valables pour $T < T_R$) pour $A=180$ K et $E_k=1390$ K, le potentiel de localisation étant fixé arbitrairement à 1 K. Dans les deux cas, les rigidités de surface sont déterminées à partir des expressions (II-56) et (II-57).

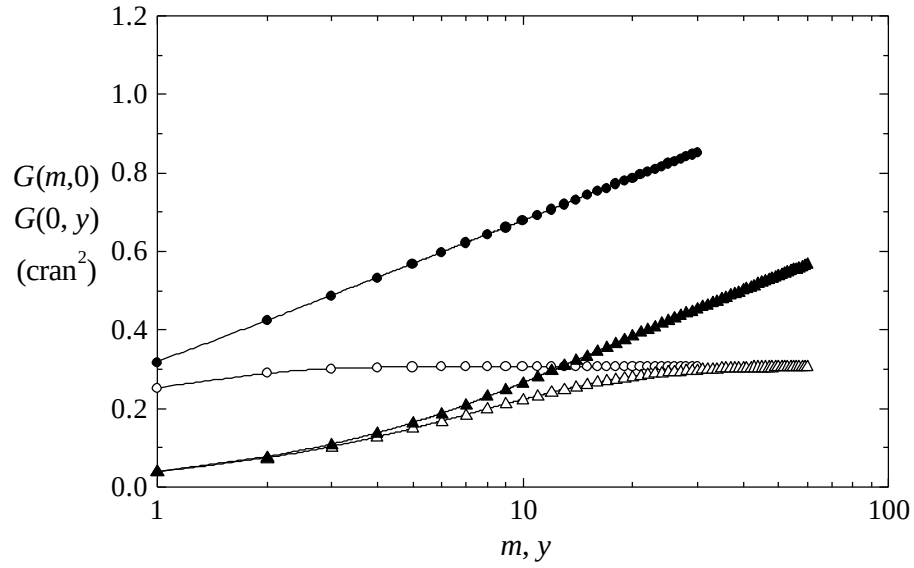


Figure II-8 : suppression de la divergence logarithmique pour $V_{loc} \neq 0$.
 (?) et (?) fonctions de corrélation obtenues pour $V_{loc}=0$ ((II-54) et (II-55)).
 (?) et (?) fonctions de corrélation obtenues pour $V_{loc} \neq 0$ ((II-51) et (II-52)).
 Pour ces deux calculs les rigidités de surfaces $h_x=66.5$ K et $h_y=9654.8$ K sont déterminées à l'aide des expressions (II-56) et (II-57) ($T=400$ K, $A=180$ K, $E_k=1390$ K et V_{loc} choisi arbitrairement à 1 K).

Pour des surfaces très anisotropes ($h_y \gg h_x$), $G(0,1)$ se réduit simplement à :

$$(II-65) \quad G(0,1) = \frac{k_B T}{h_y} \left[1 - \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{2h_y}{h_x + 4p^2 V_{loc}}}} \right].$$

Le terme entre crochet étant très proche de l'unité, cette égalité montre que l'équation (II-59) est encore valide sous T_R et que h_y est simplement relié à $G(0,1)$.

De même pour ($h_y \gg h_x$), $G(1,0)$ se simplifie en :

$$(II-66) \quad G(1,0) = \frac{45}{64} \frac{k_B T}{\sqrt{h_y (h_x + 2p^2 V_{loc})}} \left[1 - \frac{4}{45} \frac{(11h_x + 13p^2 V_{loc}) p^2 V_{loc}}{(h_x + 2p^2 V_{loc})^2} \right]$$

Les fonctions de corrélation saturent toutes les deux à la même valeur donnée par :

$$(II-67) \quad G(0, y \rightarrow \infty) = G(m \rightarrow \infty, 0) = \frac{k_B T}{\sqrt{2h_y(h_x + 4p^2 V_{loc})}} .$$

Les trois paramètres h_x , h_y et V_{loc} peuvent a priori être déterminés à partir de la mesure de $G(1,0)$, $G(0,1)$ et de la valeur asymptotique des fonctions de corrélation. Cependant pour $T < T_R$, il est difficile de fixer la valeur de trois paramètres sur des fonctions de corrélations relativement plates. Seule une étude en température permet de déterminer une solution unique. Ce modèle ne nous permettra pas d'en déduire les paramètres A et E_k , les relations analytiques entre A , E_k et h_x , h_y n'étant connues que dans le cas d'une surface rugueuse. Ces paramètres pourront être déterminés par un calcul Monte Carlo ou la méthode du cylindre qui sont présentés ci-dessous.

II-C.4. La simulation Monte Carlo

II-C.4.1. Généralités

La simulation Monte Carlo [23,24,25] est une méthode numérique permettant de calculer des intégrales, en particulier des intégrales multiples, en ne considérant qu'un ensemble fini de configurations tirées aléatoirement dans l'espace des phases.

En physique statistique, la moyenne thermodynamique dans l'ensemble canonique d'une grandeur B est donnée par :

$$(II-68) \quad \langle B \rangle = \frac{1}{Z} \int B e^{-\frac{H(w)}{k_B T}} dw$$

où $H(w)$ est l'hamiltonien de la configuration w et Z est la fonction de partition du système.

L'intégrale portant sur tout le système peut être estimée en sommant les contributions de n configurations w_i tirées aléatoirement, on a alors :

$$(II-69) \quad \langle B \rangle = \frac{\sum_{i=1}^n B(w_i) f(w_i)}{\sum_{i=1}^n f(w_i)}$$

avec
$$f(w_i) = e^{-\frac{H(w_i)}{k_B T}} .$$

L'espace des phases étant en général multidimensionnel, le nombre de configurations nécessaire n pour obtenir une bonne estimation de la valeur moyenne est très grand. Cependant, toutes les configurations n'ont pas le même poids dans l'intégrale. Seules les configurations ayant un facteur de Boltzmann non négligeable seront à prendre en compte. Une façon de rendre accessible le calcul de l'intégrale est de choisir les configurations avec une probabilité $P(w_i)$: c'est ce que l'on appelle ***l'échantillonnage par l'importance***.

En choisissant la probabilité donnée par la distribution à l'équilibre, soit :

$$(II-70) \quad P(w) = \frac{f(w)}{Z} ,$$

la valeur moyenne de B se réduit à :

$$(II-71) \quad \langle B \rangle = \frac{\sum_{i=1}^n B(w_i)}{n} .$$

A ce stade il est nécessaire d'avoir un algorithme permettant de générer des états distribués selon $P(w)$ sans avoir à calculer Z . C'est le rôle de l'algorithme de ***Métropolis***. En 1953, Métropolis *et al.* [26] ont introduit l'idée qu'un système thermodynamique simulé devait passer d'une configuration d'énergie $H(w_0)$ à une configuration d'énergie $H(w_1)$ avec la probabilité :

$$(II-72) \quad P(w_1, w_0) = e^{-\frac{(H(w_1) - H(w_0))}{k_B T}} .$$

On peut noter que si $H(w_1) < H(w_0)$, cette probabilité est supérieure à l'unité, dans ce cas la probabilité $P(w_1, w_0)$ est posée égale à 1, c'est-à-dire que le système choisit toujours cette option. Pour obtenir la valeur moyenne, il suffit de choisir une configuration initiale, souvent correspondant à l'état du système à température nulle, d'appliquer l'algorithme de Métropolis et d'utiliser les configurations ainsi obtenues une fois l'équilibre atteint. Le critère d'équilibre doit être choisi en fonction du système étudié.

La méthode Monte Carlo peut être considérée comme une méthode de calcul de valeur moyenne ou d'intégrale (cf. Eq (II-68)), mais elle peut aussi être considérée comme une méthode de simulation de systèmes physiques. En effet, en construisant par l'algorithme de Métropolis des configurations distribuées selon $P(\omega)$, on génère des configurations réelles sur lesquelles s'appuie le calcul des valeurs moyennes. Générer ces configurations revient à simuler numériquement le système thermodynamique étudié. Dans notre cas, il s'agira d'images de la surface telles que celles présentées au chapitre I-D.2. .

II-C.4.2. Cas des surfaces vicinales

La méthode Monte Carlo permet de simuler numériquement une surface connaissant son hamiltonien. L'hamiltonien utilisé ici est donné par l'expression (II-28). L'interaction entre marches est limitée aux marches premières voisines (du fait des contraintes imposées par la vectorisation du programme). Le potentiel peut prendre n'importe quelle forme, nous avons utilisé ici un potentiel d'interaction de type élastique en $\frac{A}{\ell^2}$.

La TWD et les fonctions de corrélation sont calculées, seule l'énergie libre n'est pas accessible par cette méthode car la fonction de partition n'est pas déterminée (c'est tout l'intérêt de l'algorithme de Métropolis).

Le système utilisé pour les simulations est formé de N_m marches comportant chacune N_s sites. Des conditions aux limites périodiques sont imposées dans les deux directions : $h_{N_m+1,y} = h_{1,y}$ et $h_{m,N_s+1} = h_{m,1}$. La configuration initiale est constituée de marches droites séparées par la distance moyenne ℓ_0 (état du système à température nulle).

L'algorithme Monte Carlo sur chaque site (m, y) de la configuration se déroule de la façon suivante :

1. Soit la position de départ $h_{m,y}$.
2. Un premier tirage aléatoire définit une nouvelle position possible $h'_{m,y}$ du site : soit la marche forme un cran simple (positif ou négatif), soit elle reste à la même position.
3. Calcul de la probabilité de transition $P(h'_{m,y}, h_{m,y})$.

4. La nouvelle position est acceptée ou refusée suivant l'algorithme de Métropolis :

a/ si $P(h'_{m,y}, h_{m,y}) = 1$ la nouvelle configuration est conservée.

b/ si $P(h'_{m,y}, h_{m,y}) < 1$ on tire un nombre aléatoire $0 < R < 1$ avec une distribution uniforme et si $R < P(h'_{m,y}, h_{m,y})$ la nouvelle position $h'_{m,y}$ est retenue, dans le cas contraire la configuration initiale $h_{m,y}$ est conservée.

Cet algorithme est appliqué à tous les sites de la surface, ce qui définit un "***pas***" Monte Carlo. Dix pas Monte Carlo séparent deux ***configurations*** prises en compte dans l'estimation des valeurs moyennes.

Pour notre problème, l'état initial est le réseau parfait de marches associé à la température nulle. La TWD et les fonctions de corrélation ne sont mesurées que sur les configurations à l'équilibre thermodynamique à la température T . Ceci revient à ne pas tenir compte des configurations correspondant à la transition entre le réseau régulier initial et le réseau à l'équilibre thermodynamique. Afin de savoir à partir de quelle configuration la valeur moyenne peut être calculée, il faut étudier l'évolution des fonctions de corrélation au cours du calcul.

La Figure II-9 et la Figure II-10 montrent l'évolution de $G(m=1)$, $G(m=11)$ et $G(y=1)$, $G(y=11)$ en fonction du nombre de configurations $nconf$ construites depuis la configuration initiale. On observe que dans la direction m (cf. Figure II-9) l'équilibre est atteint après 200 configurations Monte Carlo pour $G(m=1)$ et 3500 configurations pour $G(m=11)$. Dans la direction y (cf. Figure II-10) la convergence est rapide aussi bien à longue qu'à courte distance (40 configurations pour $G(y=1)$ et $G(y=11)$). Dans la pratique, pour accélérer la convergence, on prend comme configuration initiale la dernière configuration d'une simulation précédemment réalisée.

Il faut associer aux fonctions de corrélation et à la distribution des largeurs de terrasses obtenues en faisant la moyenne sur des configurations à l'équilibre thermodynamique un intervalle de confiance ou erreur. En toute rigueur, cet intervalle devrait être obtenu en calculant l'écart quadratique moyen sur un grand nombre de calculs Monte Carlo identiques. Afin de limiter les calculs, l'écart quadratique moyen est plus simplement déterminé sur nv valeurs moyennes partielles calculées chacune sur un ensemble de nc configurations distinctes (cf. Figure II-11).

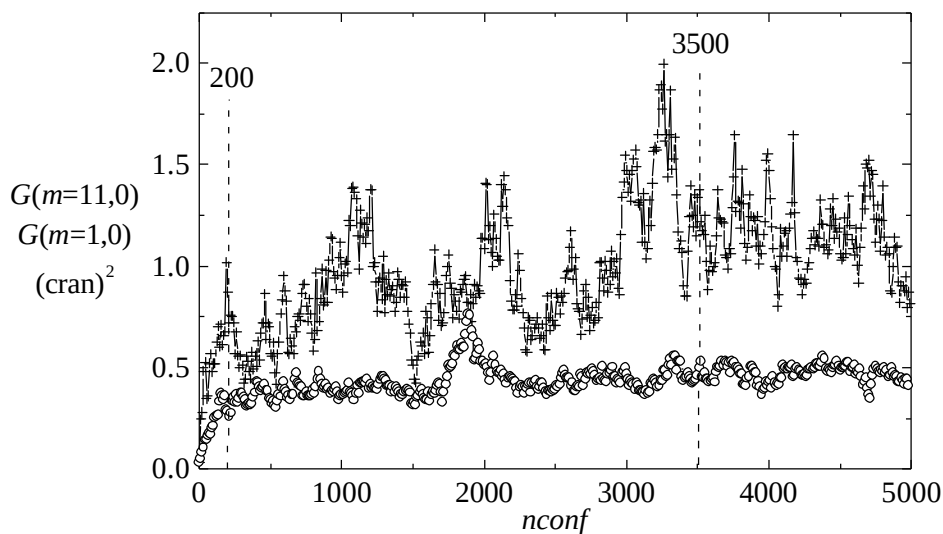


Figure II-9 : Evolution de la fonction de corrélation $G(m,0)$ en $m=1$ (○) et $m=11$ (+) en fonction du nombre de configurations $nconf$ générées à partir de l'état initial. Calcul réalisé sur un système de 76 marches $\times$ 1300 sites, $T=300$ K, $E_k=1430$ K, $A=70$ K et $\ell_0=2.5$.

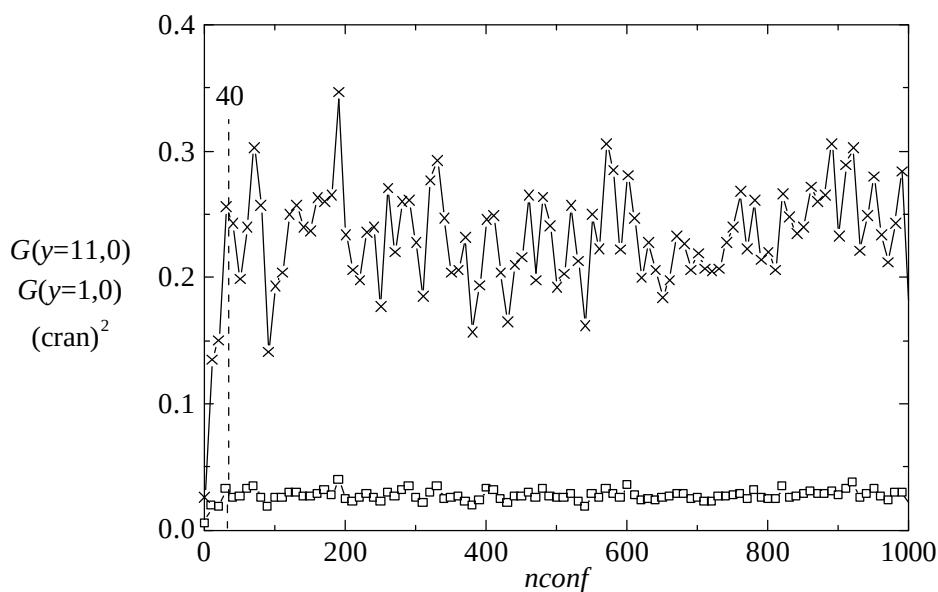


Figure II-10 : Evolution de la fonction de corrélation $G(0,y)$ en $y=1$ (○) et $y=11$ (×) en fonction du nombre de configurations $nconf$ générées à partir de l'état initial. Calcul réalisé sur un système de 76 marches $\times$ 1300 sites, $T=300$ K, $E_k=1430$ K, $A=70$ K et $\ell_0=2.5$.

Le choix de la taille du système utilisé (le nombre de marches et le nombre de sites sur chaque marche) a été guidé par l'observation de deux effets :

- Les fonctions de corrélation ne peuvent être obtenues que pour des distances (m ou y) inférieures à la moitié de la taille du système du fait des conditions aux limites périodiques ($G(m=N_m+1)=0$ et $G(y=N_s+1)=0$).
- La fonction de corrélation dans la direction m révèle un comportement linéaire pour une longueur insuffisante des marches. Ceci est dû au nombre insuffisant de collisions entre marches qui conduit au comportement d'un ensemble de marches isolées [27].

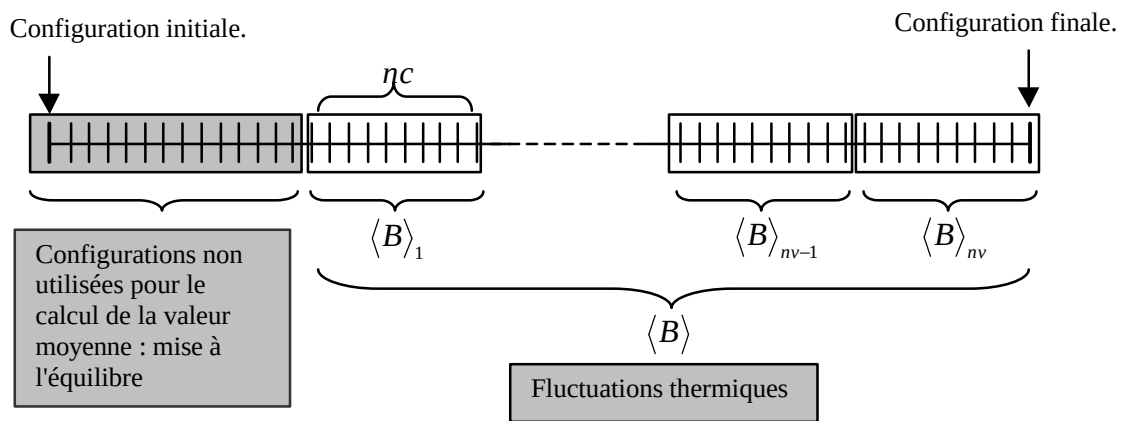


Figure II-11 : Schéma du calcul d'erreur sur la simulation Monte Carlo. Les traits verticaux symbolisent les configurations. La valeur moyenne de la grandeur B (qui peut être un point de la TWD ou des fonctions de corrélation) est calculée sur toutes les configurations à l'équilibre. Les valeurs moyennes partielles $\langle B \rangle_i$ sont, quant à elles, déterminées sur nv intervalles comportant chacun nc configurations à l'équilibre.

Les simulations Monte Carlo permettent de déterminer la distribution des largeurs de terrasses et les fonctions de corrélation parallèlement et perpendiculairement à la direction des marches quelle que soit la température du système. Elles permettent donc de déterminer A et E_k en les ajustant sur les fonctions de corrélation mesurées sur les images STM. De plus, les configurations générées peuvent être directement comparées aux images STM obtenues.

II-C.5. La méthode du cylindre

II-C.5.1. Introduction

Le modèle défini par l'hamiltonien (II-28) peut être résolu par la méthode du cylindre qui est une méthode de matrice de transfert. Cette méthode est appliquée ici pour la première fois au cas des surfaces vicinales [28]. Elle a été utilisée précédemment pour étudier de nombreux systèmes car elle apparaît être le meilleur moyen de déterminer l'énergie libre (voir M. den Nijs *et al* [29], J. M. Luck *et al* [30] ou H. J. Schulz [13]). En plus de l'énergie libre, la distribution des largeurs de terrasses et la fonction de corrélation dans la direction parallèle aux marches $G(0, y)$ peuvent être obtenues.

Cette méthode est une généralisation à plusieurs marches de celle présentée au chapitre II-B.3.3. . Dans une première étape on considère un système constitué d'un petit nombre de marches N de longueur infinie puis, afin d'obtenir les résultats pour une surface infinie, on étudie la convergence en fonction de N ($N \rightarrow \infty$).

II-C.5.2. Présentation de la méthode

Le système initial se compose de N marches de longueur infinie placées sur un cylindre. Dans la direction des marches tous les sites sont équivalents. Dans la direction perpendiculaire, les marches sont séparées en moyenne par ℓ_0 sites et respectent la condition de non croisement. Des conditions aux limites périodiques sont appliquées parallèlement et perpendiculairement à la direction des marches. Le système complet forme un tore qui tend vers un cylindre pour des marches de longueur infinie (voir Figure II-12). La méthode est applicable pour toute forme de potentiel.

La position par rapport à sa position d'équilibre de la marche m sur le site y est notée $h_{m,y}$. Sur chaque site y , une même marche est prise comme **marche de référence** ($m=0$) et est utilisée comme limite périodique. C'est à partir de sa position que sont référencées les positions des autres marches distribuées sur les $N\ell_0-1$ sites restants.

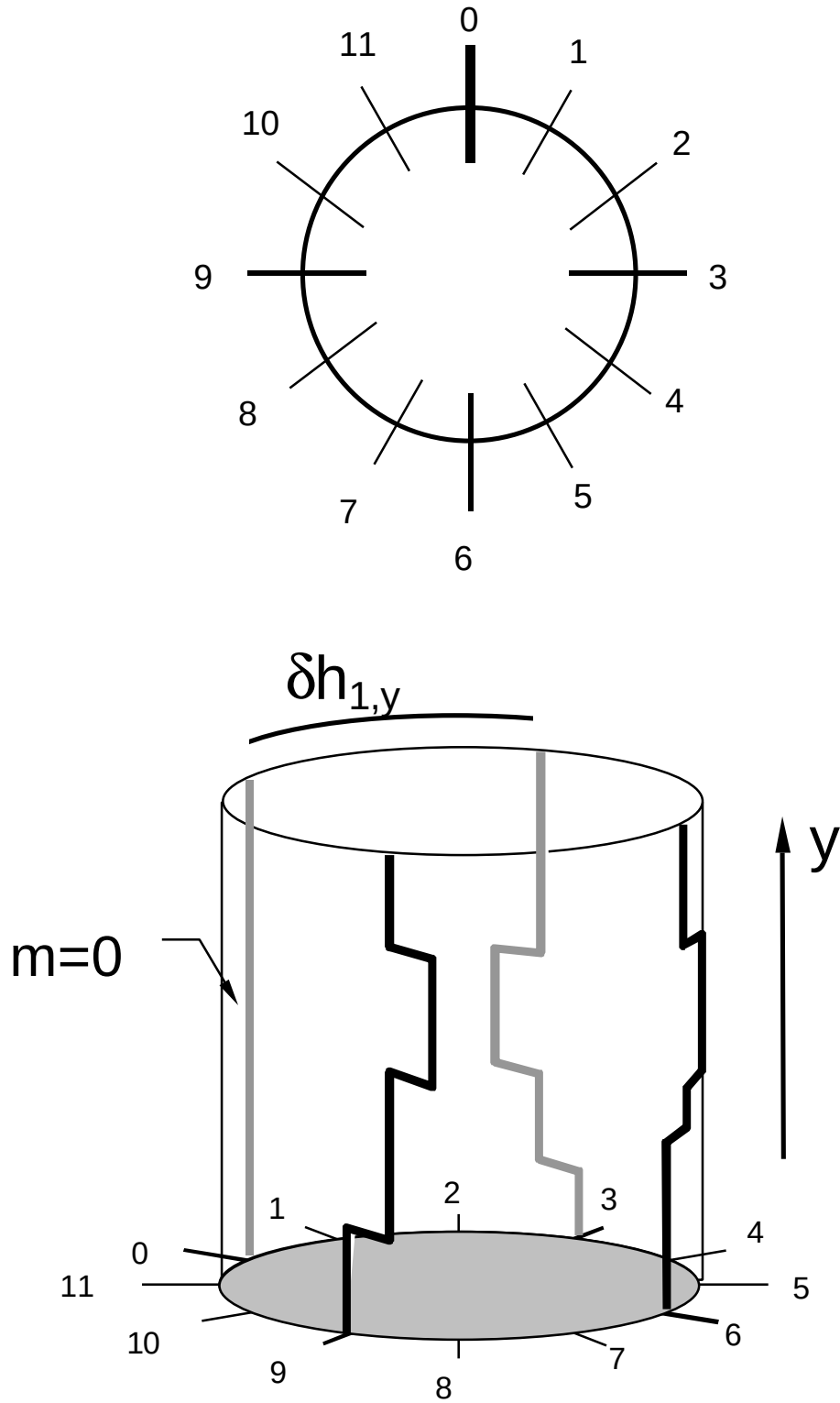


Figure II-12 : Schéma d'un cylindre constitué de $N=4$ marches, $\ell_0=3$. A chaque site y les marches sont localisées par leur position relative $|\Delta h_y\rangle = \{dh_{1,y}, dh_{2,y}, \dots, dh_{N-1,y}\}$ par rapport à la marche de référence. La marche $m=0$ forme des crans mais elle est prise comme origine pour chaque site y .

Une configuration des marches sur un site (pour laquelle on utilisera la notation bracket) est décrite par l'ensemble de ces distances relatives $dh_{m,y} = h_{m,y} + m\ell_0 - h_{0,y}$:

$$(II-73) \quad \begin{aligned} |\Delta h_y\rangle &= \{(h_{1,y} + \ell_0 - h_{0,y}), (h_{2,y} + 2\ell_0 - h_{0,y}), \dots, (h_{N-1,y} + (N-1)\ell_0 - h_{0,y})\} \\ &= \{dh_{1,y}, dh_{2,y}, \dots, dh_{N-1,y}\} \end{aligned}$$

Pour chaque site y , le nombre total N_C de configurations $|\Delta h\rangle$ est donné par :

$$(II-74) \quad N_C = \frac{(N\ell_0 - 1)!}{(N-1)!(N\ell_0 - N)!}.$$

Nombre de marches N	Nombre de configurations N_C					
	Distance moyenne entre marches ℓ_0					
	2	3	4	5	6	7
2	3	5	7	9	11	13
3	10	28	55	91	136	190
4	35	165	455	969	1771	2925
5	126	1001	3876	10626	23751	46376
6	462	6188	33649	118755	324632	749398

Table 1 : nombre de configurations possibles N_C pour un nombre de marches N et une distance moyenne entre marches ℓ_0 donnés. Dans la pratique on se limite à $N_C < 4000$.

Le nombre de configurations N_C croît très rapidement avec N et ℓ_0 comme le montre la Table 1. En pratique, des calculs comportant jusqu'à trois à quatre mille configurations sont réalisables sur un PC ou une station de travail. De plus, comme nous le verrons ultérieurement lors de l'étude de la convergence, les calculs avec $N=2, 3$ et 4 sont suffisants pour déterminer le comportement d'un système infini de marches.

II-C.5.3. Fonction de partition, énergie libre

Calcul de l'énergie libre

L'énergie d'un ensemble de N marches constituées chacune de N_s sites est donnée par :

$$(II-75) \quad H = \sum_{y=0}^{N_s-1} H(y)$$

avec

$$(II-76) \quad H(y) = \sum_{m=0}^{N-1} \left[\left| h_{m,y+1} - h_{m,y} \right| E_k + \sum_{m' > m} V_{\text{sym}}(dh_{m',y+1}, dh_{m,y+1}, dh_{m',y}, dh_{m,y}) \right]$$

où le deuxième terme est le potentiel d'interaction symétrisé :

$$(II-77) \quad V_{\text{sym}}(dh_{m',y+1}, dh_{m,y+1}, dh_{m',y}, dh_{m,y}) = \frac{V(dh_{m',y+1} - dh_{m,y+1}) + V(dh_{m',y} - dh_{m,y})}{2}.$$

La fonction de partition du système s'écrit en tenant compte des conditions aux limites périodiques ($h_{N_s} = h_0$) :

$$(II-78) \quad Z = \sum_{\Delta h_0, \Delta h_1, \dots, \Delta h_{N_s-1}} \langle \Delta h_0 | \hat{T} | \Delta h_1 \rangle \langle \Delta h_1 | \hat{T} | \Delta h_2 \rangle \dots \langle \Delta h_{N_s-1} | \hat{T} | \Delta h_0 \rangle$$

avec $\hat{T}$ la **matrice de transfert** dont les éléments sont définis par,

$$(II-79) \quad \langle \Delta h' | \hat{T} | \Delta h \rangle = \langle \Delta h' | \sum_{n=0, \pm 1, \pm 2, \dots} e^{-\frac{dH_n(y)}{k_B T}} | \Delta h \rangle,$$

où l'énergie $dH_n(y)$ associée au déplacement $\P h_{0,y+1} = h_{0,y+1} - h_{0,y} = n$ de la marche de référence s'écrit :

$$(II-80) \quad dH_n(y) = |n| E_k + \sum_{m=1}^{N-1} \left[\left| dh_{m,y+1} - dh_{m,y} + n \right| E_k + \sum_{m' > m} V(dh_{m',y+1}, dh_{m,y+1}, dh_{m',y}, dh_{m,y}) \right].$$

La matrice $\hat{T}$ apparaît comme la somme de plusieurs matrices $\hat{T}_n$ associées chacune à une valeur de la taille n des crans de la marche de référence :

$$(II-81) \quad \langle \Delta h' | \hat{T} | \Delta h \rangle = \sum_{n=0, \pm 1, \pm 2, \dots} \langle \Delta h' | \hat{T}_n | \Delta h \rangle = \sum_{n=0, \pm 1, \pm 2, \dots} \langle \Delta h' | e^{-\frac{dH_n(y)}{k_B T}} | \Delta h \rangle.$$

Pour des marches de longueur infinie ($Ns \rightarrow \infty$) Z devient, en utilisant la valeur propre maximale $\Lambda_{\max}$ de $\hat{T}$ (voir Eq. 33 annexe I),

$$(II-82) \quad Z = \lim_{Ns \rightarrow \infty} (\Lambda_{\max})^{Ns}$$

et l'énergie libre par site et par unité d'aire projetée sur le plan des terrasses s'écrit :

$$(II-83) \quad F_{\text{mar}}(N, T) = -\frac{k_B T}{N \ell_0} \ln(\Lambda_{\max}).$$

On obtient ainsi l'énergie libre d'un ensemble de N marches de longueur infinie. L'énergie libre à la limite thermodynamique est déduite par extrapolation pour $N \rightarrow \infty$.

Convergence de l'énergie libre

L'étude de la convergence de l'énergie libre en fonction du nombre N de marches a pour objectif la détermination d'une loi (analyse FSS : Finite Size Scaling) permettant d'extrapoler les résultats pour $N \rightarrow \infty$. Cette analyse est indispensable dans l'étude des systèmes critiques qui présentent une longueur de corrélation des fluctuations infinie [31,32,33].

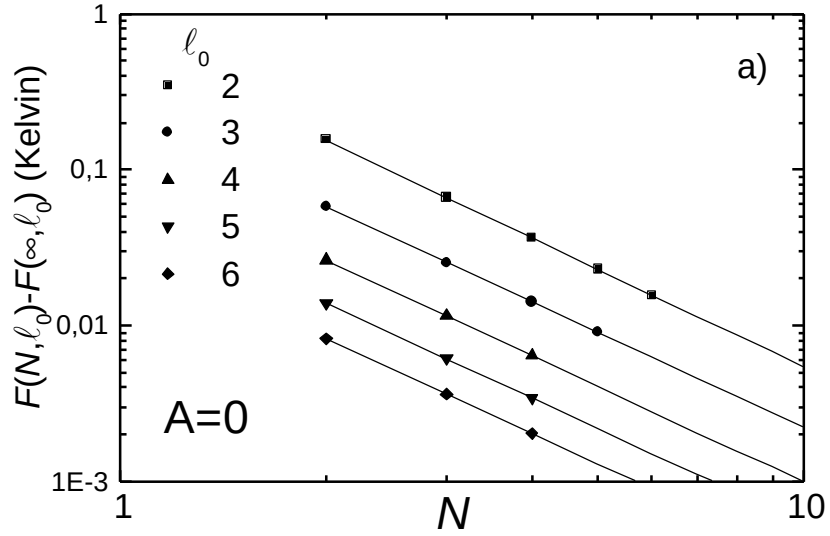
La Figure II-13a montre l'évolution de l'énergie libre par site atomique en fonction du nombre N de marches par la méthode du cylindre pour $A=0$ K. On observe que la convergence suit une loi de puissance en a/N^ϵ $\epsilon \sim 2$. Le même comportement est obtenu pour $A=A_{\text{Suht}}^+$.

Dans le modèle des fermions, la variation de l'énergie libre par site en fonction du nombre de marches N est donnée par l'équation (II-44). En faisant l'équivalence avec le système de marches, on obtient pour l'énergie libre par site :

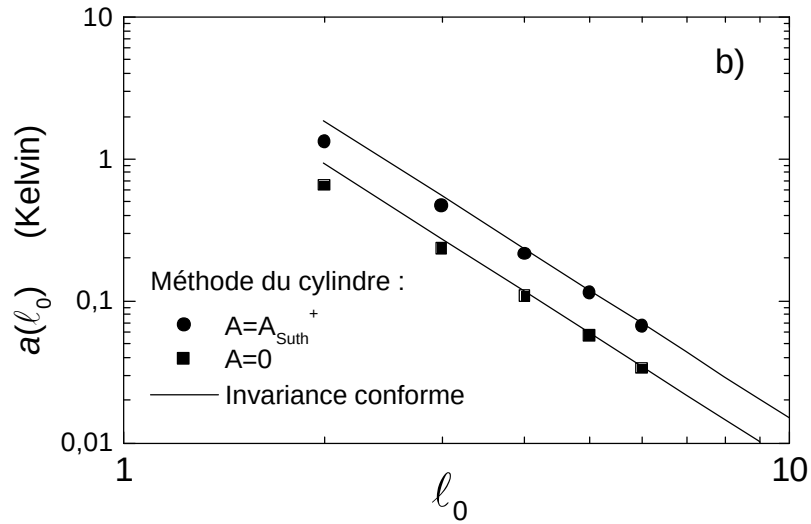
$$(II-84) \quad F_{\text{mar}}(N) = F_{\text{mar}}(\infty) - a(\ell_0, l) \frac{1}{(N)^2},$$

où le préfacteur du terme en $1/N^2$ s'écrit :

$$(II-85) \quad a(\ell_0, l) = \frac{l p^2 k_B T b^2(T)}{6} \frac{1}{\ell_0^3} .$$



a)



b)

Figure II-13 : Variation de l'énergie libre par site en fonction du nombre de marches N . a) $F(N, \ell_0)$ en fonction de N . (—) ajustement par une loi en $a(\ell_0, l)/N^2$ (pour $A=0$ K, $\ell_0=2$ à 6 , $T=293$ K et $E_k=1430$ K). b) variation du préfacteur $a(\ell_0, l)$ de $1/N^2$ en fonction de ℓ_0 pour $A=0$ K (■) et $A=A_{Suth}^+$ (●). Le préfacteur dépend de l'interaction en accord avec le facteur d'anisotropie: (—) Eq. (II-85) ou (II-92).

Les préfacteurs obtenus par les deux méthodes sont identiques (voir Figure II-13b). Pour la première fois, on montre ici de façon précise qu'un modèle sur sites et le modèle des fermions (sans sites) conduisent au même résultat pour $T^3 T_R$.

Le comportement en loi de puissance est en fait très général comme le montre la théorie de ***l'invariance conforme*** dont une application importante est de décrire les effets de taille finie pour un système critique. Je ne donnerai ici que les idées essentielles permettant de comprendre pourquoi l'invariance conforme est introduite. Il existe dans la littérature plusieurs ouvrages qui traitent du sujet pour le lecteur intéressé [34,35,36].

Une transformation est appelée ***conforme*** si elle conserve les angles. Il existe une transformation conforme permettant de transformer un plan infini en un cylindre, elle est donnée par :

$$(II-86) \quad w = \frac{L}{2p} \ln(z) \quad \text{ou} \quad z = \exp\left(\frac{2p}{L} w\right)$$

où z et w sont respectivement les affixes d'un point dans le plan et sur le cylindre. L est la circonférence du cylindre. Si on pose :

$$(II-87) \quad z = r \exp(iq)$$

on obtient :

$$(II-88) \quad w = \frac{L}{2p} [\ln(r) + iq] .$$

La Figure II-14 illustre la transformation du plan infini en cylindre. On observe qu'un cercle se transforme en un segment de droite et que les angles sont bien conservés. Au cours de cette transformation, l'introduction de conditions aux limites périodiques introduit dans l'énergie libre d'un système classique à deux dimensions un terme supplémentaire dépendant de la taille du cylindre L . La théorie de l'invariance conforme prédit une dépendance en $1/L^2$ de l'énergie libre par site en fonction de L pour un ***système critique isotrope*** [37] :

$$(II-89) \quad F_{iso}(L) = F_{iso}(\infty) - \frac{p}{6L^2} k_B T ,$$

où c est une constante appelée **anomalie conforme** ou **charge centrale**. Cette constante caractérise le comportement critique du système.

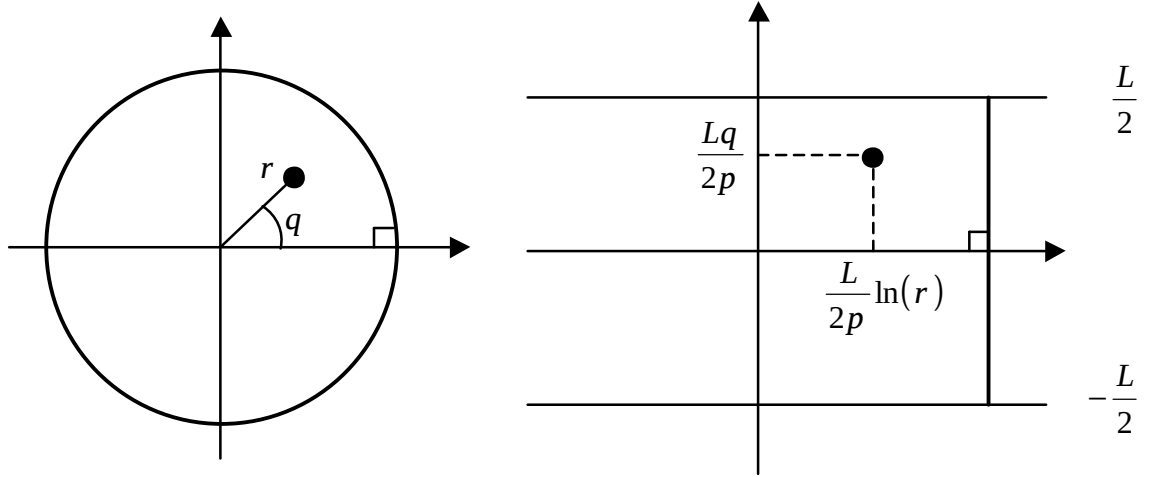


Figure II-14 : Transformation d'un plan infini en un cylindre (conditions aux limites périodiques en $-L/2$ et $L/2$) : transformation d'un point de coordonnées (r, q) dans le plan en un point de coordonnées $\left(\frac{Lq}{2p}, \frac{L}{2p} \ln(r)\right)$ sur le cylindre. Un cercle dans le plan devient un segment de droite vertical allant de $-L/2$ à $L/2$.

Pour un modèle Gaussien, $c=1$. Or, Knops [38] a montré l'identité entre le modèle SOS et le modèle classique XY qui est du type Gaussien. La charge centrale pour le système de marches est donc $c=1$.

Pour un système quantique anisotrope, une expression similaire est obtenue en introduisant un facteur d'anisotropie n [37,39]:

$$(II-90) \quad E_0(N) = E_0(\infty) - \frac{p}{6} \frac{c}{L^2} \frac{v}{L^2},$$

L'énergie donnée par le modèle de Calogero Sutherland [18,19,40] peut se réécrire en fonction de la taille du système $L=N\ell_0$, de façon identique à (II-90) :

$$(II-91) \quad E_f(N) = E_f(\infty) - \frac{p}{6(N\ell_0)^2} \frac{v}{L^2}.$$

où $\nu = \frac{2pl}{\ell_0}$ est le facteur traduisant l'anisotropie énergétique et géométrique du système et $c=1$.

La valeur correcte de la charge centrale $c=1$ est obtenue ici à condition de corriger le potentiel périodique utilisé par Sutherland [19] (sinon $c=l$). Cette correction que nous avons introduite au paragraphe II-C.2 résout l'incohérence observée par N. Kawakami *et al.* [40] qui avaient obtenu deux valeurs différentes de la charge centrale : $c=l$ en utilisant la solution donnée par Sutherland pour l'énergie de l'état fondamental et $c=1$ en développant l'énergie libre du système quantique à basse température.

Cependant, le modèle des fermions ne comportant pas de sites, il peut être nécessaire d'avoir une meilleure expression du facteur d'anisotropie afin de tenir compte des effets de réseau pour le système de marches. On peut réécrire le préfacteur $a(\ell_0, l)$ décrit par l'équation (II-85) sous la forme :

$$(II-92) \quad a(\ell_0, l) = \frac{p k_B T}{6\ell_0^2} \left(\frac{p l b^2(T)}{\ell_0} \right),$$

le terme entre parenthèse étant le facteur d'anisotropie. Ce terme peut se réécrire en introduisant l'anisotropie énergétique via le rapport des rigidités de surface h_x et h_y (obtenu par l'approche capillaire, voir paragraphe II-C.3) et l'anisotropie géométrique $\ell_0/1$:

$$(II-93) \quad \frac{p l b^2(T)}{\ell_0} = \ell_0 \sqrt{\frac{h_x}{h_y}}, \text{ d'où}$$

$$(II-94) \quad a(\ell_0, h_x, h_y) = \frac{p k_B T}{6\ell_0} \sqrt{\frac{h_x}{h_y}}.$$

Je conjecture que l'expression (II-94), obtenue à partir de l'équation (II-57) en négligeant le second terme est encore valable avec l'expression complète. Ceci s'appuie sur la comparaison numérique avec la méthode du cylindre en fonction de ℓ_0 , pour $l=1$ et $l=2$, représentée sur la Figure II-13b. La même expression du terme d'anisotropie peut aussi être obtenue par le modèle capillaire pour un système de taille finie sur sites avec des conditions aux limites périodiques [41].

Les effets de taille finie obtenus dans le cadre de l'invariance conforme nécessite que le système soit critique (longueur de corrélation des fluctuations infinie^{*}). Par conséquent l'évolution de l'énergie libre avec la taille du système décrit par l'équation (II-89) n'est valable, pour notre système de marches, qu'au-dessus de T_R , domaine de température où le système est toujours critique. Pour $T < T_R$, cette hypothèse n'est plus vérifiée et la valeur finie de la longueur de corrélation entraîne une convergence plus rapide ($\epsilon > 2$) de l'énergie libre. Le comportement de la convergence permet donc de déterminer si un système est critique ou non, c'est-à-dire dans notre cas si la surface est rugueuse ou non.

Pour la distribution des largeurs de terrasses et la fonction de corrélation dans la direction y , les valeurs convergées sont obtenues de façon similaire en ajustant la variation de ces grandeurs avec le nombre de marches N par une loi en a/N^e .

II-C.5.4. Distribution des largeurs de terrasses

La distribution des largeurs de terrasses $D(dh)$ est déterminée par la probabilité $P(\Delta h_i)$ d'être dans une configuration donnée $|\Delta h_i\rangle$ sur un site y quelconque. Cette probabilité (voir annexe I) est égale au module carré de la composante i du vecteur propre $\Psi_{\max}$ de la matrice de transfert associé à la valeur propre maximum $\Lambda_{\max}$, soit :

$$(II-95) \quad P(\Delta h_i) = \left| \langle \Delta h_i | \Psi_{\max} \rangle \right|^2 = \left| (\Psi_{\max})_i \right|^2 .$$

La distribution des largeurs de terrasses s'en déduit simplement :

$$(II-96) \quad D(dh) = \sum_i \left| \langle \Delta h_i | \Psi_{\max} \rangle \right|^2 \langle \Delta h_i | (dh_{m,y} \hat{=} dh) | \Delta h_i \rangle$$

où l'opérateur $(dh_{m,y} \hat{=} dh)$ est défini par :

$$(II-97) \quad \begin{aligned} \langle \Delta h_i | (dh_{m,y} \hat{=} dh) | \Delta h_i \rangle &= 1 \quad \text{si,} \quad ((dh_{m+1,y})_i - (dh_{m,y})_i) = dh \\ &= 0 \quad \text{autrement,} \end{aligned}$$

^{*} Un ordre de grandeur de la longueur de corrélation est donné par la distance à laquelle les fonctions de corrélation des fluctuations spatiales atteignent leur valeur à l'infini. Cette longueur est finie en-dessous de T_R et diverge au-dessus.

$(dh_{m,y})_i$ désignant la distance entre la marche m et la marche de référence pour la configuration i sur le site y . Les distributions des largeurs de terrasses associées à chacune des N terrasses du modèle sont identiques, car la distribution est indépendante de la marche choisie.

La distribution pour un système infini peut être obtenue en extrapolant en loi de puissance les probabilités associées à chaque largeur de terrasse :

$$(II-98) \quad D_N(h) = D_\infty(h) - \frac{a}{N^e}.$$

En pratique, un calcul avec $N=4$ est suffisant pour obtenir sur ces probabilités une erreur absolue inférieure à 0.01.

II-C.5.5. Fonctions de corrélation

Calcul des fonctions de corrélation

La fonctions de corrélation dans la direction perpendiculaire aux bords de marches $G(m,0) = \langle (x_{m,0} - x_{0,0})^2 \rangle$ (avec $x_{m,y}$ la position absolue de la marche m au site y) s'exprime simplement en fonction de la probabilité $|(\Psi_{\max})_i|^2$ d'être dans une configuration donnée $|\Delta h_i\rangle$ sur un site quelconque y , on a :

$$(II-99) \quad G(m,0) = \langle (x_{m,0} - x_{0,0})^2 \rangle = \langle (dh_{m,0})^2 \rangle = \sum_i ([dh_{m,0}]_i)^2 |(\Psi_{\max})_i|^2.$$

On remarque que $G(m=1,0)$ est la largeur quadratique moyenne de la distribution des largeurs de terrasses.

Néanmoins, le calcul de la fonction de corrélation $G(m,0)$ est limité par la taille de la matrice de transfert qui croît très fortement avec le nombre de marches du modèle comme le montre la Table 1. Le nombre de marches étant ainsi limité seule $G(m=1,0)$ peut être obtenue du fait des conditions aux limites périodiques.

Dans la direction parallèle aux bords de marches la fonction de corrélation $G(0, y) = \langle (x_{0,y} - x_{0,0})^2 \rangle$ peut être calculée connaissant (voir annexe I) soit l'ensemble des vecteurs propres $\{\Psi_p\}$ et des valeurs propres $\{\Lambda_p\}$ de la matrice de transfert :

$$(II-100) \quad G(0, y) = y G(0,1) - 2 \sum_{\substack{i,j=1 \\ i>j}}^y \left[\sum_p \frac{(\Lambda_p)^{i-j-1}}{(\Lambda_{\max})^{i-j+1}} \left| \langle \Psi_p | \sum_{n=0,\pm 1,\pm 2,\dots} n \hat{T}_n | \Psi_{\max} \rangle \right|^2 \right],$$

soit la valeur propre maximum $\Lambda_{\max}$ de la matrice et son vecteur propre associé $|\Psi_{\max}\rangle$:

$$(II-101) \quad G(0, y) = y G(0,1) - 2 \sum_{\substack{i,j=1 \\ i>j}}^y \left[\frac{\langle \Psi_{\max} | \left[\sum_{n=0,\pm 1,\pm 2,\dots} n \hat{T}_n \right] \hat{T}^{i-j-1} \left[\sum_{n=0,\pm 1,\pm 2,\dots} n \hat{T}_n \right] | \Psi_{\max} \rangle}{(\Lambda_{\max})^{i-j+1}} \right].$$

En contre partie, cette expression nécessite le calcul de puissances de la matrice de transfert $\hat{T}^a$.

Convergence des fonctions de corrélation

La fonction de corrélation $G(0,y)$ peut être calculée, pour un nombre de marches N , par la méthode du cylindre. L'extrapolation pour $N \rightarrow \infty$ permet d'obtenir la fonction de corrélation de la surface. Afin d'étudier la convergence de $G(0,y)$ nous avons comparé les valeurs de la fonction de corrélation extrapolées par loi de puissance,

$$(II-102) \quad G(0, y)_{N \rightarrow \infty} = G(0, y)_N + \frac{a}{N^e},$$

avec les résultats de simulations Monte Carlo (interaction entre marches premières voisines, $T > T_R$ et $T < T_R$).

La comparaison est faite pour les paramètres suivants : $A=280$ K, $E_k=1390$ K et $\ell_0=2.5$ (réseau CFC). Pour les basses températures ($T < E_k$), nous avons vérifié que l'on pouvait limiter à 2 la taille maximum des crans autorisés dans le calcul par la méthode du cylindre afin de limiter le temps de calcul. La simulation Monte Carlo est réalisée sur un système de 60

marches $\times$ 800 sites. Après 1000 configurations de mise à l'équilibre, la moyenne statistique est calculée sur 4000 configurations.

La Figure II-15 et la Figure II-16 montrent l'évolution des fonctions de corrélation $G(0,y)$ calculées par la méthode du cylindre en fonction du nombre de marches ($N=2, 3, 4, 5$) dans le cas rugueux ($T>T_R$) et non rugueux ($T<T_R$). On note que dès $N=5$ l'accord entre la simulation Monte Carlo et la méthode du cylindre est excellent jusqu'à $y=10$ pour $T>T_R$ et jusqu'à $y=70$ pour $T<T_R$.

Les paramètres de l'extrapolation a et e , obtenus à partir du calcul pour $N=3, 4$ et 5 , sont :

- pour $T>T_R$: $-0.05 \leq a \leq -6.8$ et $1.5 \leq e \leq 2.2$,
- pour $T<T_R$: $-0.2 \leq a \leq -13$ et $e = 5.8$.

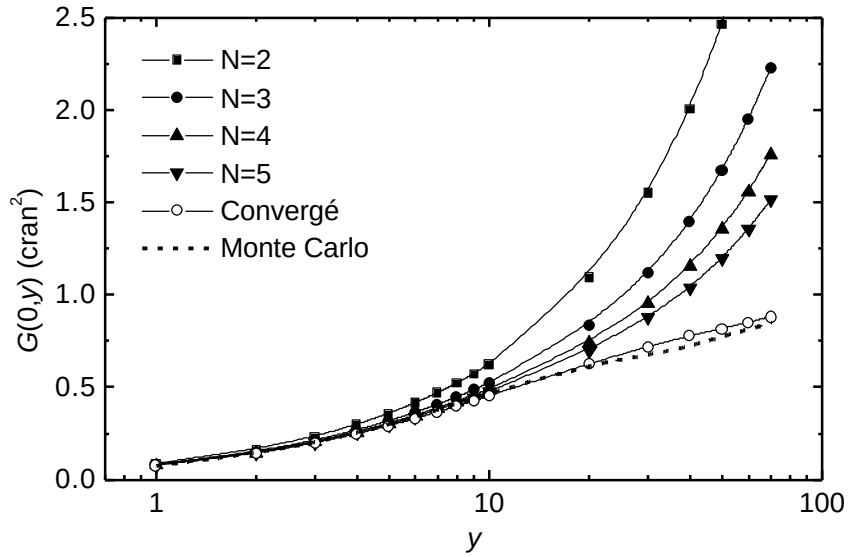


Figure II-15: Fonction de corrélation dans la direction parallèle aux marches $G(0,y)$ en fonction de la distance y . (■, ●, ▲, ▼) Méthode du cylindre pour différents nombres de marches ($N=2,3,4,5$; $\ell_0=2.5$, $E_k=1390$ K, $A=280$ K, $T=500$ K ($>T_R=450$ K)). (○) Extrapolations en loi de puissance en N^e des fonctions de corrélation calculées par la méthode du cylindre pour $N=3,4,5$. — — : Simulation Monte Carlo.

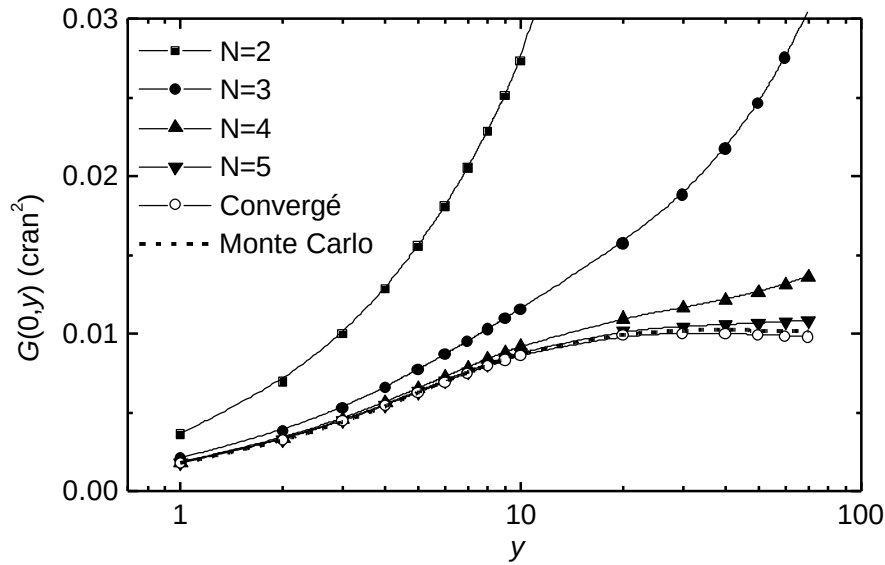


Figure II-16: Fonction de corrélation dans la direction parallèle aux marches $G(0,y)$ en fonction de la distance y . (◻, •, △, ▽) Méthode du cylindre pour différents nombres de marches ($N=2,3,4,5$; $\ell_0=2.5$, $E_k=1390$ K, $A=280$ K, $T=300$ K ($<T_R=450$ K)). (○) Extrapolations en loi de puissance en N^e des fonctions de corrélation calculées par la méthode du cylindre pour $N=3,4,5$. ? ? : Simulation Monte Carlo.

On remarque que l'exposant reste proche de 2 dans l'état critique ($T>T_R$), et est bien supérieur à 2 pour $T<T_R$. La convergence est donc beaucoup plus rapide en dessous de T_R du fait de la longueur de corrélation finie.

La méthode du cylindre est exacte, mais conduit à des calculs relativement lourds pour la fonction de corrélation aux grandes distances. La simulation Monte Carlo apparaît plus intéressante pour déterminer la fonction de corrélation $G(0,y)$ (en particulier pour les grandes valeurs de ℓ_0). Elle fournit également $G(m,0)$ qui n'est pas calculable par la méthode du cylindre au-delà de $m=1$.

II-D. Conclusion

Les surfaces vicinales peuvent être étudiées en utilisant un modèle à une ou plusieurs marches. Néanmoins, le modèle à une marche résolu dans le cadre de l'approximation harmonique ou par la méthode de la matrice de transfert ne redonne pas les caractéristiques d'une surface réelle : la transition rugueuse et l'asymétrie de la distribution des largeurs de terrasses. Il est donc nécessaire pour retrouver le comportement d'une surface réelle d'utiliser un modèle à plusieurs marches.

	Type de modèle	Type d'interaction	Portée de l'interaction	Grandeurs calculées	Domaine de validité
Simulation Monte Carlo	sur site	quelconque	Premières voisines	TWD $G(0,y)$ $G(m,0)$	$T \geq T_R$ et $T < T_R$
Méthode du cylindre	sur site	quelconque	quelconque	TWD $G(0,y)$, $F(T)$	$T \geq T_R$ et $T < T_R$
Modèle des fermions	continu	en $\frac{1}{\ell^2}$	toutes marches	TWD, $F(T)$	$A \geq -\frac{k_B T b^2(T)}{4}$ et $T \geq T_R$
Modèle des ondes capillaires	continu	en $\frac{1}{\ell^2}$	toutes marches	$G(0,y)$ $G(m,0)$	$T \geq T_R$ et $T < T_R$ (cf. Eq. (II-51) et (II-52)) h_x, h_y et V_{loc} connus analytiquement pour $T \geq T_R$ et $A \geq -\frac{k_B T b^2(T)}{4}$, (cf. paragraphe II-C.3)

Table 2 : Caractéristiques des différents modèles et méthodes de calculs utilisés pour traiter les surfaces vicinales.

Ce comportement est obtenu en utilisant soit le modèle continu (modèle des ondes capillaires) soit le modèle discret. Le modèle discret, caractérisé par une énergie de cran E_k et une interaction entre marche A , peut être résolu en utilisant l'équivalence avec le modèles des fermions, les simulations Monte Carlo ou la méthode du cylindre. Les caractéristiques de ces quatre solutions au problème des surfaces vicinales sont décrites dans la Table 2.

Avant ce travail de thèse, il n'existait qu'une seule méthode permettant d'étudier une surface au-dessus et en-dessous de la transition rugueuse : les simulations Monte Carlo. Afin d'acquérir des méthodes exactes (contrairement aux simulations qui sont des expériences numériques), le modèle des ondes capillaires a été étendu sous la température de transition rugueuse et la méthode du cylindre a été appliquée pour la première fois aux cas des surfaces vicinales. Nous disposons ainsi de trois méthodes d'étude des faces vicinales quelle que soit la gamme de température explorée.

L'équivalence avec le modèle des fermions, bien que non valable pour $T < T_R$, est très importante car elle permet d'exprimer les rigidités de surfaces h_x , et h_y en fonction de A et E_k , réalisant ainsi le lien entre le modèle continu et le modèle discret.

Il est important de noter qu'il n'y a pas une méthode "meilleure" que les autres, mais qu'elles se complètent, car aucune d'entre elles ne permet de déterminer toutes les grandeurs souhaitées quelque soit le domaine de température. Pour analyser des résultats expérimentaux, et principalement sous la température de transition rugueuse, une seule méthode ne suffit pas, il est nécessaire de les combiner. Néanmoins, on peut remarquer que les simulations Monte Carlo et la méthode du cylindre se complètent bien quelle que soit la gamme de température.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] M. Giesen, Surf. Sci. **370** (1997) 55.
- [2] E. D. Williams et N. C. Bartelt, Science **251** (1991) 393.
- [3] N.C. Bartelt, T. L. Einstein et E. D. Williams, Surf. Sci. Lett. **240** (1990) L591.
- [4] B.S. Swartzentruber, Y.-W. Mo, R. Kariotis, M.G. Lagally et M.B. Webb, Phys. Rev. Lett. **65** (1990) 1913.
- [5] M. E. Fisher et D. S. Fisher, Phys. Rev. **B 25** (1981) 3192.
- [6] L. Barbier, L. Masson, J. Cousty et B. Salanon, Surf. Sci. **345** (1996) 197.
- [7] L. Masson, L. Barbier, J. Cousty et B. Salanon, Surf. Sci. Lett. **317** (1994) 1115, et son erratum : L. Masson, L. Barbier, J. Cousty et B. Salanon, Surf. Sci. Lett. **324** (1995) 378.
- [8] M. Giesen-Seibert, R. Jentjens, M. Poensgen, et H. Ibach Phys Rev. Lett. **71** (1993) 3521.
- [9] E. E. Gruber et W. W. Mullins, J. Phys. Chem. Solids. **28** (1967) 875.
- [10] R. Kariotis et M. G. Lagally, Surf. Sci. **248** (1991) 295.
- [11] J. C. Girard, Thèse , Paris 1993; J. C. Girard, S. Gauthier, S. Rousset et J. Klein, Microsc. Microanal. Microstruct. **4** (1995) 489.
- [12] C. Jayaprakash, W.F. Saam et S. Teitel, Phys. Rev Lett. **50** (1983) 2017.
C. Jayaprakash, C. Rottman et W.F. Saam, Phys. Rev. **B 30** (1984) 6549.
- [13] H. J. Schulz, J. Phys **46** (1985) 257.
- [14] J. Villain, D.R. Grimpel et J. Lapujoulade, J. Phys. **F 15** (1985) 809.
- [15] J.V. José L.P. Kadanoff, S. Kirkpatrick et D.R. Nelson, Phys. Rev. **B 16** (1977) 1217.
- [16] P.-G. de Gennes, J. Chem. Phys. **48** (1968) 2257.
- [17] F. Calogero, J. Math. Phys. **10** (1969) 2191 ; **10** (1969) 2197.

- [18] B. Sutherland, J. Math. Phys. **12** (1971) 246 ; **12** (1971) 251.
- [19] B. Sutherland, Phys. Rev. **A 4** (1971) 2019.
- [20] F. J. Dyson, J. Math. Phys. **3** (1962) 140.
- [21] B. Joós, T. L. Einstein et N.C. Bartelt, Phys. Rev. **B 43** (1991) 8153.
- [22] M.S. Hoogemans, M.A.J. Klik, D.C. Schlösser, L. Kuipers et J.W.M. Frenken, Phys. Rev. Lett. **82** (1999) 1728.
- [23] D.W. Heermann : Computer Simulation Methods (Springer-Verlag 1986).
- [24] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling et B.P. Flannery : Numerical Recipes (Cambridge Univ. Press. 1992).
- [25] J.P. Nougier : Méthodes de calcul numérique (Masson 1991).
- [26] N. Métropolis, A. Rosenbluth, M. Rosenbluth, A. Teller et E. Teller, J. Chem. Phys. **21** (1953) 1087.
- [27] B. Salanon, Surf. Sci. **350** (1996) 322.
- [28] E. Le Goff, L. Barbier, L. Masson et B. Salanon, Surf. Sci. **432** (1999) 139.
- [29] Jae Dong Noh et M. den Nijs, J. Phys. A: Math. Gen. **30** (1997) 7375.
M. den Nijs Phys. Rev. **B 46** (1992) 10386
- [30] J. M. Luck, S. Leibler et B. Derrida J. Phys. **44** (1983) 1135.
- [31] J. L. Cardy : Finite-Size Scaling (Elsevier Science 1988).
- [32] M. P. M. den Nijs Phys. Rev. **B 46** (1992) 10386.
- [33] H. W. J. Blöte et M. P. M. den Nijs Phys. Rev. **B 37** (1988) 1766.
- [34] P. Christe et M. Henkel : Introduction to Conformal Invariance and Its Applications to Critical Phenomena, Berlin (Springer-Verlag 1993).
- [35] P. Di Francesco, P. Mathieu et D. Sénéchal : Conformal field Theory, (Springer 1997).
- [36] J.L. Cardy : Scaling and renormalisation in statistical physics (P. Goddard 1996).

- [37] I. Affleck, Phys. Rev. Lett. **56** (1986) 746.
- [38] H. J. F. Knops, Phys. Rev. Lett. **39** (1977) 766.
- [39] H. W. J. Blöte, J. L. Cardy et M. P. Nightingale, Phys. Rev. Lett. **56** (1986) 742.
- [40] N. Kawakami et S. K. Yang, Phys. Rev. Lett. **67** (1991) 2493.
- [41] B. Salanon communication privée.

CHAPITRE III :

Etude statistique

des surfaces vicinales

III-A. Diagramme de phases des surfaces vicinales

III-A.1. Introduction

Un premier critère permet de déterminer la stabilité d'une face vicinale :

- Pour une variation convexe de l'énergie libre avec la pente, la surface est stable.
- A l'opposé, une variation concave indique une séparation de phases [1] : pour une pente dont l'énergie libre associée est dans un domaine concave, une énergie libre inférieure est obtenue en séparant le système selon deux facettes dont les orientations sont fixées par la double tangente et dont les proportions sont données par la règle du bras de levier.

La valeur de l'exposant de convergence de l'énergie libre en fonction de la taille du système (méthode FSS) fournit un critère permettant de savoir si une face vicinale est dans un état critique et donc dans un état rugueux.

L'exploration systématique de l'espace des paramètres (E_k, A) et l'application de ces deux critères permettent d'obtenir le diagramme de phases orientationnel (T, p) où apparaîtront les domaines rugueux et les domaines de stabilité des faces vicinales.

Les cas $A \geq 0$ et $A < 0$ seront successivement examinés. Toutes les valeurs de l'énergie libre présentées dans ce chapitre sont des valeurs convergées comme définies au paragraphe II-C.5.3. .

III-A.2. Interaction répulsive ($A \neq 0$)**III-A.2.1. Variation de l'énergie libre avec la vicinalité $A=0$ K**

Nous avons vu au paragraphe II-C.1., que l'énergie libre par unité d'aire projetée sur le plan de référence ($f_0=0$) d'un réseau de marches avec l'orientation q_0 pouvait se développer en fonction de la pente $p=\tan(f_0)=h_0/\ell_0$. En combinant les équations (II-29) et (II-58) on obtient :

$$(III-1) \quad f(q_0, f_0, T) = f_0(T) + \frac{b(q_0, T)}{h_0 \cos(q_0)} |p| + \frac{d_{mar}(q_0, T)}{(h_0)^3} |p|^3 .$$

Cette expression a été proposée par Jayaprakash *et al.* [2] pour une assemblée de marches sans interaction ($A=0$ K).

L'énergie libre calculée par la méthode du cylindre a été comparée à ce développement pour $A=0$ K. A titre d'exemple l'évolution avec la pente $p = h_0/\ell_0$ (h_0 est posée à 1) de l'énergie libre d'interaction F_{cyl_int} , pour $E_k/k_B T=0.2$ a été reportée sur la Figure III-1. Ce terme est déduit de l'énergie libre totale par site F_{cyl} suivant l'expression :

$$(III-2) \quad F_{cyl_int} = F_{cyl} - \frac{b(q_0 = 0, T)}{h_0} |p| ,$$

l'énergie libre des terrasses $f_0(T)$ étant fixée à 0.

L'énergie libre F_{cyl_int} montre une dépendance en p^3 en accord avec l'expression (III-1). L'accord est d'autant mieux réalisé que la pente est faible. En effet, plus la densité de sites entre deux marches est grande, plus on se rapproche du modèle des fermions pour lequel les positions des marches sont continues.

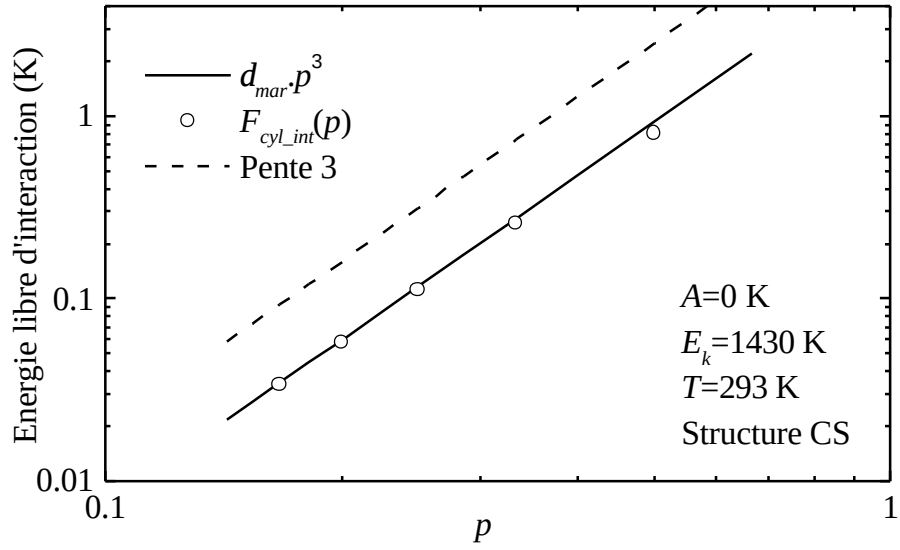


Figure III-1: Représentation en échelle Log-Log de la contribution de l'interaction entre marches à l'énergie libre en fonction de p . (O) : méthode du cylindre pour un cristal cubique simple Eq.(III-2) ($T=293$ K, $E_k=1430$ K, $A=0$ K). (—) : équivalence avec le modèle des fermions Eq.(III-1).

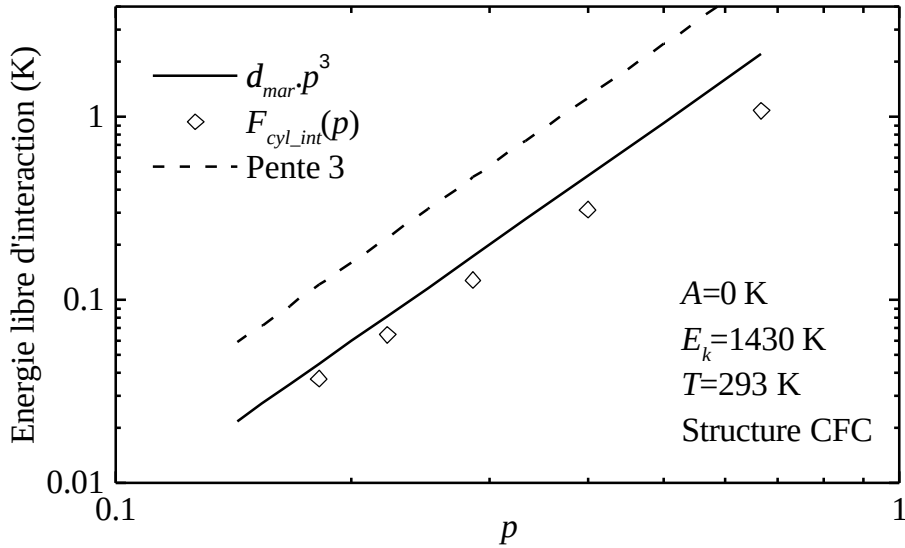


Figure III-2 : Représentation en échelle Log-Log de la contribution de l'interaction entre marches à l'énergie libre en fonction de p . (?) : méthode du cylindre pour un cristal cubique face centrée Eq.(III-2) ($T=293$ K, $E_k=1430$ K, $A=0$ K). (—) : équivalence avec le modèle des fermions Eq.(III-1).

Figure III-2 la même courbe a été reportée pour un cristal de structure cubique face centrée (ℓ_0 demi-entier). On observe cette fois un désaccord avec l'expression (III-1) qui manifeste un effet de réseau introduit par une distance minimum d'approche non entière (0.5 pour CFC et 1 pour CS).

III-A.2.2. Variation de l'énergie libre avec la vicinalité $A>0$ K

Pour une interaction répulsive ($A>0$), la présence du potentiel en A/ℓ^2 donne un bon accord entre la méthode du cylindre et le modèle des fermions aussi bien dans le cas d'une structure CS que CFC. Ce résultat est illustré par la Figure III-3 ($A=65$ K).

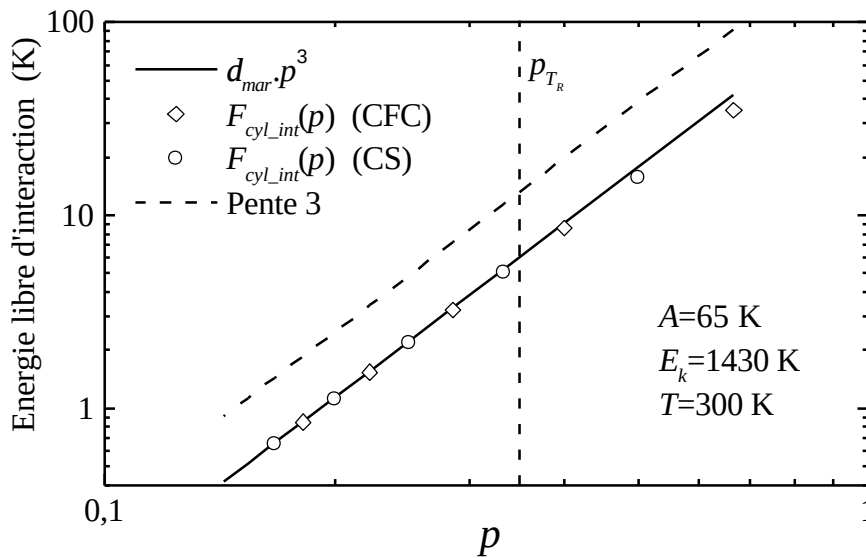


Figure III-3 : Représentation en échelle Log-Log de la contribution de l'interaction entre marches à l'énergie libre en fonction de p . (◇) et (○) : méthode du cylindre pour un cristal cubique face centrée et cubique simple respectivement Eq.(III-2) ($T=300$ K, $E_k=1430$ K, $A=65$ K). (—) : Equivalence avec le modèle des fermions Eq. (III-1).

L'accord est d'autant meilleur que la pente est faible : l'écart est de 15 % pour $p=1/1.5$ et de 0.7 % pour $p=1/6$. On peut noter que cet accord est conservé même pour les surfaces non rugueuses ($p>p_{TR}=1/3$ (Eq. (II-64)), pour $A=65$ K et $E_k=1430$ K).

Pour toutes les valeurs des paramètres (E_k , $A>0$ et T) on obtient, comme pour l'exemple de la Figure III-3, une courbure de $F_{cyl_int}(p)$ positive. Pour une interaction répulsive les faces vicinales sont stables.

III-A.2.3. Variation de l'énergie libre avec la température

Le modèle des fermions n'étant pas sur site, il ne présente pas de transition de phase (pour $A>0$). Le système est toujours dans un état rugueux. Le terme de convergence de l'énergie libre en fonction du nombre de fermions montre une charge centrale égale à 1 et un exposant de convergence égal à 2 quelle que soit la température (cf. Eq. (II-91)).

La méthode des rubans permet d'introduire le réseau sous-jacent et donc une transition rugueuse.

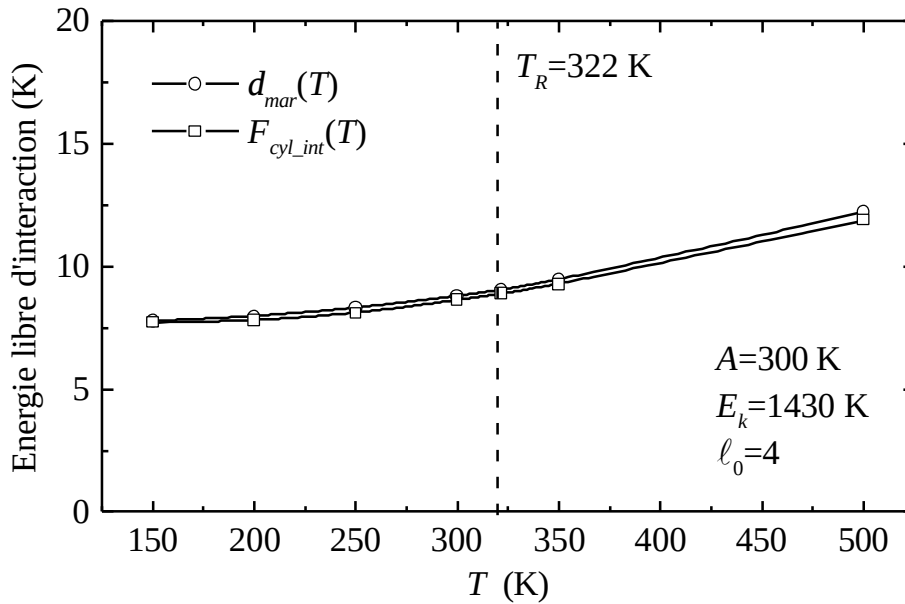


Figure III-4 : Variation de l'énergie libre en fonction de la température pour $A=300$ K (interaction entre toutes les marches), $E_k=1430$ K et $\ell_0=4$ (CS). (?) Energie libre d'interaction calculée par la méthode du cylindre. (O) Energie libre d'interaction obtenue dans le cadre de l'équivalence avec le modèle des fermions par l'expression (II-58).

A titre d'exemple nous avons calculé l'énergie libre d'interaction en fonction de la température pour $E_k=1430$ K, $A=300$ K et $\ell_0=4$. On obtient un bon accord entre l'énergie libre calculée par la méthode du cylindre et celle déterminée par équivalence avec le modèle des

fermions (Eq. (II-58)) dans la gamme de température $T=150$ K $T=500$ K (voir Figure III-4). La courbe obtenue par la méthode du cylindre ne révèle aucun comportement particulier au voisinage de T_R , la connaissance de l'énergie libre seule ne permet donc pas de déterminer la température de transition rugueuse

La convergence de l'énergie libre fournit deux critères permettant de définir si le système est dans un état critique ou non et ainsi permet de déterminer la température de transition rugueuse :

- La variation de l'exposant de convergence (égal à 2 dans l'état critique)
- La variation de la charge centrale (égale à 1 dans l'état critique)

Un autre critère peut être utilisé : la variance de la largeur des terrasses est égale à $\frac{4}{p^2}$ à T_R (Eq.(II-63)). La méthode du cylindre permet de calculer la variance $w^2(N \rightarrow \infty)$ et donc de déterminer la température de transition rugueuse.

L'exposant est obtenu en ajustant la variation de l'énergie libre d'interaction en fonction du nombre de marches N sur la loi :

$$(III-3) \quad F_{cyl_int}(N) = F_{cyl_int}(\infty) - \frac{a}{(N)^e} .$$

La charge centrale est le préfacteur, corrigé de l'anisotropie, du terme en $1/N^e$ lorsque $e=2$. La valeur de $c(N)$ est obtenue en tenant compte du nombre fini de marches dans le calcul :

$$(III-4) \quad F_{cyl_int}(N+1) - F_{cyl_int}(N) = a(\ell_0, h_x, h_y) \left[\frac{1}{(N+1)^2} - \frac{1}{N^2} \right] c(N) ,$$

le facteur d'anisotropie $a(\ell_0, h_x, h_y)$ étant défini par l'équation (II-94).

Ce facteur n'étant connu que pour $T > T_R$, la charge centrale ne pourra être déterminée que dans cette gamme de température. La valeur de $c=c(\infty)$ est ensuite obtenue en extrapolant les valeurs de $c(N)$ par loi de puissance. On remarque que le critère sur l'exposant est plus fiable car il est indépendant de l'anisotropie.

Sur la Figure III-5 sont reportées les variations de l'exposant de convergence e , de la charge centrale c et de la variance w^2 de la largeur des terrasses ainsi obtenue pour $E_k=1430$ K, $A=300$ K et $\ell_0=4$. Les calculs ont été réalisés pour N variant de 2 à 5. Cette figure montre le bon accord entre ces trois critères conduisant à $T_R=322$ K. Cet accord n'a pu être obtenu qu'après correction du potentiel utilisé par B. Sutherland. Dans le domaine rugueux, e est proche de 2 (≈ 2.03) et c est voisin de 1 (≈ 0.92). En dessous de T_R , l'exposant devient supérieur à 2. Nous avons retenu le critère le plus précis pour déterminer T_R : $w^2(T_R)=4/\pi^2$.

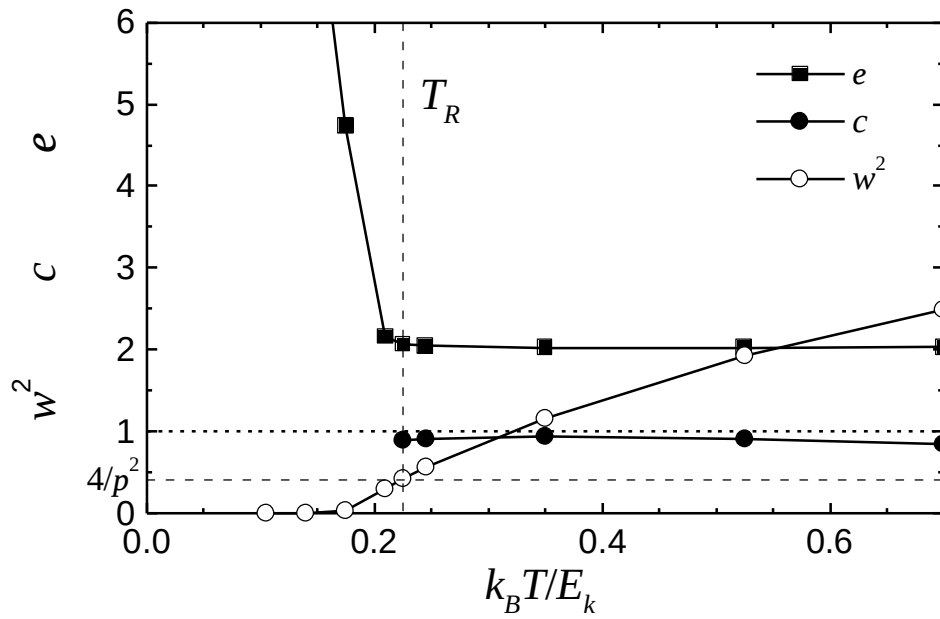


Figure III-5 : Variation de la charge centrale c obtenue en extrapolant les valeurs de $c(N)$ par loi de puissance. Les valeurs de e ont été déterminées en ajustant l'énergie libre à l'aide de l'Eq. (III-3). La variance est calculée par extrapolation en utilisant l'Eq. (II-98), avec le modèle capillaire w^2 est égal à $4/\pi^2$ à T_R .

III-A.2.4. Diagramme de phases pour $A>0$

La méthode du cylindre fournit de bons critères pour déterminer T_R . Ils nous ont permis de construire le diagramme de phases présenté Figure III-6.

L'interaction entre toutes marches du type Sutherland (II-38) utilisée ici étant une interaction de paire, l'hamiltonien (II-28) présente une symétrie marches - trous qui se traduit

par une symétrie $p \rightarrow (1-p)$ sur le diagramme de phases. Cette propriété a été vérifiée numériquement pour $p=0.2$ et 0.33 . Sur ce diagramme sont également représentés les résultats obtenus par le modèle capillaire (Eq. (II-63)) en négligeant le second terme de h_y , ce qui conduit à l'équation (II-64). Cette équation montrant que A , E_k et T sont reliées par une loi d'échelle en $A/k_B T b^2(T)$, nous avons donc construit le diagramme de phases dans l'espace des paramètres ($g=2A/k_B T b^2(T)$, p). Le paramètre g étant le paramètre d'interaction dans le modèle de Sutherland (cf. Eq. (II-33)).

Sur la Figure III-6, sont représentés les résultats de la méthode du cylindre pour deux valeurs de l'interaction ($A=20$ K et $A=200$ K) et une énergie de cran $E_k=1430$ K. Bien que l'interaction varie d'un facteur 10, la différence sur le diagramme de phases est faible et l'accord est d'autant mieux vérifié que le rapport $2A/Tb^2(T)$ est grand.

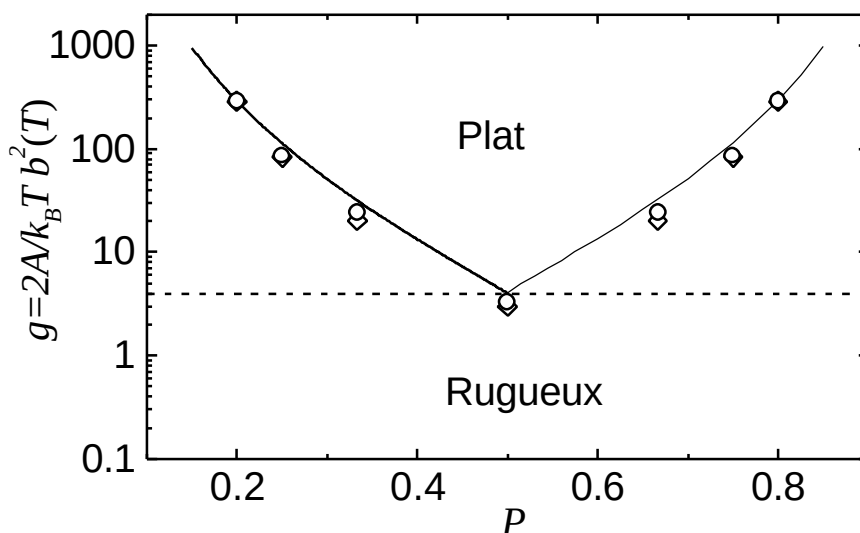


Figure III-6 : Diagramme de phases état rugueux - état non rugueux. Résultats obtenus par la méthode du cylindre pour $E_k=1430$ K, (?) $A=20$ K et (O) $A=200$ K. (—) Modèle capillaire Eq. (II-64).

On observe de même que l'accord entre le modèle capillaire et la méthode du cylindre n'est bien vérifié que pour les grandes valeurs du rapport $2A/k_B T b^2(T)$. Ce comportement est dû aux effets de réseau qui deviennent important pour les grandes valeurs de p . Néanmoins, l'expression (II-64) permet d'obtenir simplement (analytiquement) un bon ordre de grandeur du diagramme de phases. Le diagramme de phases fourni par le modèle capillaire n'étant valable que pour les petites valeurs de la pente, il est limité à $p=0.5$ sur la Figure III-6.

L'interaction, dans ce modèle, étant une interaction de paire (potentiel de type Sutherland (II-38)) le diagramme complet est obtenu par symétrie par rapport à $p=0.5$.

On peut noter que la surface est rugueuse quelle que soit la pente pour $g \leq 4$, $g=4$ étant l'interaction associée à A_{Suth+} .

III-A.2.5. Cas de la face (115)

En liaison avec notre étude expérimentale, nous avons étudié plus particulièrement le cas de la face vicinale (1,1,5) ($\ell_0=2.5$, $A=65$ K (interaction entre toutes les marches) et $E_k=1430$ K). On observe un écart entre l'énergie libre calculée par la méthode du cylindre et celle obtenue par équivalence avec le modèle des fermions (Eq. (II-58)). Il reste du même ordre pour toute la gamme des températures explorées ($T=300$ K à $T=500$ K) (voir Figure III-7).

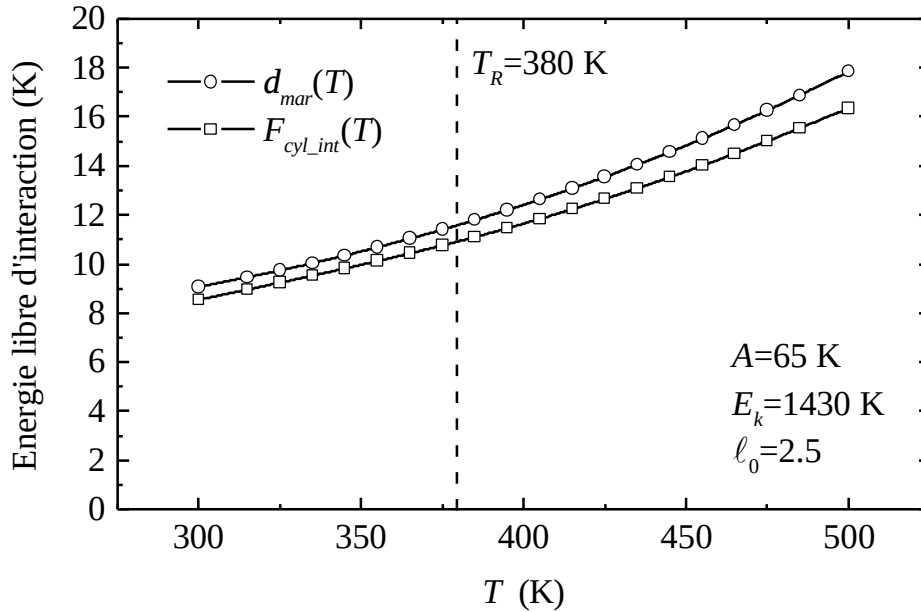


Figure III-7 : Variation de l'énergie libre en fonction de la température pour $A=65$ K (interaction entre toutes les marches), $E_k=1430$ K et $\ell_0=2.5$ (CFC). (?) Energie libre d'interaction calculée par la méthode du cylindre. (O) Energie libre d'interaction obtenue dans le cadre de l'équivalence avec le modèle des fermions par l'expression (II-58).

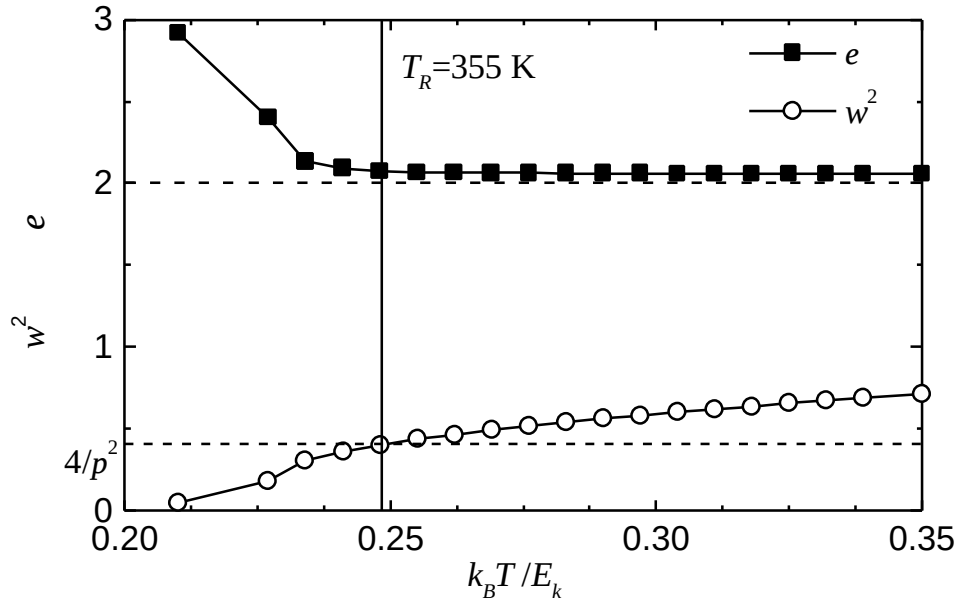


Figure III-8 : : Variation de l'exposant (■) et de la variance de la largeur des terrasses (w^2) en fonction de la température pour $A=65$ K (interaction entre toutes les marches), $E_k=1430$ K et $\ell_0=2.5$ (CFC).

Sur la Figure III-8, on retrouve bien le comportement précédemment observé pour $\ell_0=4$ (CS) : l'exposant de la loi de puissance (III-3) est proche de 2 (≈ 2.06) pour $T > T_R$ et dévie de cette valeur au voisinage de T_R . T_R étant déterminée par l'égalité à $\frac{4}{p^2}$ de la variance de la largeur des terrasses w^2 .

III-A.3. Stabilité des surfaces vicinales pour une interaction attractive : le modèle de Sutherland attractif

Ce chapitre est constitué d'un article soumis à publication. Il reprend le diagramme de phases pour $A > 0$ et traite en détail le cas $A < 0$. Le résultat essentiel de cet article est le diagramme de phases complet du modèle (II-28).

Dans le cas attractif on obtient un facetage de la surface avec l'apparition d'un point tricritique pour une interaction $A = A_{Suth-}$. Ce résultat contraste avec les conclusions du modèle de Sutherland pour lequel le système s'effondre (les fermions deviennent infiniment proches les uns des autres) pour cette valeur de l'interaction quelle que soit ℓ_0 . La différence de comportement traduit l'effet du réseau.

Pour tenir compte de la symétrie $p \rightarrow (1-p)$ du système nous avons réécrit l'énergie libre d'interaction sous la forme :

$$(III-5) \quad F_{sym}(p) = F_{cyl_int}(p) - p \frac{p^2}{6} A ,$$

pour laquelle nous proposons le développement "à la Landau" suivant :

$$(III-6) \quad F_{sym}(p) = b_0 + b_2 \left(p - \frac{1}{2} \right)^2 + b_4 \left(p - \frac{1}{2} \right)^4 + b_6 \left(p - \frac{1}{2} \right)^6 .$$

III-A.4. Conclusion

La méthode du cylindre s'est donc révélée un outil puissant qui nous a permis de déterminer le diagramme de phases complet ($A>0$ et $A<0$) des surfaces vicinales pour un potentiel d'interaction en A/ℓ^2 .

Ce diagramme de phases a été obtenu en utilisant plusieurs critères :

- La valeur de l'exposant de convergence de l'énergie libre en fonction de la taille du système (étude FSS) ainsi que la variance de la largeur des terrasses nous fournissent deux critères permettant de savoir si une face vicinale est rugueuse ou non.
- La stabilité d'une face vicinale est donnée par la convexité de l'énergie libre avec la pente.

Dans le cas répulsif, on obtient un bon accord entre le modèle capillaire et la méthode du cylindre, ce qui montre que les effets de réseau sont faibles. Dans le cas attractif, la méthode du cylindre, contrairement au modèle des fermions, conduit à un facetage qui révèle l'importance du réseau sous-jacent.

III-B. Etude statistique des surfaces vicinales

L'analyse statistique des images STM fournit :

- la distribution des largeurs de terrasses,
- les fonctions de corrélation dans les directions parallèle et perpendiculaire aux bords de marches.

Ces grandeurs expérimentales peuvent être interprétées à l'aide des modèles présentés précédemment (Chapitre II) que nous allons maintenant comparer. L'objectif est de choisir le plus adapté à la détermination des paramètres microscopiques E_k et A .

III-B.1. Distribution des largeurs de terrasses

III-B.1.1. Comparaison modèle continu, modèle discret

Le modèle des fermions donne la distribution des largeurs de terrasses pour trois valeurs particulières de l'interaction, $A = A_{Suth-}$, 0 et A_{Suth+} (voir annexe IV). Ces résultats sont comparés ici avec les distributions calculées par simulations Monte Carlo (interaction limitée aux marches premières voisines) et par la méthode du cylindre qui tiennent compte du réseau sous-jacent.

Pour une interaction purement entropique ($A=0$ K), l'accord entre les distributions déterminées par ces trois méthodes est excellent (voir Figure III-9). L'influence du réseau est donc faible pour l'interaction nulle. Rappelons que dans ce cas la distribution ne dépend que de la distance moyenne entre marches ℓ_0 et suit la loi d'échelle (II-50).

Dans le cas de l'interaction répulsive $A_{Suth+} = 2k_B T b^2(T)$, l'accord entre les trois méthodes est conservé comme l'illustre la Figure III-10 pour $\ell_0=3$. Rappelons que pour cette

valeur de l'interaction la surface est rugueuse quelle que soit la distance entre marches (cf. Figure III-6).

Dans le cas attractif $A_{\text{Suth-}} = -\frac{1}{4}k_B T b^2(T)$, (voir Figure III-11 pour $\ell_0=3$) on observe un bon accord entre la simulation Monte Carlo et la méthode du cylindre. Le modèle des fermions conduit à un résultat différent. Ceci traduit un effet de réseau. La présence des sites introduit une coupure du potentiel pour $\ell < 1$, à l'origine de cette différence entre les distributions.

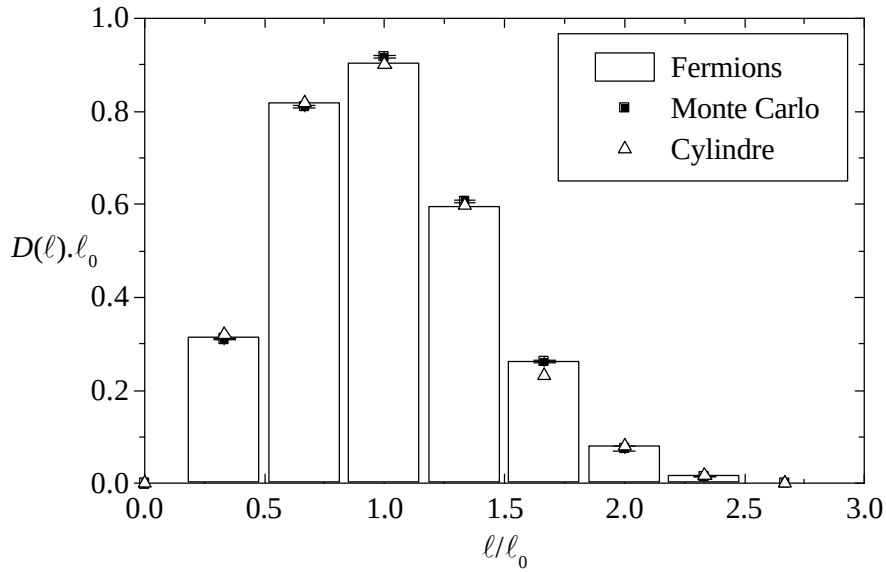


Figure III-9 : Distributions des largeurs de terrasses pour $A=0$ K et $\ell_0=3$ obtenues par le modèle des fermions libres (histogramme), la méthode du cylindre (Δ) et une simulation calcul Monte Carlo ($\blacksquare$) ($T=300$ K, $A=0$ K et $E_k=1430$ K, 76 marches $\times$ 1300 sites, moyenne statistique sur 4000 configurations, erreur calculée sur $nv=20$ intervalles de $nc=200$ configurations).

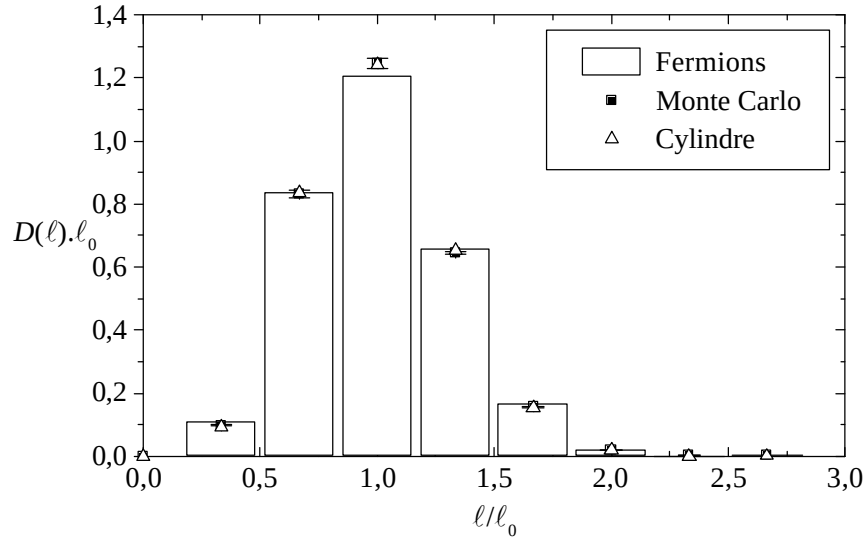


Figure III-10 : Distributions des largeurs de terrasses pour $A=A_{Suth+}$ et $\ell_0=3$ obtenues par le modèle des fermions libres (histogramme), la méthode du cylindre (Δ) et une simulation calcul Monte Carlo ($\blacksquare$) ($T=300$ K, $A= A_{Suth+}=10.38$ K et $E_k=1430$ K, conditions identiques au calcul reporté Figure III-9).

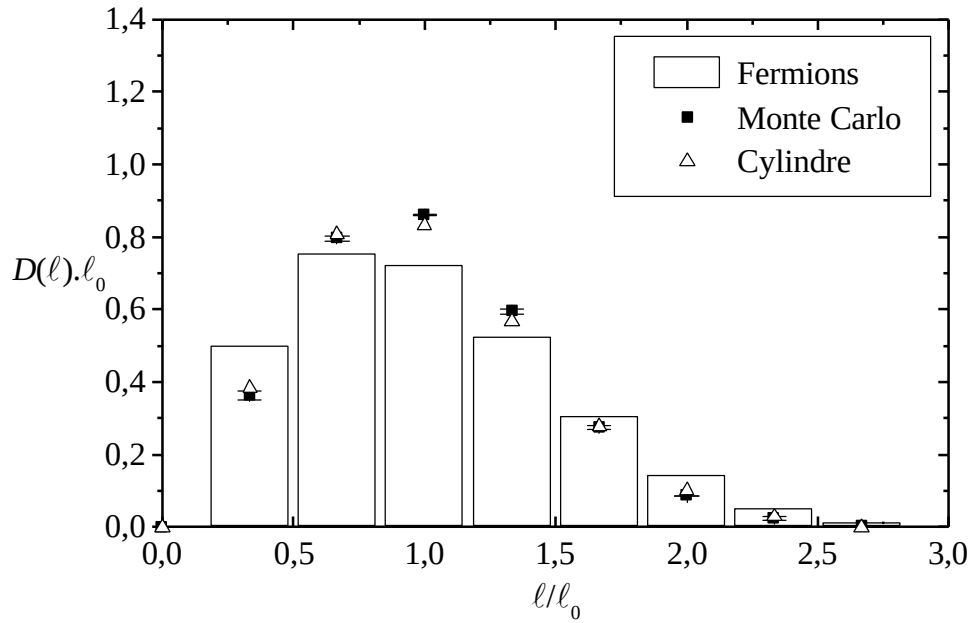


Figure III-11 : Distributions des largeurs de terrasses pour $A=A_{Suth-}$ et $\ell_0=3$ obtenues par le modèle des fermions libres (histogramme), la méthode du cylindre (Δ) et une simulation calcul Monte Carlo ($\blacksquare$) ($T=300$ K, $A= A_{Suth-}=-1.30$ K et $E_k=1430$ K, conditions identiques au calcul reporté Figure III-9).

Enfin, signalons que T. Guhr *et al* [3] ont déterminé une expression, appelée GWS (Gaussian Wigner Surmise), permettant d'interpoler les distributions des largeurs de terrasses entre ces trois valeurs, soit :

$$(III-7) \quad P_{l_{mar}}(h) = a_{l_{mar}} h^{2l_{mar}} \exp(-b_{l_{mar}} h^2)$$

$$\text{où} \quad b_{l_{mar}} = \left[\frac{\Gamma(l_{mar} + 1)}{\Gamma\left(\frac{2l_{mar} + 1}{2}\right)} \right]^2 \quad \text{et} \quad a_{l_{mar}} = \left[\frac{2(b_{l_{mar}})^{\frac{2l_{mar} + 1}{2}}}{\Gamma\left(\frac{2l_{mar} + 1}{2}\right)} \right]$$

l_{mar} étant défini par l'équation (II-46). Cette formule a été reprise et discutée par T. L. Einstein *et al.* [4].

On retrouve donc sur les distributions des largeurs de terrasses l'influence du réseau dans le cas $A < 0$ observée précédemment sur l'énergie libre.

L'équivalence avec un modèle de fermions est une solution analytique exacte, très utile pour valider de nouvelles méthodes. Cependant, elle ne permet pas de traiter des cas expérimentaux, car la distribution des largeurs de terrasses ne peut être calculée que pour trois valeurs particulières de l'interaction ($A = A_{suth-}$, $A = 0$ et $A = A_{suth+}$).

III-B.1.2. La variance des largeurs de terrasses

Une grandeur utile pour caractériser la distribution des largeurs de terrasses est son moment d'ordre 2 ou variance w^2 définie par :

$$(III-8) \quad G(1,0) = \langle (h_{1,0} - h_{0,0})^2 \rangle .$$

Cette grandeur peut être obtenue par les différentes méthodes que nous avons introduites.

Une première expression analytique de w^2 peut être obtenue dans le cadre du modèle capillaire en négligeant le second terme de l'équation (II-57) définissant h_y , soit :

$$(III-9) \quad w_{cap}^2 = \frac{2}{p^2 l_{mar}} \ell_0^2 = \frac{4}{p^2} \left(1 + \sqrt{1 + \frac{4A}{k_B T b^2(T)}} \right)^{-1} \ell_0^2 .$$

La comparaison suivante reprendra les résultats des modèles à une seule marche largement utilisés dans la littérature.

Marches sans interaction ($A=0$)

Dans le modèle de Grubber et Mullins [5] (marche libre entre deux murs durs ($-\ell_0$ et $+\ell_0$)), la variance s'écrit (voir § II-B.3.1.):

$$(III-10) \quad w_{GM}^2 = \ell_0^2 \left[1 - \frac{6}{p^2} \right],$$

On obtient par comparaison avec l'expression (III-9)) pour $A=0$:

$$(III-11) \quad w_{cap}^2 = \frac{2}{p^2 - 6} w_{GM}^2 \approx 0.52 w_{GM}^2,$$

quelle que soit la distance moyenne entre marches.

Marches en interaction ($A>0$)

La variance obtenue pour une marche fluctuant dans un potentiel harmonique (voir § II-B.3.2.) s'écrit :

$$(III-12) \quad w_{har}^2 = \sqrt{\frac{k_B T b^2(T)}{48A}} \ell_0^2 \quad \text{d'où} \quad w_{cap}^2 \approx \frac{8\sqrt{3}}{p^2} w_{har}^2;$$

pour $A \gg k_B T b^2(T)$, tout en conservant $T > T_R$.

Il en résulte que les modèles à une marche, du fait de l'absence de fluctuations des marches voisines, ne conduisent pas à des valeurs correctes de la variance de la largeur des terrasses.

T. Ihle *et al.* [6] ont étudié un système de marches à l'équilibre en se basant sur les équations non locales de Langevin issues du modèle de Burton-Cabrera-Frank [7]. Ce modèle les a conduits à proposer l'expression suivante pour la variance ($J=0.775$) :

$$(III-13) \quad w_{BCF}^2 = \frac{\sqrt{48} J}{p} \sqrt{\frac{k_B T b^2(T)}{48 A}} \ell_0^2 \quad \text{d'où} \quad w_{cap}^2 = 0.821 w_{BCF}^2.$$

Ce modèle surestime la variance car, contrairement au modèle capillaire, il ne tient pas compte de la répulsion entropique.

Les variances dans le cadre du modèle capillaire, pour les valeurs particulières, $A=0$ et $A=A_{suth+}$, de l'interaction sont en accord (voir Tableau III-1) avec l'approche des fermions de Joós *et al.* [8, Annexe IV]. Pour $A=A_{suth-}$, le second terme de l'équation (II-57) définissant la rigidité h_y diverge, et l'expression (III-9) n'est plus valable.

	$A=A_{suth-}$	$A=0$	$A=A_{suth+}$
$\frac{w_{cap}^2(A)}{\ell_0^2}$		$2/\pi^2$	$1/\pi^2$
$\frac{w_{fer}^2(A)}{\ell_0^2}$	0.25	0.18	0.10

Tableau III-1: Variances obtenues selon le modèle capillaire et le modèle des fermions.

Afin d'évaluer le domaine de validité de w_{har}^2 , de w_{cap}^2 et de w_{GWS}^2 (variance calculée selon l'expression (III-7)) un ensemble de valeurs de la variance a été calculée par la méthode du cylindre (w_{cyl}^2) pour différentes valeurs de E_k , A , T et ℓ_0 telles que $T > T_R$. En remarquant que les variances varient quadratiquement avec ℓ_0 et dépendent (comme l) de T , E_k et A seulement via le rapport $\frac{A}{k_B T b^2(T)}$, nous avons reporté Figure III-12 les quantités $w^2/\ell_0^2 = f(A/k_B T b^2(T))$.

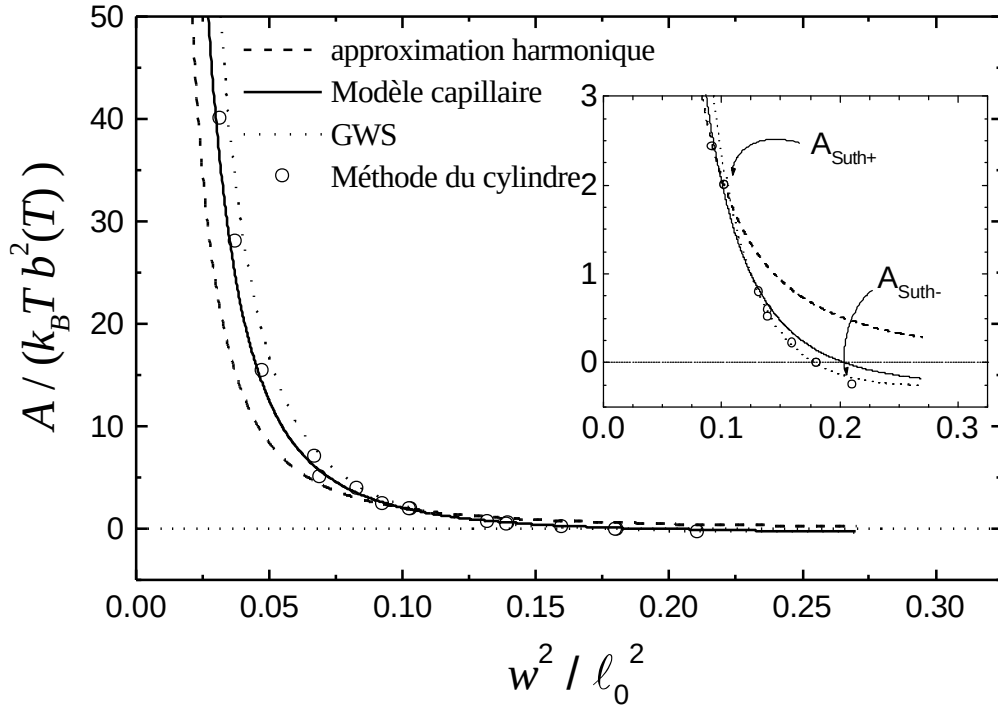


Figure III-12 : Pour $T > T_R$ la variance des largeurs de terrasses varie en $w^2/l_0^2 = f(A/k_B T b^2(T))$. (○) résultats de la méthode du cylindre pour différentes valeurs de A (-1 à 300 K), l_0 (2.5 à 6), et T (250 à 500 K). L'encadré est un agrandissement pour les petites valeurs de $A/k_B T b^2(T)$.

Ainsi nous montrons, par la comparaison avec les résultats de la méthode du cylindre, la validité de l'expression w_{GWS}^2 pour $A < A_{suth+}$. Rappelons cependant que la distribution associée n'est pas correcte pour un système sur réseau pour $A = A_{suth-}$. L'expression analytique w_{cap}^2 est en accord avec w_{cyl}^2 pour $A > A_{suth+}$ et $T > T_R$, ce qui montre que les effets de réseau sont bien négligeables dans cette gamme de température. Cependant, nous verrons dans le chapitre suivant, que cette formule approchée n'est plus valable pour $T \leq T_R$.

III-B.1.3. Distribution universelle des largeurs de terrasses à $T=T_R$

Les expressions analytiques précédentes ne sont valables que pour $T > T_R$. Nous avons alors examiné la distribution des largeurs de terrasses autour de T_R .

Un critère permettant de définir la température de transition rugueuse est l'égalité à $\frac{2}{p^2}$ du préfacteur du logarithme dans $G(m,0)$. En utilisant la relation (II-62), w_{cap}^2 à T_R est donnée par :

$$(III-14) \quad w_{cap}^2 = \frac{4}{p^2} .$$

La variance a donc une valeur universelle à T_R et en particulier elle ne dépend pas de ℓ_0 .

L'équation (III-14) montre que la loi d'échelle $w^2/\ell_0^2 = f(A/k_B T b^2(T))$ obtenue au-dessus de T_R , n'est plus vérifiée à T_R . Sur la Figure III-13 on observe bien qu'au voisinage et en dessous de T_R , les approches analytiques (approximation harmonique (III-12), modèle capillaire (III-9) et interpolation GWS (III-7)) ne sont plus valides.

Pour une excitation des marches limitée à $\ell_0 \pm 1$, on pourrait penser que l'approximation harmonique est correcte. Il n'en est rien car le potentiel harmonique est beaucoup plus faible que le potentiel réel pour $\ell_0 \pm 2$ (voir Figure III-14). Ainsi, la probabilité d'avoir des terrasses de longueur $\ell_0 \pm 2$ est non négligeable, ce qui conduit à une surestimation de la variance.

Expérimentalement, Hoogemans *et al.* [9] ont déterminé T_R pour la face Ag(1,1,5) en mesurant le préfacteur du logarithme. A T_R ils ont obtenu une variance $w_{exp}^2 \approx 0.38$, en accord avec l'équation (III-14). Dans un autre exemple, la distribution mesurée sur la face Cu(1,1,7) par M. Giesen *et al.* [10] ($w_{exp}^2 \approx 0.66$ à $T=300$ K) montre que T_R se situe légèrement sous la température ambiante pour cette surface.

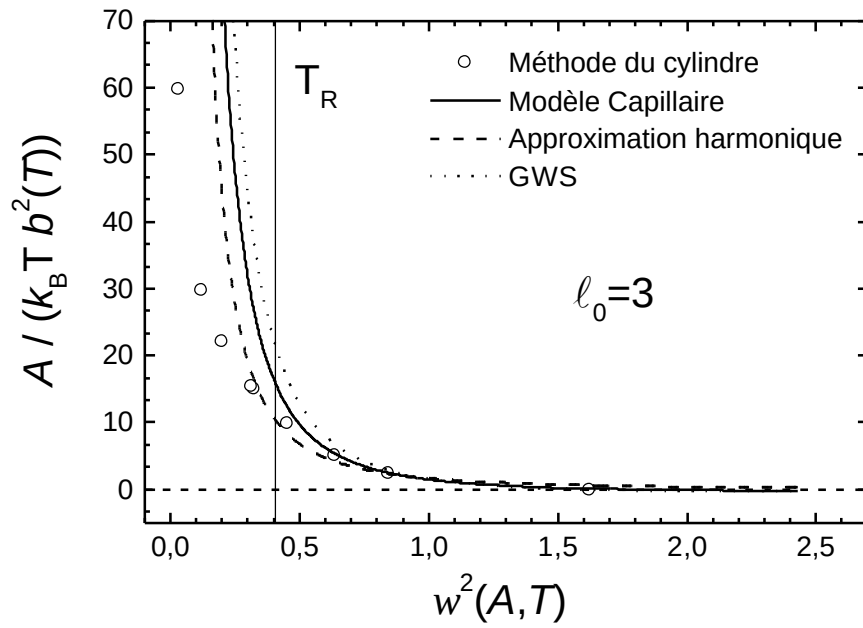


Figure III-13 : variance de la distribution des largeurs de terrasses pour $\ell_0=3$. ($E_k=1430$ K, $T=293$ K, A variant de 0 à 270 K). $w^2(A, T)$ calculée par la méthode du cylindre suit le modèle capillaire pour $T > T_R$. Au voisinage de T_R , $w^2(A, T)$ dévie du modèle capillaire pour rejoindre sa valeur universelle $4/\pi^2$.

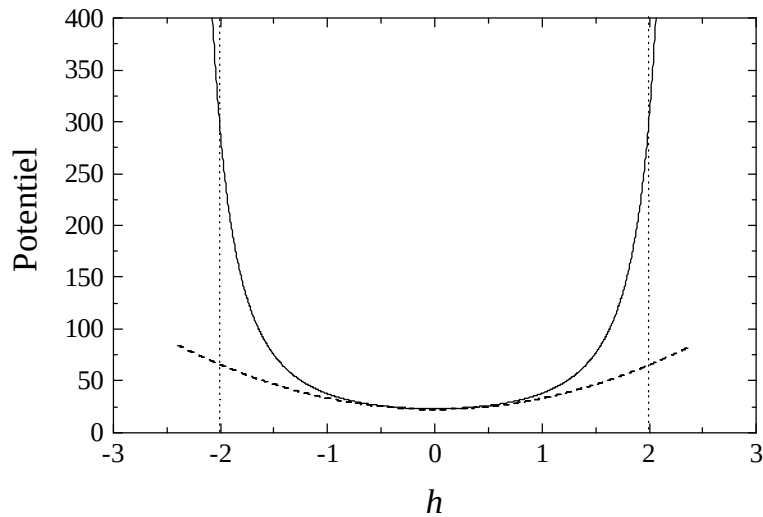


Figure III-14 : Potentiel subi par une marche entourées de deux marches droites : (—) potentiel réel en A/ℓ^2 (Eq (II-13)). (---) Approximation harmonique du potentiel précédent (Eq (II-14)).

La distribution des largeurs de terrasses a été calculée par la méthode du cylindre à T_R pour différentes faces vicinales (de $\ell_0=2.5$ à 5.5) pour une interaction entre toutes les marches $A=70$ K et $E_k=1430$ K. T_R a été déterminée en utilisant l'équation (II-63) avec l'expression complète de h_y . Les résultats sont présentés sur la Figure III-15. On observe que l'histogramme est indépendant de ℓ_0 . Nous avons de plus vérifié que ce résultat est indépendant des valeurs de A et E_k .

On observe sur la distribution des largeurs de terrasses à T_R que les probabilités d'avoir des terrasses de longueur ℓ_0+2 ou ℓ_0-2 est quasiment nulle. En les supposant négligeables, les probabilités d'avoir des terrasses de longueur $\ell_0\pm 1$ sont données par : $P_{+1} = P_{-1} = \frac{2}{p^2}$ et $P_0 = 1 - \frac{4}{p^2}$. La distribution est donc très simple.

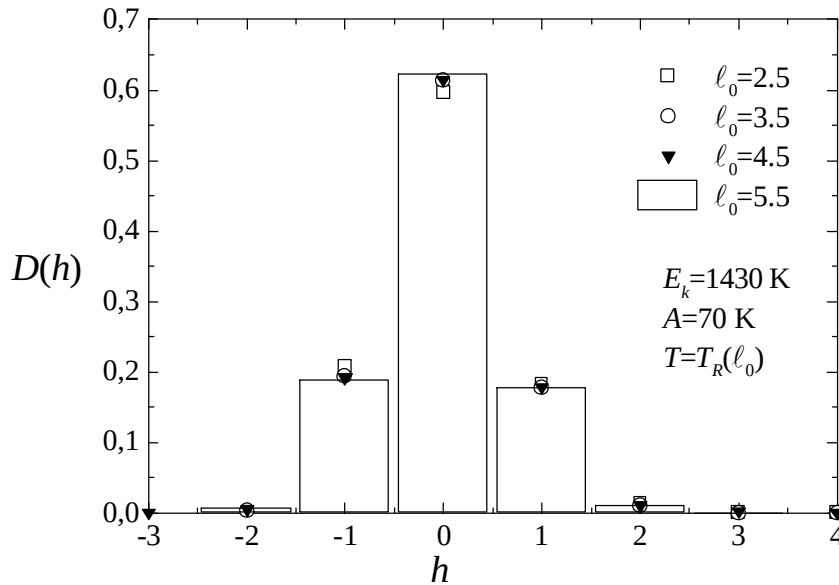


Figure III-15 : Distribution des largeurs de terrasses obtenue par la méthode du cylindre pour $E_k=1430$ K, $A=70$ K (interaction entre toutes les marches) et $\ell_0=2.5$ à 5.5 pour $T=T_R(\ell_0)$ (Eq. (II-63) en utilisant les expressions complètes de h_x (II-56) et de h_y (II-57)).

En conclusion, seules les méthodes tenant compte de la position discrète des marches telles que la méthode du cylindre ou les simulations Monte Carlo permettent d'obtenir des valeurs correctes de la variance de la largeur des terrasses au passage de la transition rugueuse.

Nous avons montré que l'histogramme des largeurs de terrasses est universel à T_R . La simplicité d'utilisation de la méthode du cylindre nous a permis de largement vérifier ce point.

La température de transition rugueuse peut être déterminée en ne mesurant que la distribution des largeurs de terrasses. Nous obtenons ainsi un critère local pour la rugosité.

III-B.2. Rigidité et potentiel de localisation pour $T < T_R$

Au-dessus de T_R on dispose de formules analytiques permettant de déterminer les paramètres énergétiques A et E_k à partir des fonctions de corrélation via les rigidités de surface h_x et h_y . Ce n'est plus le cas sous T_R , où l'évolution en températures de h_x , h_y et V_{loc} n'est pas connue. Nous avons alors examiné le comportement au passage de la transition rugueuse de ces paramètres sur un exemple particulier ($A_{MC}=280$ K et $E_k=1390$ K).

Pour ceci h_x , h_y et V_{loc} , ont été déterminés en ajustant les fonctions de corrélation $G(m,0)$ et $G(0,y)$ du modèle capillaire sur celles obtenues par simulation Monte Carlo.

Notre algorithme Monte Carlo impose de considérer une interaction entre marches premières voisines. Un ajustement des fonctions de corrélation pour $T > T_R$ conduit à $V_{loc}=0$ et à une valeur de $A_{cap}=170$ K naturellement inférieure à A_{MC} , que nous avons conservée pour $T < T_R$. Villain *et al.* [11] ont montré que l'on peut négliger les effets de la renormalisation sur h_x . L'expression (II-56) peut donc être utilisée au-dessus et en-dessous de T_R .*

L'ajustement des fonctions de corrélation sous T_R est réalisé avec les deux derniers paramètres h_y et V_{loc} .

Deux exemples des ajustements ainsi réalisés, l'un au-dessus et l'autre en-dessous de T_R , sont représentés sur la Figure III-16 et la Figure III-17.

* Cette approximation a été vérifiée dans le petit domaine de température sous T_R où $G(m,0)$ varie significativement avec m .

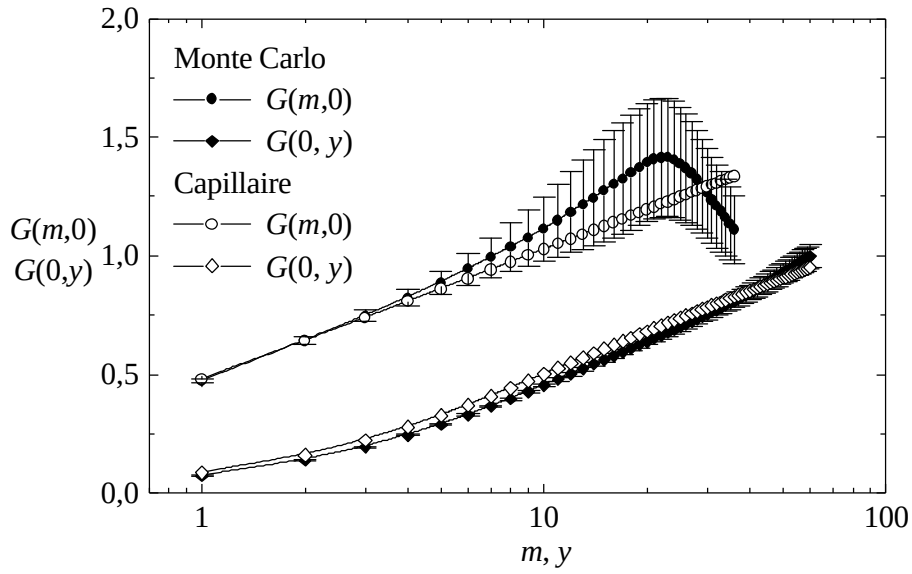


Figure III-16 : Ajustement à $T=500\text{ K} (>T_R=450\text{ K})$ des fonctions de corrélation calculées par le modèle capillaire sur les fonctions de corrélation obtenues par simulations Monte Carlo. Ces simulations sont réalisées sur un système de 76 marches $\times$ 1300 sites. Après 6000 configurations de mise à l'équilibre, la moyenne statistique est calculée sur 4000 configurations.

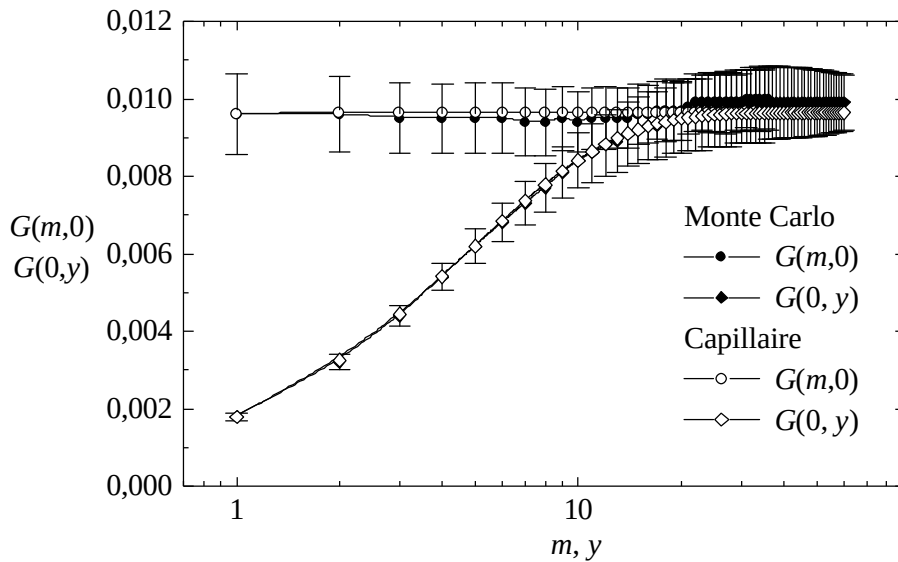


Figure III-17 : Ajustement à $T=300\text{ K} (<T_R=450\text{ K})$ des fonctions de corrélation calculées par le modèle capillaire sur les fonctions de corrélation obtenues par simulations Monte Carlo. Ces simulations sont réalisées sur un système de 76 marches $\times$ 1300 sites. Après 6000 configurations de mise à l'équilibre, la moyenne statistique est calculée sur 4000 configurations.

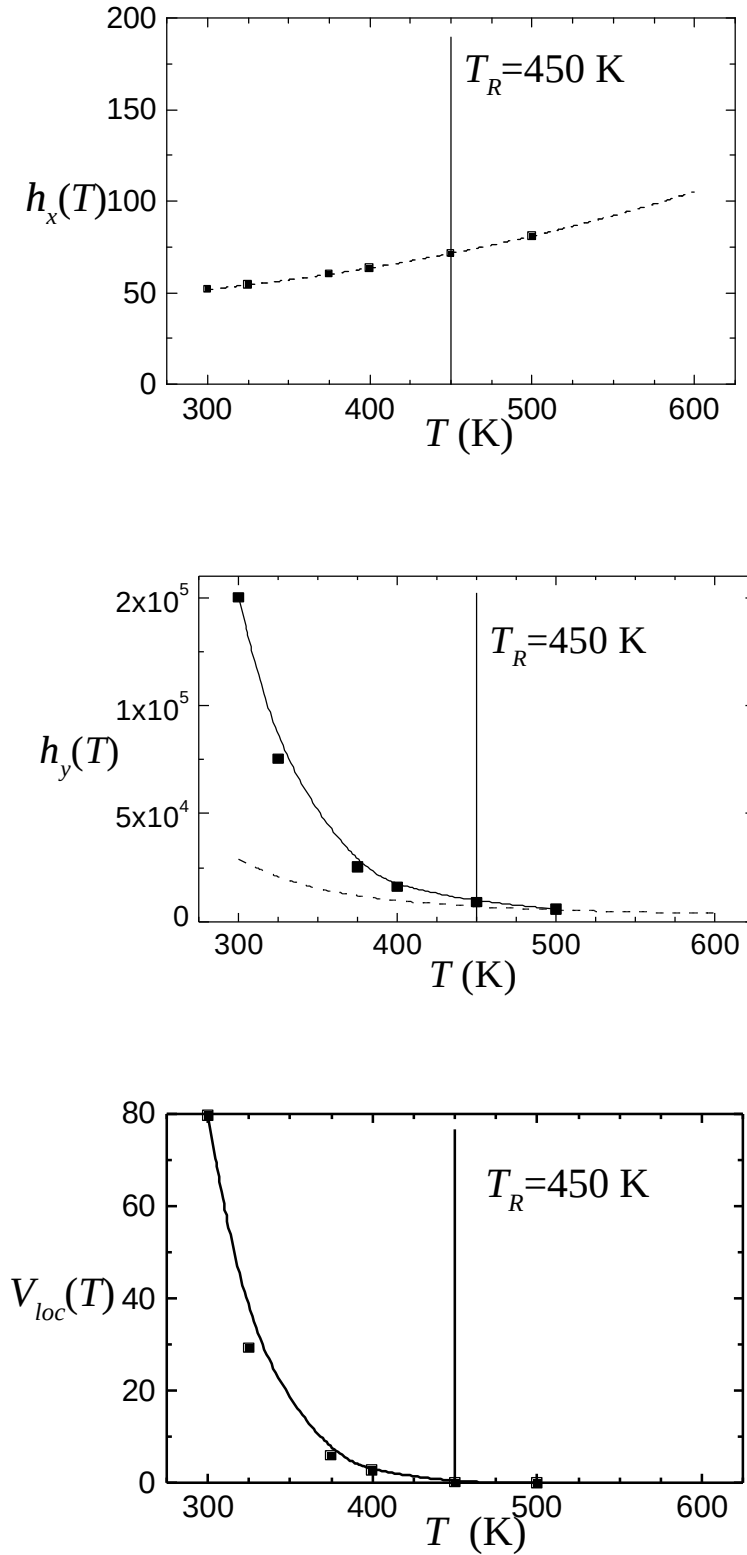


Figure III-18 : h_x , h_y et V_{loc} (en Kelvin) en fonction de T ($E_k=1390$ K, $A_{cap}=170$ K, $\ell_0=2.5$). (■) valeurs obtenues en ajustant les fonctions de corrélation avec les équations (II-51) et (II-52) sur des simulations Monte Carlo ($E_k=1390$ K, $A_{MC}=280$ K, $\ell_0=2.5$), les lignes continues sont des guides pour les yeux. Les tirets : h_x et h_y donnés par les équations (II-56) et (II-57).

L'évolution de h_x , h_y et V_{loc} en fonction de la température est représentée sur la Figure III-18. On observe que sous T_R , V_{loc} devient non nul et que h_y diffère très fortement de sa valeur donnée par Eq. (II-57).

Ces résultats montrent qu'à partir des fonctions de corrélation mesurées sur des images STM sous T_R , on peut déterminer les trois paramètres h_x , h_y et V_{loc} . Cependant, comme nous l'avons déjà signalé, nous ne disposons pas de relation permettant de connaître A et E_k , dont la détermination nécessite l'utilisation d'un calcul Monte Carlo ou de la méthode du cylindre.

III-B.3. Conclusion

L'analyse des résultats expérimentaux, c'est-à-dire de la distribution des largeurs de terrasses et des fonctions de corrélation $G(m,0)$ et $G(0,y)$, peut se faire en utilisant des modèles à une ou plusieurs marches.

Les méthodes à une marche ne conduisent pas à des résultats satisfaisants ni pour l'énergie d'interaction ni pour l'énergie de cran. Il est donc nécessaire d'utiliser des modèles à plusieurs marches qui retranscrivent correctement le comportement d'une surface réelle.

Pour traiter les modèles à plusieurs marches, nous avons introduit le modèle capillaire, la simulation Monte Carlo et la méthode du cylindre, appliquée ici pour la première fois aux cas des surfaces vicinales.

Au-dessus de T_R , les formules analytiques du modèle capillaire permettent la détermination de A et E_k (pas d'effet de réseau).

Nous avons montré qu'à T_R l'histogramme des largeurs de terrasses est universel. Ceci fournit un critère local pour la détermination de T_R .

Sous T_R , les rigidités h_x , h_y et le potentiel de localisation V_{loc} peuvent être déterminés à partir des fonctions de corrélation du modèle capillaire, qui a été étendu sous la température de transition rugueuse. Seules les simulations numériques Monte Carlo et la méthode du cylindre, qui tiennent compte du réseau, permettent d'atteindre A et E_k dans ce cas.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] C. Herring, Phys. Rev. **82** (1951) 87.
- [2] C. Jayaprakash, W.F. Saam et S. Teitel, Phys. Rev Lett. **50** (1983) 2017.
C. Jayaprakash, C. Rottman et W.F. Saam, Phys. Rev **B 30** (1984) 6549.
- [3] T. Guhr, A. Müller-Groeling et H.A. Weidenmüller, Phys. Rept. **299** (1998) 189.
- [4] T.L. Einstein et O. Pierre-Louis, Surf. Sci. **424** (1999) L299.
- [5] E.E. Gruber et W.W. Mullins, J. Phys. Chem. Solids. **28** (1967) 875.
- [6] T. Ihle, C. Misbah et O. Pierre-Louis, Phys. Rev. **B 58** (1998) 2289.
- [7] W.K. Burton, N. Cabrera et F.C. Frank, Philos. Trans. R. Soc. London, Ser. **A 243** (1951) 299.
- [8] B. Joós, T.L. Einstein et N.C. Bartelt, Phys. Rev. **B 43** (1991) 8153.
- [9] M.S. Hoogeman, M.A.J. Klik, D.C. Schlösser, L. Kuipers et J.W.M. Frenken, Phys. Rev. Lett. **82** (1999) 1728.
- [10] J. Frohn, M. Giesen, M. Poensgen, J.F. Wolf, et H. Ibach, Phys Rev. Lett. **67** (1991) 3543.
- [11] J. Villain, D.R. Grimpel et J. Lapujoulade, J. Phys. **F 15** (1985) 809.

CHAPITRE IV :

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

IV-A. Introduction

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

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

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

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

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

IV-B. Techniques expérimentales

IV-B.1. La microscopie à effet tunnel

IV-B.1.1. Bref historique

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

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

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

IV-B.1.2. L'effet tunnel

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

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

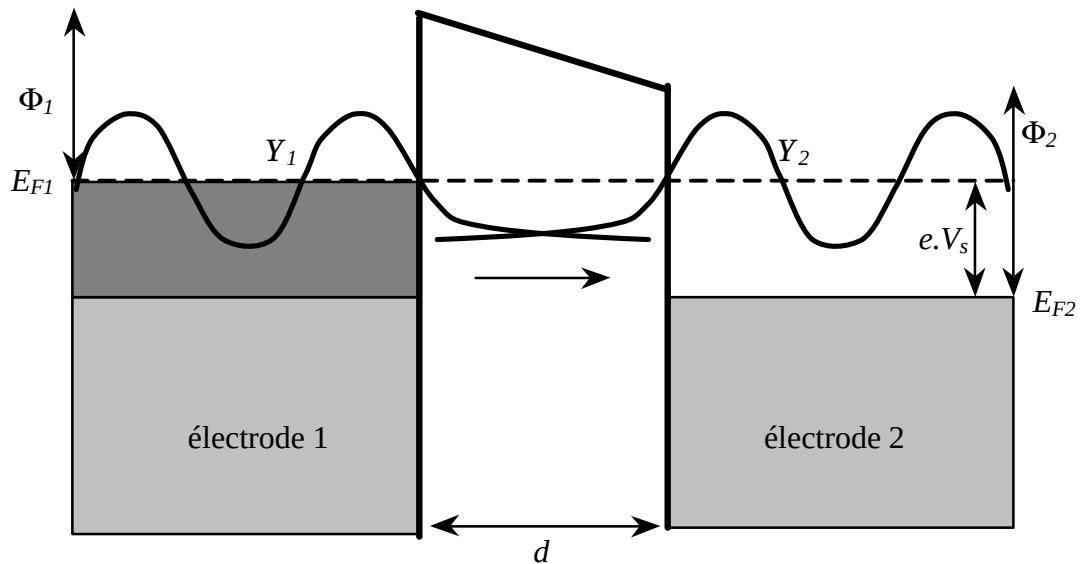


Figure IV-1 : Principe de l'effet tunnel dans une jonction métal-vide-métal : allure des fonctions d'onde des états électroniques. Les électrons qui contribuent sont sélectionnés dans la fenêtre $E_{F1}, E_{F1}-e.V_s$. Ils vont se déplacer des états occupés de l'électrode 1 vers les états vacants de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

IV-B.1.3. Le courant tunnel

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

avec E_F le niveau de Fermi de la surface.

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

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

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

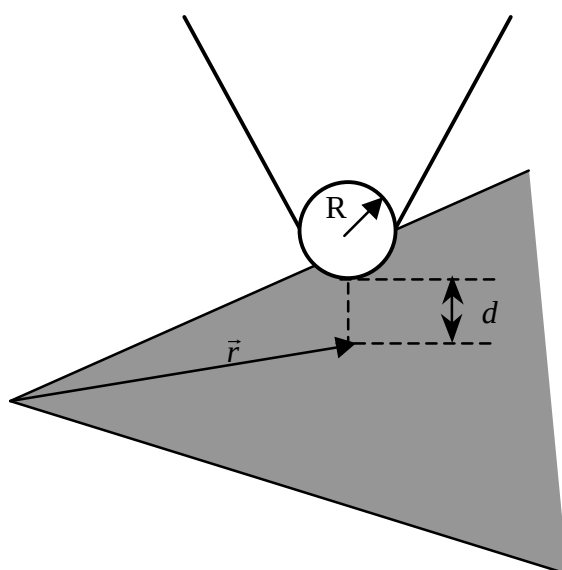


Figure IV-2 : Modèle de Tersoff et Hamann : la pointe est modélisée localement par une sphère de rayon R .

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

Cette conclusion se fonde sur l'hypothèse des faibles tensions V_s . Pour une tension non négligeable (en général $V_s=1$ V pour le cuivre) le courant tunnel ne dépend plus seulement de la fonction d'onde associée au niveau de Fermi, mais dépend également de l'ensemble des fonctions d'onde associées aux niveaux situés entre E_{F1} et $E_{F1}-e.V_s$ de l'échantillon (voir Figure IV-1).

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

IV-B.1.4. L'enregistrement des images

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

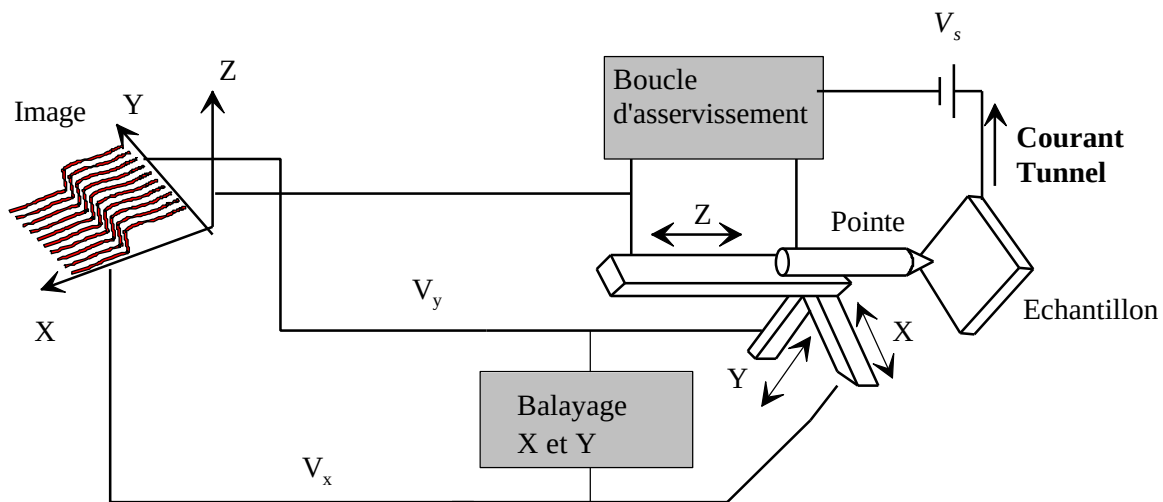


Figure IV-3 : Principe de fonctionnement du microscope à effet tunnel.

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

Le mode courant constant

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

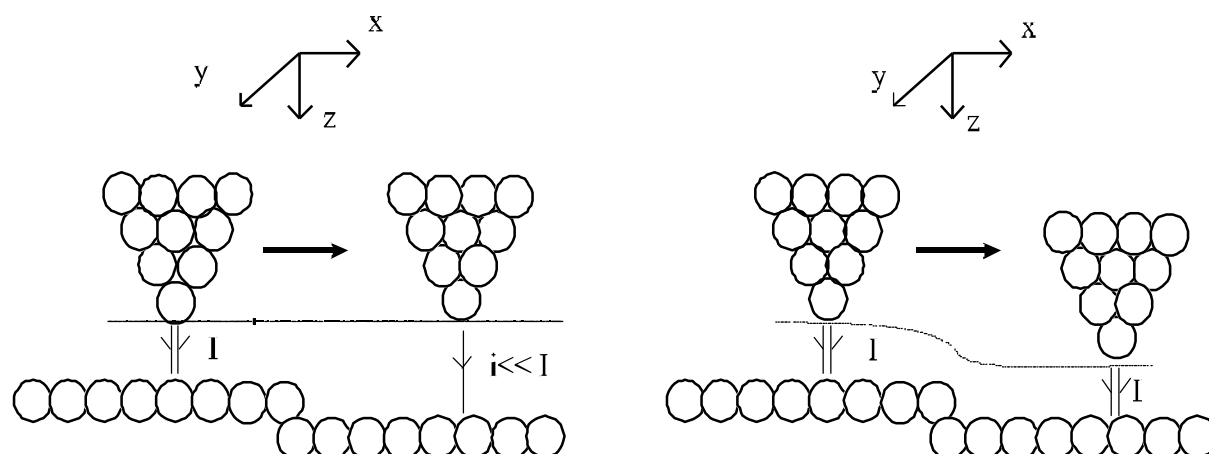


Figure IV-4 : Illustration des deux modes de fonctionnement du STM : mode hauteur constante (figure de gauche) et mode courant constant (figure de droite).

Le mode hauteur constante

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

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

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

IV-B.2. Dispositif expérimental

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

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

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

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

IV-B.2.2. Le dispositif STM

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

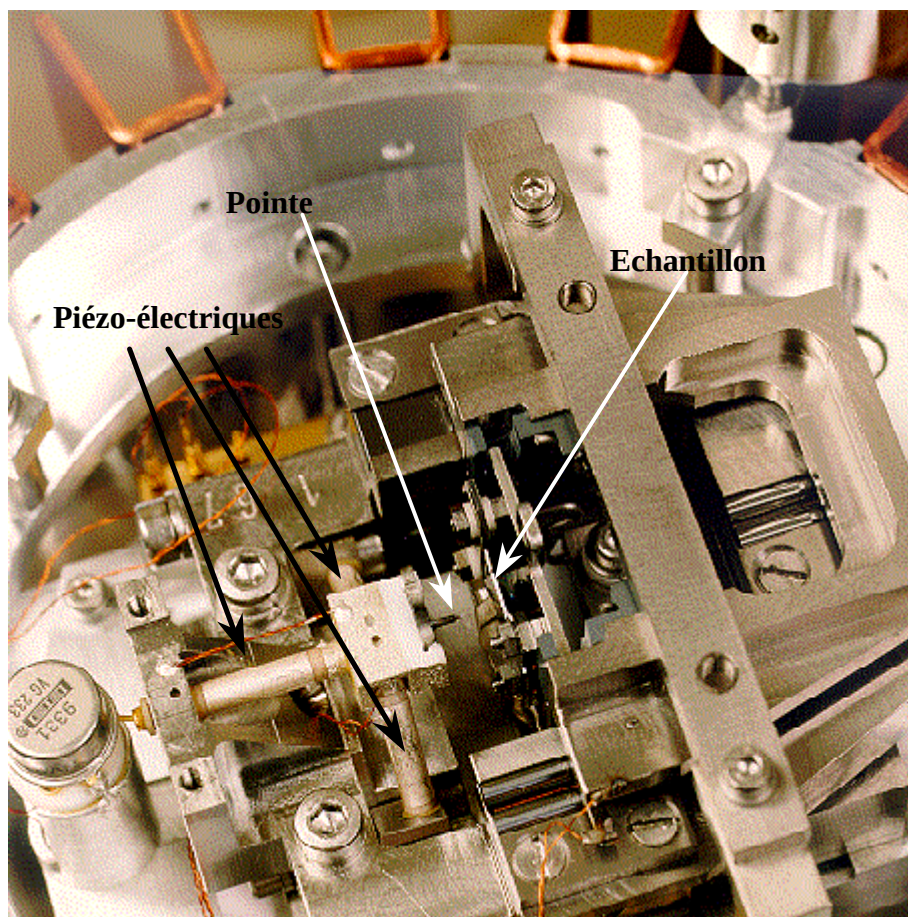


Figure IV-5 : STM OMICRON® fonctionnant à la température ambiante.

- *Le microscope à température ambiante*

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

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

- *Le microscope à température variable*

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

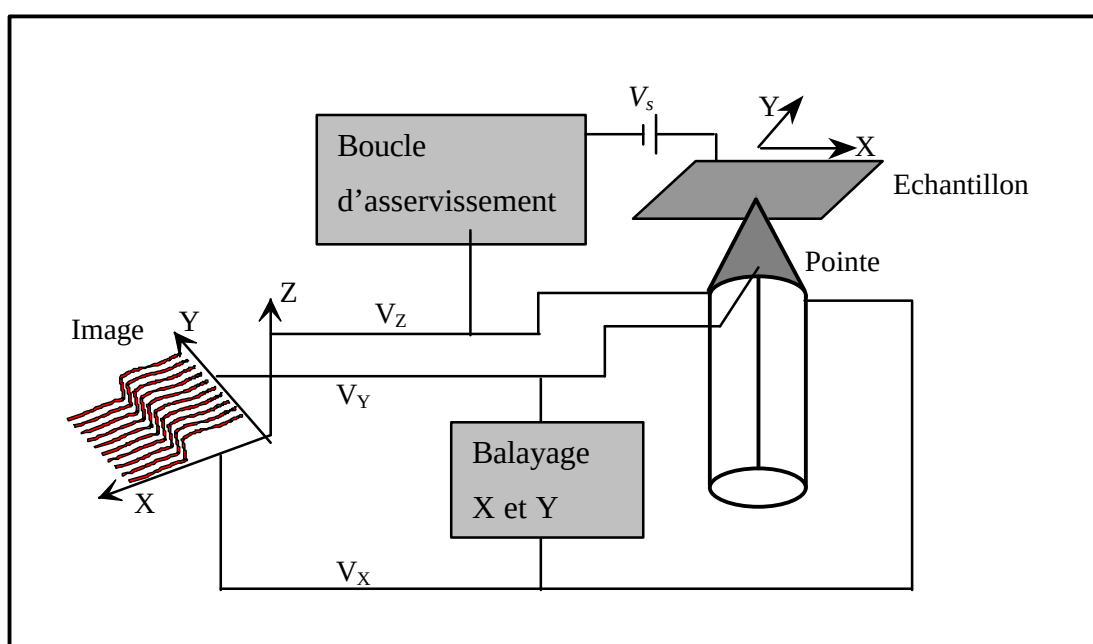


Figure IV-6 : Principe de fonctionnement du STM à température variable.

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

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

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

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

- *Le système anti-vibration*

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

- *L'acquisition des images*

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

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

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

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

IV-B.3. Préparation des pointes STM

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

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

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

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

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

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

IV-C.1. Préparation de l'échantillon

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

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

IV-C.2. Conditions d'acquisition

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

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

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

IV-C.3. Les images spatiales

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

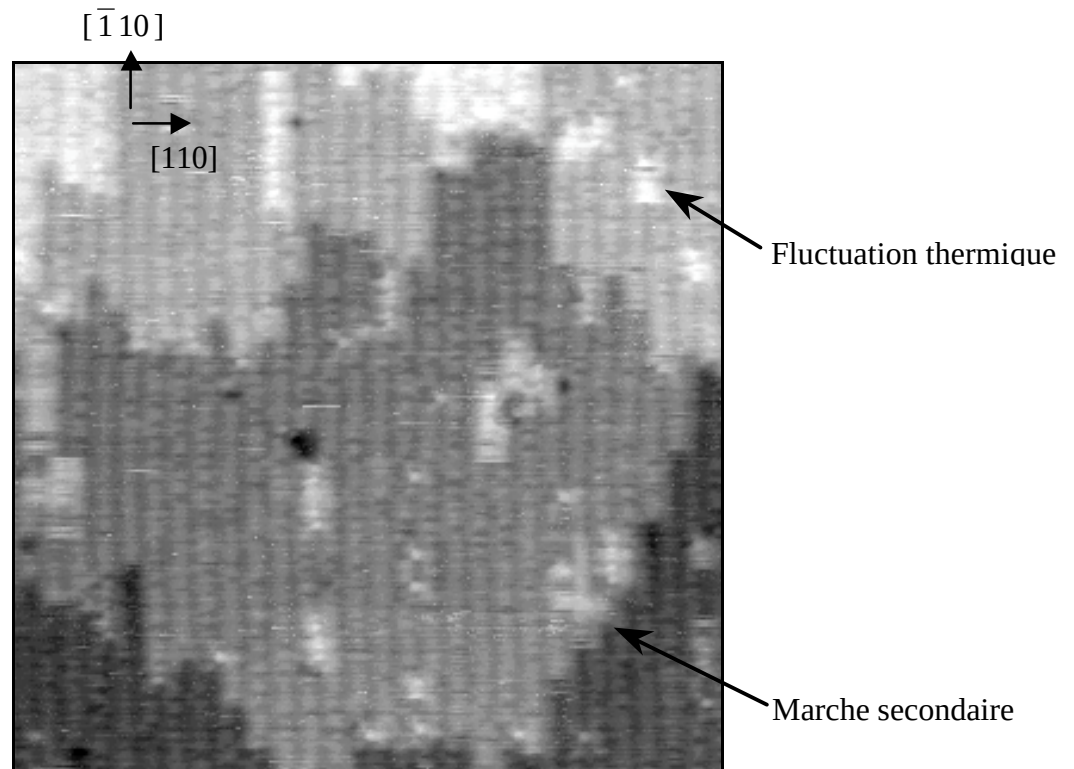


Figure IV-7 : Image STM spatiale ($200\text{\AA} \times 200\text{\AA}$) enregistrée à $T=300\text{ K}$.
($I=0.78\text{ nA}$ et $V_s=1.1\text{ V}$)

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

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

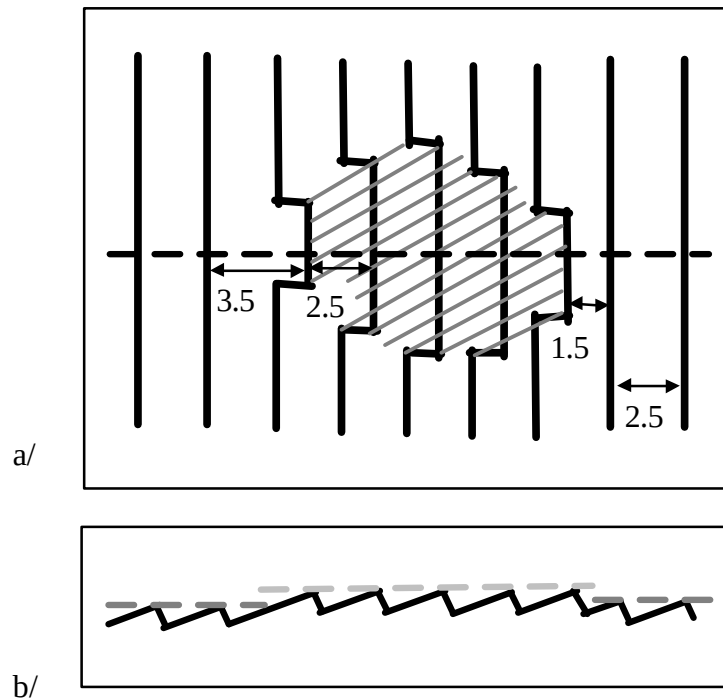


Figure IV-8 : a/ Vue de dessus d'un domaine délimité par une marche secondaire.

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

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

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

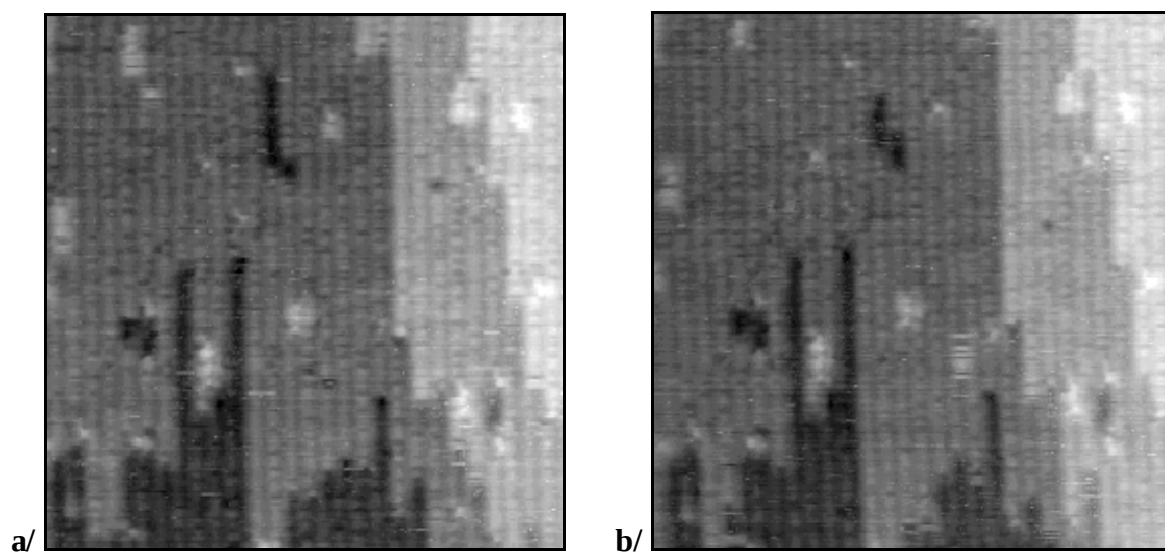


Figure IV-9 : Deux images STM spatiales à $T=300$ K de la même zone de la surface ($200\text{\AA} \times 200\text{\AA}$), enregistrées à 10 min. d'intervalle (a/ puis b/) ($I=0.75$ nA et $V_s=1.10$ V).

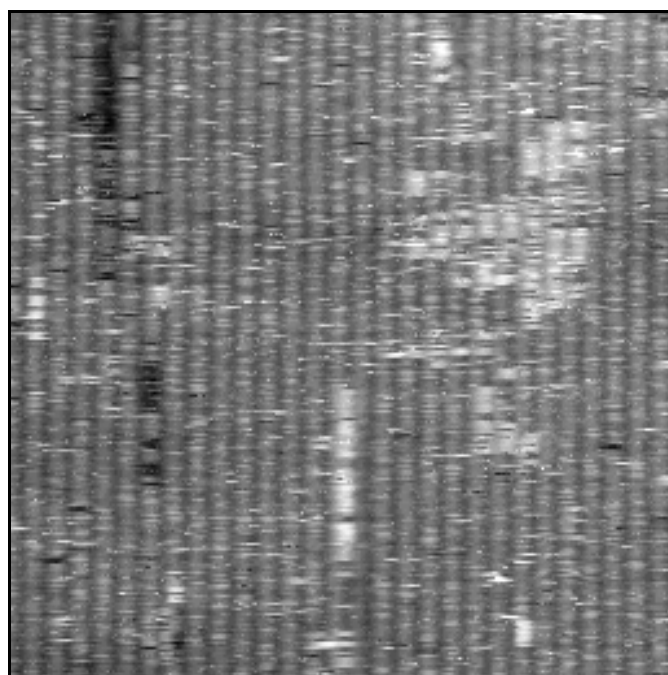


Figure IV-10 : Image STM spatiale ($200\text{\AA} \times 200\text{\AA}$) enregistrée à $T=325$ K. ($I=0.83$ nA et $V_s=0.84$ V)

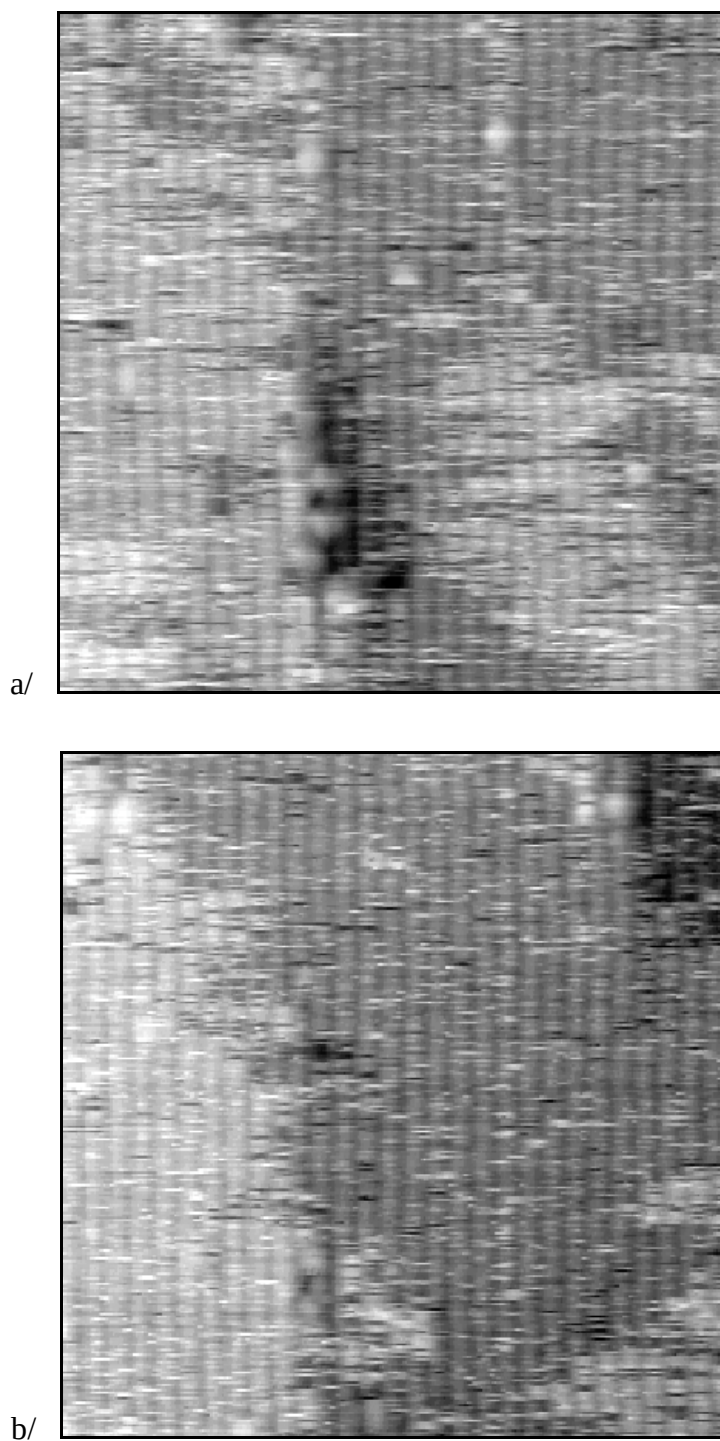


Figure IV-11 : Deux images STM spatiales ($200\text{\AA} \times 200\text{\AA}$) de la même zone de la surface à $T=365\text{ K}$, enregistrées à 25 secondes d'intervalle (a/ puis b/). ($I=0.48\text{ nA}$ et $V_s=0.94\text{ V}$)

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

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

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

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

IV-C.4. Les images temporelles

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

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

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

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

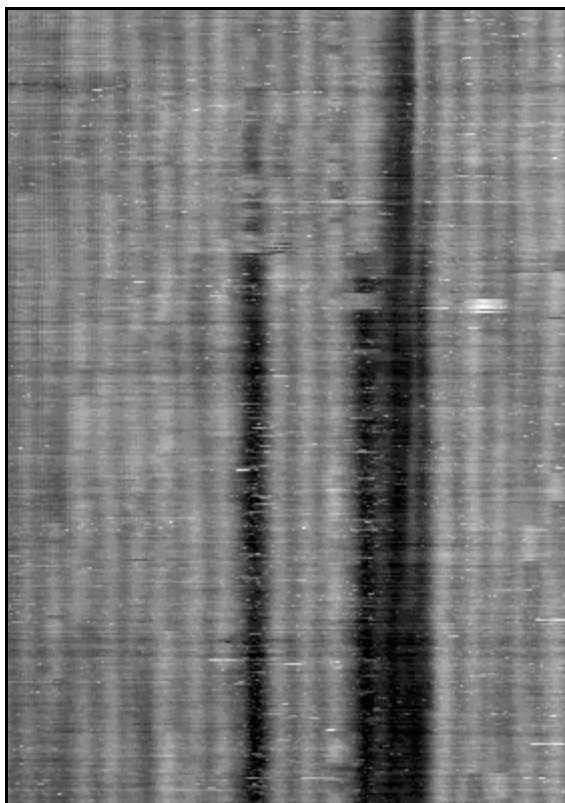


Figure IV-12 : Image STM temporelle ($140\text{\AA} \times 80\text{s}$) à $T=300\text{ K}$. Pour réaliser cette image une même ligne de $140\text{\AA}$ de long a été enregistrée 400 fois à intervalle de temps de 0.2 s .

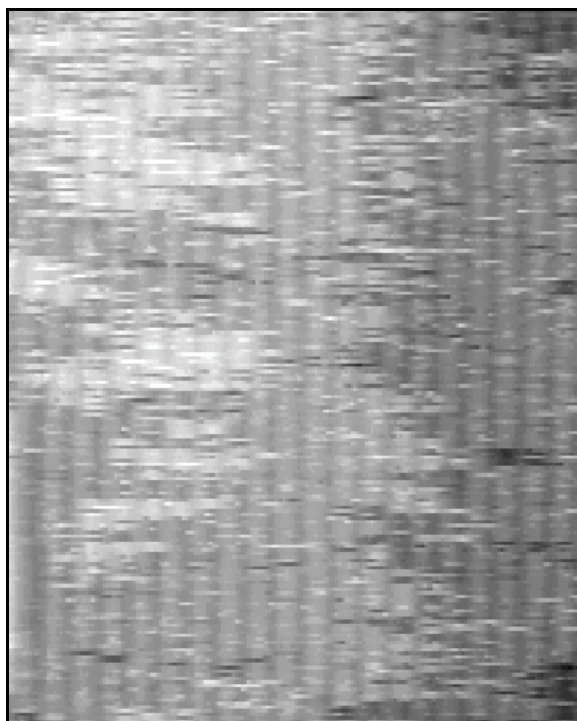


Figure IV-13 : Image STM temporelle ($140\text{\AA} \times 20\text{s}$) à $T=365\text{ K}$. Pour réaliser cette image une même ligne de $140\text{\AA}$ de long a été enregistrée 200 fois à intervalle de temps de 0.1 s .

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

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

IV-C.5.1. Fonctions de corrélation spatiale

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

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

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

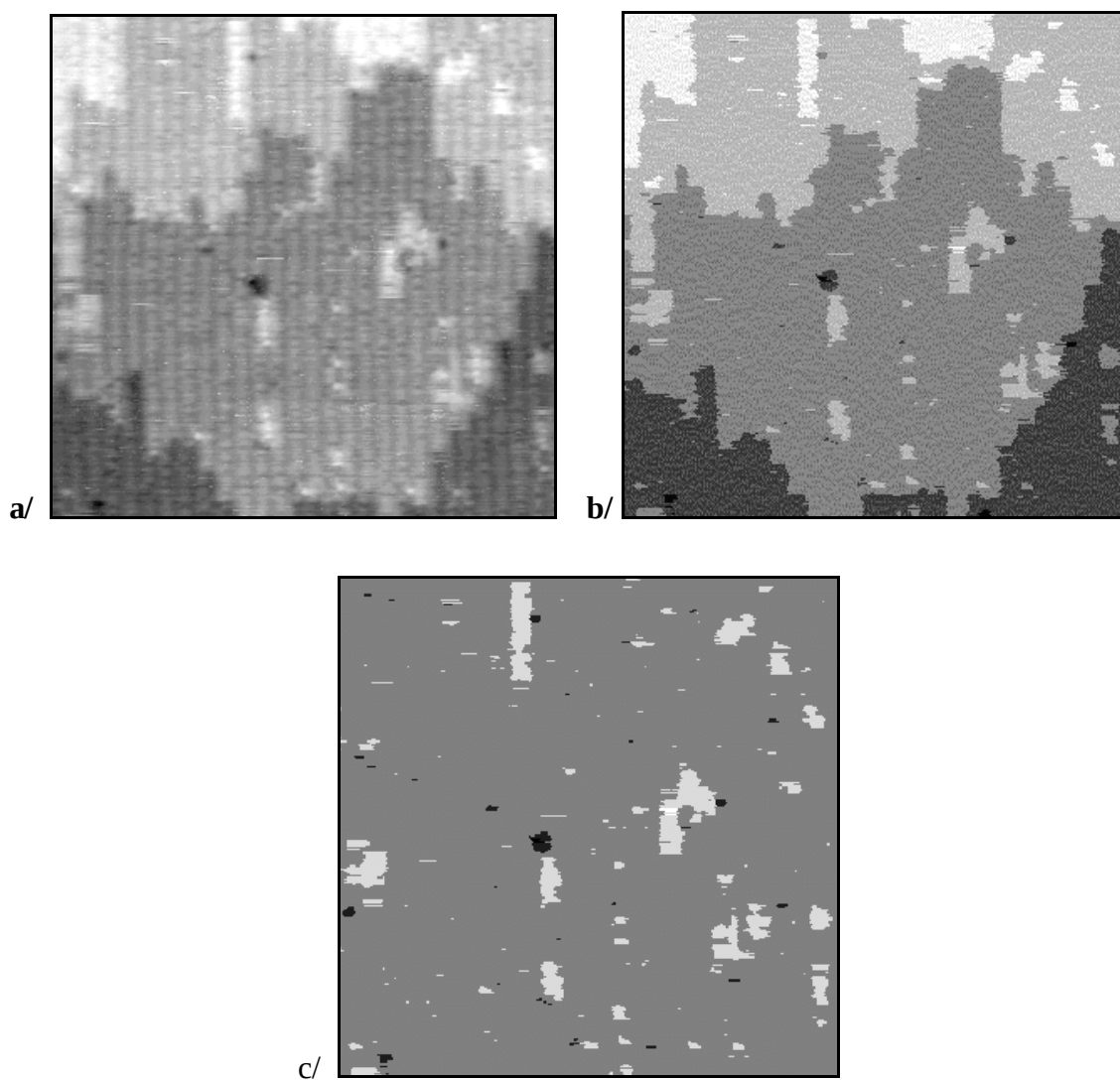


Figure IV-14 : a/ Image spatiale identique à la Figure IV-7.

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

c/ Image b/ après retrait des marches secondaires.

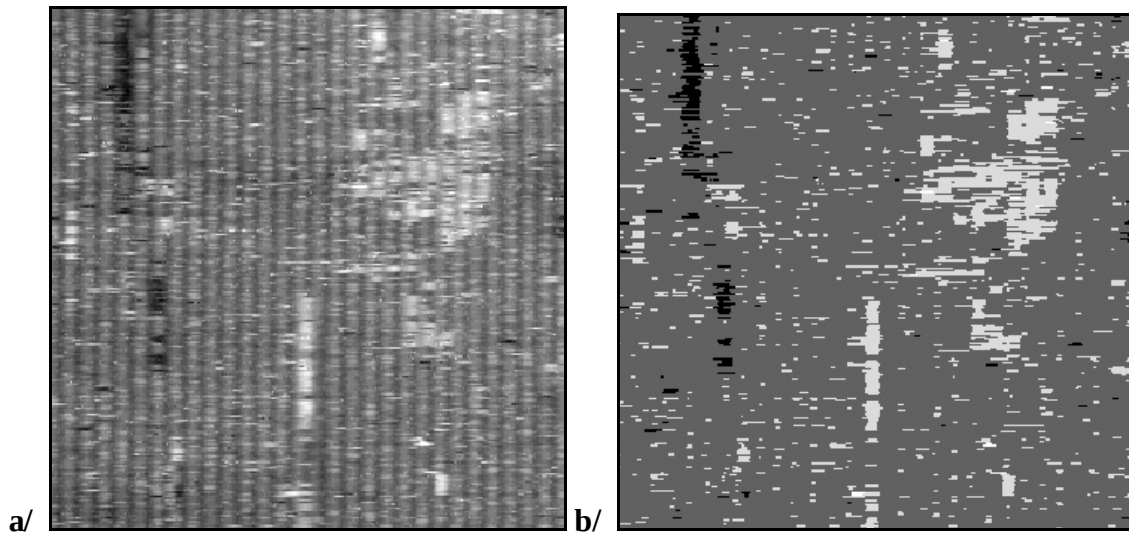


Figure IV-15 : a/ Image spatiale identique à la Figure IV-10.

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

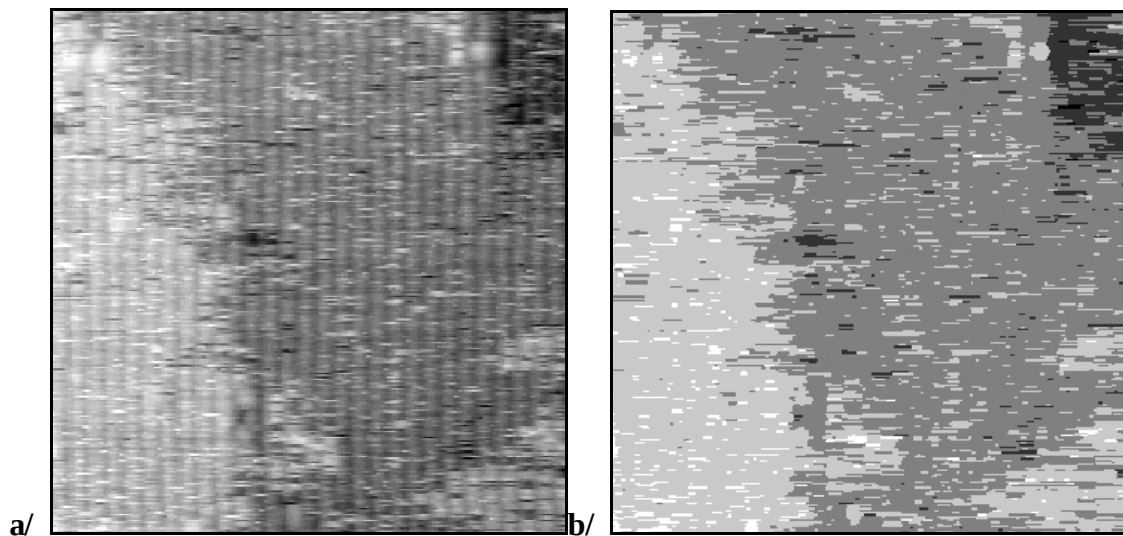


Figure IV-16 : a/ Image spatiale identique à la Figure IV-11 b.

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

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

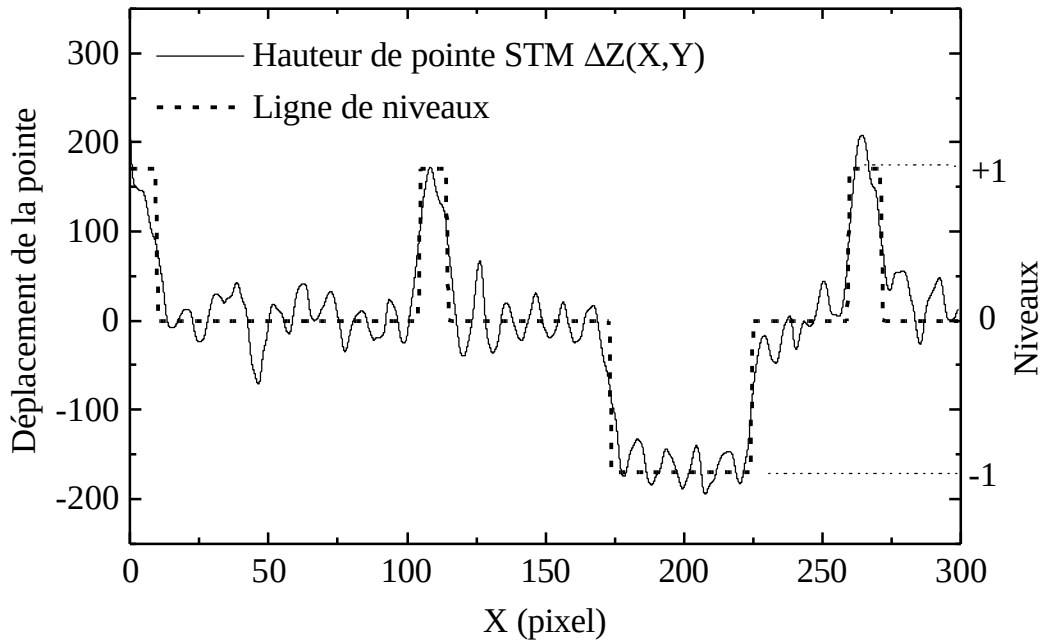


Figure IV-17 : Illustration de la mise en niveaux d'une ligne d'image STM. (—) le signal STM $\Delta Z(X,Y)$. (- - -) ligne de niveaux. La ligne de balayage est tirée de l'image enregistrée à 300 K de la Figure IV-7. Chaque maximum local correspond à la position d'un bord de marche.

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

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

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

	T=300 K	T=325 K	T=365 K
Images spatiales	8 images de $200 \text{ \AA}^2$ à $300 \text{ \AA}^2$ ≈ 34000 sites, soit $8.8 \text{ \mu m}$ de longueur de bord de marches	4 images de $300 \text{ \AA}^2$ ≈ 14300 sites, soit $3.6 \text{ \mu m}$ de longueur de bord de marches	6 images de $200 \text{ \AA}^2$ ≈ 13500 sites, soit $3.4 \text{ \mu m}$ de longueur de bord de marches
Images temporelles	8 images de $140 \text{ \AA} \times 500$ lignes ≈ 76000 données	4 images de $90 \text{ \AA} \times 520$ lignes ≈ 27000 données	4 images de $180 \text{ \AA} \times 750$ lignes ≈ 81600 données

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

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

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

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

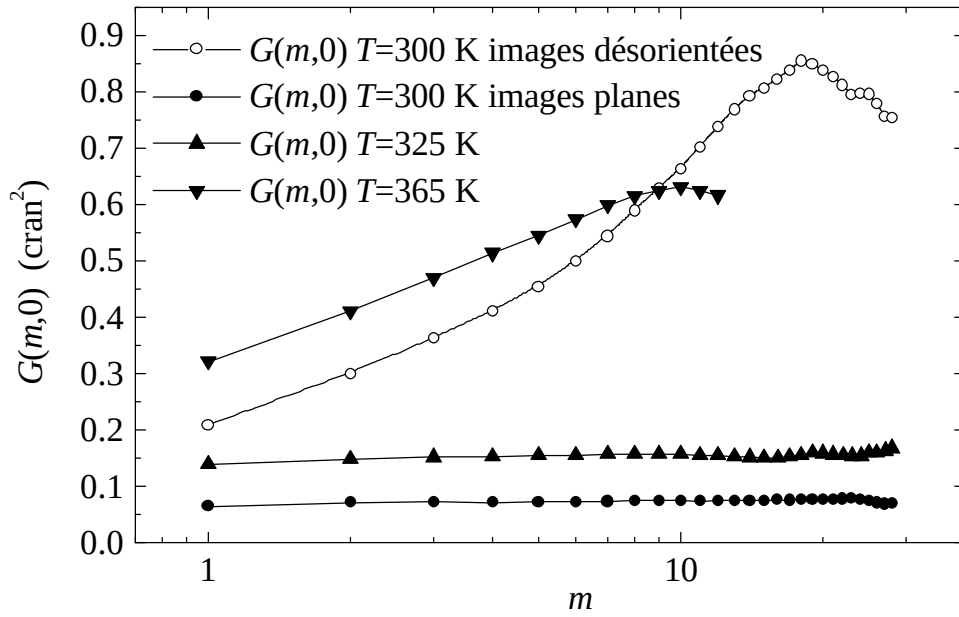


Figure IV-18 : Fonctions de corrélation spatiale $G(m,0)$ en fonction de la température.

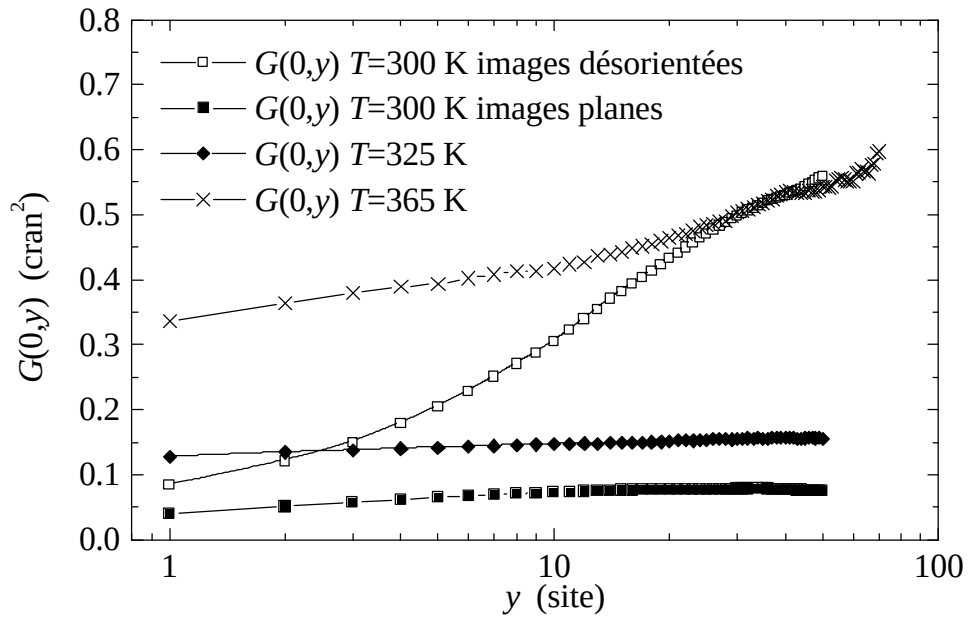


Figure IV-19 : Fonctions de corrélation spatiale $G(0,y)$ en fonction de la température.

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

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

IV-C.5.2. Distribution des largeurs de terrasses

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

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

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

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

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

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

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

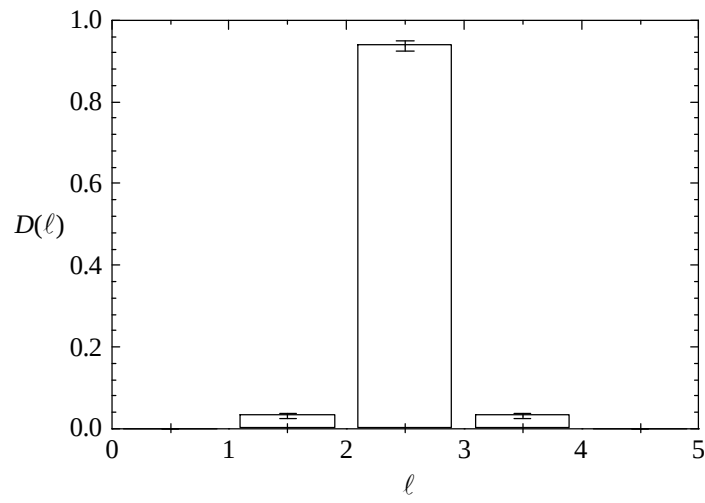


Figure IV-20 : Distribution des largeurs de terrasses expérimentale à $T=300$ K. Les barres d'erreur correspondent à la dispersion mesurée sur les images utilisées.

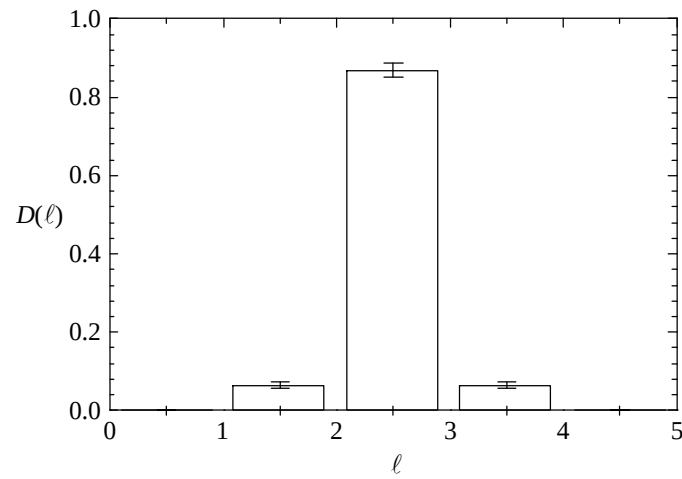


Figure IV-21 : Distribution des largeurs de terrasses expérimentale à $T=325$ K. Les barres d'erreur correspondent à la dispersion mesurée sur les images utilisées.

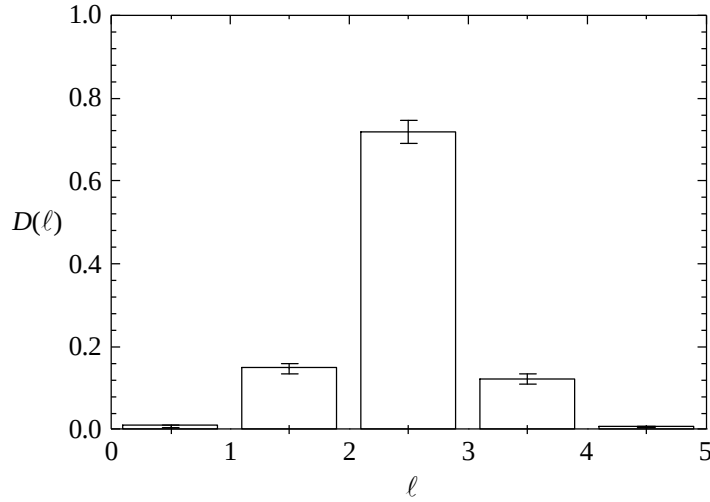


Figure IV-22 : Distribution des largeurs de terrasses expérimentale à $T=365$ K. Les barres d'erreur correspondent à la dispersion mesurée sur les images utilisées.

IV-C.6. Fonctions de corrélation temporelle

IV-C.6.1. Mesure

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

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

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

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

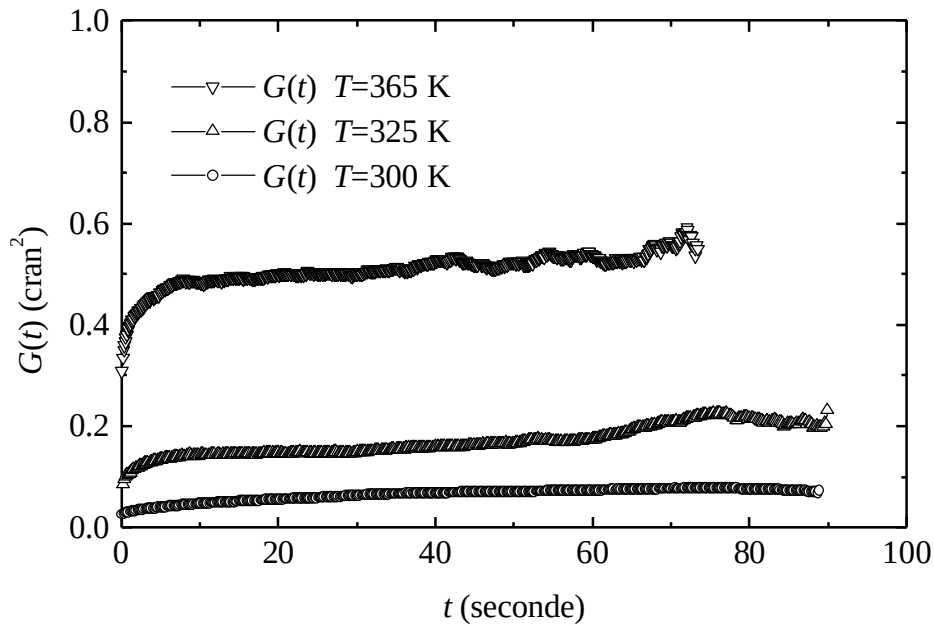


Figure IV-23 : Fonctions de corrélation temporelle $G(t)$ pour les trois températures étudiées.

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

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

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

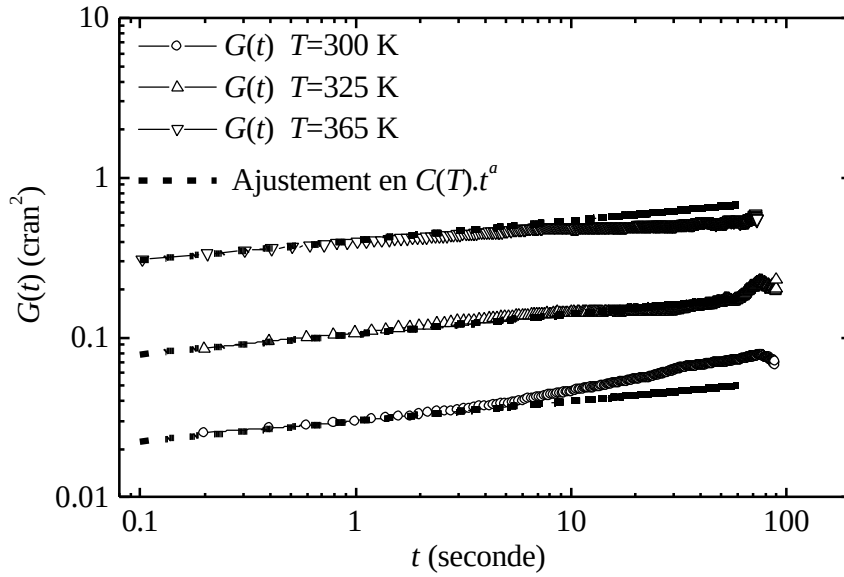


Figure IV-24 : Ajustement d'une loi en $C(T).t^a$ sur les fonctions de corrélation temporelle.

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

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

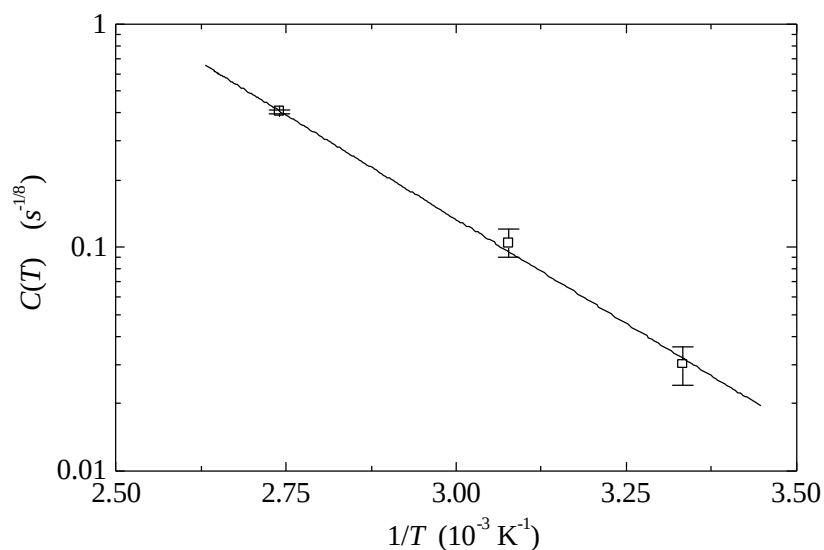


Figure IV-25 : (?) Diagramme d'Arrhénius du préfacteur $C(T)$. (—) Ajustement avec une droite correspondant à une énergie d'activation de 0.37 ± 0.025 eV .

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

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

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

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

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

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

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

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

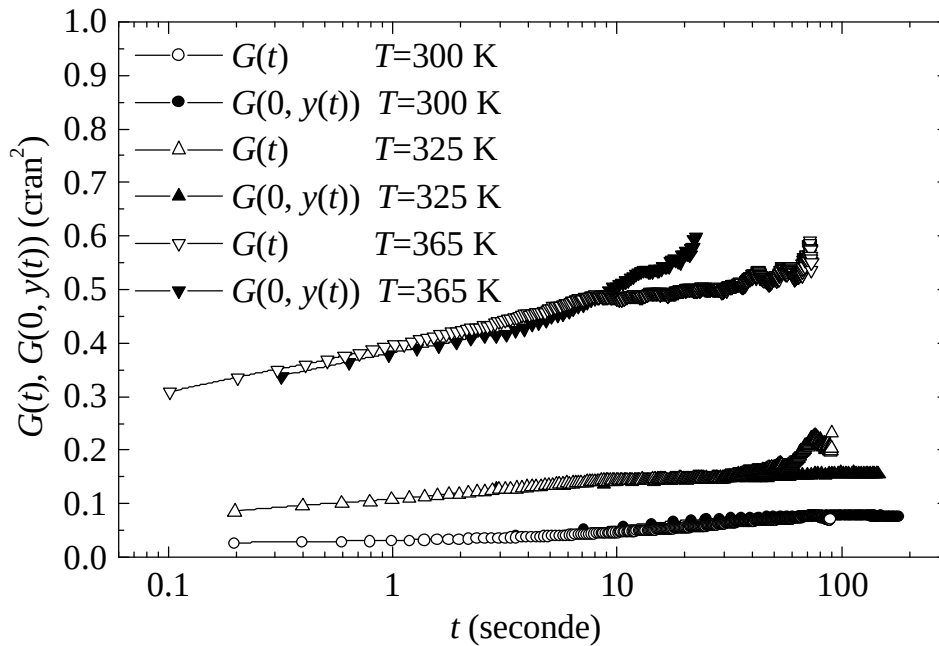


Figure IV-26 : Comparaison des fonctions de corrélation spatiale et temporelle aux trois températures.

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

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

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

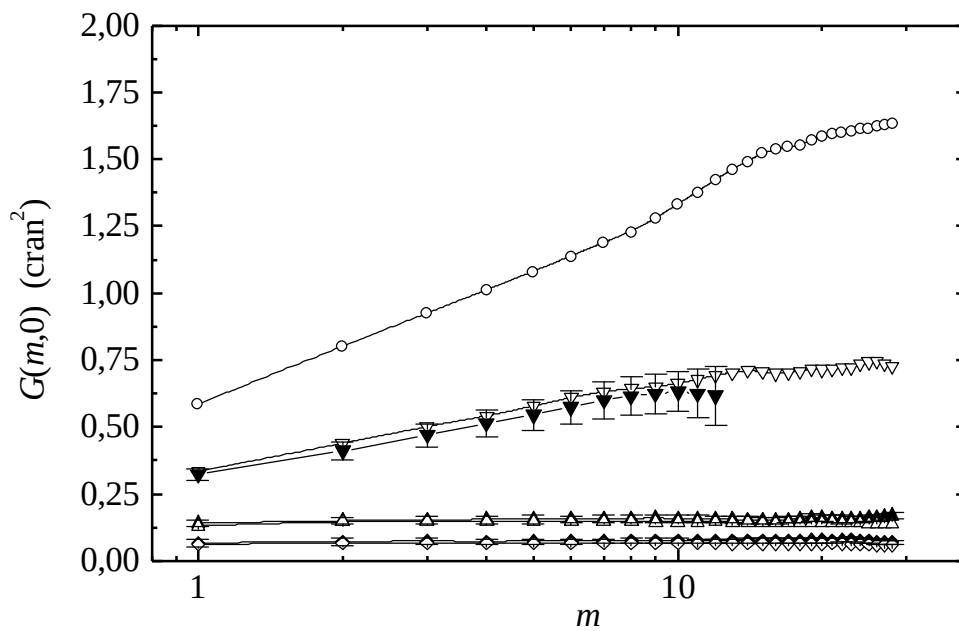


Figure IV-27 : ($\blacklozenge, \blacktriangledown, \circ$) Fonctions de corrélation expérimentales $G(m,0)$ à 300 K, 325 K et 365 K. ($\circ, \Delta, \nabla, \circ$) Fonctions de corrélation obtenues par simulations Monte Carlo à 300 K, 325 K, 365 K et 450 K pour $A=100\text{ K}$ et $E_k=1430\text{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

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

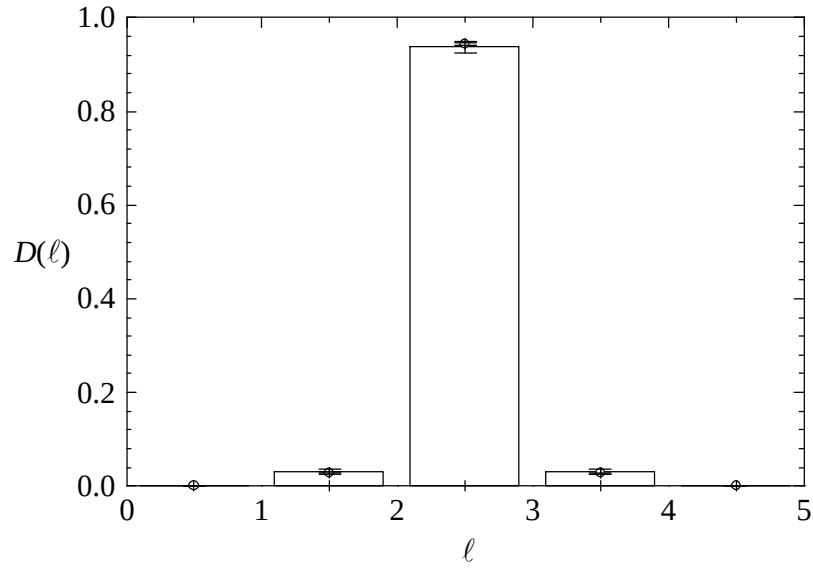


Figure IV-28 : $T=300$ K (histogramme) distribution des largeurs de terrasses expérimentale. (O) Distribution obtenue par simulation Monte Carlo pour $A=100$ K et $E_k=1430$ K. Simulation réalisée sur un système de 76 marches $\times$ 1300 sites. Après 1000 configurations de mise à l'équilibre, la moyenne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

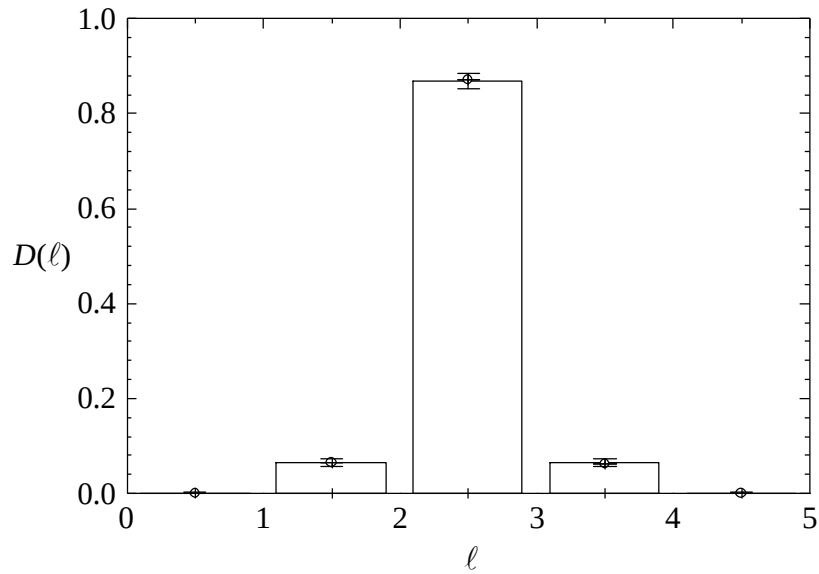


Figure IV-29 : $T=325$ K (histogramme) distribution des largeurs de terrasses expérimentale. (O) Distribution obtenue par simulation Monte Carlo pour la même valeur des paramètres que Figure IV-28.

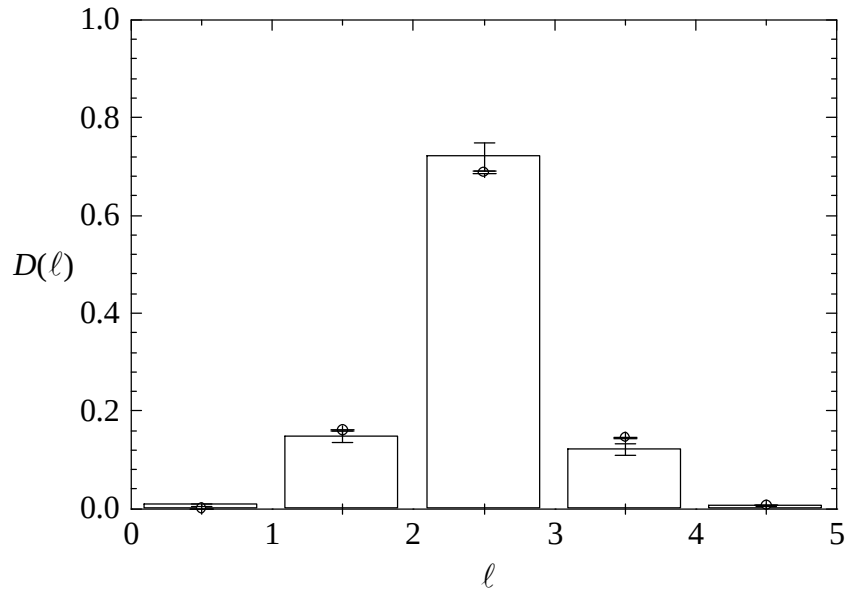


Figure IV-30 : $T=365$ K (histogramme) distribution des largeurs de terrasses expérimentale. (O) Distribution obtenue par simulation Monte Carlo pour la même valeur des paramètres que Figure IV-28.

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

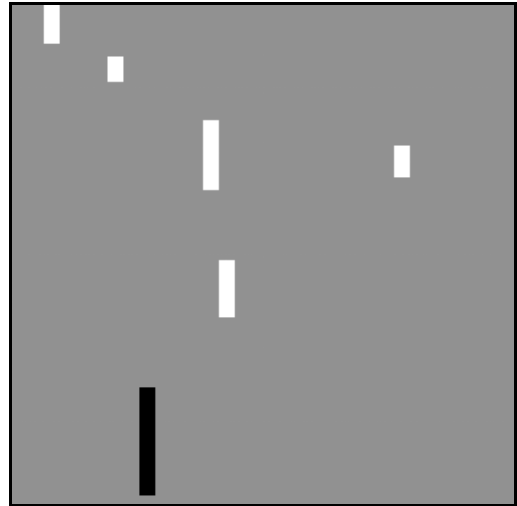
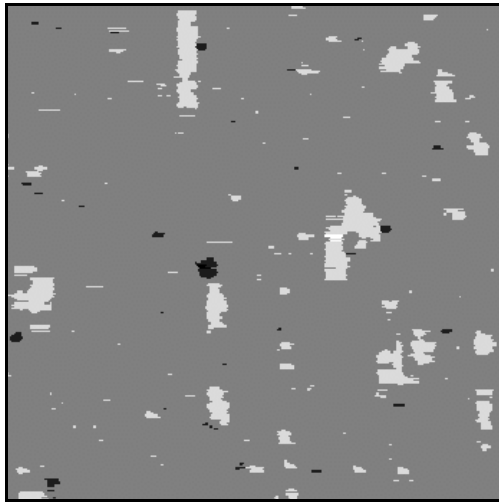


Figure IV-31 : Comparaison image STM en niveaux et configuration Monte Carlo à $T=300$ K ($200\text{\AA} \times 200\text{\AA}$).

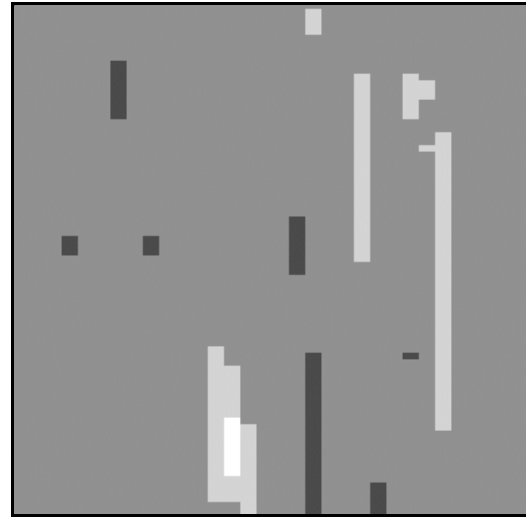
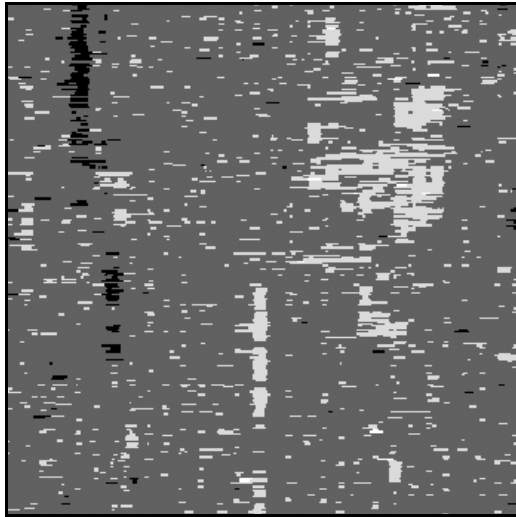


Figure IV-32 : Comparaison image STM en niveaux et configuration Monte Carlo à $T=325$ K ($200\text{\AA} \times 200\text{\AA}$).

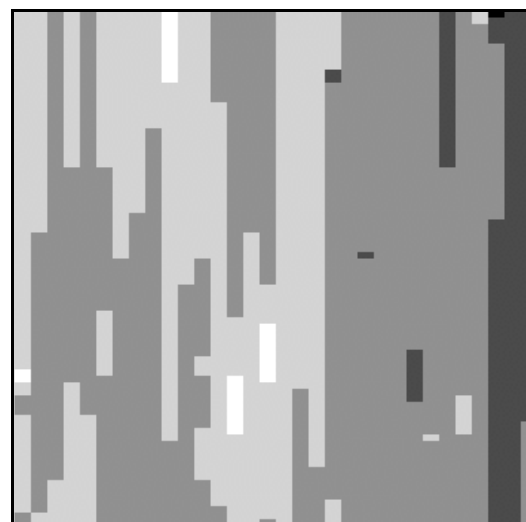
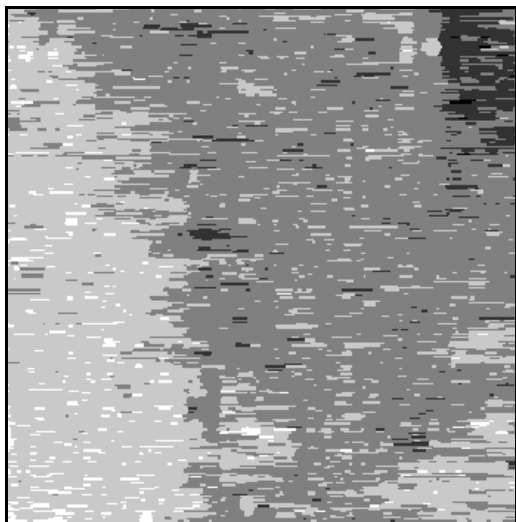


Figure IV-33 : Comparaison image STM en niveaux et configuration Monte Carlo à $T=365$ K ($200\text{\AA} \times 200\text{\AA}$).

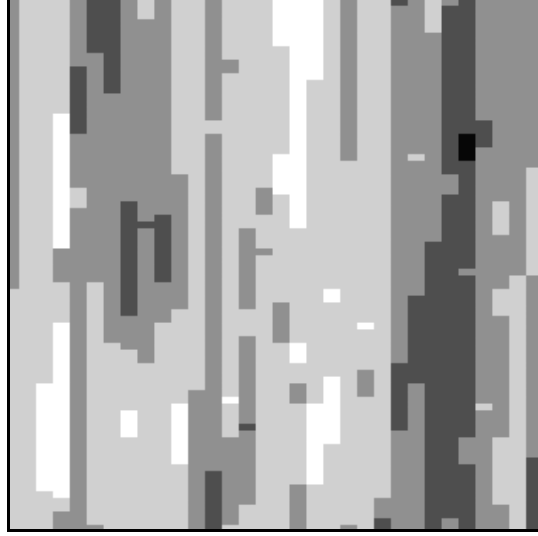


Figure IV-34 : Configuration Monte Carlo à $T=450$ K ($200\text{\AA} \times 200\text{\AA}$).

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

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

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

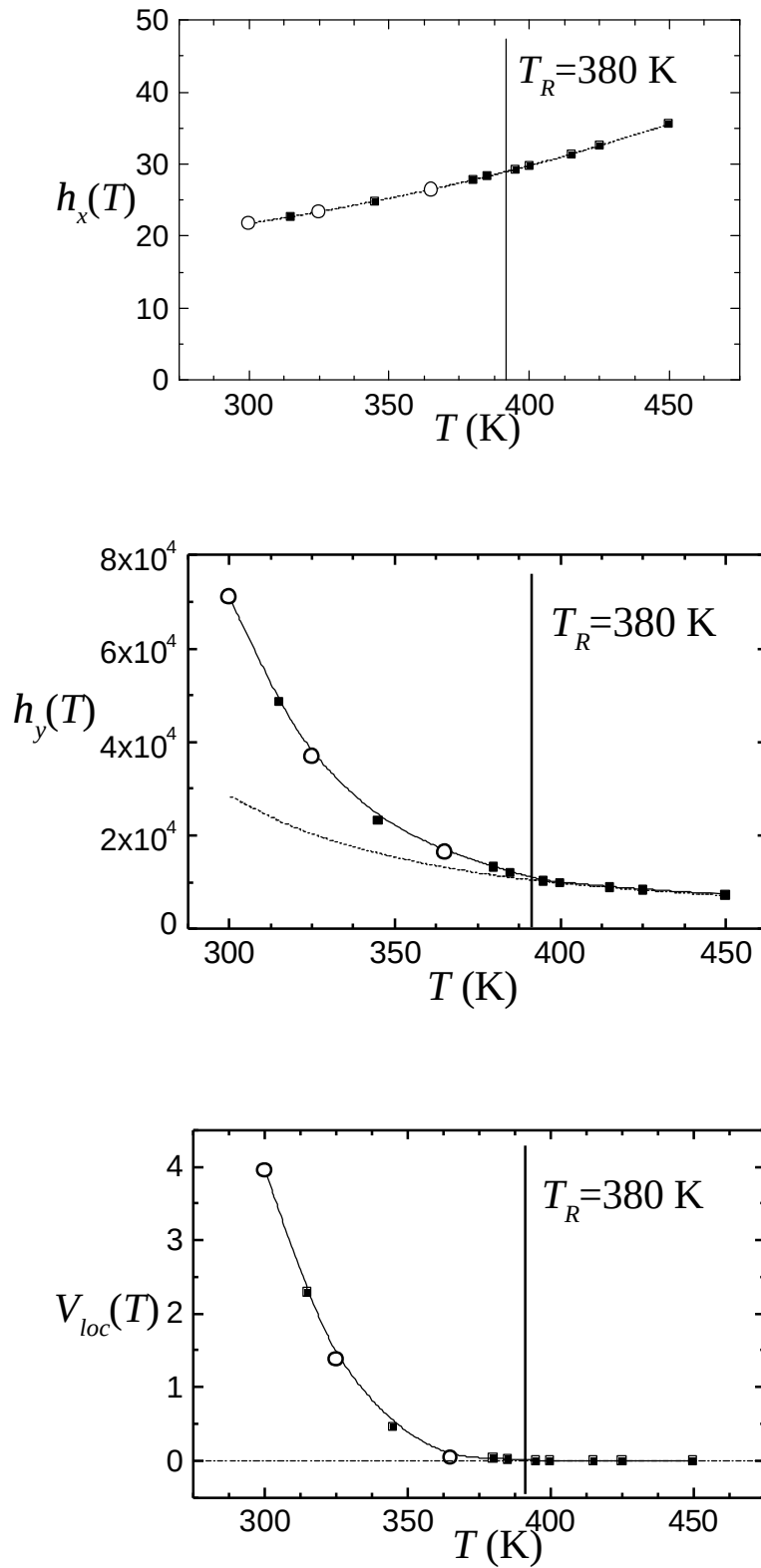


Figure IV-35 : () Evolution en température de h_x , h_y et V_{loc} (en Kelvin) déterminés en suivant la procédure exposée au § III-B.2. ($E_k=1430$ K, $A_{cap}=65$ K, $\ell_0=2.5$). Les symboles (O) correspondent aux températures expérimentales. Les lignes continues sont un guide pour l'œil. (---) h_x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

IV-C.8. Discussion

Comparaison avec Ag(1,1,5)

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

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

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

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

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

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

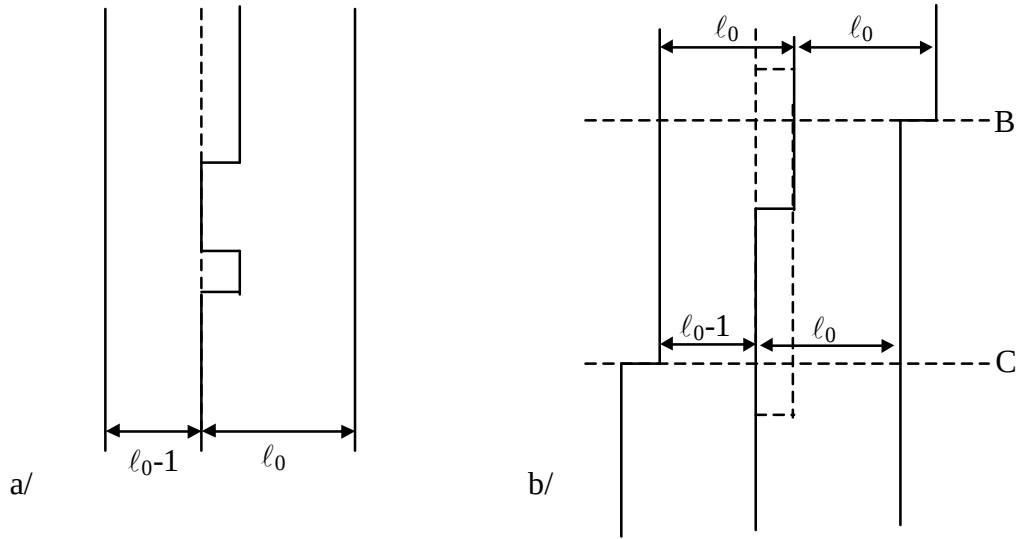


Figure IV-36 : Configurations particulières des marches utilisées par M. S. Hoogeman *et al.*[25] pour déterminer les paramètres énergétiques.

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

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

Etudes par diffraction – par STM

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

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

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

Influence de l'angle de coupe

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

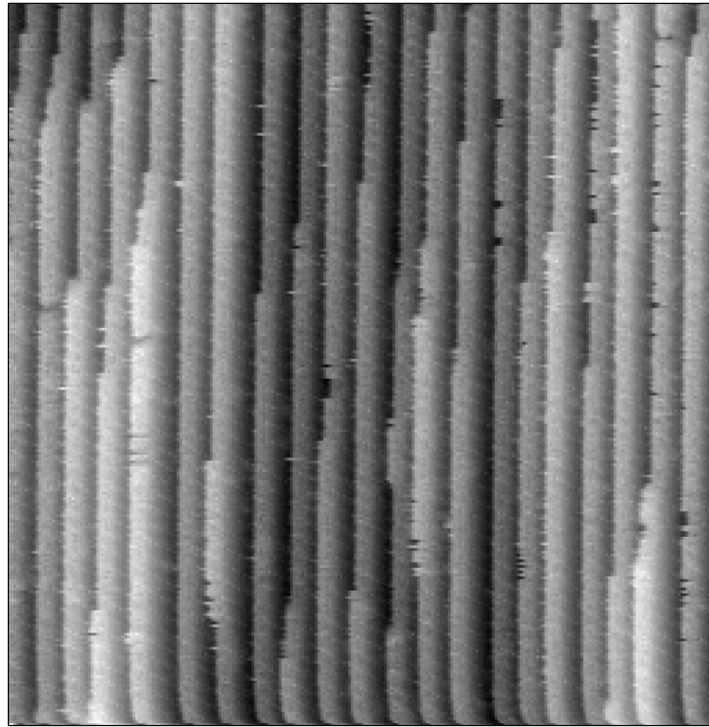


Figure IV-37 : Image STM (310×275) Å² de Cu(1,1,11) tirée de [1].

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

BIBLIOGRAPHIE

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

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

Conclusion de la première partie

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

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

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

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

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

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

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

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

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

SECONDE PARTIE

Morphologie des surfaces vicinales
d'alliages.

Transition chimique.

CHAPITRE V :

*Généralités sur les alliages CFC A_3B
de structure $L1_2$.*

V-A. Introduction

Dans un métal pur A, on peut ajouter des atomes étrangers B sans modifier la structure cristalline du métal de base A, on obtient alors la solution solide A-B.

Dans les alliages considérés ici, les atomes de l'élément B en solution dans le métal A se placent en substitution des atomes A sur les nœuds du réseau. Considérons à présent un alliage ordonné constitué des éléments A et B ayant un encombrement stérique différent. L'arrangement régulier des atomes A et B sur le réseau se fera de façon à obtenir une structure aussi compacte que possible. D'une façon générale, il y a possibilité d'ordre, si du point de vue énergétique, les liaisons interatomiques A-B sont favorisées par rapport aux liaisons A-A et B-B : c'est *l'effet d'alliage*.

V-B. Transition ordre - désordre

Certains alliages chimiquement ordonnés présentent une transition chimique ordre - désordre. Pour ces alliages, l'ordre chimique va être détruit à haute température par l'agitation thermique qui provoque un échange permanent d'atomes entre les sites. Ainsi, la structure ordonnée disparaît au-dessus d'une température, appelée **température critique T_C** . L'ordre correspond à un état d'énergie interne minimale et le désordre à un état d'entropie maximale.

On peut donc observer des structures ordonnées à basse température qui, si on élève la température, vont être progressivement détruites. Il est alors nécessaire de mesurer un paramètre évaluant l'état d'ordre par rapport à l'état parfaitement ordonné. Cette grandeur thermodynamique, introduite par L. Landau et E. Lifshitz [1], est le paramètre d'ordre usuellement noté h .

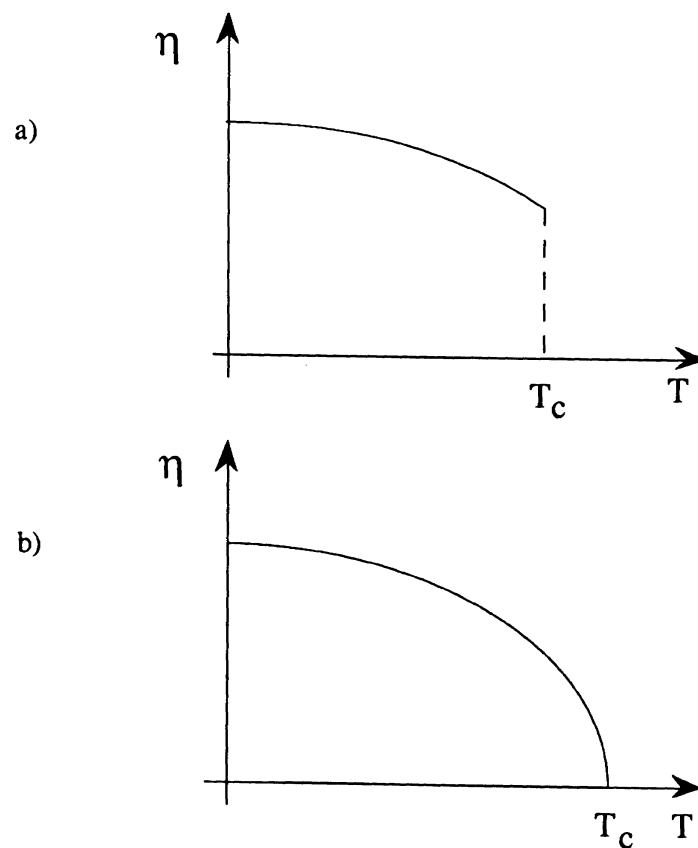


Figure V-1: Evolution du paramètre d'ordre :

- a) transition du premier ordre (ex Cu_3Au , Cu_3Pd),
- b) transition du second ordre (ex : Fe_3Al).

Le comportement de ce paramètre au cours de la transition ordre - désordre fixe l'ordre de la transition. Si le paramètre d'ordre est discontinu au point de transition, la transition est dite du **premier ordre**; si au contraire le paramètre d'ordre est continu, la transition est dite du **second ordre** (voir Figure V-1).

Par ailleurs, il est intéressant de noter que, même si dans la phase désordonnée le paramètre d'ordre à longue distance est nul, il subsiste malgré tout des corrélations à courte portée qui donnent, en diffraction, de l'intensité en dehors des pics de Bragg fondamentaux. L'analyse de cette intensité diffuse permet d'avoir accès à cet ordre à courte distance.

D'une façon générale, une transition de phase (désordre $\Rightarrow$ ordre) s'accompagne, dans la plupart des cas, d'un abaissement du degré de symétrie. Le groupe de la phase la moins symétrique (phase ordonnée) est alors un sous-groupe du groupe de symétrie de la phase la plus symétrique (phase désordonnée). Il apparaît alors plusieurs familles de sites, auparavant équivalentes dans l'état désordonné, qui forment des sous-réseaux. Pour la phase ordonnée, l'occupation des sous réseaux se fait préférentiellement par un des deux éléments de l'alliage, ce qui provoque l'abaissement du degré de symétrie.

Ces pertes de symétrie de translation ou de rotation, issues de la mise en ordre, entraînent le fractionnement de la phase ordonnée en plusieurs domaines de translation ou de rotation qu'on appelle **variants**. Ces variants sont séparés, ou bien par une **paroi de macle d'orientation**, lorsqu'il s'agit de perte de symétrie d'orientation, ou bien par des parois de domaine, généralement appelées **parois d'antiphase** (souvent notées APB: AntiPhase Boundaries) s'il s'agit d'une perte de symétrie de translation.

V-C. Phase désordonnée (A1)

Dans la phase désordonnée, appelée A1, les atomes A et B sont répartis uniformément sur chaque site du réseau CFC. La probabilité qu'un site soit occupé par une espèce est donnée par sa concentration moyenne dans l'alliage (voir Figure V-2).

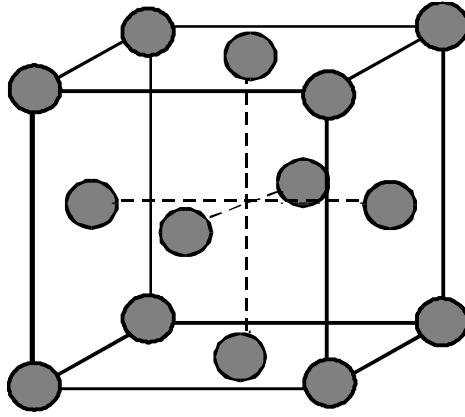


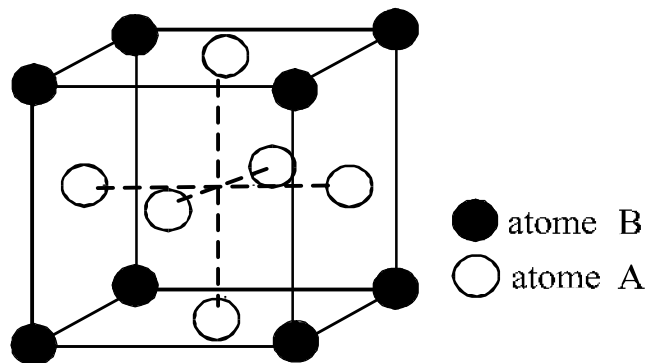
Figure V-2 : Schéma de la structure A1.

V-D. Phase ordonnée (L1₂)

Dans la phase ordonnée L1₂, les atomes majoritaires A occupent le centre de chaque face du cube et les atomes minoritaires B occupent chaque sommet.

La maille élémentaire est cubique simple avec un motif de 4 atomes :

- ♦ 3 atomes A aux positions $\left(\frac{1}{2} \frac{1}{2} 0\right) \left(\frac{1}{2} 0 \frac{1}{2}\right) \left(0 \frac{1}{2} \frac{1}{2}\right)$,
- ♦ 1 atome B à la position (0 0 0).

Figure V-3 : Schéma de la structure L1₂.

On observe que la structure comporte dans chacune des directions associées aux arêtes du cube une alternance de plans mixtes A-B et de plans purs A. On retrouve cette même alternance dans la direction [110], tandis que les plans (111) sont tous mixtes.

V-E. Description des variants d'ordre dans la structure

L1₂

V-E.1. Les variants

Lors de la mise en ordre, un atome minoritaire B a quatre choix possibles de sites. Les quatre variants de translation ainsi définis peuvent donc être caractérisés par la nature du sous-réseau occupé par les atomes minoritaires B. Ces variants sont liés entre eux par les translations de vecteurs : $\begin{bmatrix} 1 & 1 & 0 \\ 2 & 2 & 0 \end{bmatrix}$, $\begin{bmatrix} 1 & 0 & 1 \\ 2 & 2 & 0 \end{bmatrix}$, $\begin{bmatrix} 0 & 1 & 1 \\ 2 & 2 & 2 \end{bmatrix}$. Il est possible de les représenter en décrivant le premier variant comme un réseau cubique faces centrées, où les atomes B occupent les sommets du cubes et les atomes A les centres des faces. Les trois autres peuvent être déduits en plaçant deux atomes B sur les centres de deux faces opposées (trois possibilités) et les atomes A sur tous les autres sites du cube (Figure V-4).

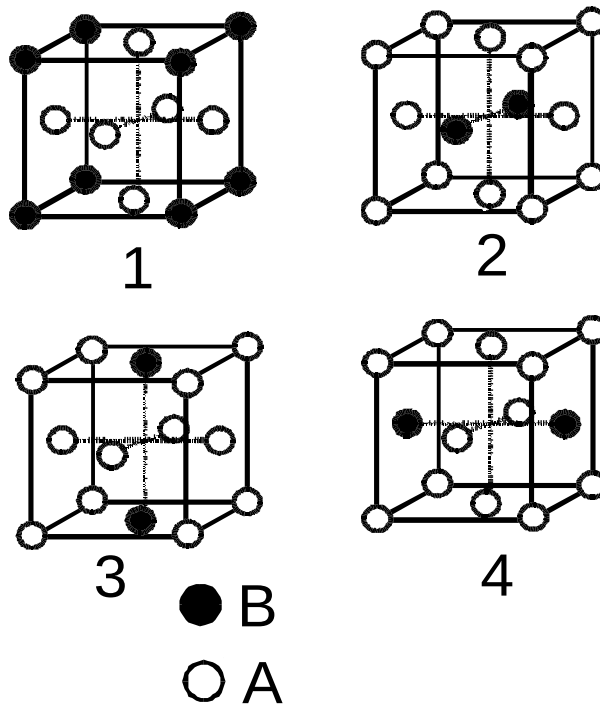


Figure V-4 : Schémas des différents variants possibles de la structure ordonnée L1₂.

V-E.2. Mise en ordre - parois d'antiphase

A partir de l'état désordonné, si la température est abaissée en dessous de T_C , la germination de domaines ordonnés débute en plusieurs points du cristal (phase de nucléation). Ces petites régions ordonnées, chacune basée sur l'un des quatre types de variants, se développent en consommant la matière désordonnée (phase de croissance). Elles croissent jusqu'à se rencontrer et ainsi former des domaines séparés par des parois dites parois d'antiphase.

Dans un domaine où l'alliage est ordonné, considérons un plan du volume, par exemple pur A. Au niveau d'une paroi d'antiphase, il peut devenir un plan A-B : il y a un décalage de la structure. Le cristal est ainsi formé de domaines ordonnés, limités par des parois d'antiphase, où la séquence ordonnée est décalée par rapport à celle du domaine voisin. L'ordre selon la structure $L1_2$ est respecté, sauf au voisinage des parois, où le voisinage type d'un atome est modifié.

Une paroi d'antiphase est donc caractérisée par le vecteur de translation entre les deux variants et par le vecteur normal au plan séparant ces deux domaines. Pour une orientation de paroi donnée, les quatre variants de la structure $L1_2$ impliquent l'existence de 3 types de parois d'antiphase : $(1 \rightarrow 2, 1 \rightarrow 3, 1 \rightarrow 4)$ qui correspondent aux trois translations possibles de vecteur : $[1/2 \ 1/2 \ 0] \ [1/2 \ 0 \ 1/2] \ [0 \ 1/2 \ 1/2]$. La Figure V-5 présente les trois parois d'antiphase possibles ayant pour orientation le plan $(1 \ 0 \ 0)$.

La paroi d'antiphase étant un défaut d'ordre indépendant de la géométrie du réseau de base, elle n'est pas limitée à des plans cristallographiques particuliers. Une paroi d'antiphase peut se caractériser par les changements dans les liaisons, avec ses premiers voisins, d'un atome de la frontière par rapport à son environnement dans la maille élémentaire. L'énergie de la paroi dépend ainsi, dans une première approximation, du type et du nombre de ces changements. On montre alors que, lorsque le vecteur de translation entre les deux variants est parallèle au plan contenant la paroi d'antiphase, il n'y a pas de violation du nombre de liaisons A-A et A-B entre premiers voisins. Les interactions entre seconds voisins étant généralement dix fois plus faibles que celles entre premiers voisins, ces parois d'antiphase ont donc une faible énergie (nulle dans l'approximation aux premiers voisins), elles sont dites **conservatives**. Ainsi, dans l'exemple proposé Figure V-5, seule la paroi d'antiphase $(1 \ 0 \ 0) \ [0 \ 1 \ 1]$ (Figure V-5 c) est conservative. Soit $P_\perp$ le plan perpendiculaire à la paroi contenant le

vecteur de translation. La nature chimique des plans parallèles à $P_{\perp}$, de part et d'autre de la paroi, n'est pas modifiée, tandis que la nature chimique des plans non parallèles à $P_{\perp}$, de part et d'autre de la paroi, est modifiée.

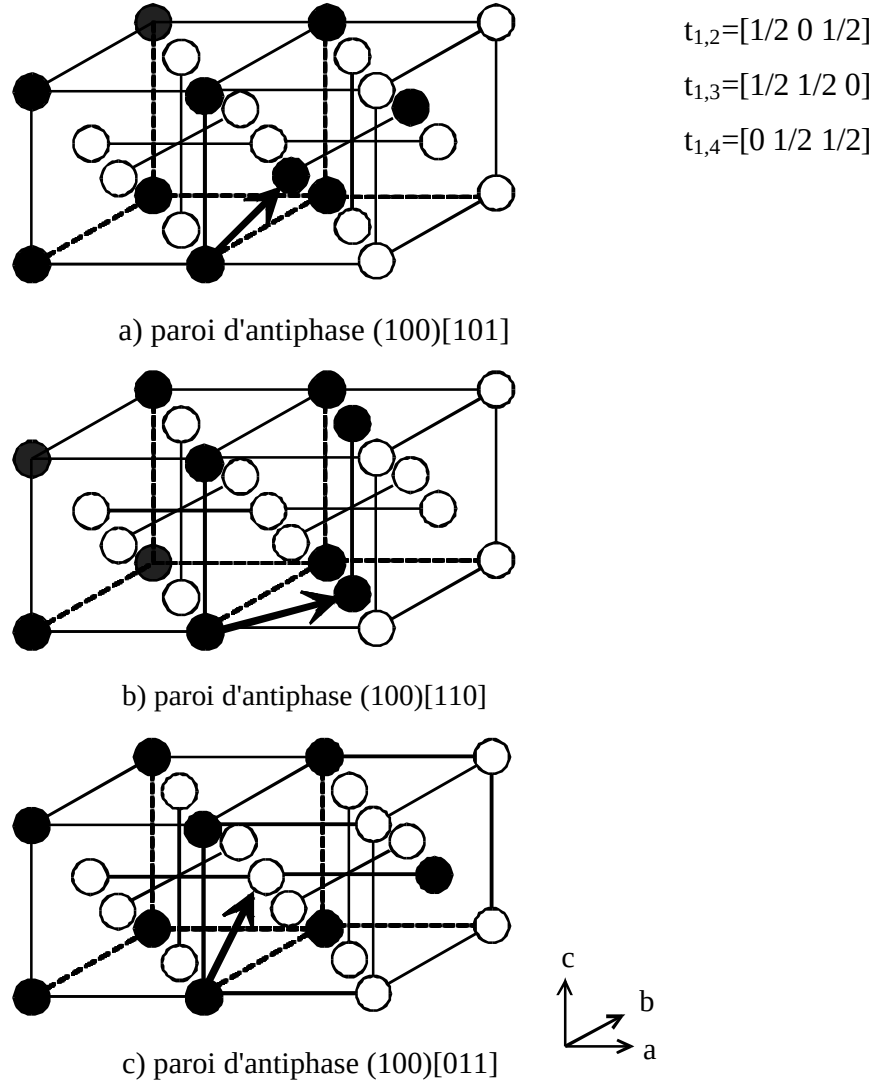


Figure V-5 : Représentation des combinaisons possibles de parois d'antiphase pour la structure $L1_2$ de l'alliage A_3B pour une direction donnée de parois d'antiphase (ici suivant le plan (100)).

L'énergie d'une paroi d'antiphase dépend de son orientation. Le système cherchant à minimiser son énergie, on peut trouver à priori des directions privilégiées pour les parois d'antiphase.

V-F. Mise en désordre - rôle des interfaces

D'une manière générale, le mouillage est défini comme l'interposition d'un film liquide entre un substrat et la vapeur d'un fluide pour certaines conditions de température et de pression [2,3]. De la même façon que l'on peut définir le mouillage entre une phase solide et une phase vapeur, on peut définir le mouillage par le désordre au niveau d'une interface (paroi d'antiphase ou interface solide vide).

Ce phénomène de mouillage par le désordre a été observé en volume au niveau des parois d'antiphase : à basse température, une frontière de domaines a une épaisseur atomique. Lorsque l'on s'approche de T_C , on observe l'apparition de désordre au niveau de l'interface alors que les domaines restent parfaitement ordonnés en volume. La largeur du film désordonné croît ensuite avec la température mais reste microscopique comparée à la taille des domaines. Juste sous T_C (typiquement $10^{-2} T_C$), une couche macroscopique de phase désordonnée apparaît, donnant naissance à deux nouvelles interfaces ordre-désordre : c'est **le mouillage des interfaces par la phase désordonnée**. Ce phénomène a été mis en évidence de façon qualitative pour Pt_3Co [4], Cu_3Au [5,6] et Cu_3Pd [7]. A T_C , la largeur de la phase désordonnée diverge logarithmiquement [8] et envahit tout le volume.

Ce phénomène ne se limite pas aux interfaces de volume. En effet, des effets similaires, appelés **mouillage de la surface par le désordre**, ont été observés :

- ♦ Sur une face dense de $Cu_3Au(001)$, par Dosch *et al.* [9] à partir de $T_C - 30$ K ($T_C = 663$ K).
- ♦ Sur une surface vicinale de $Cu_{83}Pd_{17}(1,1,11)$ par L. Barbier *et al.* [10]. Ils ont montré, de plus, que l'apparition du désordre conduisait dès $T_C - 90$ K ($T_C = 778$ K) à un désappariement des marches doubles présentes sur cette surface.

Le mouillage d'une surface par le désordre a donc des conséquences sur la morphologie de la surface. Il faudra en tenir compte lors de l'interprétation des résultats obtenus.

V-G. Mise en ordre : modèle de S.M. Allen et J.W. Cahn

Une fois les domaines formés, le système continue à évoluer de façon à réduire la longueur des parois d'antiphase et donc à augmenter la taille moyenne des domaines.

S.M. Allen et J.W. Cahn [11] ont développé un modèle permettant de déterminer cette évolution au cours du temps. Leur modèle est basé sur la cinétique de déplacement des parois d'antiphase.

Cette description théorique de la croissance des domaines ordonnés s'inspire de la théorie de la croissance des grains en volume dans un polycristal, dans laquelle l'énergie libre de la paroi entourant un domaine est proportionnelle à sa surface. En notant S la surface totale de paroi et s l'énergie libre moyenne de paroi par unité de surface, l'énergie libre F_p de paroi peut s'écrire :

$$(V-1) \quad F_p \propto s \cdot S ,$$

Soit L le rayon de courbure moyen des parois (ou taille de domaines). Dans un volume V fixé, le nombre de domaines N et la surface S s'écrivent :

$$(V-2) \quad N \propto \frac{V}{L^3} \quad \text{et} \quad S \propto \frac{N L^2}{2} \propto \frac{V}{2 L} .$$

La variation temporelle de l'énergie libre F_p s'écrit :

$$(V-3) \quad \frac{dF_p}{dt} \propto s \cdot \frac{dS}{dt} \propto -\frac{V}{2 L^2} \frac{dL}{dt} .$$

Cette équation montre que le système, initialement hors d'équilibre, évolue de façon à diminuer la densité de paroi, ce qui revient à augmenter le rayon de courbure moyen. Au niveau microscopique, le déplacement des parois d'antiphase s'effectue par fluctuations thermiques (échange d'atomes A et B par diffusion atomique).

S.M. Allen et J.W. Cahn [11] ont montré que la vitesse de déplacement d'une paroi en un point M est inversement proportionnelle à sa courbure en ce point :

$$(V-4) \quad v(M) = \frac{\frac{dL(M)}{dt}}{L(M)} = \frac{K(T)}{L(M)} .$$

Ils ont obtenu, contrairement aux théories précédentes, que la constante de proportionnalité $K(T)$ est indépendante de l'énergie libre de la paroi s , c'est à dire qu'elle est indépendante des variants présents de part et d'autre de la paroi. La vitesse ne présente donc pas de comportement critique au voisinage de T_C . Sa dépendance avec la température provient uniquement de la diffusion thermiquement activée.

On peut également déduire de l'équation (V-4), qu'une paroi plane (rayon de courbure $L(M)$ infini) est stable. Le système est bloqué.

En intégrant l'équation différentielle (V-4), on obtient la loi d'évolution temporelle du rayon de courbure local ainsi que de la surface totale de parois :

$$(V-5) \quad L(M, t)^2 = L(M, 0)^2 + 2K(T) \cdot t \quad S(t)^{-2} = S(0)^{-2} + 2K'(T) \cdot t ,$$

où $L(M, t)$ est le rayon de courbure au point M à l'instant t , et $L(M, 0)$ le rayon de courbure en M à l'instant initial $t=0$ (fin de la nucléation).

On observe ainsi une réduction de la courbure locale en fonction du temps illustrée Figure V-6.

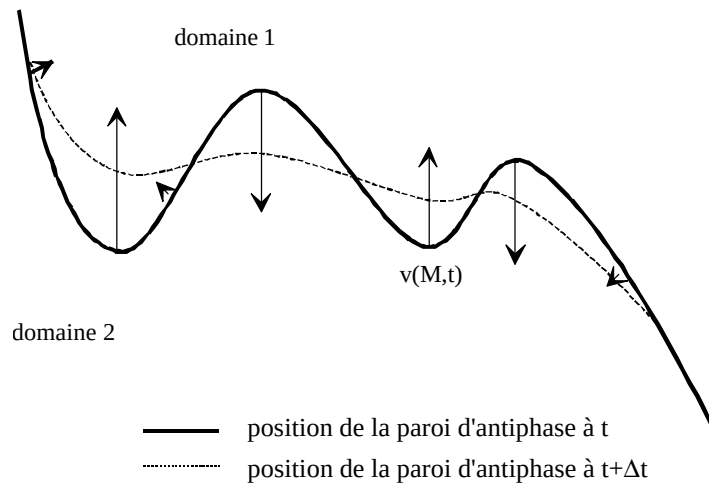


Figure V-6 : Evolution temporelle de la position d'une paroi d'antiphase.

L'expression (V-5) montre une dépendance en $t^{1/2}$ de l'évolution temporelle du rayon de courbure (ou taille de domaines). Il est important de noter que cette dépendance est valable pour tout système ayant un processus de mise en ordre à paramètre d'ordre non conservé.

Expérimentalement, la croissance des domaines d'antiphase en volume dans Cu_3Au a été étudiée par diffraction de rayons X par G.E. Poquette et D.E. Mikkola [12], D.E. Mikkola et K.B. Rundman [13], puis par S.E. Nagler *et al.* [14] et R.F. Shannon *et al.* [15]. Les résultats de ces expériences confirment la dépendance temporelle en $t^{1/2}$ de la taille moyenne des domaines. Ces expériences montrent également l'existence d'un comportement transitoire pour les temps de recuit très courts, dû au temps nécessaire à la nucléation-croissance initiale.

V-H. Faces vicinales (1,1,n) des alliages A_3B

Dans la direction [001] l'alliage A_3B comporte une alternance de plans mixtes A-B et de plans purs A. Si l'on coupe le cristal suivant un petit angle par rapport au plan (001) dans la direction [110] on obtient un réseau régulier de marches avec une alternance de terrasses mixtes A-B et pures A. L'énergie du cristal avec un plan terminal pur A ou un plan terminal mixte A-B étant différente, la coupe de volume est à priori instable.

La Figure V-7 et la Figure V-8 représentent les coupes de volume associées aux faces vicinales (1,1,11) et (1,1,5).

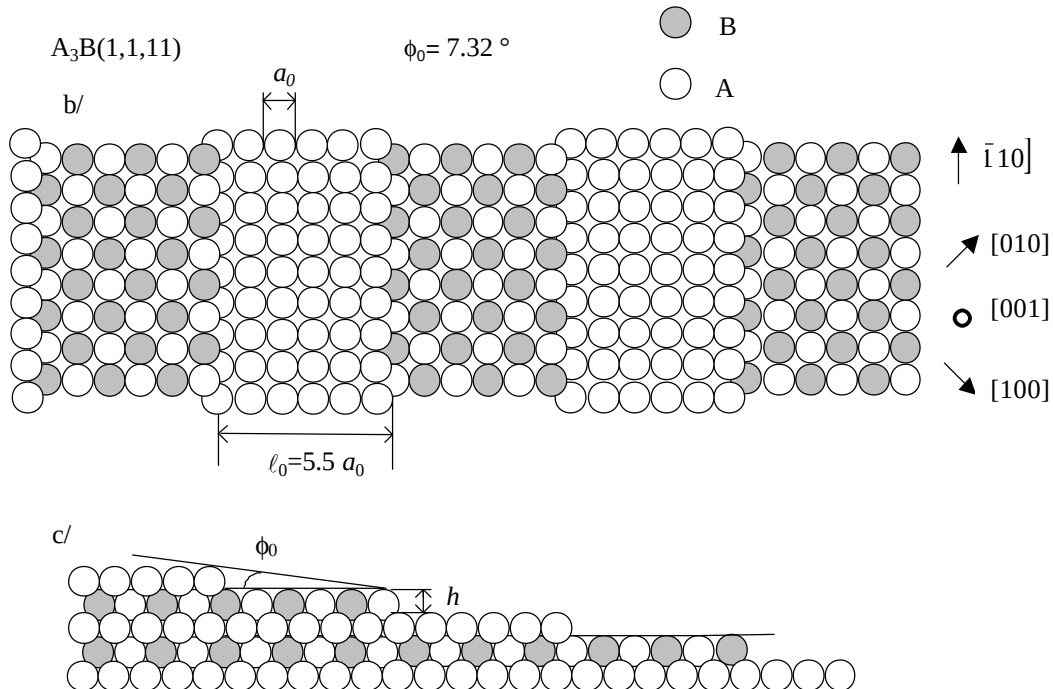


Figure V-7 : Coupe idéale de volume selon un plan (1,1,11) de l'alliage A_3B . Le paramètre de maille $a_0 = 2.65 \text{ \AA}$ pour Cu_3Au et $a_0 = 2.60 \text{ \AA}$ pour Cu_3Pd .

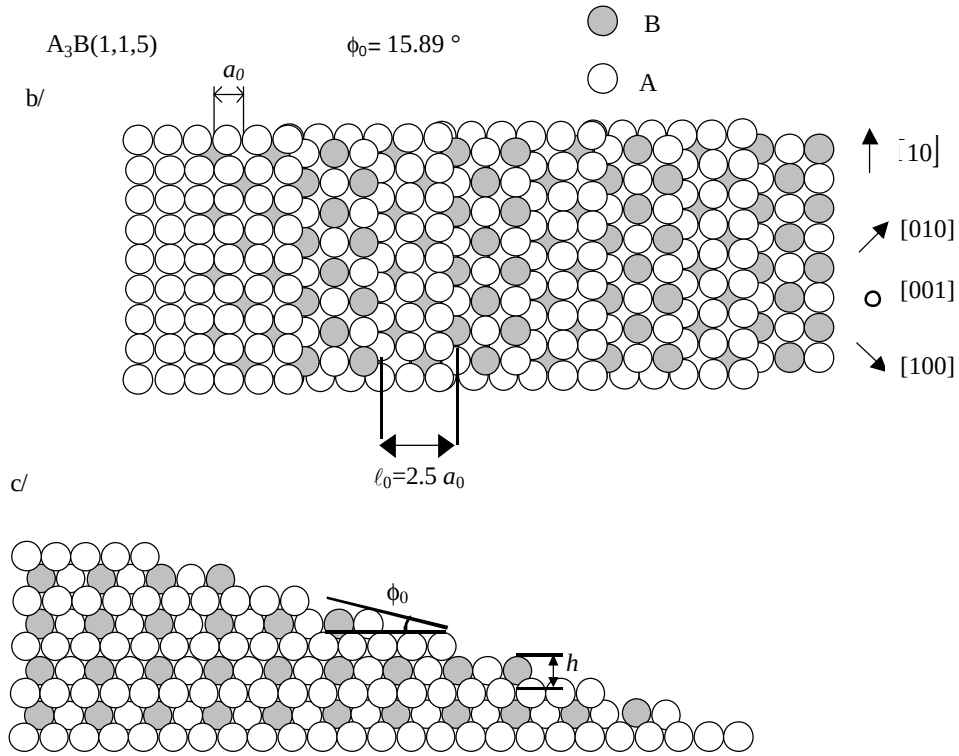


Figure V-8 : Coupe idéale de volume selon un plan $(1,1,5)$ de l'alliage A_3B .

V-I. Conclusion

Dans ce chapitre, la transition ordre - désordre dans les alliages de type A_3B ainsi que les structures associées ont été présentées. Les notions de variants et de parois d'antiphase ont été introduites. Le modèle cinétique de mise en ordre de S.M. Allen et J.W. Cahn basé sur le déplacement des parois d'antiphase a été décrit. Enfin, nous avons vu que les coupes de volumes de type $(1,1,n)$ présentent une alternance de terrasses pures A et mixtes A-B qui est, à priori, instable.

Les chapitres suivants présentent les résultats obtenus sur les faces de $Cu_{83}Pd_{17}(1,1,5)$ et de $Cu_3Au(1,1,11)$ qui, comparés à ceux précédemment obtenus par S. Goapper *et al.* [10,16,17,18] sur $Cu_{83}Pd_{17}(1,1,11)$, permettront d'avoir un aperçu sur l'influence de l'angle de coupe et de l'ordre chimique sur la morphologie des surfaces vicinales d'alliages CFC A_3B .

BIBLIOGRAPHIE

- [1] L. Landau et E. Lifshitz, Physique statistique (Mir 1967).
- [2] C. Ricolleau , Thèse de l'Université Paris VI (1992).
- [3] Pour un bilan sur les phénomènes de mouillage voir S. Dietrich, Phase Transitions and Critical Phenomena édité par C. Domb et J. Lebowitz (Academic, London, 1983), Vol **12**, p 1.
- [4] C. Leroux, A. Loiseau, M.C. Cadeville et F. Ducastelle, Europhys. Lett. **12** (1990) 155.
- [5] D.G. Morris, F.M.C. Besag et R.E. Smallman, Philos. Mag. **29** (1974) 43 ; D.G. Morris, Phys. Status Solidi (a) **32** (1975) 145.
- [6] F.D. Tichelaar, F.W. Schapink et Li Xiaofeng, Philos. Mag. **A65** (1992) 913
- [7] C. Ricolleau, A. Loiseau et F. Ducastelle, Phase Transitions **30** (1991) 243.
- [8] C. Ricolleau, A. Loiseau, F. Ducastelle et R. Caudron, Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 3591.
- [9] H. Dosch, L. Mailänder, A. Lied, J. Peisl, F. Grey, R. L. Johnson et S. Krummacher, Phys. Rev. Lett. **60** (1988) 2382 ; H. Dosch, L. Mailänder, H. Reicher, et J. Peisl, Phys. Rev. **B 43** (1991) 13172.
- [10] L. Barbier , S. Goapper, B. Salanon, R. Caudron, A. Loiseau, J. Alvarez, S. Ferrer et X. Torrelles, Phys. Rev. Lett. **78** (1997) 3003.
- [11] S.M. Allen et J.W Cahn, Acta Metall. **27** (1979) 1085.
- [12] G.E. Poquette et D.E. Mikkola, Trans TMS-AIME 245 (1969) 743.
- [13] D.E. Mikkola et K.B. Rundman, Scripta Met. (1972) 1095.
- [14] S.E. Nagler, R.F Shannon et C.R. Harkless, Phys Rev. Lett. **61** (1988) 718.
- [15] R.F. Shannon, S.E. Nagler, C.R. Harkless et R.M. Nicklow, Phys. Rev. **B 46** (1992) 40.
- [16] S. Goapper, Thèse de l'Université Marne la Vallée (1998).
- [17] S. Goapper, L. Barbier, B. Salanon, A. Loiseau, et X. Torrelles, Phys. Rev. **B 57** (1998) 12497.
- [18] E. Le Goff, L. Barbier, S. Goapper, A. Loiseau et B. Salanon, (soumis).

CHAPITRE VI :

Etude de la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$

VI-A. Introduction

La structure des faces vicinales d'alliages est aujourd'hui encore mal comprise. Elle résulte d'un équilibre subtil entre l'énergie des terrasses, l'énergie d'interaction entre marches et l'énergie des défauts d'ordre chimique (parois d'antiphase). Avant qu'un modèle énergétique puisse rendre compte de ces structures, il est nécessaire d'avoir des informations expérimentales.

La face de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ a été étudiée afin de connaître l'évolution de la morphologie des faces vicinales de l'alliage $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$:

- en fonction de l'angle de coupe (i.e. la distance moyenne entre marches) par comparaison avec les résultats obtenus sur la face de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ par S. Goapper *et al.* [1,2,3].
- en fonction de l'ordre chimique par comparaison avec la face de $\text{Cu}(1,1,5)$ étudiée dans la première partie de ce travail de thèse.

VI-B. Choix du système

Pour cette étude nous avons repris la même composition d'alliage que S. Goapper *et al.* [1,2,3]. Cette composition ($\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$) a été choisie préférentiellement à la composition $\text{Cu}_{75}\text{Pd}_{25}$ (Cu_3Pd) car le diagramme de phases de cet alliage (cf. Figure VI-1), déterminé en partie par C. Ricolleau [4], présente, pour cette composition, une transition ordre ($L1_2$) - désordre ($A1$) du premier ordre avec un domaine biphasé très étroit. De plus, à la composition $\text{Cu}_{75}\text{Pd}_{25}$ le diagramme de phase montre des structures à longues périodes qui pourraient avoir une influence sur la morphologie de la surface.

L'écart à la stœchiométrie idéale Cu_3Pd implique l'existence à l'équilibre, en dessous de la température critique, d'une certaine quantité de désordre à l'intérieur du cristal, qui reste cependant globalement ordonné à longue distance.

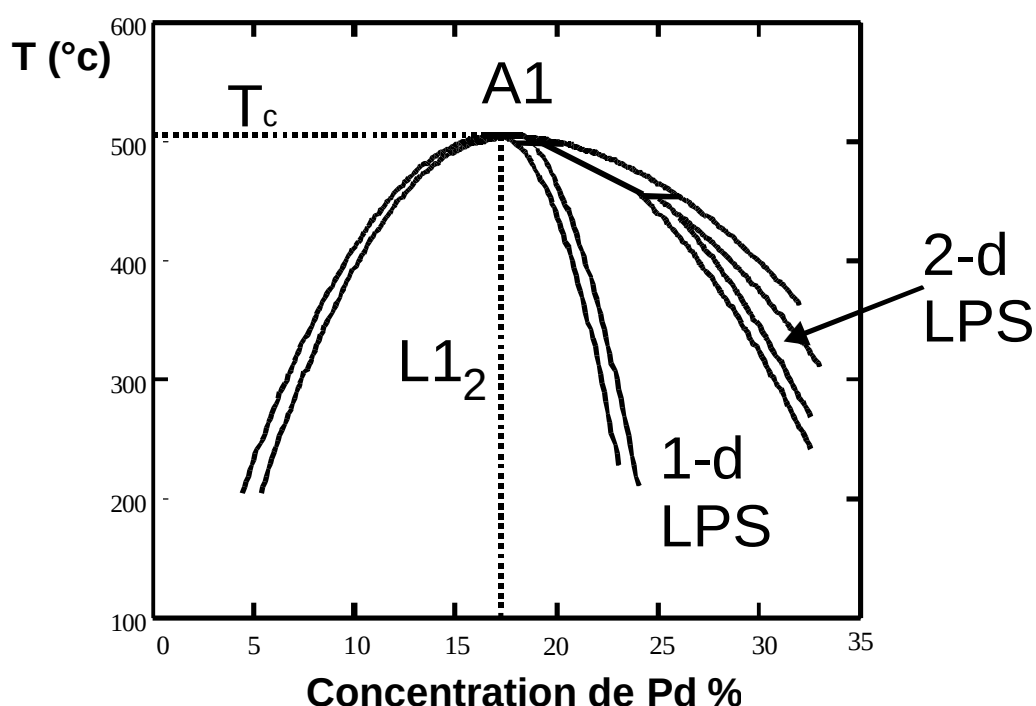


Figure VI-1 : Diagramme de phases simplifié du système Cu-Pd du côté riche en cuivre, tiré de [4]. (1-d LPS et 2-d LPS pour Long Period Structure unidimensionnelle et bidimensionnelle).

VI-C. Comparaison des faces (1,1,11) et (1,1,5) : objectifs

Les faces (1,1,11) et (1,1,5) de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$ se différencient uniquement par la largeur de leurs terrasses. Cette différence a une incidence sur l'énergie du système : l'énergie de surface des terrasses varie à priori en ℓ_0 et l'énergie d'interaction entre marches a une dépendance en A/ℓ_0^2 .

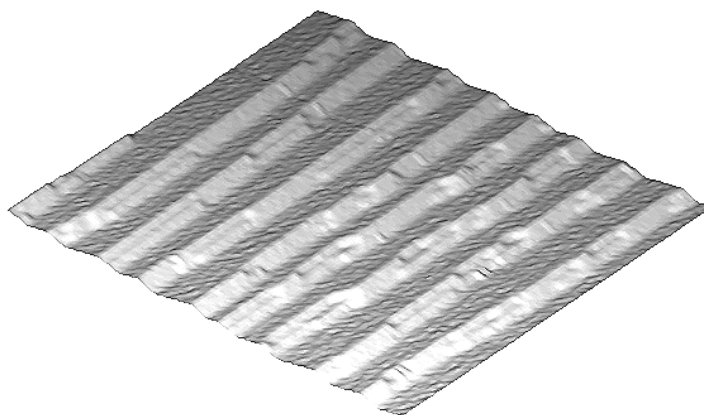
Pour fixer les objectifs de cette comparaison, il est important de rappeler les résultats obtenus par S. Goapper *et al.* [1,2,3] sur la face (1,1,11) :

- Dans la phase ordonnée du cristal ($T < T_C$), les marches sont appariées [1,2] (cf. Figure VI-2). Ces doubles marches sont séparées par des terrasses pures cuivre en accord avec le fait que le plan terminal pur cuivre est d'énergie inférieure au plan terminal cuivre palladium [5,6].
- Dans la phase désordonnée du cristal ($T > T_C$), la surface présente la structure usuelle en marches simples, identique à celle d'une surface de $\text{Cu}(1,1,11)$ [1,2].
- Lors de la transition, le mouillage de la surface par le désordre a été observé et la distance entre marches appariées évolue proportionnellement au paramètre d'ordre chimique de surface [1,2].
- A plus grande échelle la surface présente une structure en domaine dans l'appariement des marches. Il a été montré que cette structure était induite par l'émergence des domaines chimiquement ordonnés de volume (variants) [1,3]. L'étude de cette structure a permis de suivre la cinétique de mise en ordre en présence d'une surface (voir Figure VI-3).

L'objectif consiste donc à comparer la morphologie de la face (1,1,5) et de la face (1,1,11) afin d'obtenir des informations complémentaires sur l'importance des différents paramètres énergétiques intervenant dans la structure d'équilibre des faces vicinales d'alliage $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$.

Les résultats obtenus sur $\text{Cu}(1,1,5)$ montrent que le STM est la technique de choix pour l'étude des faces (1,1,5). Ne pouvant disposer du STM à température variable, nous avons utilisé le STM à température ambiante.

a)



b)

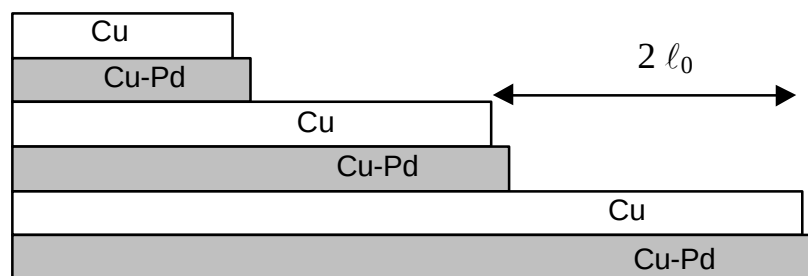


Figure VI-2 : Structure en marches doubles observée sur la face de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ tirée de [1,2]. Figure a) image STM enregistrée à la température ambiante révélant la structure de marches doubles. Figure b) structure ordonnée qui s'en déduit.

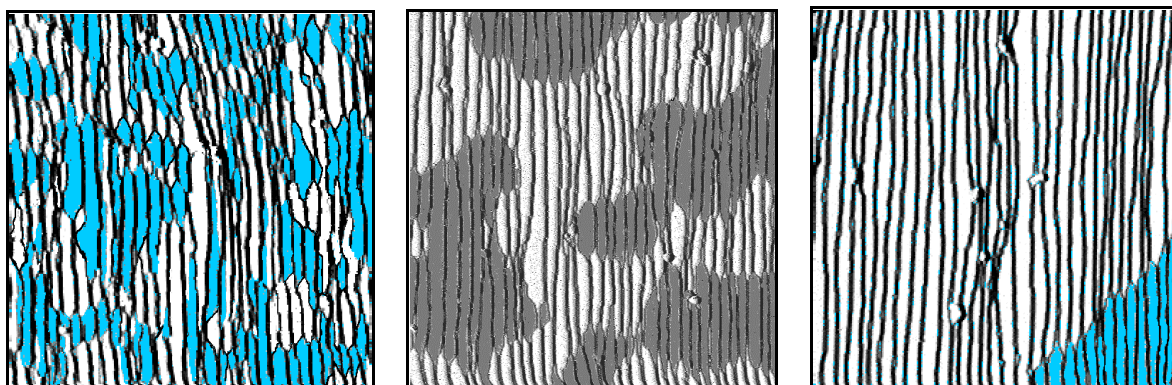


Figure VI-3 : Images STM $1024\text{\AA} \times 1024\text{\AA}$ tirées de [1,3]. De gauche à droite : recuit de 8 min., 1 h et 48 h à $T_C - 13$ K. Les zones grises et blanches sont associées à un appariement différent des marches. Chaque domaine de marches appariées est associé à un domaine chimiquement ordonné.

VI-D. Morphologie de la surface, influence du traitement thermique

VI-D.1. Préparation de l'échantillon

L'échantillon étudié a été découpé dans un monocristal de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$ par électroérosion, puis poli mécaniquement et électrochimiquement (20 % en volume d'acide nitrique, 80 % d'acide acétique, $V_{\text{DC}}=7$ V polarisation + sur l'échantillon, contre électrode en cuivre). Après cette préparation, l'erreur finale sur l'orientation ϕ_0 est de $\pm 0.5^\circ$. Une fois dans l'enceinte ultra-vide, l'échantillon est nettoyé par une succession de bombardements ioniques (Ar^+ , $I_{\text{Ar}^+}=3\mu\text{A}$, 600 eV) suivis de recuits à 850 K.

Le bombardement ionique a aussi pour effet de modifier la stœchiométrie de la surface de l'alliage. En effet, les ions Ar^+ arrachent principalement des atomes des terrasses (cuivre) d'où un excès superficiel de palladium. La dissolution de l'excès de palladium débutant à 625 K, la stœchiométrie superficielle est rétablie, après chaque bombardement, en recuisant l'échantillon au dessus de T_C ($=778$ K [4]) durant au moins une quinzaine de minutes. La température de l'échantillon est ensuite abaissée sous T_C (typiquement T_C-50 K) afin que le cristal s'ordonne. Différents temps de recuit sous T_C ont été réalisés.

Avant d'enregistrer des images, il est nécessaire de laisser l'échantillon à la température ambiante durant au moins 3 heures afin d'équilibrer les marches.

VI-D.2. Images STM obtenues, comparaison avec la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$

Les images STM ont été enregistrées à la température ambiante après les deux types de traitements thermiques définis dans le Tableau VI-1.

La Figure VI-4 et la Figure VI-5 représentent respectivement deux images enregistrées suite aux traitements thermiques 1 et 2. On observe sur ces images une morphologie complètement différente de celle obtenue sur la face de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$:

- **Les marches sont simples**, elles ne s'apparient pas.

- Contrairement au cas du $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$, aucun contraste chimique n'a été observé sur les bords de marches : **les terrasses sont donc à priori pures cuivre.**
- **Aucune signature de l'émergence des parois d'antiphase n'a été observée,** alors qu'avec le traitement thermique 2 (voir Figure VI-5) le volume est constitué de domaines ordonnés de moins de 100 Å de diamètre [1,3].

	Préparation de la surface			Taille des domaines ordonnés en volume de l'alliage $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}[1,3]$
Traitement 1	Recuit à T_C+80 K 30 min	Recuit à T_C-50 K 12 h	Après 3 h de refroidissement, enregistrement des images à $T=300$ K	≈ 700 Å
Traitement 2	Recuit à T_C+80 K 1h, puis trempe		Après 3 h de refroidissement, enregistrement des images à $T=300$ K	< 100 Å

Tableau VI-1 : Traitements thermiques subis par la surface avant enregistrement.

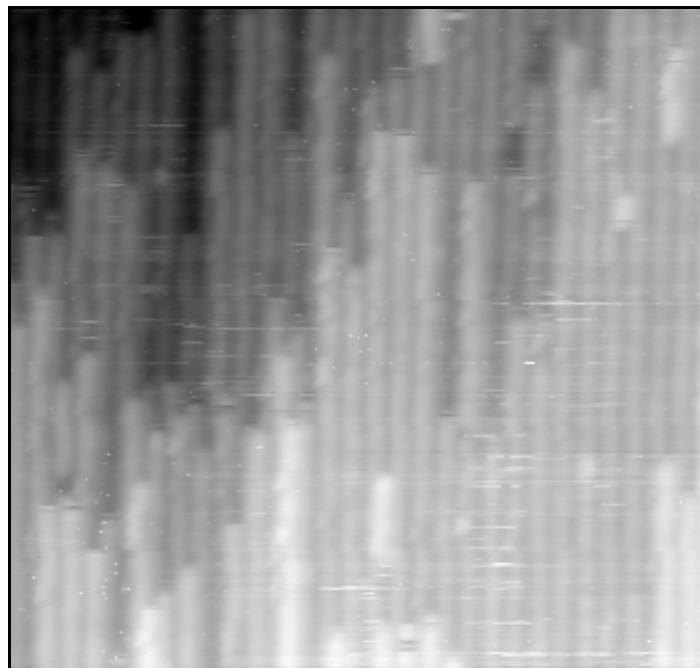


Figure VI-4 : Image STM ($280\text{\AA} \times 330\text{\AA}$) enregistrée à $T=300$ K, après le traitement 1 ($I=0.6$ nA et $V_s=-1$ V).

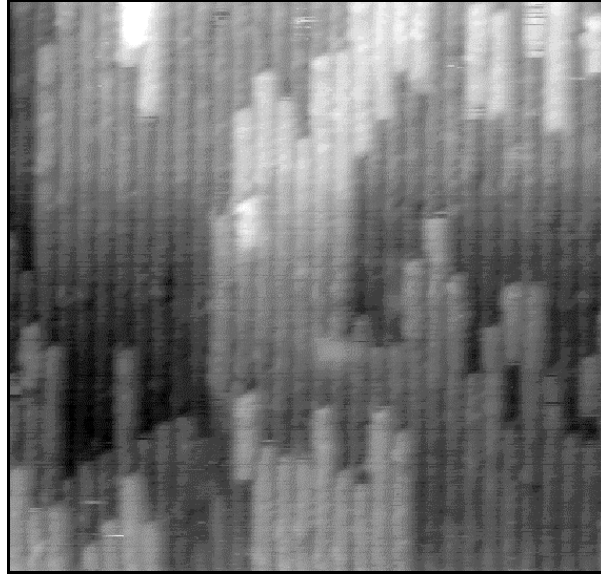


Figure VI-5 : Image STM ($230\text{\AA} \times 230\text{\AA}$) enregistrée à $T=300\text{ K}$, après le traitement 2 ($I=0.12\text{ nA}$ et $V_s=-1\text{ V}$).

VI-D.3. Interprétation des images obtenues

VI-D.3.1. Modèle structural

Ces observations nous permettent de proposer un modèle pour la structure. Les terrasses étant pures Cu, ceci implique la présence de parois d'antiphases verticales et horizontales pour le raccordement avec le volume. Une représentation de cette structure sous-jacente est donnée sur la Figure VI-6.

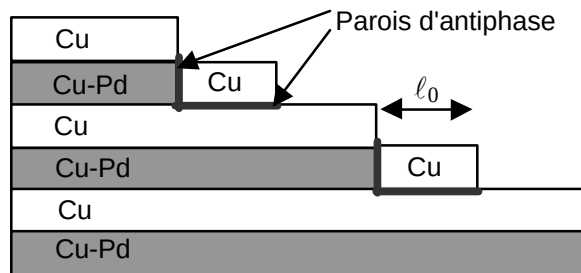


Figure VI-6 : Structure du $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ proposée à la suite des observations STM réalisées.

Les parois représentées de manière abruptes sur la Figure VI-6, peuvent être diluées sur plusieurs plans.

Afin d'expliquer de façon cohérente, à la fois la structure marches simples de la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ et la structure marches doubles des faces à grandes largeurs de terrasses

($\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ et une face vicinale de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,0)$ angle de coupe 1.8°), un modèle énergétique a été élaboré par L. Barbier *et al.* [7]. Il est présenté dans le paragraphe suivant.

VI-D.3.2. Modèle énergétique

Ce modèle n'est pas un modèle quantitatif précis. L'objectif est d'avoir une idée de la tendance entre structures marches simples et marches doubles en fonction de la distance entre marches. La Figure VI-7 reproduit la coupe de volume et les deux structures proposées : marches doubles et marches simples.

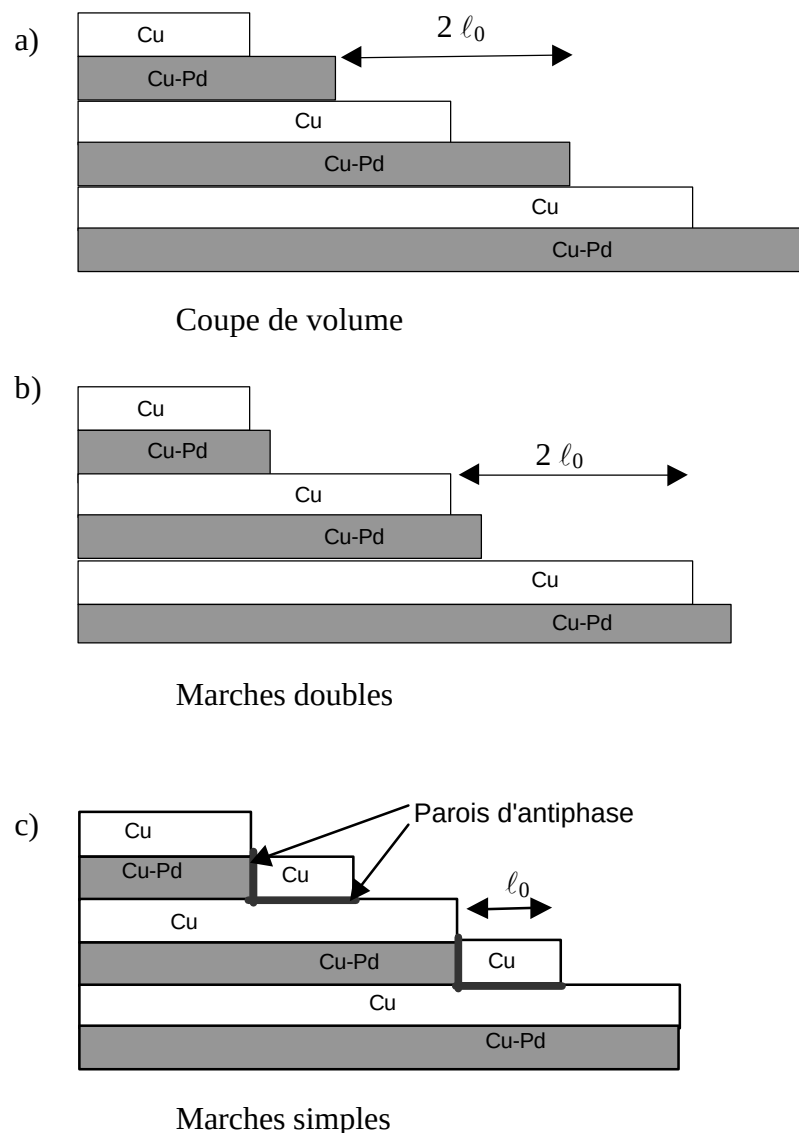


Figure VI-7 : Les différentes structures des faces vicinales du $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$: a) la coupe de volume, b) la structure marches doubles et c) la structure marches simples.

La coupe de volume (voir Figure VI-7 a) est choisie comme état de référence pour l'énergie libre ($F=0$).

Pour la structure en **marches doubles**, la différence d'énergie libre dF_2 , par maille élémentaire de surface ($2\ell_0$), par rapport à la coupe de volume, provient du changement de structure marches simples - marches doubles et de la transformation d'une terrasse Cu-Pd en une terrasse pure Cu. On obtient donc :

$$(VI-1) \quad dF_2 = (F_{dm} - 2F_{sm}) + \ell_0 (F_{tCu} - F_{tCuPd}),$$

où F_{dm} et F_{sm} sont les énergies libres de formation d'une marche double et d'une marche simple. F_{tCu} et F_{tCuPd} sont les énergies libres (par unité de surface) d'une terrasse pure Cu et d'une terrasse Cu-Pd.

La répulsion entre marches (dont l'interaction élastique en A/ℓ^2) conduit à $F_{dm} - 2F_{sm} > 0$. Le plan des terrasses étant pur Cu, on a $F_{tCu} - F_{tCuPd} < 0$.

Pour la structure **marches simples**, la différence d'énergie libre dF_1 , par maille élémentaire de surface, par rapport à la coupe de volume est due à la transformation d'une terrasse Cu-Pd en une terrasse pure Cu et à la présence de parois d'antiphase parallèles et perpendiculaires aux terrasses. On a :

$$(VI-2) \quad dF_1 = \ell_0 (F_{tCu} - F_{tCuPd}) + \ell_0 F_{APB//} + F_{APB\perp},$$

où $F_{APB//}$ et $F_{APB\perp}$ sont les énergies libres de formation d'une paroi d'antiphase parallèle et perpendiculaire aux terrasses.

Les parois d'antiphases sont des défauts d'ordre chimique, ce qui implique que $F_{APB//} > 0$ et $F_{APB\perp} > 0$.

La différence d'énergie libre entre l'état marches doubles et marches simples est donnée par :

$$(VI-3) \quad \Delta F_{21} = dF_2 - dF_1 = (F_{dm} - 2F_{sm}) - F_{APB\perp} - \ell_0 F_{APB//}.$$

Si $F_a = (F_{dm} - 2F_{sm}) - F_{APB\perp} < 0$, le système est toujours dans l'état marches doubles. Dans le cas contraire, $F_a = (F_{dm} - 2F_{sm}) - F_{APB\perp} > 0$, il existe une transition entre l'état

marches simples et l'état marches doubles pour une valeur de ℓ_0 . Dans tous les cas la relation (VI-3) montre que l'état marches doubles est favorisé pour les grandes valeurs de ℓ_0 . C'est pourquoi l'expérience a été orientée vers l'étude d'une surface à petite distance entre marches.

Pour le $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$, les marches doubles sont observées ($\Delta F_{21} < 0$) pour $\ell_0 = 5.5$ (face (1,1,11)) [1,2], donc :

$$(VI-4) \quad (F_{dm} - 2F_{sm}) - F_{APBL} < (\ell_0 = 5.5)F_{APB//} .$$

Pour $\ell_0 = 2.5$ (face (1,1,5)), on observe un état marches simples ($\Delta F_{21} > 0$) :

$$(VI-5) \quad (F_{dm} - 2F_{sm}) - F_{APBL} > (\ell_0 = 2.5)F_{APB//} > 0 .$$

L'observation de la transition entre une face (1,1,11) et (1,1,5) impose donc :

$$(VI-6) \quad F_a = (F_{dm} - 2F_{sm}) - F_{APBL} > 0 ,$$

et

$$(VI-7) \quad (\ell_0 = 5.5)F_{APB//} > (F_{dm} - 2F_{sm}) - F_{APBL} > (\ell_0 = 2.5)F_{APB//} > 0 .$$

VI-D.4. Analyse statistique de la position des marches

L'analyse statistique de la position des marches sur la face de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ a été réalisée de manière identique à celle de la face $\text{Cu}(1,1,5)$ à $T=300$ K. Les images analysées ont été obtenues après le traitement thermique de type 2. La statistique a été réalisée sur 3 images de $300 \text{ \AA} \times 250 \text{ \AA}$, soit $3.9 \text{ \mu m}$ de longueur de marches. Sur ces images les marches secondaires ont été retirées en utilisant la procédure présentée dans le cas du $\text{Cu}(1,1,5)$ (cf. § IV-C.5.1.).

On observe que la fonction de corrélation $G(m,0)$ et la distribution des largeurs de terrasses de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ et de $\text{Cu}(1,1,5)$ sont très proches (voir Figure VI-8 et Figure VI-10). Aux courtes distances, la fonction de corrélation $G(0,y)$ du $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ diffère, quant à elle, de celle mesurée expérimentalement sur la face $\text{Cu}(1,1,5)$ (Figure VI-9). La fonction $G(0,y)$ de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ est plus proche de la simulation Monte Carlo (voir Figure VI-9) réalisée avec les paramètres déterminés pour le $\text{Cu}(1,1,5)$ ($A=100$ K et $E_k=1430$ K, cf.

paragraphe IV-C.7). Ceci s'interprète par une contribution temporelle dans $G(0,y(t))$ plus faible pour l'alliage $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ que pour $\text{Cu}(1,1,5)$.

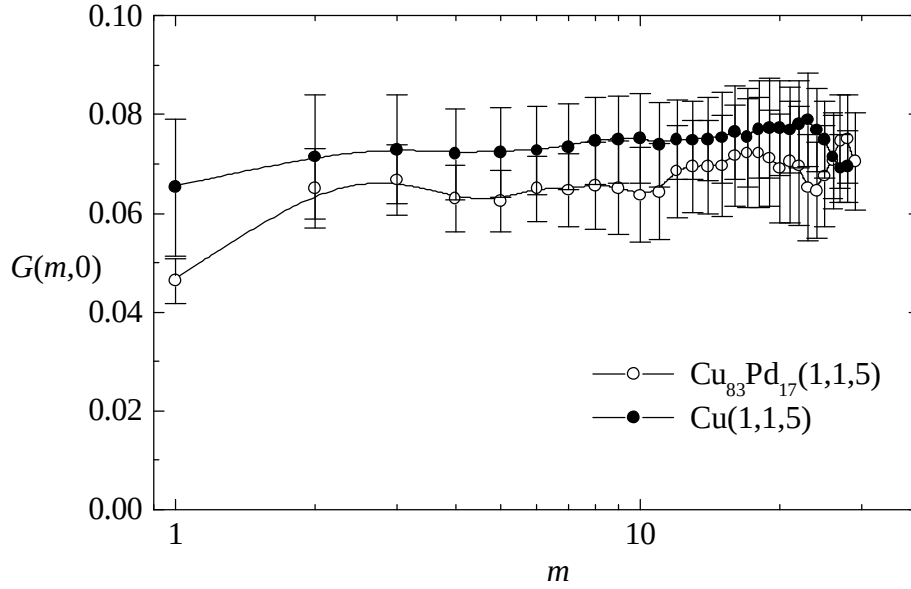


Figure VI-8 : Fonctions de corrélation expérimentales $G(m,0)$ de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ et de $\text{Cu}(1,1,5)$ à $T=300$ K.

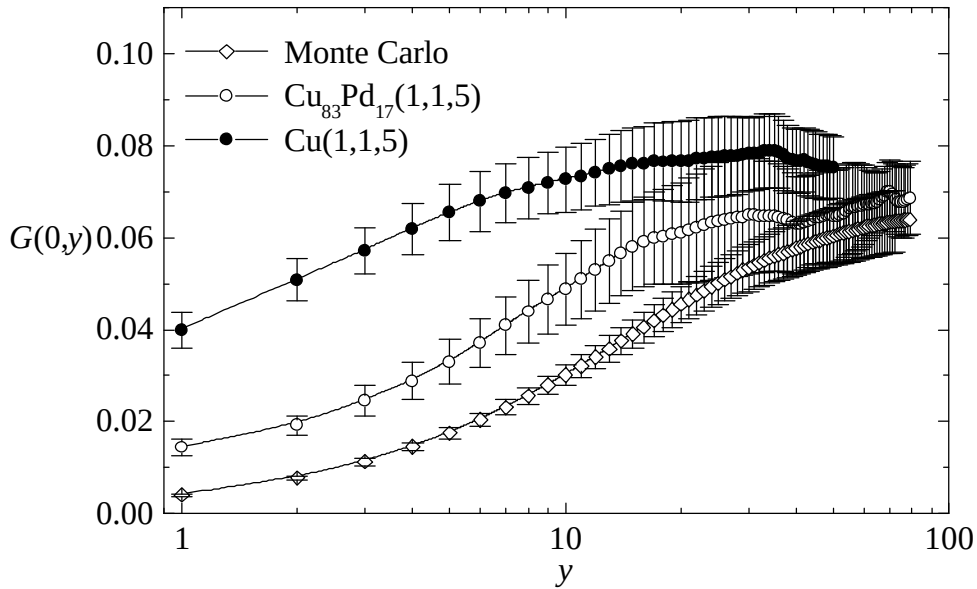


Figure VI-9 : Fonctions de corrélation expérimentales $G(0,y)$ de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ et de $\text{Cu}(1,1,5)$ à $T=300$ K. Comparaison avec $G(0,y)$ obtenue par simulation Monte Carlo pour les paramètres de $\text{Cu}(1,1,5)$ ($A=100$ K et $E_k=1430$ K).

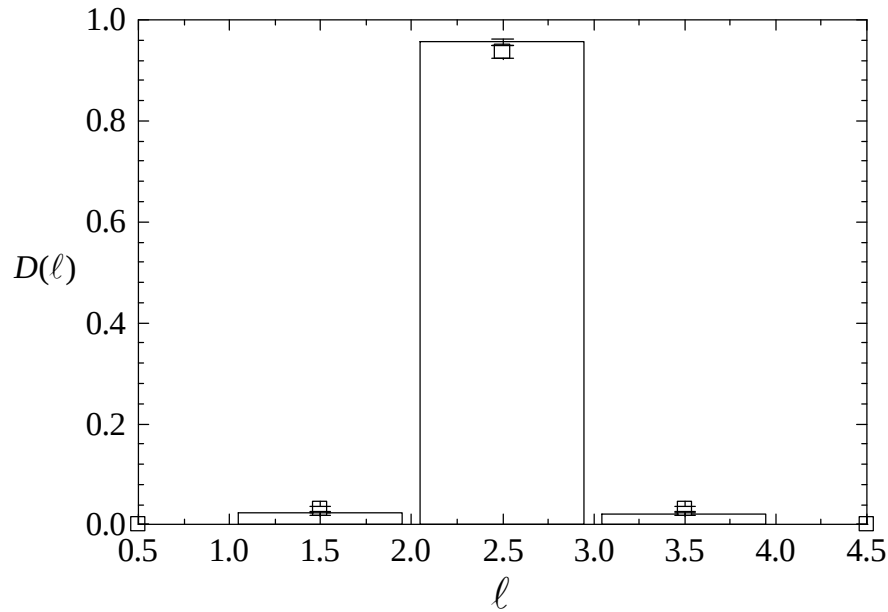


Figure VI-10 : Distributions des largeurs de terrasses expérimentales de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ (histogramme) et de $\text{Cu}(1,1,5)$ (?) mesurées à $T=300$ K.

On obtient donc que la face de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ a un comportement très proche de celui de la face de $\text{Cu}(1,1,5)$ à $T=300$ K. La structure ordonnée sous-jacente ne modifie donc pas, à cette température, le comportement des marches pures cuivres.

VI-E. Conclusion

Sur la face de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$, nous avons observé :

- que **les marches sont simples**, contrairement au cas de la face de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ sur laquelle les marches sont appariées,
- l'absence de contraste chimique sur les images STM, ce qui implique que **les terrasses sont toutes pures cuivre**,
- **aucune signature de l'émergence des parois d'antiphase de volume**,
- **un désordre thermique similaire à celui du $\text{Cu}(1,1,5)$.**

De ces observations et de la comparaison avec la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$, on peut conclure que pour les grandes valeurs de ℓ_0 , c'est l'excès d'énergie des terrasses Cu-Pd qui impose la morphologie (marches doubles sur $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$), tandis que pour les faibles valeurs de ℓ_0 c'est l'énergie d'interaction entre marches (marches simples sur $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$). En suivant le modèle énergétique élaboré, ce comportement se résume à la condition :

$$(\ell_0 = 5.5)F_{APB//} + F_{APB\perp} > (F_{dm} - 2F_{sm}) > (\ell_0 = 2.5)F_{APB//} + F_{APB\perp} > 0.$$

BIBLIOGRAPHIE

- [1] S. Goapper, Thèse de l'Université de Marne la Vallée (1998).
- [2] L. Barbier , S. Goapper, B. Salanon, R. Caudron, A. Loiseau, J. Alvarez, S. Ferrer et X. Torrelles, Phys. Rev. Lett. **78** (1997) 3003.
- [3] S. Goapper, L. Barbier, B. Salanon, A. Loiseau et X. Torrelles, Phys. Rev. **B 57** (1998) 12497.
- [4] C. Ricolleau , Thèse de l'Université Paris VI (1992).
- [5] M.A Newton, S.M. Francis, Y. Li, D. Daw et M. Bowker, Surf. Sci. **259** (1991) 45.
- [6] R.H. Bergmans, M. Van de Grift, A.W. Denier van de Gon et H.H. Brongersma, Surf. Sci. **345** (1996) 303.
- [7] L. Barbier, B. Salanon et A. Loiseau, Phys. Rev. **B 50** (1994) 4929.

CHAPITRE VII :

Etude de la face $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,1)$

VII-A. Introduction

Dans le chapitre précédent nous avons montré que la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ se comporte différemment de la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$. Dans cette étude, concernant l'influence de l'ordre chimique sur la morphologie de surface, nous nous sommes intéressés à un autre alliage : Cu_3Au . Ces deux alliages, $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$ et Cu_3Au , possèdent la même structure A_3B -CFC et présentent une transition ordre (L_{12}) - désordre (A1) chimique du premier ordre. Cependant ils diffèrent en plusieurs points :

- Le plan terminal dans la direction $[001]$ est mixte dans le cas de Cu_3Au [1] et pur cuivre dans le cas de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$ [2,3].
- Dans Cu_3Au , les parois d'antiphase en volume présentent des orientations préférentielles selon les faces de la maille élémentaire cubique [4,5], contrairement à $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$ où toutes les orientations sont observées [6]. Du fait de leurs orientations, les parois d'antiphase dans Cu_3Au sont conservatives [4]. Cette orientation préférentielle traduit une interaction entre atomes premiers voisins très supérieure à l'interaction entre atomes seconds voisins.

Bien que ces deux alliages présentent les mêmes symétries, ces différences dans leur tendance à l'ordre peut se traduire par des comportements différents au niveau de la surface.

De plus, Reichert *et al.* [7] ont étudiés par diffraction de rayons X la mise en ordre en présence d'une surface sur un échantillon de $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$. Ils ont observé une mise en ordre très anisotrope avec la formation de grands domaines au niveau de la surface. Ce résultat montre qu'il n'y a pas d'émergence de parois d'antiphase à la surface. Ceci contraste avec les observations par STM réalisées sur la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ où les parois d'antiphase sont apparentes [8,9]. L'absence de parois d'antiphase à la surface $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ peut être due, soit à la nature de l'alliage, soit au fait qu'il s'agit d'une surface plate. L'étude d'une face vicinale de l'alliage Cu_3Au va permettre de répondre à cette question.

Du point de vue expérimental, l'alliage de Cu_3Au présente l'intérêt d'avoir une température critique suffisamment basse (663 K [10]) pour permettre une étude de la transition avec le microscope à effet tunnel à température variable disponible au laboratoire, dont la température maximale de fonctionnement est de 700 K.

VII-B. Choix du système

Tout comme $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$ (Chapitre VI-B), nous avons choisi la composition de l'alliage Cu-Au de façon à se placer au point congruent du diagramme de phases qui correspond à la composition idéale $\text{Cu}_{75}\text{Au}_{25}$ (cf. Figure VII-1). Le respect de la stœchiométrie idéale Cu_3Au implique que sous la température critique $T_C=663$ K [10], le cristal sera parfaitement ordonné, contrairement au $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$ qui comporte une certaine quantité de désordre.

Pour cette étude nous avons choisi l'orientation (1,1,11) afin de comparer la morphologie de cette face par rapport à celle de la face de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ qui présente une structure en marches appariées.

Deux échantillons ont été étudiés :

Le premier présente une concentration en Au légèrement supérieure à la stœchiométrie idéale : $\text{Cu}_{73.25}\text{Au}_{26.75}$. L'angle de coupe de la face $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,11)$ par rapport au plan (001) est $\phi_0=7.32^\circ$. Contrairement à notre demande, l'échantillon fourni présente un angle de coupe $\phi_0=6.2 \pm 0.3^\circ$, correspondant à une orientation (1,1,13) ($\phi_0=6.21^\circ$).

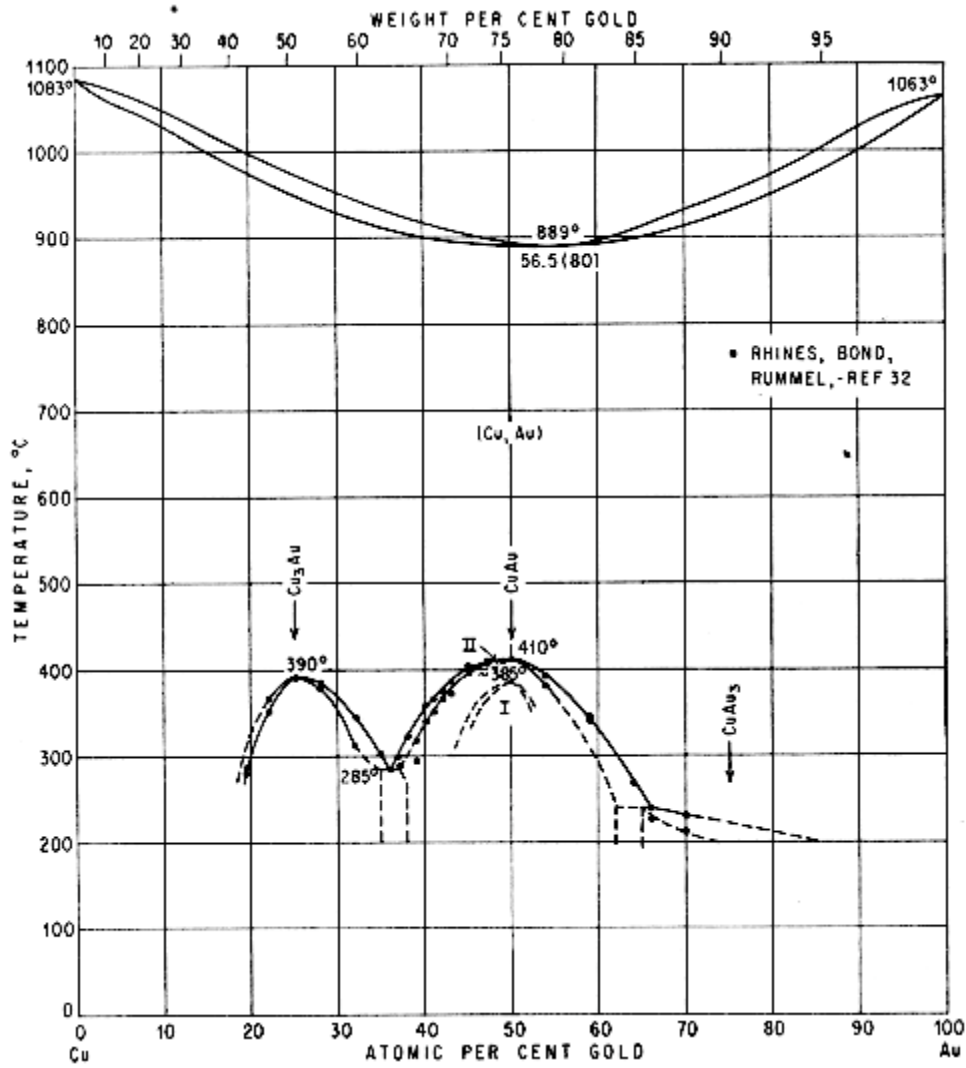


Figure VII-1 : Diagramme de phase simplifié du système Cu-Au, tiré de [10].

Un excès d'Au de quelques % par rapport à la concentration idéale peut conduire à un comportement radicalement différent en température [11] : Un excès de 3% sur la concentration atomique de Au conduit à une transition ordre désordre en surface de 20 K supérieure à celle du volume ($T_C(\text{Cu}_{72}\text{Au}_{28})=644.5 \text{ K}$). De plus, dans ce domaine de concentration il existe des structures ordonnées à longues périodes. Nous avons alors décidé d'utiliser un deuxième échantillon ayant une concentration en Au légèrement inférieure à la stœchiométrie idéale : $\text{Cu}_{75.77}\text{Au}_{24.23}$. Néanmoins, l'échantillon fourni présente, tout comme le premier échantillon, une erreur dans l'angle de coupe par rapport à la face (1,1,11) souhaitée ($\phi_0=7.32^\circ$). En effet, l'angle de coupe de cet échantillon ($\phi_0=6.60 \pm 0.04^\circ$) est proche de l'orientation (1,1,12) ($\phi_0=6.72^\circ$). Cette désorientation conduit à une marche en moins tous les 175 Å par rapport à l'orientation (1,1,11). Ne pouvant obtenir, dans un temps raisonnable, un autre échantillon avec la bonne orientation, nous avons conservé celui-ci. La faible

désorientation par rapport à l'orientation désirée ne devant, a priori, conduire à aucune modification importante de la morphologie de la surface par rapport à l'orientation $(1,1,11)$.

Le premier échantillon $\text{Cu}_{73.25}\text{Au}_{26.75}(1,1,13)$ a été étudié par STM à température ambiante et par diffraction d'atomes d'hélium. Le second $\text{Cu}_{75.77}\text{Au}_{24.23}(1,1,12)$ nous a servi pour l'étude, en température, par microscopie à effet tunnel à température variable (STM-VT) et par diffraction d'hélium.

VII-C. Etude par microscopie à effet tunnel à température ambiante

VII-C.1. Préparation de l'échantillon

L'étude par microscopie à effet tunnel à la température ambiante a été réalisée sur le premier échantillon : $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)$.

L'échantillon étudié a été découpé dans un monocristal de Cu_3Au par électroérosion, puis poli mécaniquement et électrochimiquement (10% en volume d'acide perchlorique, 90% acide acétique, $V_{\text{DC}}=15$ V polarisation + sur l'échantillon, contre électrode en cuivre). Dans l'enceinte ultra-vide l'échantillon est nettoyé par une succession de bombardements ioniques (Ar^+ , $I_{\text{Ar}^+}=4\mu\text{A}$, 600 eV, 1h). Chaque bombardement est suivi d'un recuit à 770 K (T_C+110 K) durant une trentaine de minutes afin de rétablir la stœchiométrie superficielle détruite durant le bombardement. La température de l'échantillon est ensuite abaissée à T_C-20 K afin que le cristal s'ordonne. Différents temps de recuit à T_C-20 K ont été réalisés. Avant d'enregistrer des images, l'échantillon est maintenu à température ambiante durant au moins 3 h, temps nécessaire pour équilibrer les marches sur une face vicinale de cuivre.

VII-C.2. Description des images STM

L'image STM représentée Figure VII-2 est caractéristique des images observées à température ambiante après un recuit à T_C-20 K de 18 h. Sur cette image les marches sont verticales et les bords de marches sont orientés vers la droite. Afin de mieux repérer les marches, la dérivée des hauteurs est calculée sur toute l'image :

$$(VII-1) \quad \frac{dz(X,Y)}{dX} = z(X+1,Y) - z(X,Y) .$$

avec $z(X,Y)$ la hauteur en chaque pixel sur l'image.

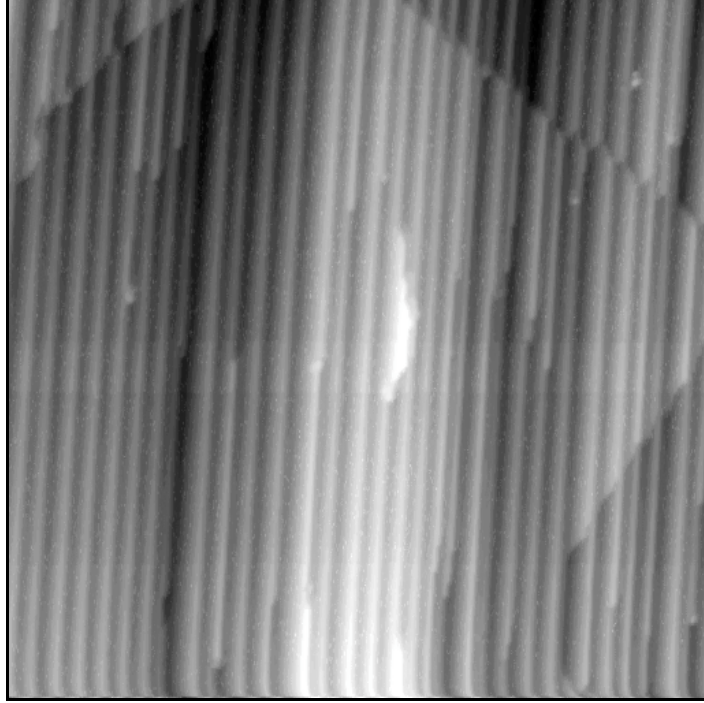


Figure VII-2 : Image STM ($1024\text{\AA} \times 1024\text{\AA}$) du $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)$ enregistrée à la température ambiante, après un recuit de la surface de 18 h à $T_C - 20\text{ K}$. ($V_s = -1\text{ V}$, $I = 0.9\text{ nA}$)

L'image dérivée est représentée Figure VII-3. Les bords de marches, correspondant à une forte pente négative, apparaissent sous forme de lignes grises, alors que les terrasses de pente constante sont en blanc (domaine central). Les terrasses des domaines périphériques ont ensuite été grisées afin de bien les distinguer. Cette structure en domaines sera décrite plus loin, nous nous intéressons pour l'instant au domaine ordonné central. On observe que les marches sont appariées.

Sur l'image de la Figure VII-3, les marches séparées par la distance minimum d'approche (terrasses de $0.5 a_0$) apparaissent sous la forme d'un fin trait noir. Lorsqu'une paire de marches est légèrement séparée (terrasses de $1.5 a_0$, majoritaires sur cette image) le trait est plus épais et gris. On peut également noter que ces marches comportent peu de crans. On note aussi que le réseau de marches doubles n'est pas très régulier.

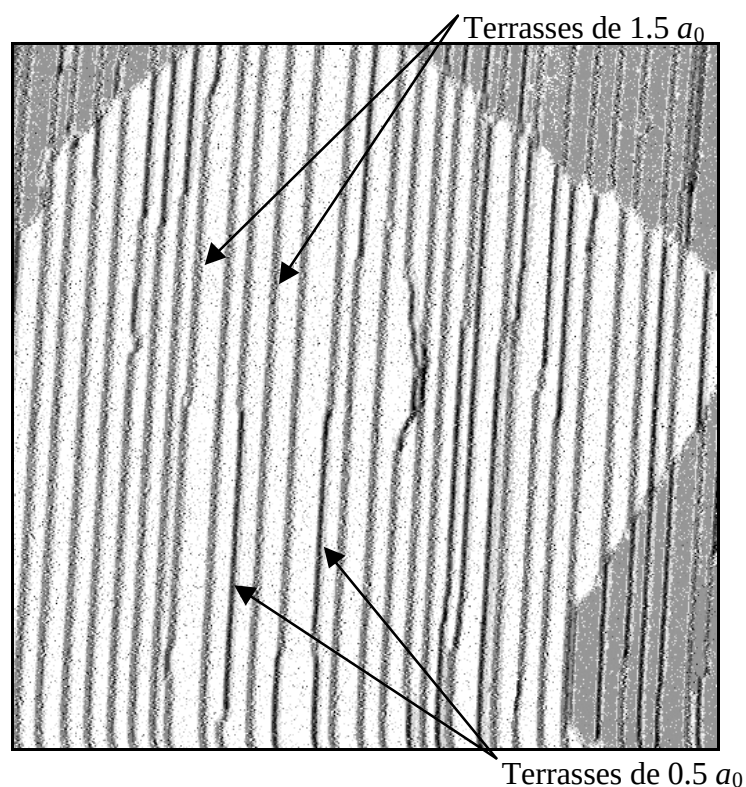


Figure VII-3 : Dérivée de l'image Figure VII-2 ($1024\text{\AA} \times 1024\text{\AA}$).

Sur quelques images, la résolution atomique a pu être obtenue en bords de marches. Sur l'image STM représentée sur la Figure VII-4, on observe une modulation de hauteur de la pointe le long du bord de marches supérieures. La modulation du bord de marches inférieures n'est pas apparente sur l'image en niveaux de gris, mais est observable en analysant les lignes de balayage STM. La Figure VII-5 montre les modulations du bord de marches supérieures le long du segment (A1-A2) et inférieur (B1-B2). La période de modulation est de $4.8 \pm 0.6 \text{ \AA}$ pour la marche supérieure et de $2.4 \pm 0.6 \text{ \AA}$ pour la marche inférieure.

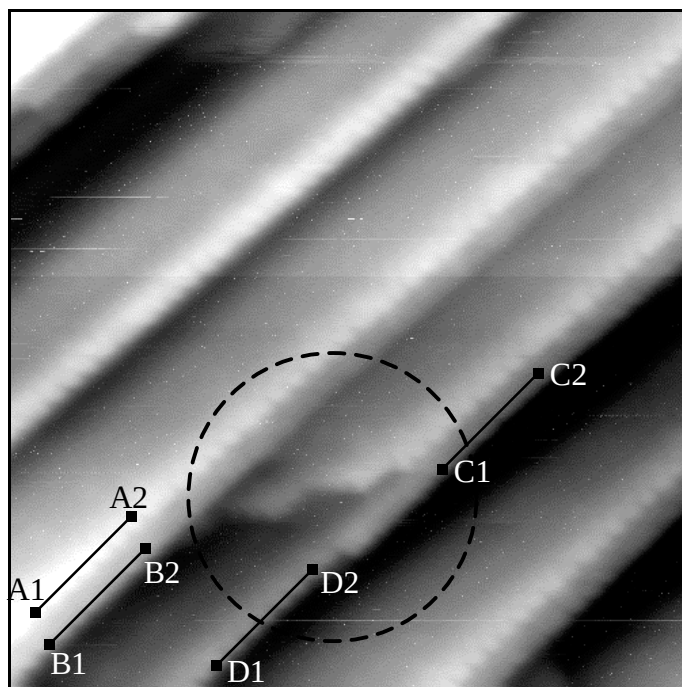


Figure VII-4 : Image STM ($150\text{\AA} \times 150\text{\AA}$) de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)$ avec la résolution atomique enregistrée à la température ambiante, après un recuit de la surface de 1 h à $T_C - 20$ K.

Près du point C1, on observe le dédoublement d'une paire de marches qui conduit à la formation d'un triplet de marches (sous A1-A2), tandis que la marche (D1-D2) est simple. ($V_s = -1$ V, $I = 1.36$ nA)

La distance de 2.4 ± 0.6 Å mesurée correspond à la distance entre atomes premiers voisins (2.65 Å). Tous les atomes du bord de marches inférieures sont donc visibles. Pour la marche supérieure, la modulation est de 4.8 ± 0.6 Å. Cette distance peut être interprétée comme l'observation d'un atome sur deux, liée au contraste chimique entre les atomes de Cu et Au. Ceci suggère que les terrasses sont mixtes Cu-Au tandis que le plan sous-jacent est pur Cu. Cette interprétation est en accord avec la structure de volume de l'alliage ordonné (succession de plans purs Cu et mixtes Cu-Au) et avec des expériences de diffusion d'ions [1] montrant la même terminaison Cu-Au sur la face Cu_3Au (001) dans la phase ordonnée.

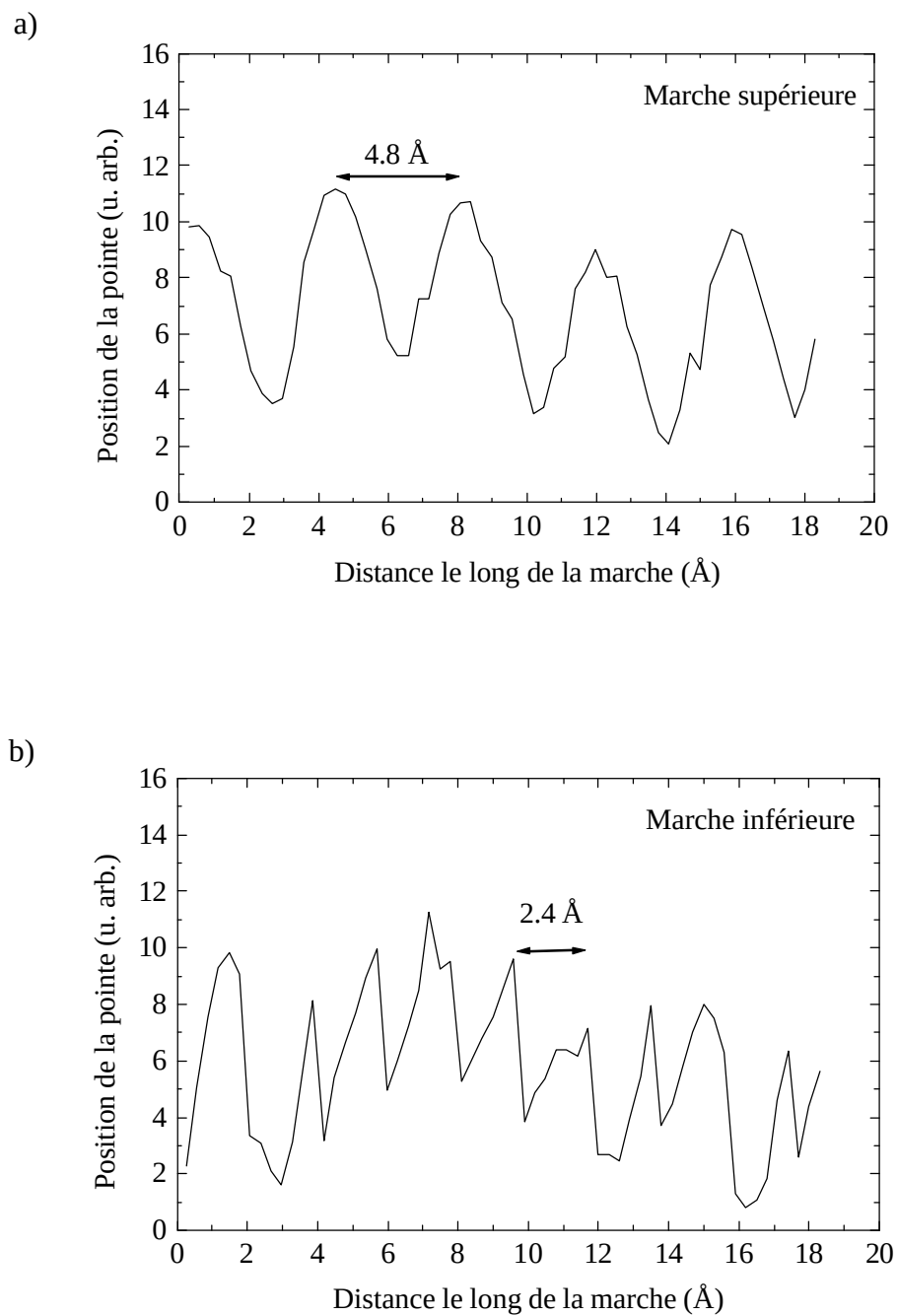


Figure VII-5 : Modulation de la distance pointe-surface le long des bords de marches :
 a) sur la marche supérieure ((A1-A2) Figure VII-4),
 b) sur la marche inférieure ((B1-B2) Figure VII-4).

La Figure VII-6 résume la structure observée de la surface de l'alliage dans l'état parfaitement ordonné : les marches sont appariées, la structure L1_2 donne une alternance de plans mixtes Cu-Au et de plans purs Cu en volume. Le plan terminal des terrasses est toujours mixte.

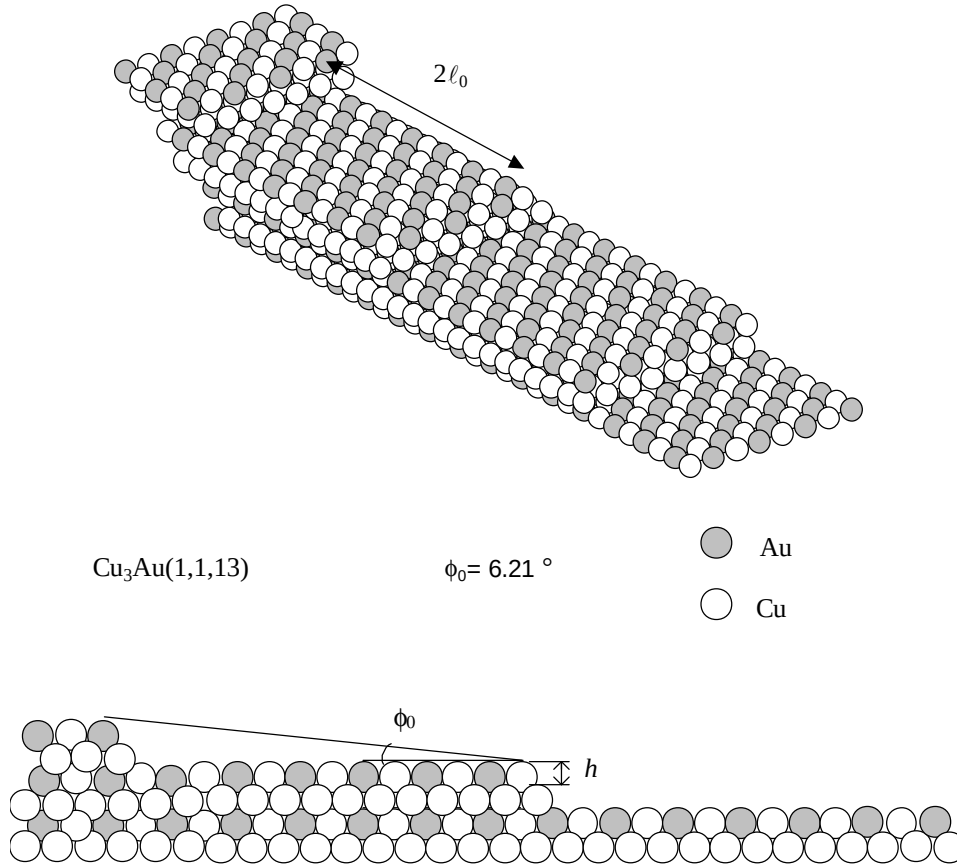


Figure VII-6 : Représentation de la face $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)$ dans la phase ordonnée.

Ce résultat est à rapprocher de l'observation de marches de hauteur double, très droites, alignées dans la direction $[110]$ sur une face plate de $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ [12]. Ce rapprochement tend à montrer que pour les grandes largeurs de terrasses, les marches sont appariées. Du point de vue théorique, un calcul de minimisation d'énergie pour les faces $(1,1,3)$ et $(1,1,5)$ à $T=0$ K, montre que la structure en marches appariées avec des terrasses de composition mixte est favorisée [13].

Intéressons nous, à présent, à la structure en domaine de la Figure VII-3. Sur cette image ont été représentés en blanc et en gris des domaines séparés par des défauts dans le réseau de marches appariées. Ces défauts correspondent à un dédoublement des marches qui se recombinent ensuite rapidement avec les marches adjacentes pour redonner deux marches appariées (voir schéma Figure VII-7). Ces défauts sont alignés et définissent ainsi des parois

qui divisent la surface en domaines (gris et blanc sur la Figure VII-3). A l'intérieur de chaque domaine, les marches sont parfaitement appariées.

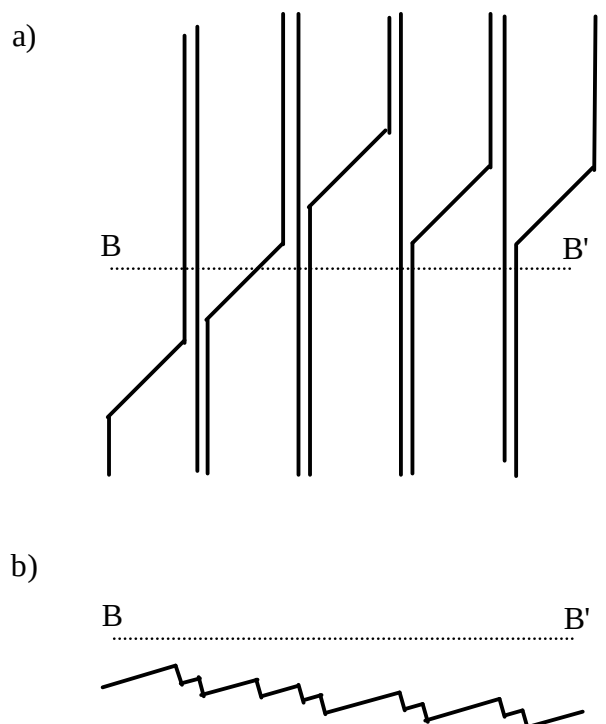


Figure VII-7 : Schéma du désappariement et du réappariement des marches au voisinage d'une paroi d'antiphase : a) vue de dessus, b) coupe de volume selon BB'.

Afin de comprendre l'origine de ce dédoublement, on peut suivre une marche lors du passage d'un domaine ordonné à un autre sur l'image avec la résolution atomique (Figure VII-4). Les profils des segments le long d'une même marche (C1-C2) et (D1-D2) de part et d'autre du dédoublement sont représentés sur la Figure VII-8. On retrouve les modulations de $2.4 \pm 0.6 \text{ \AA}$ sur la partie droite de la marche (C1-C2) et $4.8 \pm 0.6 \text{ \AA}$ le long de (D1-D2).

Ce changement de modulation peut être interprété comme un changement de nature chimique (pur Cu $\longleftrightarrow$ mixte Cu-Au) des plans atomiques (001). Nous observons donc l'émergence d'une **paroi d'antiphase** à la surface (Figure VII-4). Cette paroi d'antiphase, impliquant un changement de nature des plans (001), est de type [101] ou [011] comme définie paragraphe V-E.2. (On rappelle qu'une paroi de type [110] n'entraîne pas de changement dans l'ordre des plans et ne peut être vue par l'intermédiaire du dédoublement des marches, seulement 2/3 des parois sont visibles).

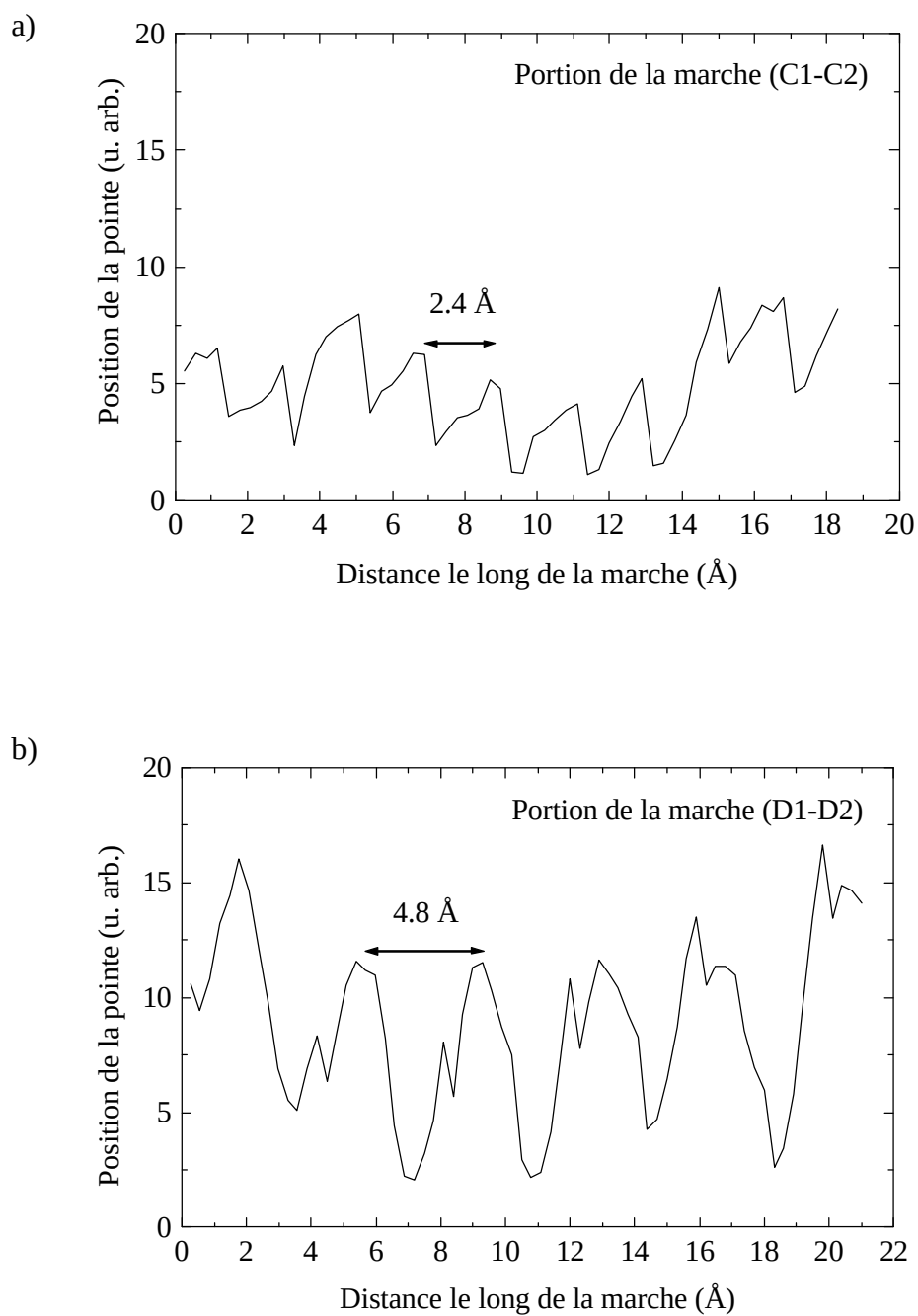


Figure VII-8 : Modulation de la distance pointe-surface le long du bord de marche :

- a) Avant le dédoublement ((C1-C2) Figure VII-4),
- b) Après le dédoublement ((D1-D2) Figure VII-4).

Le dédoublement local des marches conduit donc à observer une géométrie que l'on peut schématiser de la façon suivante (Figure VII-9) :

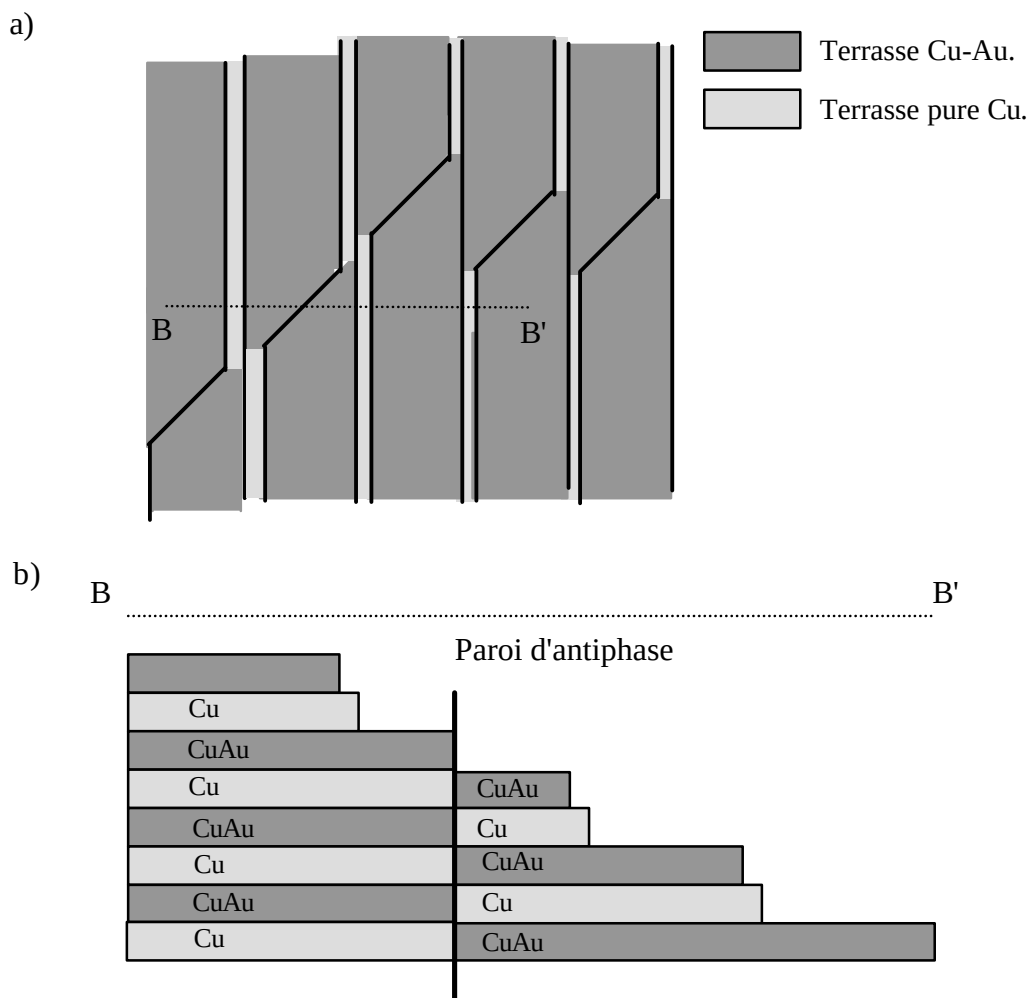


Figure VII-9 : Représentation schématique de la surface traversée par une paroi d'antiphase de type $[101]$ ou $[011]$ (cf. paragraphe V-E.2.) :

a) vue de dessus,
b) coupe de volume selon BB'.

Il est remarquable que les parois d'antiphase observées sont orientées principalement dans les directions $[100]$ et $[010]$ (voir Figure VII-3). Cette observation est similaire à celles faites en volume par microscopie électronique à transmission montrant que les parois sont orientées selon les directions du cube $[4,5]$. On observe donc en surface et en volume un comportement similaire des parois.

VII-C.3. Cinétique de mise en ordre

Le dédoublement local des marches permet de localiser les parois d'antiphase à la surface. Ceci permet de suivre aisément l'évolution de la taille des domaines dans le plan de surface.

Pour ceci, après des temps de recuit à $\Delta T = T_C - T = 20$ K allant de 5 mn. à 18 h suivis d'une trempe, la surface a été imagée à température ambiante. L'évolution de la taille des domaines est visible sur la Figure VII-10, sur laquelle sont représentées trois images enregistrées après un recuit de 5 mn., 4 h et 18 h. On observe que les domaines grossissent au cours du temps de recuit et que les parois s'orientent majoritairement dans les directions $[100]$ et $[010]$.

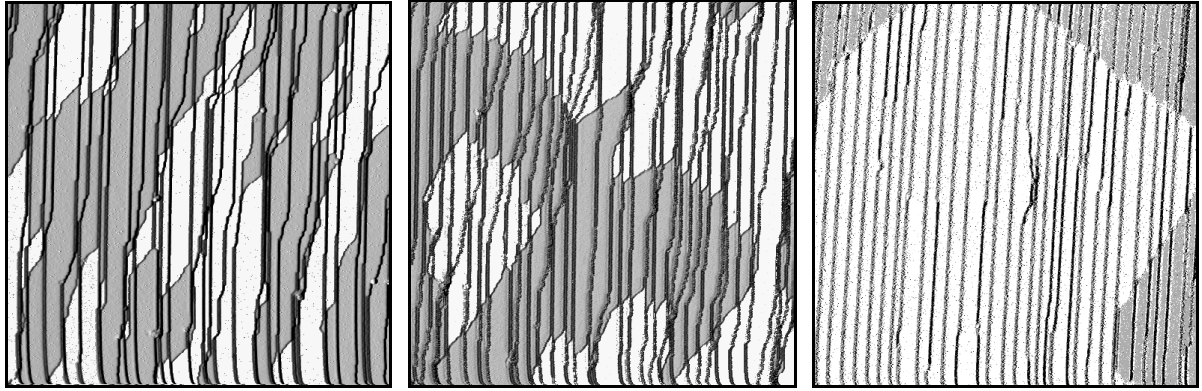


Figure VII-10 : Images STM de $1024 \text{ \AA} \times 1024 \text{ \AA}$ de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)$ enregistrées à la température ambiante après, de la gauche vers la droite, un recuit de 5 mn., 4 h et 18 h à $T_C - 20$ K. Les zones grises et blanches sont associées à différents domaines d'appariement des marches.

En mesurant sur les images la longueur des parois de domaines d , on peut remonter à leur taille caractéristique Λ en tenant compte du fait qu'en surface seules $2/3$ des parois sont visibles. Ces deux quantités sont reliées par :

$$(VII-2) \quad d \approx \frac{2}{3} N \cdot (2 \Lambda)$$

avec N le nombre de domaines sur l'image, définie par :

$$(VII-3) \quad N \approx \frac{S}{\Lambda^2} ,$$

où S est la surface de l'image.

On obtient donc la relation suivante :

$$(VII-4) \quad \Lambda \approx \frac{4S}{3d}.$$

Pour chaque temps de recuit la taille caractéristique des domaines a été déterminée en faisant la moyenne sur au moins 10 images de 1024Å × 1024Å. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure VII-11. Sur cette figure, sont également représentées les tailles de domaines mesurées en volume par diffraction X par T. Hashimoto *et al.* [14] et G. E. Poquette et D. E. Mikkola [15].

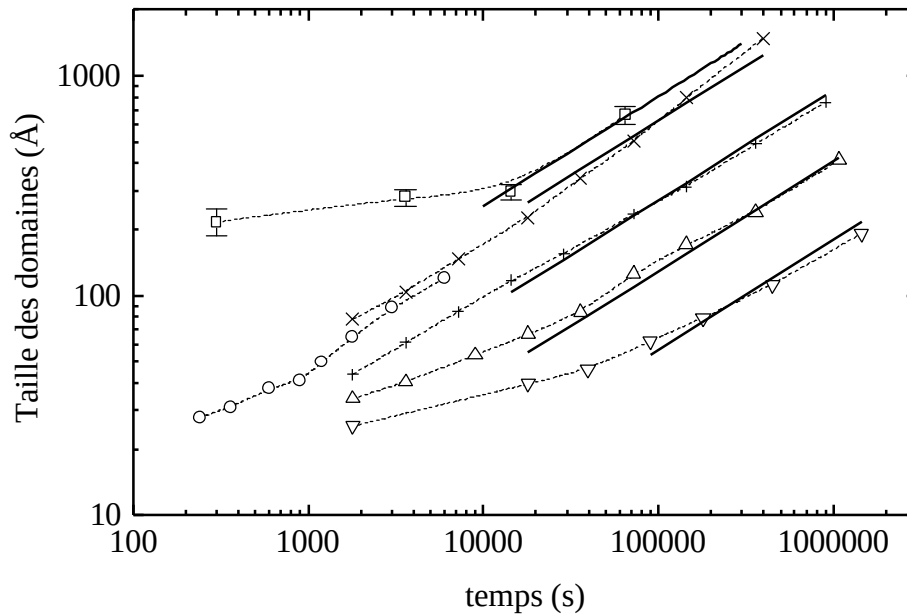


Figure VII-11 : Taille des domaines en fonction du temps de recuit à $\Delta T = T_C - T$ sous T_C .
 ? : taille déduite de l'étude STM. Taille des domaines en volume mesurée par diffraction X par G. E. Poquette et D. E. Mikkola [15] à $\Delta T = 90$ K (?), 65 K (?), 40 K (+) et 15 K (×).
 O : résultats obtenus en volume par diffraction X par T. Hashimoto *et al.* [14] à $\Delta T = 5$ K.
 — : ajustement avec la loi en $t^{1/2}$ donnée par le modèle de S.M. Allen et J.W. Cahn [16].

Quantitativement, les résultats obtenus par STM à $\Delta T = 20$ K aux temps longs sont tout à fait compatibles avec ceux obtenus par G. E. Poquette et D. E. Mikkola [15] à $\Delta T = 15$ K. Cependant, la taille des domaines mesurée par STM aux temps courts est très supérieure aux mesures de volume. Il faut tout d'abord remarquer que dans le cas de notre étude, les domaines ne sont visibles que par un changement dans l'appariement des marches. Les domaines de taille inférieure à la distance moyenne entre marches doubles (≈ 30 Å) ne sont donc pas observables, ce qui entraîne une surestimation de la taille des domaines pour les

temps courts. De plus, un effet de la surface sur la taille des domaines aux temps courts reste possible.

S.M. Allen et J.W. Cahn [16] (voir Chapitre V) ont montré que l'évolution de la taille des domaines dans un processus de mise en ordre à paramètre d'ordre non conservé est en $t^{1/2}$. Ce comportement est bien observé pour les résultats de G. E. Poquette et D. E. Mikkola [15] aux temps longs. Aux temps courts on remarque une évolution plus lente aux faibles températures de recuit ($\Delta T=65$ K et 90 K). Il faut tout d'abord noter que la loi en $t^{1/2}$ obtenue par S.M. Allen et J.W. Cahn n'est valable que pour les temps longs, lorsque les domaines sont bien formés et de taille suffisante pour définir une courbure. J.W. Cahn [17] fait aussi remarquer que l'anisotropie des parois dans Cu₃Au rend le problème plus complexe.

Par manque de disponibilité du microscope, nous n'avons pas pu poursuivre plus en détail ce type d'expérience. Elle nous a cependant permis de montrer l'émergence des parois d'antiphase et une évolution (aux temps longs et pour la température de recuit choisie) compatible avec celle du volume.

Cette étude cinétique nous a aussi permis de préciser les conditions expérimentales pour l'étude de la morphologie d'équilibre des marches pour laquelle il est nécessaire d'avoir de grandes tailles de domaines ordonnés (des tailles supérieures à 800 Å sont obtenues pour des temps de recuit supérieurs à 18 h, à $\Delta T=20$ K).

VII-C.4. Conclusion de l'étude de la face Cu₃Au(1,1,13) à température ambiante

Nous avons montré au cours de cette étude de Cu₃Au (1,1,13) à température ambiante que :

- **Les marches sont appariées dans la phase ordonnée.**
- **Les terrasses séparant les marches doubles sont mixtes Cu-Au**, en accord avec les expériences de diffusion d'ions [1].
- **Les parois d'antiphase sont visibles en surface** et présentent, comme en volume, des orientations préférentielles dans les directions [100] et [010].
- **L'évolution de la taille des domaines ordonnés en surface est compatible avec les mesures en volume.**

VII-C.5. Comparaison avec la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$

Comparaison face plate - face vicinale

Cette étude de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)$ et celle menée sur $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ par S. Goapper *et al.* [8,9] permettent de montrer les points communs et les différences de comportement entre ces deux alliages de même structure, L1_2 dans l'état ordonné et CFC dans l'état désordonné :

Points communs :

- ◆ Dans la phase ordonnée du cristal ($T < T_C$), les marches sont appariées. Ces marches doubles sont séparées par des terrasses d'énergie minimale (mixte pour Cu_3Au et pur Cu pour $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$).
- ◆ Présence en surface d'une structure en domaines dans l'appariement des marches due à la présence de différents domaines chimiquement ordonnés.
- ◆ La structure en domaine à la surface montre une évolution (taille caractéristique et orientation des parois) très proche de celle de volume.
- ◆ Quantitativement, l'accord sur la taille des domaines en surface et en volume n'est vérifié que pour les longs temps de mise en ordre. Pour les temps courts, la taille caractéristique des domaines chimiquement ordonnés en surface (dédue de l'observation des domaines d'appariement des marches) est supérieure à la taille des domaines ordonnés en volume.

Différences :

- La rugosité des bords de marches sur $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)$ est plus faible que sur $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$. Ceci traduit le fait que les énergies de cran sur la face $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)$ sont plus élevées que sur la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$.
- Les parois d'antiphase observées sur la face $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)$ sont orientées principalement dans les directions $[100]$ et $[010]$, tandis qu'aucune orientation privilégiée n'est observée sur la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$. La même différence est présente en volume.

Bien que formées d'alliages différents, on retrouve sur ces deux faces vicinales des caractéristiques morphologiques comparables (marches appariées et émergence des parois d'antiphase), la nature de l'alliage n'intervenant que dans l'aspect quantitatif (orientation privilégiée des parois et densité de crans en bords de marches). En comparant ces résultats avec ceux de Reichert *et al.* [7] concernant une face nominale (001) de Cu_3Au , nous pouvons en déduire que c'est **la présence du réseau de marches qui est responsable de l'émergence des parois**.

Reichert *et al.* interprètent leur résultat de la façon suivante : dans la phase désordonnée, la ségrégation induit un profil de concentration oscillant plan par plan au voisinage de la surface (cf. Figure VII-12) [18]. En d'autres termes, dans cette zone, la composante du paramètre d'ordre dans la direction perpendiculaire à la surface est non nul au dessus de T_C . Cet ordre partiel de surface dans une seule direction favorise la mise en ordre suivant les deux variants particuliers qui respectent l'ordre préexistant. Ainsi, les seules parois d'antiphase autorisées en surface correspondent à une frontière entre ces deux variants et n'impliquent pas de décalage dans l'ordre des plans perpendiculaires à la surface.

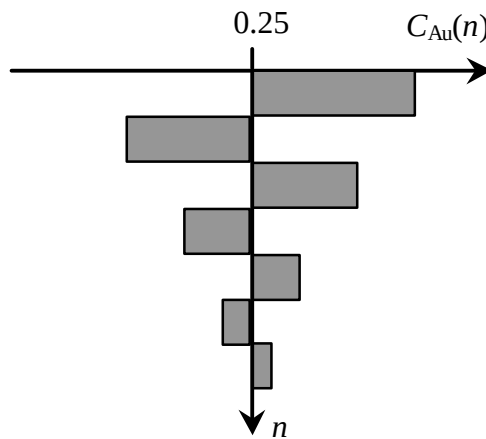


Figure VII-12 : Concentration plan par plan pour $T > T_C$ de Au, en fonction de la profondeur, pour la face $\text{Cu}_3\text{Au}(001)$: $C_{\text{Au}}(n)$. (D'après Reichert *et al.* [18]).

Sur une face vicinale, le même profil de concentration oscillant existe sous chacune des terrasses (cf. Figure VII-13). Aucun variant n'est alors favorisé en surface et tous peuvent être présents ainsi que toutes les possibilités de parois d'antiphase.

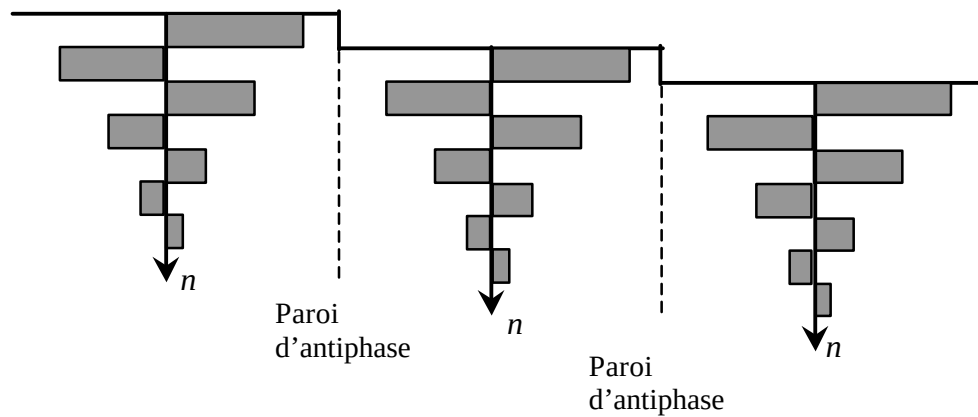


Figure VII-13 : Concentration plan par plan pour $T > T_C$ de Au, en fonction de la profondeur, pour une face vicinale de $\text{Cu}_3\text{Au}(001)$ (D'après Reichert *et al.* [18]).

VII-D. Etude par microscopie à effet tunnel en fonction de la température

L'étude de l'évolution de la morphologie en fonction de la température de la face $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ a été réalisée par microscopie à effet tunnel à température variable (STM-VT) et par diffraction d'atomes d'hélium. Ces deux expériences donnent des informations complémentaires dans l'espace réel et dans l'espace réciproque. Les résultats obtenus par STM-VT sont tout d'abord présentés.

Le STM-VT étant un appareil de développement récent, aucune étude par microscopie à effet tunnel en fonction de la température n'a été réalisée sur $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$. L'étude de l'évolution de la morphologie avec la température n'a été réalisée que par diffraction d'atomes d'hélium et de rayons X [8,19]. La comparaison entre les deux faces $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ et $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ sera réalisée au chapitre VII-E, lors de la description des résultats obtenus par diffraction d'atomes d'hélium sur l'alliage Cu_3Au .

VII-D.1. Evolution de la morphologie en fonction de la température

Dans l'enceinte ultra-vide du microscope à température variable l'échantillon est préparé selon une procédure identique à celle utilisée dans l'étude à température ambiante (cf. VII-C.1): bombardements ioniques (Ar^+ , $I_{\text{Ar}^+}=0.8 \mu\text{A}$, 3 keV, 1h), recuits à 825 K (T_C+160 K) durant une trentaine de minutes, mise en ordre à T_C-25 K durant au moins 15 h.

La surface de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ a été étudiée de 300 K à 680 K. De la Figure VII-14 à la Figure VII-17 sont représentées les dérivées d'images STM enregistrées respectivement à 300 K, 500 K, 650 K et 680 K.

A 300 K (T_C -363 K), on retrouve les caractéristiques observées lors de l'étude de la face $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)$ (cf. paragraphe VII-C.2) : les marches sont appariées (séparées par des terrasses de largeur $0.5 a_0$ ou $1.5 a_0$) ; elles comportent très peu de crans et les marches doubles sont distribuées de façon non régulière.

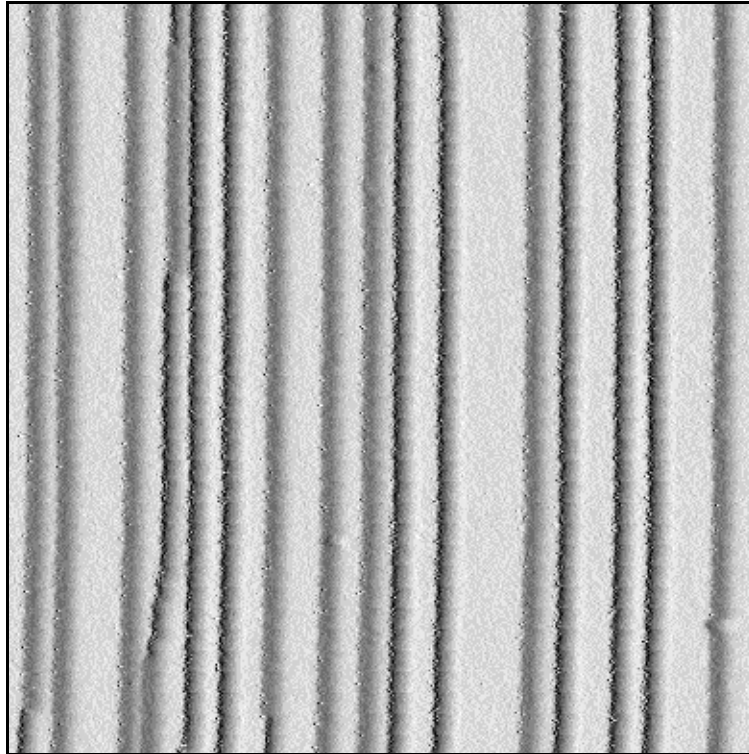


Figure VII-14 : Dérivée d'une image STM ($520 \text{ \AA} \times 520 \text{ \AA}$) de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ enregistrée à 300 K ($I=0.86 \text{ nA}$, $V_s=1.39 \text{ V}$).

A 500 K (T_C -163 K), on observe toujours une structure de marches appariées bien droites séparées de $0.5 a_0$ ou $1.5 a_0$. Mise à part sur les portions non droites des marches doubles, sur lesquelles est visible du "frizzeling" traduisant le déplacement des atomes durant le balayage de la pointe, les marches présentent peu d'excitations thermiques. La surface garde une structure quasi identique à celle observée à 300 K.

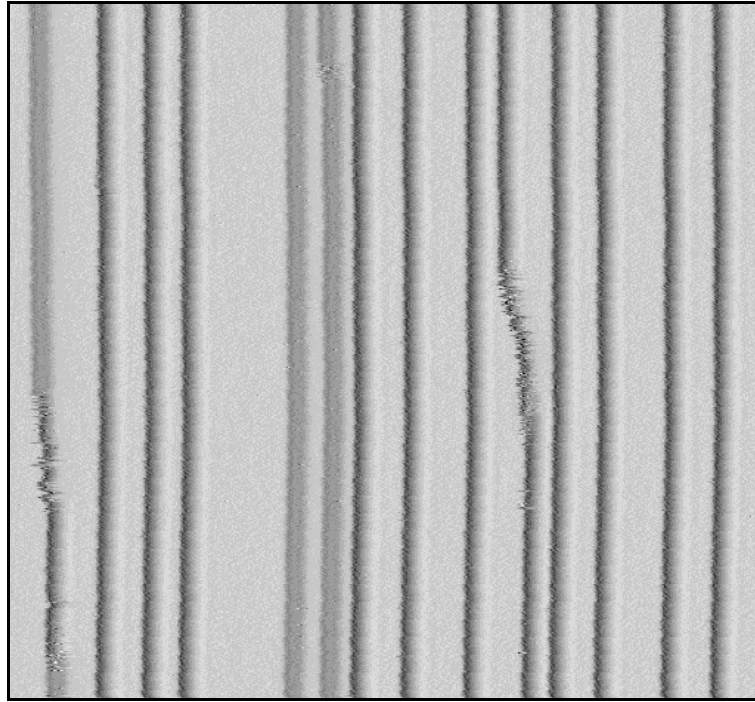


Figure VII-15 : Dérivée d'une image STM ($420 \text{ \AA} \times 450 \text{ \AA}$) de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ enregistrée à $T=500 \text{ K}$ ($I=0.52 \text{ nA}$, $V_s=3.16 \text{ V}$).

A **650 K** ($T_C=13 \text{ K}$), les marches restent appariées et sont séparées de $1.5 a_0$. On observe que les marches doubles ont tendance à se regrouper, mais elles ne forment pas de facettes régulières. La présence de "*frizzeling*" montre que les marches sont de plus en plus thermiquement excitées.

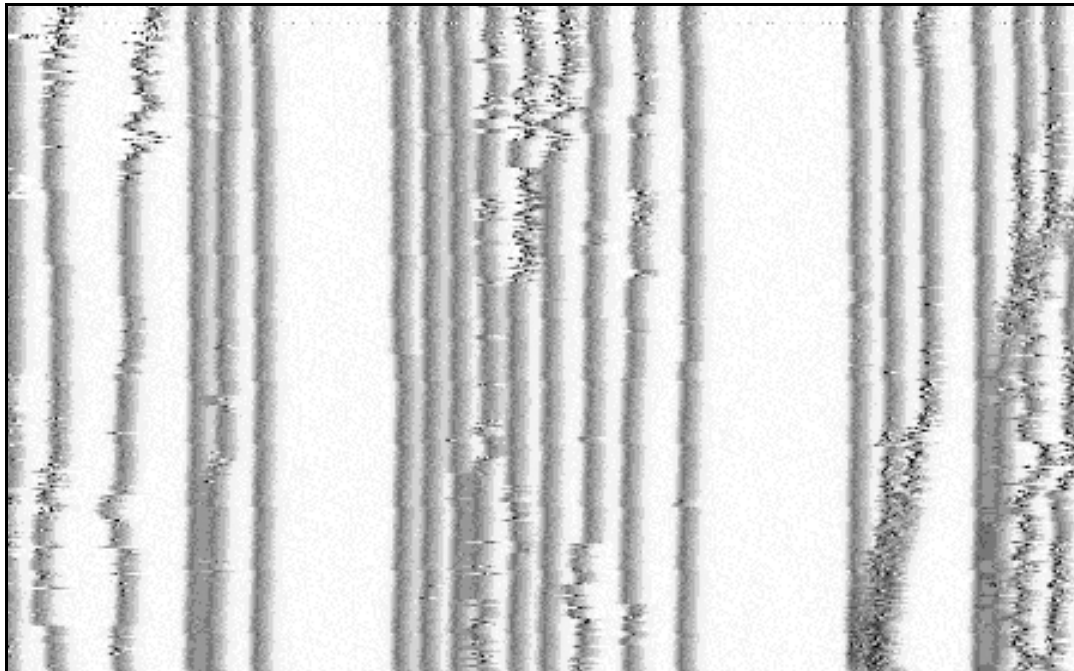


Figure VII-16 : Dérivée d'une image STM ($650 \text{ \AA} \times 400 \text{ \AA}$) de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ enregistrée à $T=650 \text{ K}$ ($I=0.62 \text{ nA}$, $V_s=2.51 \text{ V}$).

Au-dessus de la température critique (680 K, soit T_C+17 K), la structure de la surface change notablement : on observe un **facettage local**. Aucune structure périodique (largeur des facettes, distance entre les facettes) n'a pu être mise en évidence. Les facettes font un angle de $15.8 \pm 0.8^\circ$, correspondant à une face (1,1,5) (angle de coupe de 15.79°).

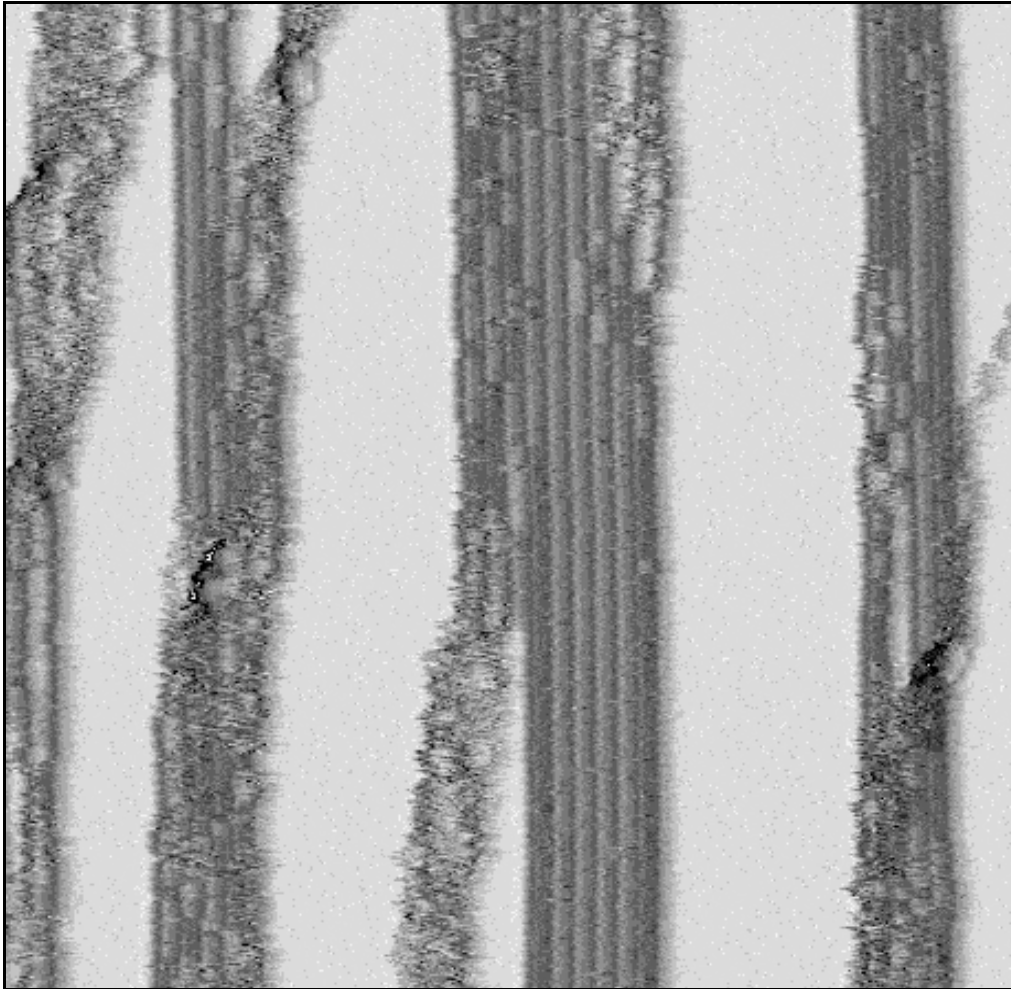


Figure VII-17 : Dérivée d'une image STM ($665 \text{ \AA} \times 665 \text{ \AA}$) de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ enregistrée à $T=680 \text{ K}$ ($I=0.62 \text{ nA}$, $V_s=2.24 \text{ V}$).

Il est important de noter que ce facettage se produit à **haute température** et qu'il est **réversible** : en effet, lors de la préparation de la surface, celle-ci est recuite au-dessus de T_C après chaque bombardement, puis elle est refroidie sous T_C avant d'être imagée. La surface correspondant aux images représentées de la Figure VII-14 à la Figure VII-16 a dû passer par cet état facetté (recuit initial de préparation $T=825 \text{ K}$) avant d'être refroidie puis imagée.

Afin de bien contrôler la réversibilité de la transition, nous avons observé la surface dans l'état facetté, puis immédiatement après refroidissement sous T_C . On retrouve bien la structure marches doubles avec séparation des marches et l'apparition de parois d'antiphase (voir Figure VII-18). La même réversibilité est obtenue après observation de l'état facetté

suivi d'un recuit de 24 h sur la tête STM à T_C -25 K et observation d'une structure identique à celle de la Figure VII-15.

Les facettages à haute température sont très rares. Dans la plupart des cas, la transition se produit d'un état facetté vers un état non facetté à plus haute température [20,21,22,23,24]. Dans le cas des corps purs, le seul cas de facettage haute température connu est celui de $\text{W}(430)$ pour lequel S. Dey *et al.* [25] ont montré, par diffraction d'électrons lents, l'existence d'une transition marches simples - marches doubles à 940 K. En ce qui concerne les alliages, il n'existe, à ma connaissance, aucun cas de facettage à haute température.

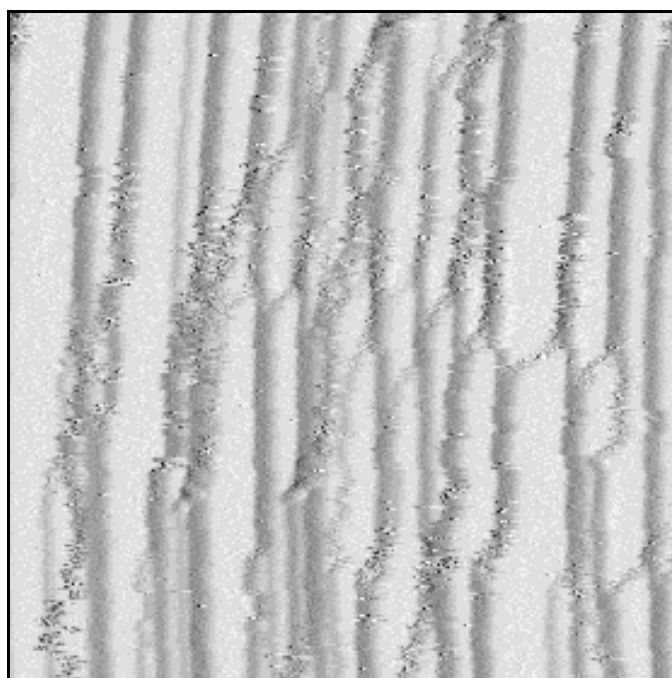


Figure VII-18 : Dérivée d'une image STM ($400 \text{ \AA} \times 400 \text{ \AA}$) de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ enregistrée à $T=650 \text{ K}$ ($I=0.74 \text{ nA}$, $V_s=1.92 \text{ V}$) après 20 min. de recuit.

Les images STM nous permettant d'accéder à la morphologie de la surface à l'échelle atomique, les distributions des largeurs de terrasses ont été mesurées afin d'analyser la distribution des marches doubles sous T_C et le facettage au-dessus de T_C .

VII-D.2. Etude statistique : distribution des largeurs de terrasses

VII-D.2.1. Calcul des distributions des largeurs de terrasses

Afin d'obtenir les distributions des largeurs de terrasses, il est nécessaire de repérer la position des bords de marches. Pour ce faire, comme l'illustre la Figure VII-19, on soustrait une pente moyenne à chaque ligne des images de façon à ce que le plan de terrasse soit à une hauteur $n \cdot h$ constante. La succession des hauteurs de terrasses nous donne une calibration fine de la hauteur h d'une marche. La position des marches est alors définie par le franchissement du seuil $n(h+1/2)$. La Figure VII-20 illustre le résultat de cette procédure sur une image enregistrée à 500 K. Connaissant la position des marches, on peut aisément calculer la distribution des largeurs de terrasses.

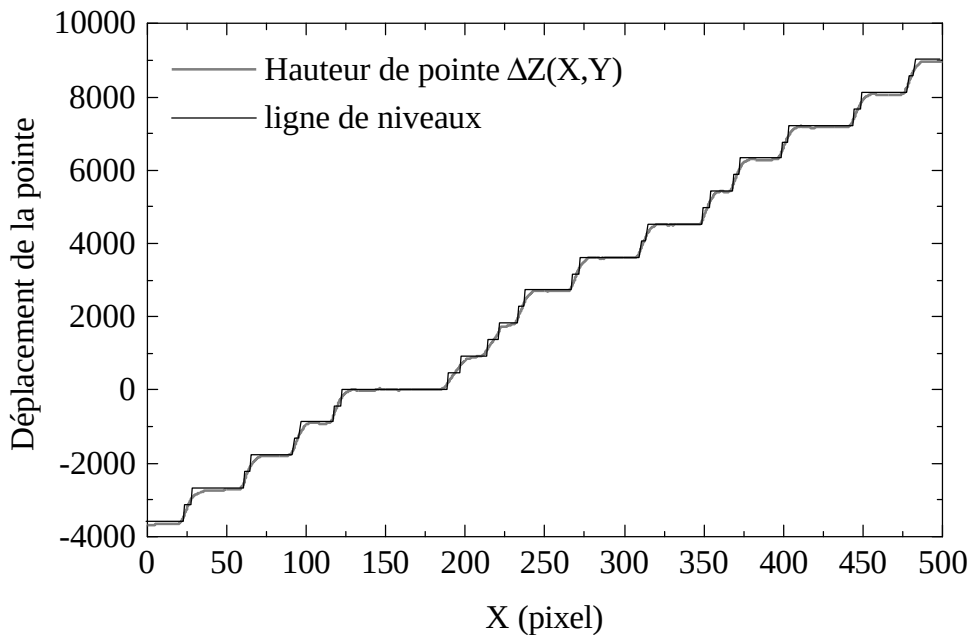


Figure VII-19 : Illustration du repérage de la position des bords de marches sur une ligne de balayage STM. (—) le signal STM $\Delta Z(X,Y)$. (—) position des bords de marches. La ligne de balayage est tirée de l'image représentée Figure VII-20.

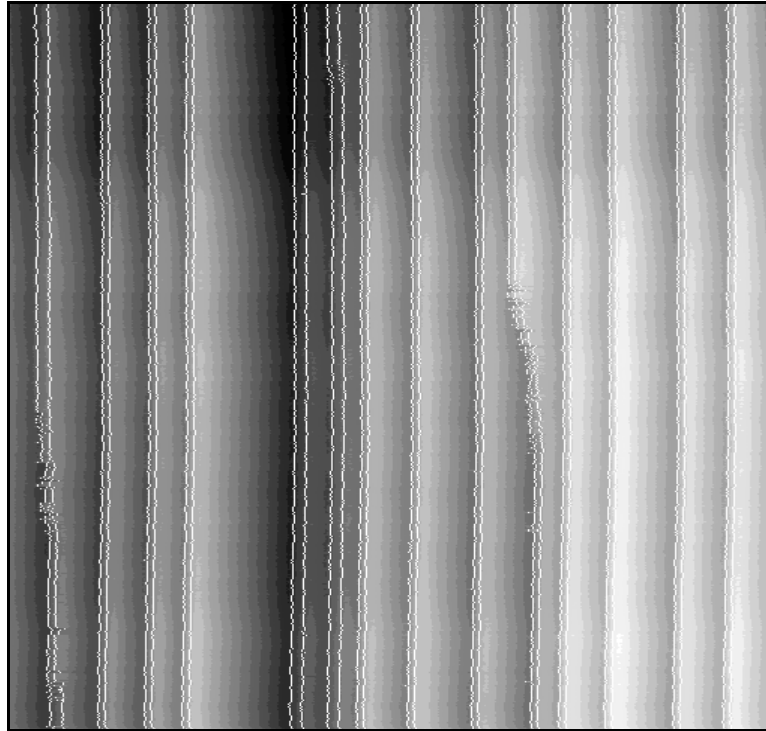


Figure VII-20 : Superposition de la position des marches (lignes continues blanches) sur une image STM. La dérivée de cette image est représentée Figure VII-15.

VII-D.2.2. Distributions des largeurs de terrasses

Sous T_C , la structure en marches appariées est bien visible. Nous avons donc pu séparer la distribution des largeurs de terrasses associée aux terrasses séparant les marches appariées et celle associée aux terrasses séparant les marches doubles. Ceci permet de bien discerner la structure des marches appariées de la distribution des marches doubles.

Pour chaque température, les distributions ont été obtenues en faisant la moyenne sur plusieurs images. Le nombre de données utilisées pour l'étude statistique des distributions des largeurs de terrasses aux différentes températures est précisé dans le Tableau VII-1. De la Figure VII-21 à la Figure VII-24 sont respectivement représentées les distributions des largeurs de terrasses à $T=300$ K, $T=500$ K, $T=650$ K et $T=680$ K.

	$T=300\text{ K}$	$T=500\text{ K}$	$T=650\text{ K}$	$T=680\text{ K}$
Nombre d'images	9 images de $350\text{ Å} \times 400\text{ Å}$	8 images de $350\text{ Å} \times 350\text{ Å}$	5 images de $450\text{ Å} \times 450\text{ Å}$	4 images de $700\text{ Å} \times 730\text{ Å}$
Longueur totale de marches	$8.0\text{ }\mu\text{m}$	$6.2\text{ }\mu\text{m}$	$6.5\text{ }\mu\text{m}$	$15.3\text{ }\mu\text{m}$
Nombre de données	15081	11651	12310	28794

Tableau VII-1 : Nombre de données utilisées pour l'étude statistique.

Entre 300 K et 500 K, les distributions sont très proches. La distribution des marches appariées évolue peu, il y a autant de terrasses de largeur $0.5\ a_0$ que de terrasses de largeur $1.5\ a_0$ (voir Figure VII-21 a et Figure VII-22 a). La largeur moyenne des terrasses est $\ell_0^{ap} = 0.97 \pm 0.16\ a_0$ à 300 K et $\ell_0^{ap} = 0.83 \pm 0.13\ a_0$ à 500 K. De même, la distribution des marches doubles (Figure VII-21 b et Figure VII-22 b) varie peu. Elle reste très large, n'est pas symétrique et l'erreur statistique montre que la dispersion sur les images est importante. Ceci reflète bien le fait que la surface ne présente pas un réseau régulier de marches. La largeur moyenne des terrasses séparant les doubles marches est $\ell_0^{dm} = 10.11 \pm 0.79\ a_0$ à 300 K et $\ell_0^{dm} = 10.47 \pm 1\ a_0$ à 500 K. On retrouve ainsi une distance moyenne entre marches $\ell_0 = 5.54 \pm 0.48\ a_0$ à 300 K et $\ell_0 = 5.65 \pm 0.56\ a_0$ à 500 K en accord avec l'orientation moyenne (1,1,12) de la surface.

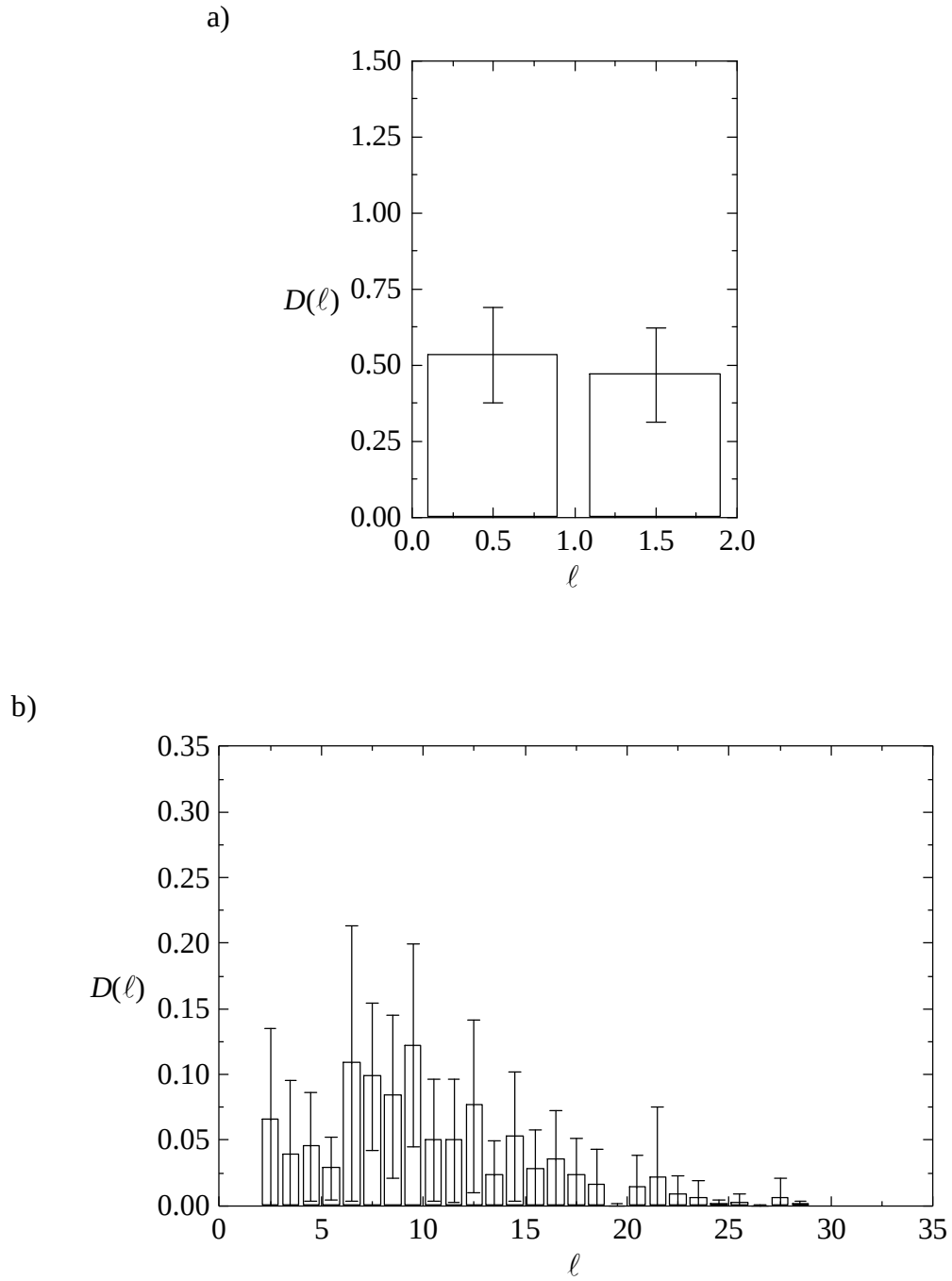


Figure VII-21 : Distribution des largeurs de terrasses mesurée sur les images à 300 K ($<T_C=663$ K). a) Distribution des largeurs de terrasses séparant les marches appariées. b) Distribution des largeurs de terrasses séparant les marches doubles.

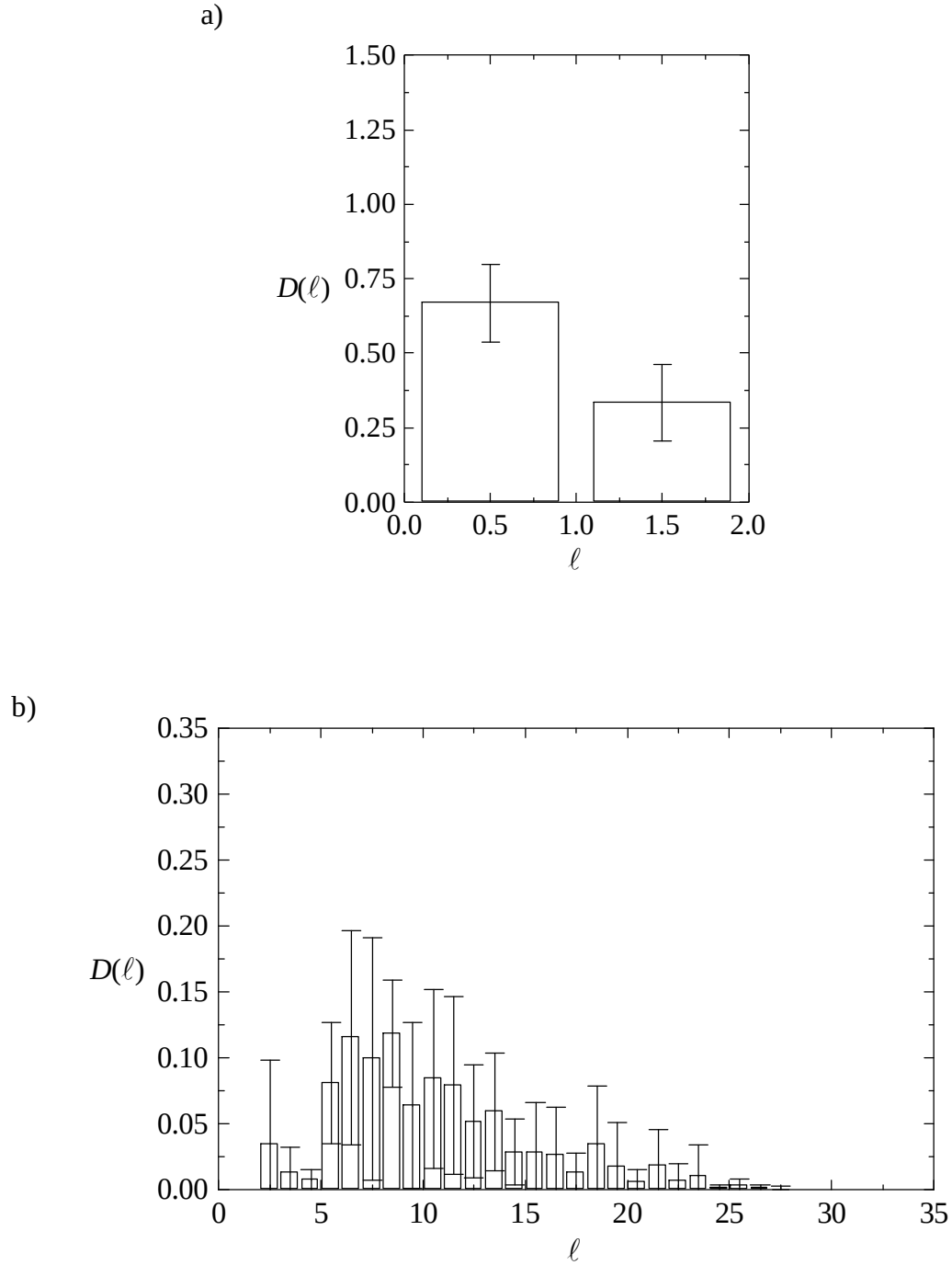


Figure VII-22 : Distribution des largeurs de terrasses mesurée sur les images à 500 K ($T_C=663$ K). a) Distribution des largeurs de terrasses séparant les marches appariées. b) Distribution des largeurs de terrasses séparant les marches doubles.

Près de T_C (650 K), la distribution des largeurs de terrasses séparant les doubles marches montre une augmentation de la probabilité des terrasses courtes. Cependant, la structure en marches doubles est encore bien visible (voir Figure VII-16). Ce sont donc les marches doubles qui tendent à se regrouper. Les terrasses séparant les marches appariées sont

pratiquement toutes de largeur $1.5 a_0$ (voir Figure VII-23 a), leur largeur moyenne étant $\ell_0^{ap} = 1.42 a_0$.

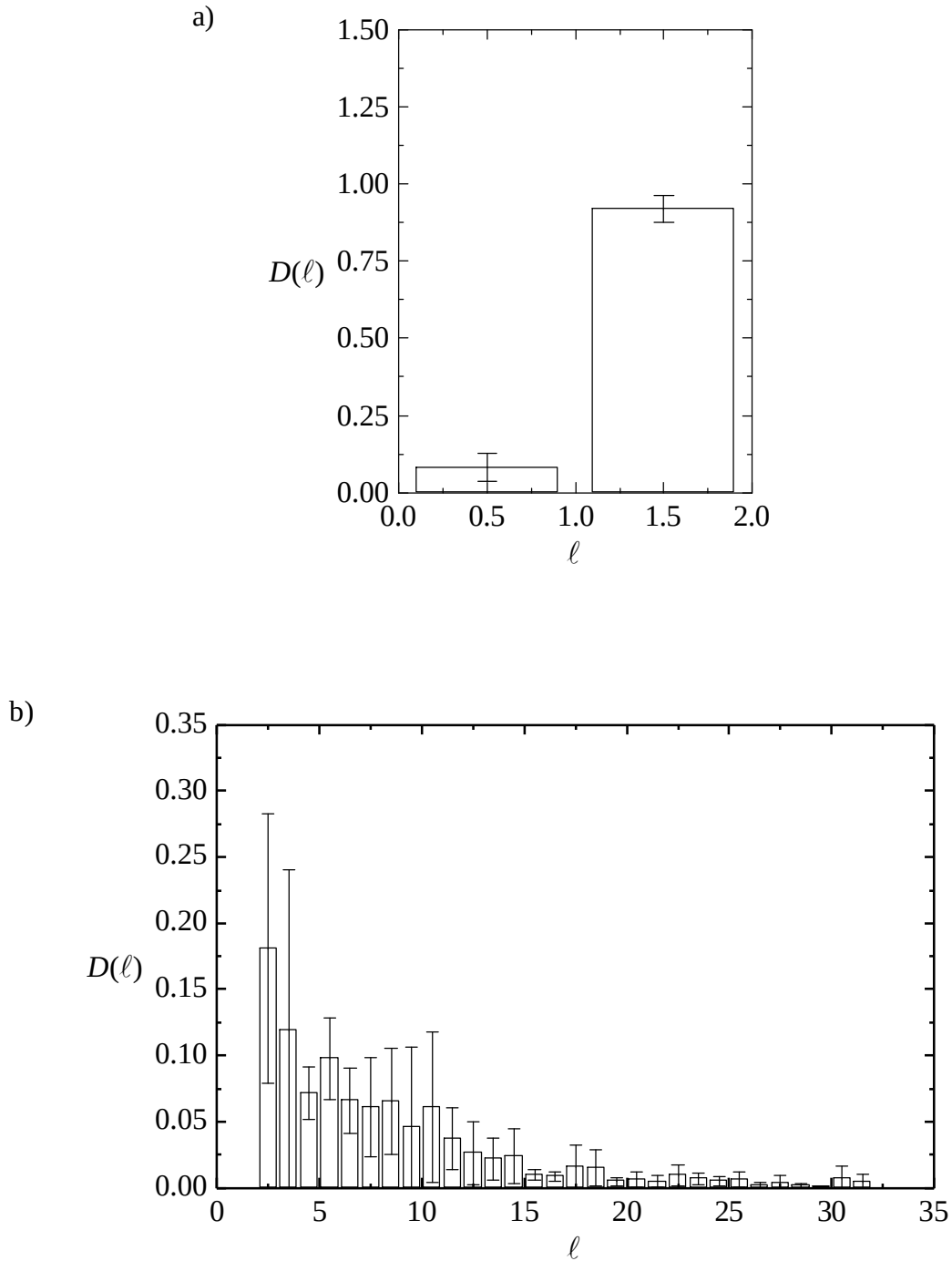


Figure VII-23 : Distribution des largeurs de terrasses mesurée sur les images à 650 K ($< T_C = 663$ K). a) Distribution des largeurs de terrasses séparant les marches appariées. b) Distribution des largeurs de terrasses séparant les marches doubles.

Au dessus de T_C (680 K), la présence des facettes ne permet plus de séparer l'histogramme en deux parties. La tendance au regroupement des marches observé à 650 K est clairement marquée au-dessus de T_C (voir Figure VII-24) : la probabilité des terrasses courtes augmente tandis que, sur les images analysées, la largeur maximale des terrasses (001) est de l'ordre de $30 a_0$ à 650 K et de $50 a_0$ à 680 K.

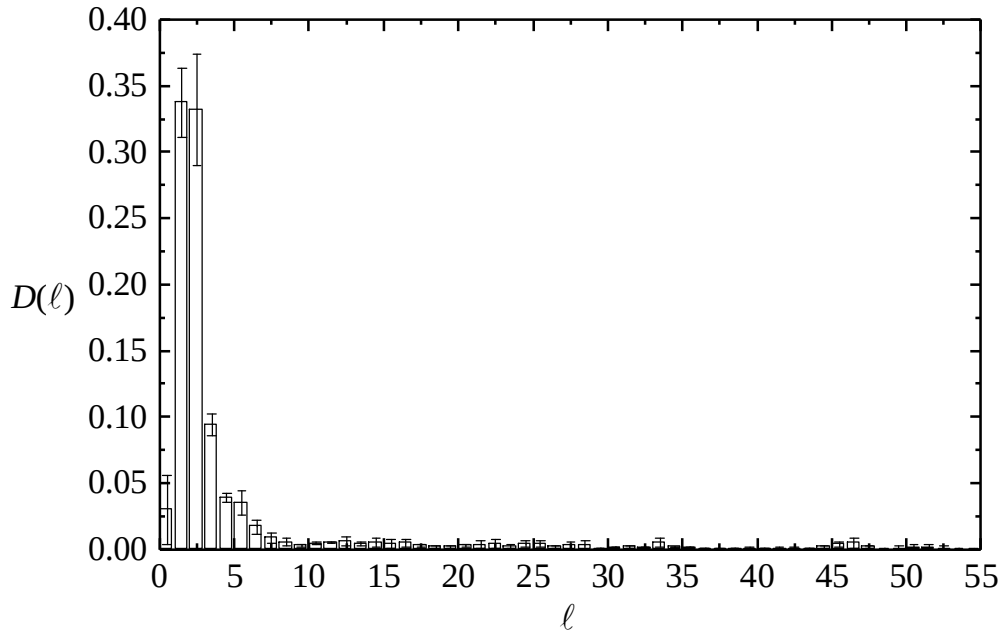


Figure VII-24 : Distribution des largeurs de terrasses mesurée sur les images à 680 K ($>T_C=663$ K).

On observe des facettes contenant un nombre pair ou impair de marches. La structure au-dessus de T_C n'est donc pas constituée que de facettes à nombre de marche pair. De plus, on observe sur certaines images (voir Figure VII-25), des marches simples traversant les terrasses et joignant deux facettes. On a perdu la trace de la structure en marches appariées. C'est donc **une structure marches simples facetée**.

Au cours de cette étude en température, il faut bien préciser que la mise à l'équilibre des marches reste relativement rapide, de l'ordre du temps nécessaire (≈ 1 h) pour thermaliser l'ensemble du microscope et prendre des images sans dérive après un saut en température de 10 K.

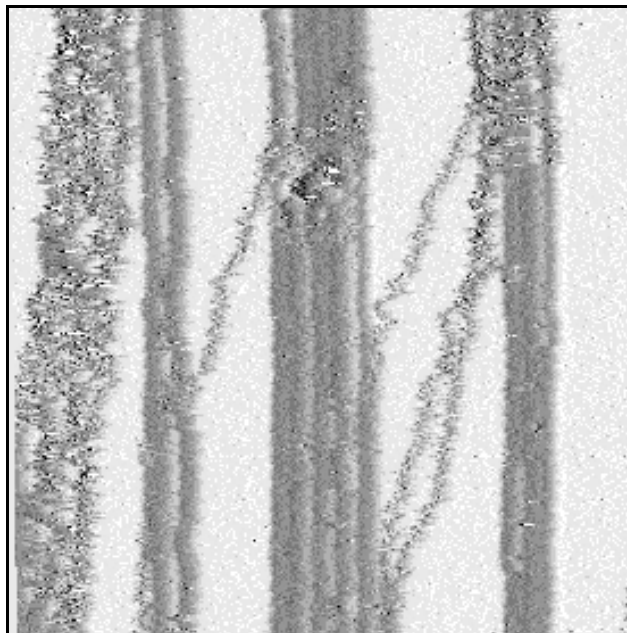


Figure VII-25 : Dérivé d'une image STM ($400 \text{ \AA} \times 400 \text{ \AA}$) de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,11)$ enregistrée à $T=680 \text{ K}$ ($I=0.62 \text{ nA}$, $V_s=2.24 \text{ V}$).

Il faut noter que les fluctuations d'équilibre des marches restent relativement lentes comparativement au temps nécessaire pour enregistrer une image ($\approx 4 \text{ min}$ pour une image de $800\text{\AA} \times 800\text{\AA}$). Sur des images successives prises à la plus haute température ($T=680 \text{ K}$), on observe bien le déplacement de quelques marches mais qui ne bouleverse pas totalement la distribution initiale.

Il est remarquable que les fluctuations des marches formant une facette $(1,1,5)$ sur le Cu_3Au à $T=680 \text{ K}$ sont beaucoup moins nombreuses que celles observées sur la face de $\text{Cu}(1,1,5)$ à une température très inférieure ($T=365 \text{ K}$, voir images STM de la Figure IV-11).

VII-D.3. Conclusion de l'étude par STM en fonction de la température

Cette étude par STM en fonction de la température nous a permis de montrer :

- **que les marches restent doubles jusqu'à des températures proches de T_C .** Les terrasses séparant les marches appariées ont une largeur maximale de $1.5 a_0$ jusqu'à 650 K ,
- **l'apparition d'un facettage au-dessus de T_C .** Ce facettage se produit entre la face (001) et la face $(1,1,5)$. Il est réversible : la structure marches doubles irrégulière se reformant en abaissant la température sous T_C ,

- dans la structure en facettes au-dessus de T_C , chaque facette peut regrouper un nombre pair ou impair de marches (structure marches simples facetée).

VII-E. Etude par diffraction d'atomes d'hélium

VII-E.1. Comparaison des techniques, STM – diffraction d'atomes d'hélium

Jusqu'à présent, la seule technique expérimentale utilisée au cours de ce travail de thèse a été la microscopie à effet tunnel. Nous avons vu que pour la face $(1,1,5)$ l'analyse des pics de diffraction d'atomes d'hélium posait problème car la distance moyenne entre marches ($\ell_0=2.5 a_0$) est trop faible pour supposer que le facteur de diffusion est indépendant de la largeur des terrasses (cf. paragraphe IV-C.8.). La face $(1,1,11)$ comporte, elle, une distance moyenne entre marches ($\ell_0=5.5 a_0$) suffisante pour que cette approximation soit valable [8,26]. Nous pouvons donc étudier cette face par diffraction d'hélium.

Ces deux techniques, l'une donnant des informations dans l'espace direct, l'autre dans l'espace réciproque, apportent des résultats comparables car :

- ♦ Elles ne sont sensibles qu'au premier plan de surface.
- ♦ Elles fournissent des informations sur la même gamme d'échelle de longueur (longueur de transfert de la diffraction d'atomes d'hélium $\approx 500 \text{ \AA}$, taille des images STM $1000 \text{ \AA} \times 1000 \text{ \AA}$).

Mais elles diffèrent car :

- La diffraction d'atomes d'hélium permet de moyenner les informations sur une grande partie de l'échantillon (disque de 3 mm de diamètre), alors qu'il est nécessaire pour atteindre le même but d'enregistrer plusieurs images STM à différents endroits de la surface et de s'assurer que ces images sont bien représentatives de la surface étudiée.
- Il est difficile d'analyser les ailes des pics de diffraction, ce qui ne permet pas d'accéder à des informations sur le désordre à des distances inférieures à quelques

dizaines d'angströms, tandis que le STM permet une analyse quantitative du désordre jusqu'à l'échelle atomique par analyse statistique des images.

- L'étude en température par diffraction est plus facilement réalisable (pas de dérive) sur une plus grande gamme de températures (de 100 K à la température de fusion de l'échantillon), la limite en température étant généralement fixée par l'atténuation de l'intensité élastique due aux excitations thermiques.

Ces deux techniques sont donc complémentaires pour l'étude des surfaces et bien adaptées à celle des faces vicinales.

Enfin, la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ a été étudiée par diffraction d'hélium [8,19]. Une étude similaire par cette même technique permettra de comparer l'évolution, avec la température, des deux faces d'alliages $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,11)$ et $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$.

VII-E.2. Techniques expérimentales

VII-E.2.1. L'enceinte Ultra-vide

Le dispositif Ramses 1 (cf. Figure VII-26) est constitué d'une enceinte ultra-vide en acier inoxydable (diamètre: 1.2 m; hauteur: 0.8 m). La taille imposante de l'enceinte est liée à la nécessité d'avoir une distance échantillon – détecteur importante (≈ 50 cm) de façon à augmenter la résolution de l'appareil et pouvoir déplacer le détecteur sur de grands angles afin d'accéder à une large gamme de conditions cinématiques.

L'enceinte est reliée à deux pompes à piège cryogénique, équipées d'un sublimateur de titane et relayées par deux pompes turbo moléculaires de gros débit : 2000 l/s. Vient ensuite, dans le groupe de pompage, une pompe à diffusion d'huile et une pompe primaire à palette au dernier étage de pompage. Ce système complexe de pompage, à fort débit pour l'He, permet d'atteindre la pression résiduelle de 3.10^{-11} mBar et de maintenir une pression de $\sim 10^{-10}$ mBar lors de l'injection du jet d'hélium.

Un spectromètre Auger et un diffracteur d'électrons lents placés dans l'enceinte principale permettent de contrôler la propreté du cristal et la cristallinité de la surface.

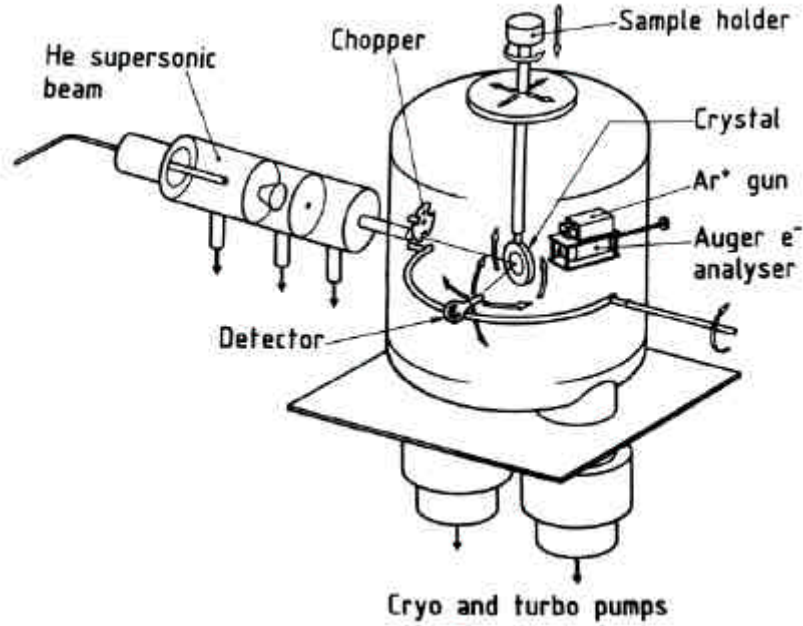


Figure VII-26 : diffractomètre d'hélium Ramses I.

VII-E.2.2. Faisceau d'atome d'hélium

Le faisceau d'atomes d'hélium est produit par un montage conçu par R. Campargue [27]. Le principe en est le suivant :

Un gaz d'une grande pureté, sous pression (quelques bars), subit une détente supersonique à travers une tuyère fine (diamètre 100 μm). La partie axiale du jet monocinétique est ensuite extraite à l'aide d'un diaphragme de forme conique, appelé écorceur. La chambre de détente est maintenue sous vide par 2 pompes roots à fort débit (500 l/s $P \approx 0.5$ mbar). Le faisceau est ensuite collimaté à l'aide d'un second diaphragme avant de pénétrer dans l'enceinte principale. L'intensité du jet est optimisée en réglant la distance tuyère - écorceur et la pression du gaz avant détente.

L'énergie du jet est directement reliée à la température du gaz avant la détente :

$$E_i = \frac{h^2 k_i^2}{2m} = \frac{g}{g-1} k_B T \text{ avec } g = \frac{C_p}{C_v} \left(= \frac{5}{3} \text{ pour les gaz parfaits monoatomiques} \right).$$

Un jet d'hélium à température ambiante correspond à une énergie $E_i = 63$ meV et à un vecteur d'onde $k_i = 10.98 \text{ \AA}^{-1}$. Une circulation d'azote liquide permet d'abaisser la température à 100 K, d'où $E_i = 21$ meV et $k_i = 6.34 \text{ \AA}^{-1}$.

Les principales caractéristiques du jet Campargue sont une intensité élevée (10^{18} à 10^{20} atomes/stéradian), une bonne monochromaticité du jet (la dispersion en énergie est $\frac{\Delta E_i}{E_i} \approx 3\%$) et une faible dispersion angulaire (de l'ordre de 0.3°).

VII-E.2.3. Porte échantillon et détecteur

Le porte échantillon assure une rotation azimutale et polaire du cristal, ce qui permet de faire varier les conditions d'incidence du jet. L'échantillon peut être chauffé jusqu'à son point de fusion grâce à un bombardement d'électrons ($I_e \leq 50\text{ mA}$, $V_e \leq 3\text{ kV}$) ou refroidi à 100 K, par l'intermédiaire d'un circuit de refroidissement à azote liquide. La température du cristal est contrôlée à l'aide d'un thermocouple soudé au bord de la face étudiée de l'échantillon.

Le système de détection des atomes d'hélium diffusés est monté sur un rail circulaire permettant des rotations dans et hors du plan d'incidence du jet. Le détecteur est une jauge à ionisation enfermée dans un tube de cuivre, avec comme ouverture un capillaire de diamètre 0.3 mm. De cette façon, on obtient un effet de stagnation de l'hélium dans le détecteur avec une constante de temps de 300 ms. Afin d'améliorer le rapport signal sur bruit (fluctuations de la pression de base dans l'enceinte, bruit électronique), le faisceau incident est modulé par un hacheur mécanique, situé à l'intérieur de l'enceinte. Un amplificateur à détection synchrone, accordé sur la fréquence du hacheur, recueille le signal du détecteur et permet de mesurer des flux inférieurs à 10^{-5} fois le flux incident.

Compte tenu de la distance collimateur – échantillon, le diamètre du faisceau au niveau de la surface est d'environ 3 mm. La longueur de transfert de l'appareil de diffraction est de l'ordre de 500 Å. Cette grandeur, reliée à l'ouverture du jet, du détecteur et à la dispersion en énergie du jet [28], caractérise l'aire de la surface où se produisent des phénomènes d'interférence. Au-delà, les intensités diffusées sont simplement sommées.

VII-E.3. Diffraction par une surface vicinale régulière

VII-E.3.1. Diffraction sur une surface vicinale à $T=0$ K

Une face vicinale parfaite (1,1, n), d'indice n élevé, se présente comme une succession périodique de terrasses plates (001) séparées par des marches (cf. chapitre I). Une face (001) faiblement corruguée telle que celle du Cu réfléchit spéculairement le faisceau d'hélium. L'absence de pics de diffraction résulte du fait que la diffraction d'hélium n'est pas sensible à la structure atomique des terrasses.

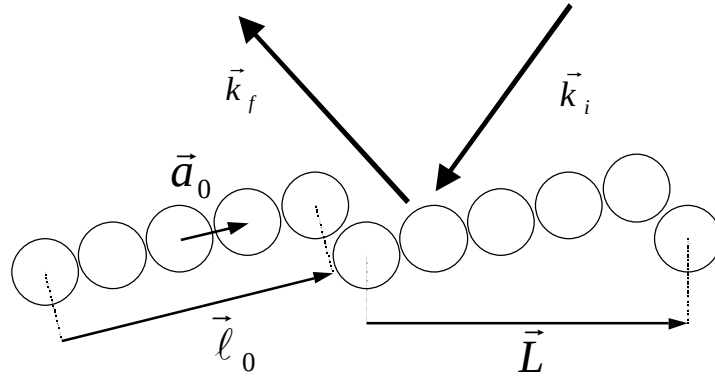


Figure VII-27 : Diffraction sur une surface de structure marches simples.

On peut alors décrire, de façon approchée, la diffraction par une face vicinale en considérant uniquement les réflexions sur les terrasses. Considérons une seule terrasse de largeur ℓ_0 (soit N atomes $[0..N-1]$). L'onde diffusée sur une maille élémentaire de terrasse à la position $n\vec{a}_0$ a pour forme :

$$(VII-5) \quad A_{atome} = A_0 \cdot \exp(i \Delta \vec{k} \cdot n \vec{a}_0),$$

où A_0 est l'amplitude de diffusion d'une maille élémentaire et $\Delta \vec{k} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$ est le transfert de moment.

L'amplitude diffusée sur une terrasse limitée de largeur $\vec{\ell}_0 = N \cdot \vec{a}_0$, s'écrit :

$$(VII-6) \quad A_{terrasse}(\Delta \vec{k}) = \sum_{n=0}^{N-1} A_0 \cdot \exp(i \Delta \vec{k} \cdot n \vec{a}_0) = A_0 \frac{1 - \exp(i \Delta \vec{k} \cdot N \vec{a}_0)}{1 - \exp(i \Delta \vec{k} \cdot \vec{a}_0)}$$

$$A_{\text{terrasse}}(\Delta\vec{k}) = A_0 \frac{1 - \exp(i\Delta\vec{k} \cdot \vec{\ell}_0)}{1 - \exp(i\Delta\vec{k} \cdot \vec{a}_0)}$$

L'onde diffractée sur toute la surface résulte des contributions de chacune des terrasses. Pour une face vicinale à $T=0$ K, les terrasses sont toutes identiques et séparées d'une distance $\vec{L} = N \cdot \vec{a}_0 + \vec{h}$:

$$(VII-7) \quad A_{\text{surface}}(\Delta\vec{k}) = \sum_{p=-\infty}^{p=+\infty} A_{\text{terrasse}}(\Delta\vec{k}) \exp(i\Delta\vec{k} \cdot p\vec{L}) = A_0 \sum_{p=-\infty}^{p=+\infty} \frac{1 - \exp(i\Delta\vec{k} \cdot \vec{\ell}_0)}{1 - \exp(i\Delta\vec{k} \cdot \vec{a}_0)} \exp(i\Delta\vec{k} \cdot p\vec{L}).$$

L'intensité de l'onde diffractée est le carré du module de l'amplitude, d'où :

$$(VII-8) \quad I_{\text{surface}}(\Delta\vec{k}) = A_0^2 \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta\vec{k} \cdot \vec{\ell}_0}{2}\right)}{\sin^2\left(\frac{\Delta\vec{k} \cdot \vec{a}_0}{2}\right)} \left(\sum_{p=-\infty}^{p=+\infty} d(\Delta\vec{k} \cdot \vec{L} - 2p) \right),$$

en utilisant $\sum_{p=-\infty}^{p=+\infty} \exp(ipx) = \left(\sum_{p=-\infty}^{p=+\infty} d(x - 2p) \right)$ où d est la fonction de Dirac.

Le dernier facteur, dans l'expression (VII-8), définit une série de tiges (peigne de Dirac) séparés de $\frac{2\pi}{L}$ dans l'espace réciproque. Ils correspondent à la diffraction sur la structure périodique de la surface dans la direction perpendiculaire aux marches (facteur de structure). L'intensité des pics Bragg est modulée par les deux premiers facteurs. Ces facteurs définissent une fonction enveloppe correspondant à la diffusion sur le motif de la terrasse (voir Figure VII-28, facteur de forme du motif élémentaire terrasse+marche).

Les terrasses n'étant pas parallèles à la surface moyenne de l'échantillon (angle de coupe), les vecteurs $\vec{L}$ et $\vec{\ell}_0$ ne coïncident pas. On peut donc jouer sur l'angle d'incidence q_i du jet d'hélium (vecteur d'onde $\vec{k}_i$) pour déplacer les pics de diffraction par rapport à cette fonction enveloppe. En effet si l'on suit l'intensité d'un pic de Bragg $\Delta\vec{k} \cdot \vec{L} = 2p$ en fonction de q_i , les facteurs $\Delta\vec{k} \cdot \vec{\ell}_0$ et $\Delta\vec{k} \cdot \vec{a}_0$ varient et donc son intensité en accord avec la relation (VII-8).

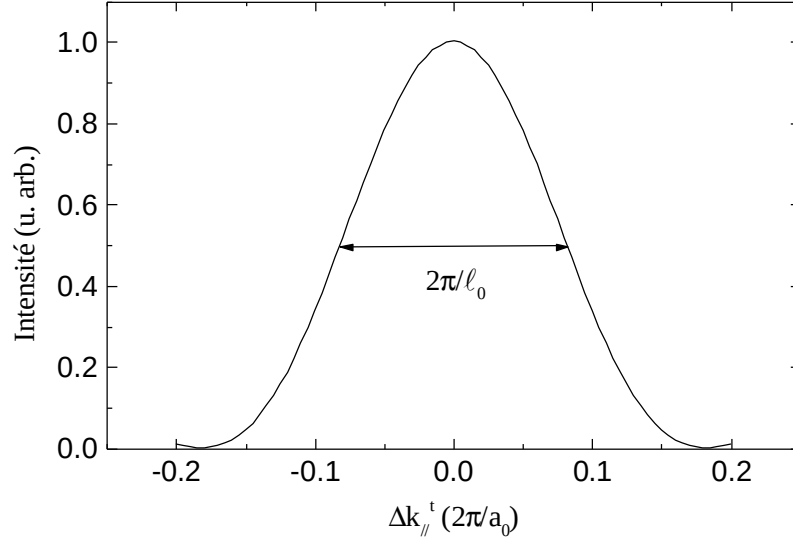


Figure VII-28 : Facteur de diffusion théorique d'une terrasse pour une surface vicinale constituée de terrasses de largeur ℓ_0 en fonction de $\Delta k_{||}^t$, la composante parallèle aux terrasses du transfert de moment $\Delta \vec{k} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$.

On obtient alors 2 conditions particulières :

- **La condition phase**

$\Delta \vec{k} \cdot \vec{a}_0 = 0$, elle correspond à la direction spéculaire aux terrasses et au maximum du facteur de forme. En appliquant la relation de Bragg, on obtient :

$$\Delta \vec{k} \cdot \vec{L} = \Delta \vec{k} \cdot (N \cdot \vec{a}_0 + \vec{h}) = \Delta \vec{k} \cdot \vec{h} = 2 \cdot n p$$

Pour cette condition particulière, les ondes associées aux atomes d'hélium diffusés par 2 terrasses adjacentes sont en phase. La surface est alors vue comme une surface plane. De plus, la diffraction est insensible au désordre de bord de marches (déplacements multiples de $\vec{a}_0$, longueur d'un cran élémentaire en bord de marche).

- **La condition non phase**

$\Delta \vec{k} \cdot \vec{a}_0 \neq 0$, l'intensité du pic décroît en suivant le facteur de forme (cf. Figure VII-28). La diffraction devient aussi sensible au désordre de bord de marches. La corrélation entre marches fait que les pics de diffraction sont élargis [29]. La condition $\Delta \vec{k} \cdot \vec{a}_0 = 2 \cdot (n+1)p$ (condition antiphase) correspond au maximum de sensibilité au désordre de bord de marches.

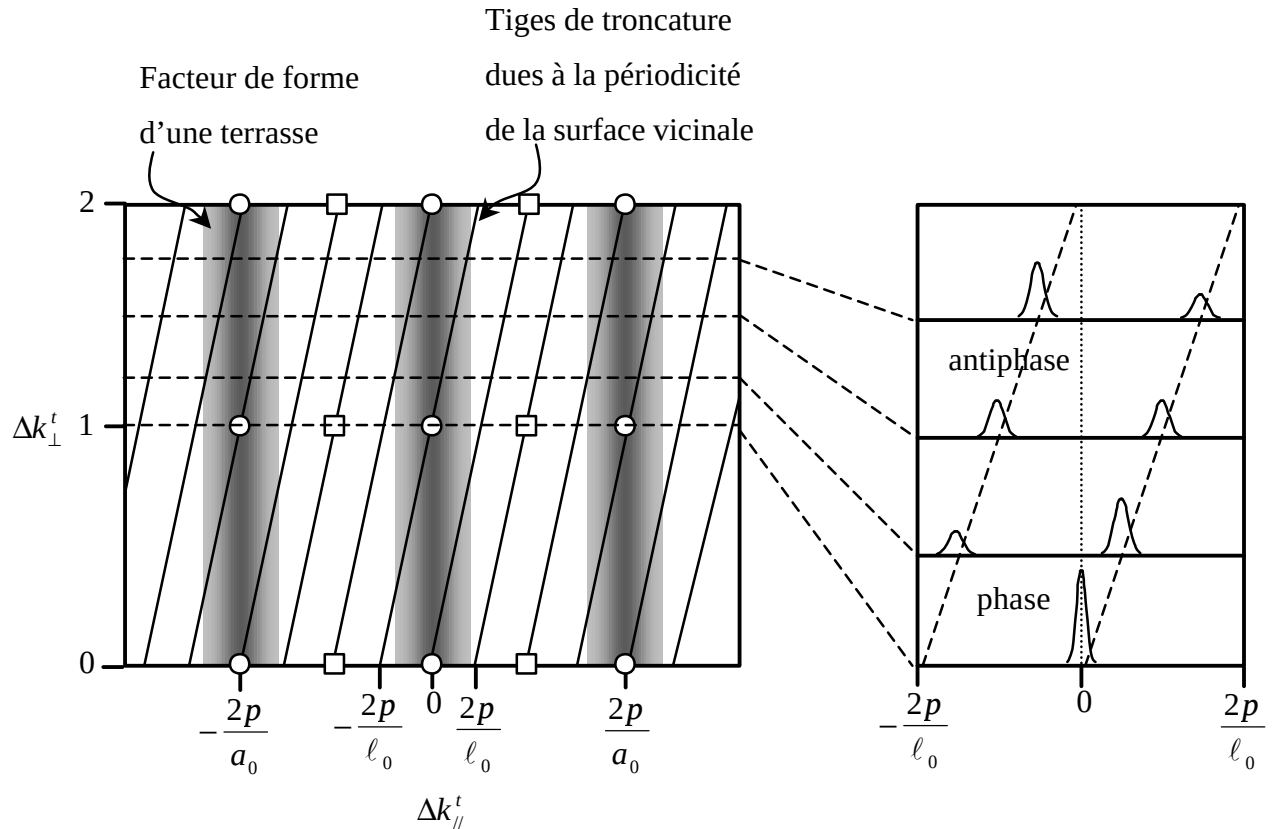


Figure VII-29 : Dessin schématique de l'espace réciproque d'une surface vicinale régulière, tiré de [30]. Les composantes parallèle et perpendiculaire aux terrasses du transfert de moment $\Delta\vec{k}$ sont notées $\Delta k_{||}^t$ et $\Delta k_{\perp}^t$. La figure de gauche montre que les tiges du réseau réciproque (—) dues à la stricte périodicité de la surface vicinale sont modulées par le facteur de forme d'une terrasse simple. Les conditions phases (?) et antiphases (?) sont représentées. La figure de droite donne l'intensité résultante, maximale en condition phase.

Afin de bien comprendre les spectres de diffraction des surfaces vicinales, la position des tiges dans l'espace réciproque est schématisée sur la Figure VII-29, ainsi que les zones où le facteur de forme est maximal. La figure de droite montre l'intensité le long de deux tiges résultant de la position de la tige par rapport au facteur de forme d'une terrasse. Les conditions phase et antiphase correspondant à un maximum et un minimum d'intensité le long des tiges sont également représentées.

VII-E.3.2. Debye-Waller

Un cristal est le siège de vibrations thermiques que l'on décrit en terme de champ de phonons. Le faisceau d'hélium incident interagit avec lui et peut ainsi échanger des phonons avec le cristal. Au fur et à mesure que la température du cristal croît, le nombre d'annihilations et de créations de phonons augmente. Ceci provoque une diminution de

l'intensité élastique recueillie dans les différents pics de diffraction par rapport à celle d'un cristal au repos, sans vibration thermique.

On exprime l'atténuation thermique des pics par :

$$(VII-9) \quad I(T) = I(T = 0K) \cdot F_{DW}(T)$$

où $F_{DW}(T)$ est le facteur de Debye-Waller. Par analogie avec la théorie de l'atténuation thermique pour les rayons X [31], ce facteur s'écrit :

$$(VII-10) \quad F_{DW}(T) \approx e^{-(a \cdot W(T))}$$

où $W(T) = \left\langle (\Delta \vec{k} \cdot \vec{u}_n)^2 \right\rangle_T$ avec $\Delta \vec{k} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$ le moment transféré lors de la collision et $\vec{u}_n$ est le déplacement de l'atome n .

L'effet de la température provoque sur les pics de diffraction :

- une diminution de l'intensité avec le terme $W(T)$ croissant,
- pas d'altération de la forme du pic, en particulier pas d'élargissement.

En diffraction d'hélium, la mesure de l'atténuation thermique ne donne pas pour les hautes températures une loi parfaitement exponentielle. La légère déviation observée est due à l'interaction hélium-surface où les effets de diffusion multiple sont importants. Le facteur de Debye-Waller peut alors s'exprimer par l'expression approchée :

$$(VII-11) \quad F_{DW} = \exp \left[-\Delta k_{\perp}^2 \cdot (A \cdot T + B \cdot T^2) \right].$$

Pour connaître le facteur de Debye-Waller, il faut enfin tenir compte de l'effet de potentiel de puits attractif que subit l'hélium près de la surface (ce qui modifie la valeur de $\Delta k_{\perp}^2$ qui dépend, par ailleurs, du pic et de l'angle d'incidence) [32]. Connaissant ainsi le facteur de Debye-Waller, les mesures d'intensité faites à une température T peuvent être corrigées de l'atténuation thermique.

L'atténuation thermique ne modifiant ni la forme des pics, ni leur périodicité, nous avons préféré présenter, dans ce chapitre, les spectres bruts non corrigés.

VII-E.3.3. Exemple de la face de $\text{Cu}(1,1,11)$

A titre d'exemple, les spectres de diffraction d'hélium de la face vicinale $\text{Cu}(1,1,11)$ [19] sont représentés Figure VII-30. La température de l'échantillon est de 130 K. L'échantillon est aligné en azimuth de façon identique à la Figure VII-27. Chaque ligne correspond à un spectre de diffraction enregistré en déplaçant le détecteur q_f , pour un angle d'incidence q_i donné. Cet ensemble de spectres, reporté dans l'espace réciproque de la surface $(\Delta K_{//}^S, \Delta K_{\perp}^S)$, permet de caractériser la distribution des marches. Dans le plan de l'espace réciproque parallèle à la surface on note les pics de diffraction par les indices $(n_x, n_y)_S$ en utilisant le repère $(2\pi/L \bar{u}_{\perp}, 2\pi/a_0 \bar{u}_{//})_S$, $\bar{u}_{\perp}$ et $\bar{u}_{//}$ étant des vecteurs unitaires respectivement perpendiculaire et parallèle à la direction des marches.

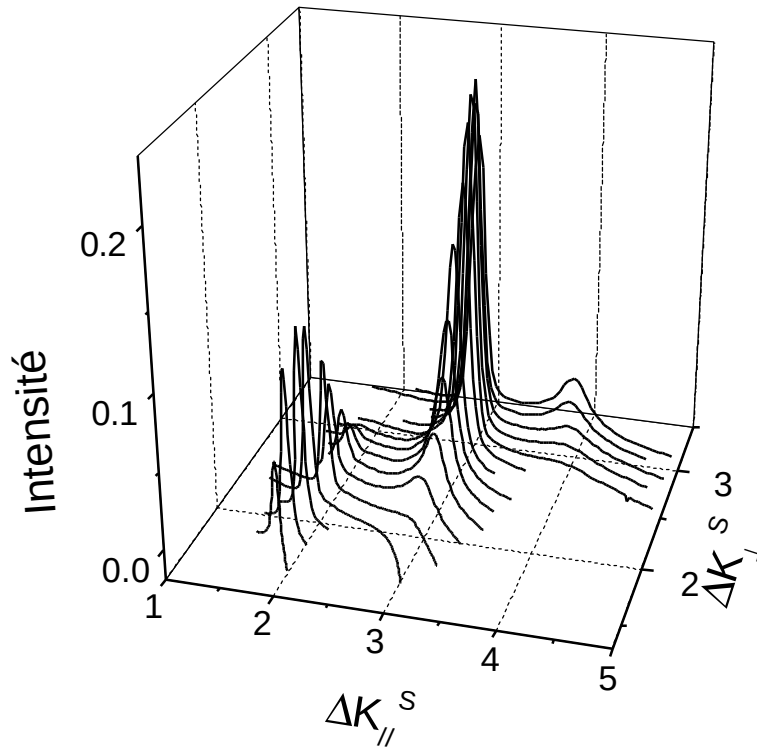


Figure VII-30 : Spectres de diffraction d'hélium de $\text{Cu}(1,1,11)$ à $T=130$ K, tirés de [19]. L'angle d'incidence varie de $q_i=28^\circ$ (spectre à grandes valeurs de $\Delta K_{\perp}^S$) à 58° par pas de 2° . $\Delta K_{//}^S$ en unité de $2\pi/L$, $\Delta K_{\perp}^S$ en unité de $2\pi/h$. Les tiges $(2,0)_S$, $(3,0)_S$ et $(4,0)_S$ sont visibles.

Sur ces spectres, les pics de diffraction sont alignés selon des tiges indicées $(n,0)_s$ séparées de $2\pi/L$. Le long de chaque tige, le maximum d'intensité est obtenu pour la condition phase ($\Delta\vec{k} \cdot \vec{a}_0 = 0$ et $\Delta\vec{k} \cdot \vec{h} = 2p \cdot n$). En dehors de cette condition, les pics baissent d'intensité et s'élargissent (interférence entre les terrasses et sensibilité au désordre thermique). L'évolution d'intensité le long de chaque tige est en accord avec l'expression (VII-8) pour une largeur moyenne de terrasse de $5.5 a_0$.

La face vicinale Cu(1,1,11) est donc stable et présente un réseau régulier de marches simples séparées en moyenne de $L=5.55 a_0$.

Dans notre étude du Cu₃Au(1,1,12), nous procéderons de la même façon en mesurant les spectres de diffraction en fonction de l'angle d'incidence. Ceci doit nous permettre d'obtenir des informations sur l'évolution de la distribution des marches entre l'état chimiquement ordonné et l'état désordonné.

VII-E.4. Diffraction d'hélium sur la face de Cu₃Au(1,1,12)

VII-E.4.1. Préparation de l'échantillon

Les deux échantillons Cu₃Au(1,1,13) et Cu₃Au(1,1,12) ont été étudiés par diffraction d'atomes d'hélium. Les résultats obtenus étant identiques nous ne présenterons ici que ceux concernant la face Cu₃Au(1,1,12) (angle de coupe $\phi_0 = 6.60 \pm 0.04^\circ$ et composition : Cu_{75.77}Au_{24.23}) qui a également été étudiée par microscopie à effet tunnel en fonction de la température. A l'origine, cet échantillon était un disque de 10 mm de diamètre et de 2 mm d'épaisseur (caractéristiques nécessaires à son étude par diffraction), puis il a été découpé par électroérosion en un parallélépipède de 9 mm $\times$ 3 mm $\times$ 2 mm pour l'étude par microscopie.

Dans l'enceinte ultravide du diffractomètre, l'échantillon a été nettoyé par une succession de bombardements ioniques (Ar⁺, $I_{Ar^+} = 6 \mu A$, 400 eV, 1h). Chaque bombardement est suivi d'un recuit à 900 K ($T_C + 240$ K) durant une trentaine de minutes afin de rétablir la stœchiométrie superficielle. La température de l'échantillon est ensuite abaissée à $T_C - 15$ K, durant au moins 12 h, afin que le cristal s'ordonne.

L'échantillon est aligné de façon à ce que le spectre de diffraction soit dans le plan d'incidence du jet (défini par l'axe du jet et la normale à l'échantillon) et selon l'azimut indiqué Figure VII-27.

VII-E.4.2. Résultats

Pour Cu_3Au les terrasses sont mixtes. Leur corrugation (contraste chimique) est plus importante que pour Cu et les terrasses diffractent. Nous avons observé des pics de diffraction dans la direction proche du maximum du facteur de forme en $-2\pi/a_0$. Leur intensité est cependant trop faible pour être exploitée, nous nous sommes donc principalement intéressés à la partie du spectre dans la zone spéculaire aux terrasses. La diffraction d'hélium étant unitaire la présence de diffraction sur les terrasses diminue l'intensité du spectre autour de la direction spéculaire aux terrasses $(0,0)_t$. Les spectres de diffraction en fonction de l'angle d'incidence enregistrés en-dessous ($T=592$ K) et au-dessus ($T=700$ K) de T_C sont représentés respectivement sur la Figure VII-31 et la Figure VII-32.

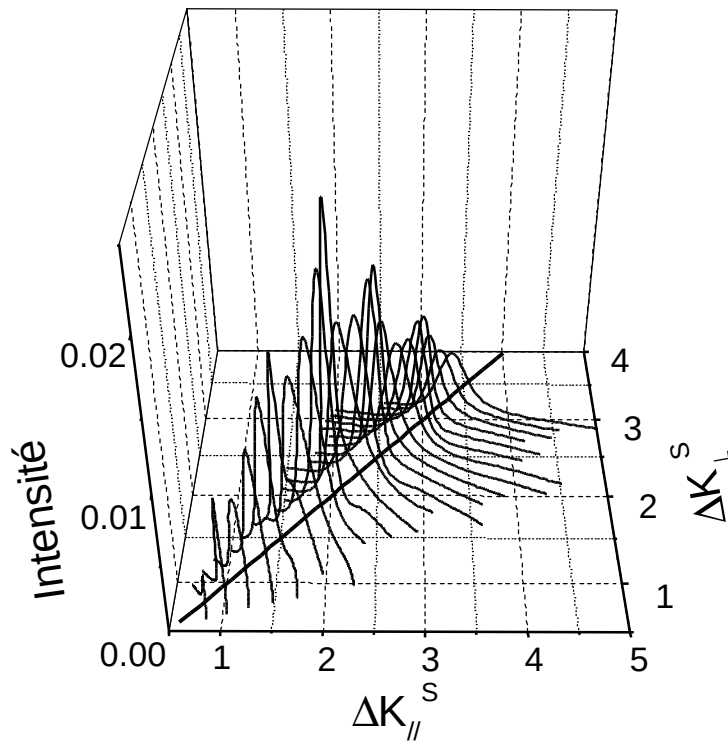


Figure VII-31 : Spectres de diffraction de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$, $T=592$ K $< T_C$. L'angle d'incidence varie de $q_i=30$ (spectre à grandes valeurs de $\Delta K_\perp^S$) à 72° par pas de 2° . $\Delta K_\parallel^S$ en unité de $2\pi/L$, $\Delta K_\perp^S$ en unité de $2\pi/h$. Le trait noir épais indique la direction spéculaire aux terrasses $(0,0)_t$. Les pics de diffraction sont principalement centrés sur le spéculaire aux terrasses. Les maximums d'intensités sont obtenus pour les conditions phases correspondant à des marches doubles.

Sur ces spectres on observe :

- Aussi bien en-dessous qu'au-dessus de T_C , le maximum d'intensité sur chaque spectre est localisé dans la direction spéculaire aux terrasses $(0,0)_t$. Au lieu d'observer les tiges du réseau réciproque d'un réseau régulier de marches comme pour $\text{Cu}(1,1,11)$ on observe principalement une seule tige modulée en intensité et orientée selon la direction $(0,0)_t$.
- Le long de cette tige, les maximums d'intensité correspondent aux conditions phases relativement à une marche de hauteur double $\Delta K_{\perp}^s \cdot 2h = 2np$ pour $T < T_C$ et relativement à une marche de hauteur simple $\Delta K_{\perp}^s \cdot h = 2np$ pour $T > T_C$.

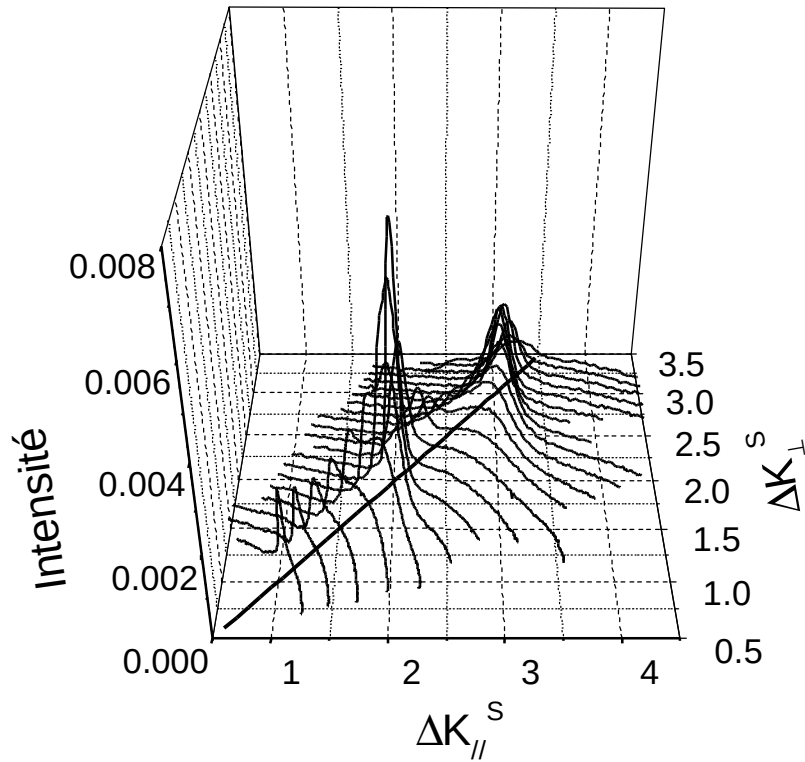


Figure VII-32 : Spectres de diffraction de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$, $T=700 \text{ K} > T_C$. L'angle d'incidence varie de $q_i=28$ (spectre à grandes valeurs de $\Delta K_{\perp}^s$) à 68° par pas de 2° . $\Delta K_{//}^s$ en unité de $2\pi/L$, $\Delta K_{\perp}^s$ en unité de $2\pi/h$. Le trait noir épais indique la direction spéculaire aux terrasses $(0,0)_t$. Les pics de diffraction sont principalement centrés sur le spéculaire aux terrasses. Les

maximums d'intensités sont obtenus pour les conditions phases correspondant à des marches simples.

La périodicité de la variation d'intensité sous T_C est en accord avec l'observation de marches appariées par STM. Le changement de périodicité traduit le passage d'une structure marches doubles dans l'état ordonné à une structure marches simples dans l'état désordonné.

Afin de préciser le passage de la structure formée de marches doubles sous T_C à la structure formée de marches simples au-dessus de T_C , nous nous sommes intéressés à l'évolution, en fonction de la température, de l'intensité du pic $(0,0)_t$ ($q_i=45.7^\circ$) en condition phase pour les marches doubles ($\Delta K_\perp^S=2.5 \cdot 2\pi/h$). Le résultat de la mesure, corrigé de l'atténuation thermique (Debye-Waller), est reporté sur la Figure VII-33. On observe que l'intensité reste approximativement constante jusqu'à 610 K. Elle chute ensuite brutalement jusqu'à T_C , puis elle continue à s'atténuer lentement au-dessus de T_C . Lors du refroidissement il se produit le comportement inverse. Cependant, l'intensité obtenue après refroidissement sous T_C (20 min. à T_C-30 K) reste plus faible. Ceci est probablement dû à la forte densité de parois d'antiphase pour les faibles temps de recuit.

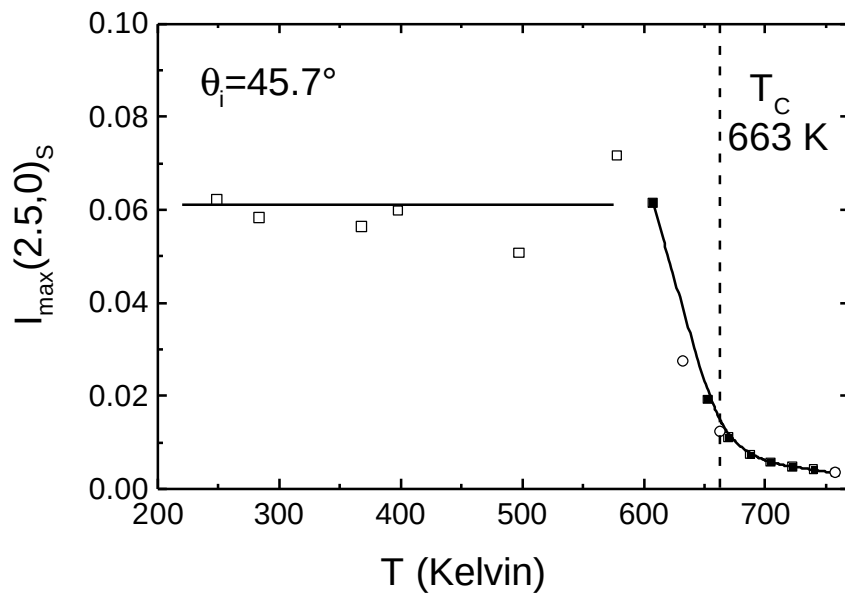


Figure VII-33 : Evolution, en fonction de la température, de l'intensité du pic $(2.5,0)_s$.

(?) Intensité mesurée sur une première série de spectres ne reflétant que l'influence de l'atténuation thermique (T variant de 250 K à 610 K). Ces spectres ont permis de déterminer le coefficient de Debye-Waller (cf. Eq. (VII-11)).

(!) Intensité mesurée lors du chauffage de l'échantillon (T variant de 610 K à 760 K).

(?) Intensité mesurée lors du refroidissement de l'échantillon (T variant de 760 K à 630 K).
Les lignes sont des guides pour l'œil.

On peut déduire de cette évolution en température le passage d'une structure formée de marches doubles (observées par STM) à une structure contenant des marches simples. Cette transition débute sous T_C (610 K) et apparaît réversible.

Les spectres de diffraction sont très différents de ceux obtenus pour une face vicinale régulière telle que Cu(1,1,11) dans l'état rugueux dont la fonction de corrélation des bords de marches est logarithmique. Les spectres de diffraction ne peuvent être calculés simplement que pour un modèle unidimensionnel et dans les deux cas extrêmes suivant : un réseau régulier de marches (forte corrélation entre marches) ou une distribution de marches aléatoires (aucune corrélation entre marches, fonction de corrélation linéaire). Le premier calcul conduit à une série de pics (peigne de Dirac) séparés de $\frac{2p}{L}$ dans l'espace réciproque (cf. paragraphe VII-E.3.1) et élargis par la rugosité thermique. Ce résultat étant incompatible avec les observations expérimentales sur Cu₃Au(1,1,12), nous allons nous intéresser au deuxième cas : la distribution de marches aléatoires.

VII-E.5. Modèle unidimensionnel de marches markoviennes

Nous allons, tout d'abord, décrire le calcul du spectre de diffraction pour une surface vicinale dans le cadre du modèle unidimensionnel de marches markoviennes. Ce calcul, effectué à l'origine par P. Fenter et T.M. Lu [33], a été repris par J. Sprösser dans sa thèse [34].

La position d'une maille élémentaire de terrasse ou d'un site sur une face vicinale peut être donnée par $na_0 \vec{u}_x + h(n)\vec{u}_z$, avec $\vec{u}_x$ un vecteur unitaire perpendiculaire aux bords de marches dans le plan des terrasses et $\vec{u}_z$ un vecteur unitaire perpendiculaire aux terrasses. Soit une surface vicinale comportant $2N+1$ sites. Pour une configuration donnée de la surface, l'amplitude diffusée s'écrit :

$$(VII-12) \quad A(\vec{\Delta k}) = A_0 \sum_{n=-N}^N \exp(in a_0 \Delta k_{//}) \cdot \exp(i h(n) \Delta k_{\perp}),$$

avec $\vec{\Delta k} = \Delta k_{//} \vec{u}_x + \Delta k_{\perp} \vec{u}_z$ et A_0 l'amplitude de diffusion d'un site.

En notant $j(n) = h(n) \cdot \Delta k_{\perp}$, on obtient pour l'intensité :

$$(VII-13) \quad I(\Delta \vec{k}) = (A_0)^2 \sum_{n=-N}^N \left[\sum_{p=-N}^N \exp[i(n-p)a_0 \Delta k_{//}] \cdot \exp[i(j(n)-j(p))] \right].$$

La moyenne sur toutes les configurations possibles de la surface conduit à l'intensité :

$$(VII-14) \quad I(\Delta \vec{k}) = (A_0)^2 \sum_{n=-N}^N \left[\sum_{p=-N}^N \exp[i(n-p)a_0 \Delta k_{//}] \cdot \langle \exp[i(j(n)-j(p))] \rangle \right].$$

L'intensité est donc la transformée de Fourier de la fonction de corrélation $\langle \exp[i(j(n)-j(p))] \rangle$.

Le facteur de phase $\exp[i(j(n)-j(p))]$ peut se développer sous la forme :

(VII-15)

$$\exp[i(j(n)-j(p))] = \exp[i(j(n)-j(n+1))] \cdot \exp[i(j(n+1)-j(n+2))] \dots \exp[i(j(p-1)-j(p))]$$

On se place, à présent, dans le cadre d'un modèle markovien [35], c'est à dire que la probabilité g d'avoir une marche entre le site n et le site $n-1$ est indépendante des autres sites. La valeur moyenne $\langle \exp[i(j(n)-j(p))] \rangle$ est alors le produit des valeurs moyennes associées à chaque terme de l'expression (VII-15). La surface étant homogène, toutes les valeurs moyennes sont identiques, on a donc :

$$(VII-16) \quad \langle \exp[i(j(n)-j(p))] \rangle = f^m, \text{ où } f = \langle \exp[i(j(n-1)-j(n))] \rangle \text{ et } m=n-p$$

L'expression (VII-14) se réécrit :

$$(VII-17) \quad I(\Delta \vec{k}) = (A_0)^2 \sum_{m=-N+1}^{N-1} N(m) \cdot f^m \cdot \exp[i m a_0 \Delta k_{//}],$$

où $N(m)$ donne la multiplicité des termes.

L'expression précédente peut se développer :

$$(VII-18) \quad I(\vec{\Delta k}) = A_0^2 \sum_{m=0}^{N-1} N(m) \cdot f^m \cdot \exp[i m a_0 \Delta k_{//}] + A_0^2 \sum_{m=1}^{N-1} N(m) \cdot (f^*)^m \cdot \exp[-i m a_0 \Delta k_{//}].$$

En écrivant le facteur f , qui est complexe, sous forme polaire :

$$(VII-19) \quad f = r \cdot \exp(i \Psi), \quad r = |f| \quad \text{et} \quad \Psi = \arctan\left(\frac{\text{Im}(f)}{\text{Re}(f)}\right),$$

on obtient :

$$(VII-20) \quad I(\vec{\Delta k}) = A_0^2 \sum_{m=0}^{N-1} N(m) \cdot r^m \cdot \exp[i m (a_0 \Delta k_{//} + \Psi)] + A_0^2 \sum_{m=1}^{N-1} N(m) \cdot r^m \cdot \exp[-i m (a_0 \Delta k_{//} + \Psi)].$$

Le facteur $f = \langle \exp[i(j(n-1) - j(n))] \rangle$ s'exprime simplement en fonction de la probabilité g d'avoir une marche entre le site $n-1$ et le site n et en fonction du déphasage dû uniquement (modèle cubique simple) à la différence de hauteur h entre les deux sites :

$$(VII-21) \quad f = (1-g) + g \exp(i(j(n-1) - j(n))) \quad \text{soit} \quad f = (1-g) + g \exp(i \Delta k_{\perp} h).$$

Le premier terme correspond à la probabilité de n'avoir aucune marche entre les sites $n-1$ et n , multiplié par un facteur de phase égale à 1. Le second terme est la probabilité d'avoir une marche entre les sites $n-1$ et n , multiplié par le facteur de phase dû à la présence d'une marche.

r et ψ s'écrivent alors :

$$(VII-22) \quad r = \sqrt{1 + 2g \cdot (g-1) \cdot [1 - \cos(\Delta k_{\perp} h)]}, \quad \Psi = \arctan\left(\frac{g \cdot \sin(\Delta k_{\perp} h)}{1 - g + g \cdot \cos(\Delta k_{\perp} h)}\right);$$

Lorsque le nombre de sites $N \rightarrow \infty$, la multiplicité $N(m)$ pour les petites valeurs de m tend vers N , tandis que pour les grandes valeurs de m , $r^m \rightarrow 0$ car $r < 1$. Par conséquent, il est justifié de remplacer $N(m)$ par N [34]. La relation (VII-20) devient alors [33] :

$$(VII-23) \quad I(\vec{\Delta k}) = A_0^2 N \cdot \left[\frac{1}{1 - r \cdot \exp[i(a_0 \Delta k_{//} + \Delta k_{\perp} h)]} + \frac{r \cdot \exp[-i(a_0 \Delta k_{//} + \Delta k_{\perp} h)]}{1 - r \cdot \exp[-i(a_0 \Delta k_{//} + \Delta k_{\perp} h)]} \right],$$

soit,

$$(VII-24) \quad I(\vec{\Delta k}) = A_0^2 N \cdot \left[\frac{1 - r^2}{1 + r^2 - 2r \cdot \cos(a_0 \Delta k_{//} + \Delta k_{\perp} h)} \right].$$

La probabilité g d'avoir une marche entre les sites $n-1$ et n est donnée par la pente de la face vicinale :

- $g_{sm} = \frac{1}{\ell_0}$ si on considère une distribution de marches simples,
- $g_{dm} = \frac{1}{2\ell_0}$ si on considère une distribution de marches doubles.

En appliquant l'expression (VII-24) au cas d'une surface vicinale formée de marches doubles et de marches simples, on obtient les spectres représentés sur la Figure VII-34 et la Figure VII-35. On observe, dans ces deux cas, qu'il n'y a de l'intensité que dans la direction spéculaire aux terrasses et qu'elle est modulée selon les conditions phase - antiphase. Les pics infiniment étroit en position phase présentent une largeur maximale en position antiphase.

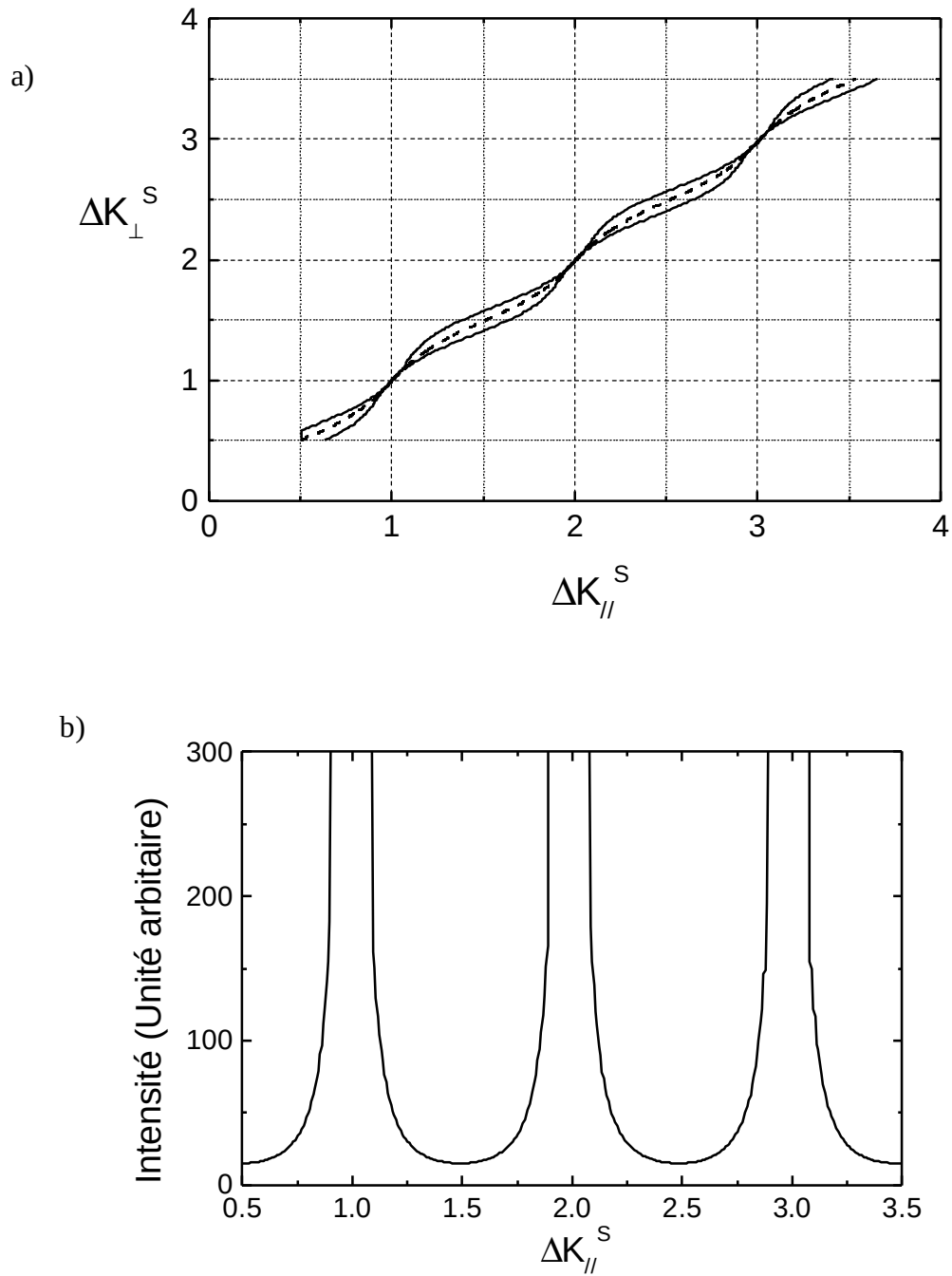


Figure VII-34 : Spectre de diffraction pour une distribution de marches markoviennes ($\ell_0=6$, marches de hauteur simple).

a) : (---) Position des pics de diffraction, la largeur à mi-hauteur est donnée par les deux lignes pleines.

b) : Intensité le long de la ligne d'intensité maximum en pointillée sur a).

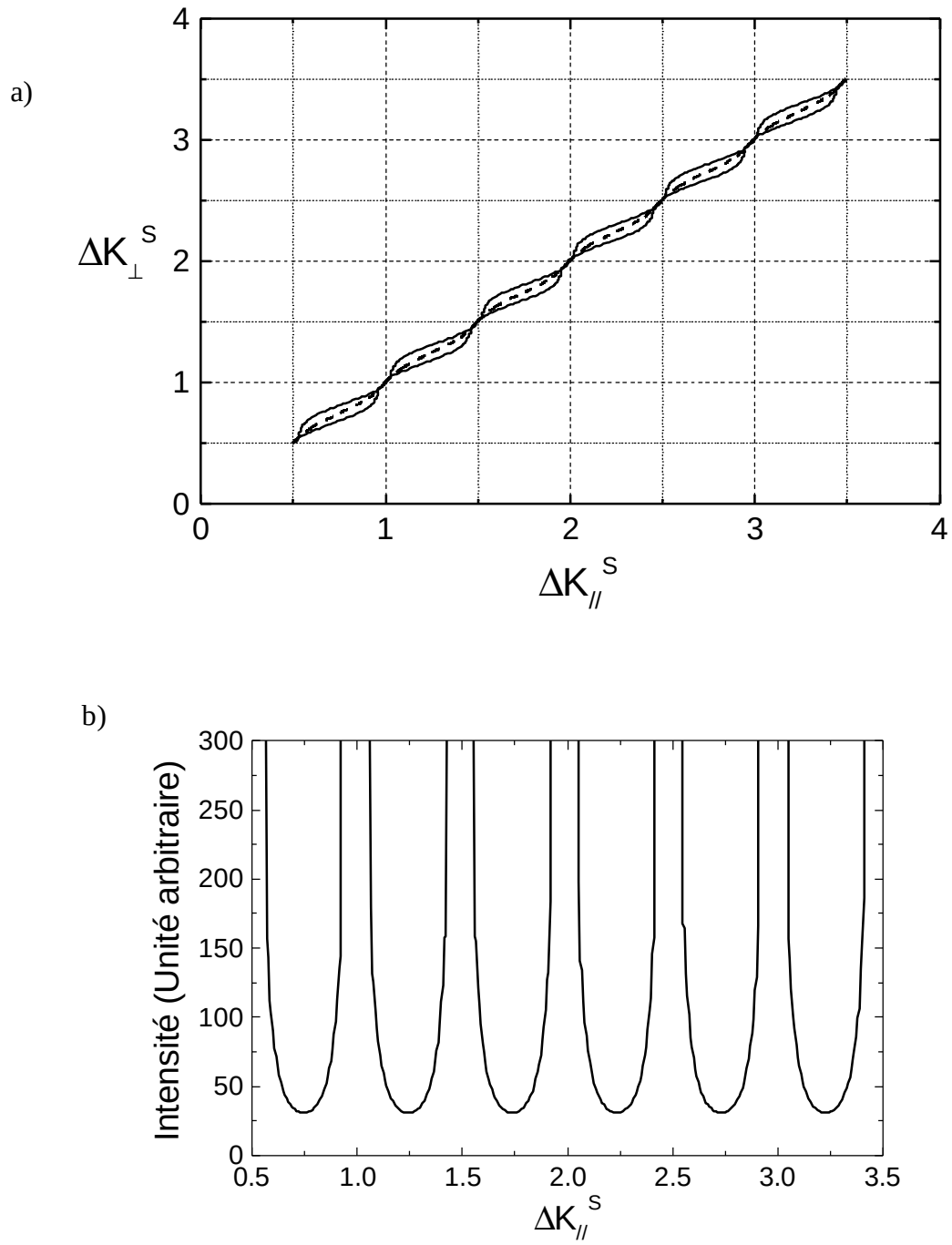


Figure VII-35 : Spectre de diffraction pour une distribution de marches markoviennes ($\ell_0=6$, marches de hauteur double).

a) : (---) Position des pics de diffraction, la largeur à mi-hauteur est donnée par les deux lignes pleines.

b) : Intensité le long de la ligne d'intensité maximum en pointillée sur a).

De façon qualitative, les spectres calculés sont très proches de ceux observés sur la face $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ à 592 K et 700 K. Ceci montre que la distribution des marches sur la face $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ est plus proche d'une distribution markovienne que d'une distribution régulière. Cependant, il serait étonnant que cette distribution soit purement aléatoire, c'est-à-dire qu'il n'y ait aucune corrélation entre les marches.

Selon ce modèle le disparition du maximum d'intensité en $\Delta k_{\perp} 2h = 2np$ est due à l'apparition de marches de hauteur simple.

VII-E.6. Comparaison avec les résultats obtenus par STM-VT

La face $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ a été étudiée par deux techniques complémentaires : la microscopie à effet tunnel en fonction de la température et la diffraction d'atomes d'hélium. Les résultats obtenus sont en accord pour :

- Le passage d'une structure formée de marches doubles en-dessous de T_C , à une structure formée de marches simples au-dessus de T_C .
- La séparation des marches appariées débute en-dessous de T_C . En effet, l'intensité du pic $(0,0)_t$, représentée Figure VII-33, est constante pour $T < 615 \text{ K} < T_C$ et chute ensuite brutalement. Ceci est en accord avec le comportement en température des distributions des largeurs de terrasses mesurées par STM : ces distributions restent inchangées jusqu'à 500 K (cf. Figure VII-21 et Figure VII-22). A $650 \text{ K} < T_C$, les marches commencent à se séparer car les terrasses (entre deux marches appariées) sont pratiquement toutes de largeur $1.5 a_0$ (cf. Figure VII-23).
- L'aspect aléatoire aux courtes distances de la distribution des marches en-dessous de T_C et au-dessus de T_C . En effet, les distributions des largeurs de terrasses obtenues expérimentalement à 650 K (cf. Figure VII-23) et à 680 K (cf. Figure VII-24) par STM sont proches de celle associée au modèle markovien représentée Figure VII-36.

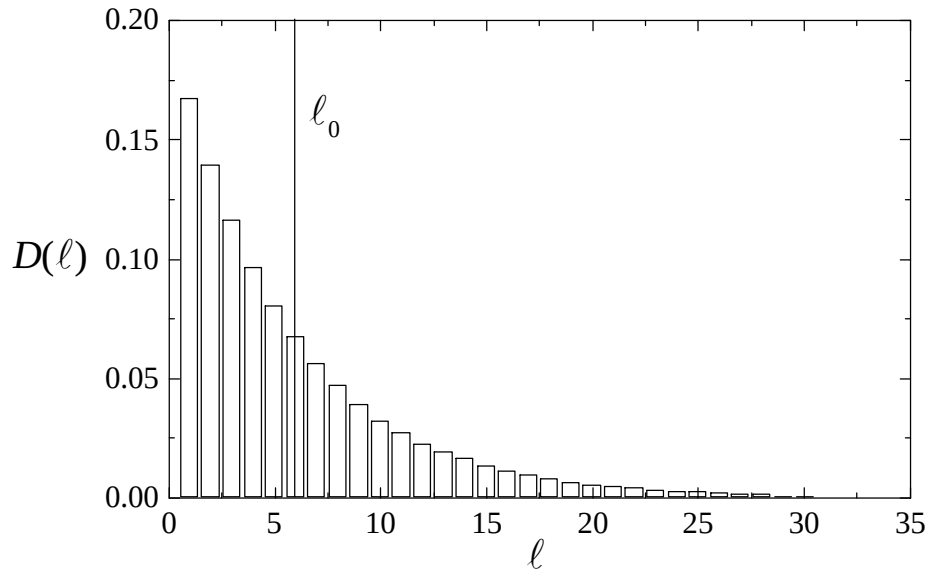


Figure VII-36 : Distribution des largeurs de terrasses dans le cas d'un modèle de marches markoviennes ($\ell_0=6$) : $D(\ell) = g \cdot (1-g)^{\ell-1}$.

Cependant il faut noter que nous n'avons pas obtenu en diffraction d'hélium une signature du facettage observé par STM au-dessus de T_C (680 K) (cf. Figure VII-17) : spectre de diffraction associé aux facettes (1,1,5) ou réduction de l'amplitude de modulation de l'intensité du (0,0)_t. La diffraction d'atomes d'hélium permet uniquement de dire que la structure, au-dessus de T_C , est formée de marches simples et qu'elles ne sont pas distribuées de façon régulière.

VII-E.7. Comparaison de l'évolution en température de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ et de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$

Dans un premier temps, nous allons rappeler les résultats obtenus par diffraction d'hélium par S. Goapper *et al.* [8,19] sur la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ ($T_C=778$ K). Les spectres de diffraction pour $T < T_C$ et $T > T_C$ sont représentés respectivement sur la Figure VII-37 et la Figure VII-38.

Sous T_C , l'ensemble des spectres montre des tiges $(n/2,0)_s$ bien marquées entre (1.5,0)_s et (4,0)_s (voir Figure VII-37). La périodicité de la surface est donc de $2L$. Le long de chaque tige on observe un maximum d'intensité pour la condition phase sur la hauteur des

marches ($\Delta K_{\perp}^t = \frac{2p}{h} \frac{n}{2}$). L'analyse de l'évolution de l'intensité le long des tiges a montré que les largeurs de deux terrasses adjacentes sont en moyenne de $10 a_0$ et a_0 . Les marches sont appariées en accord avec l'étude STM [8].

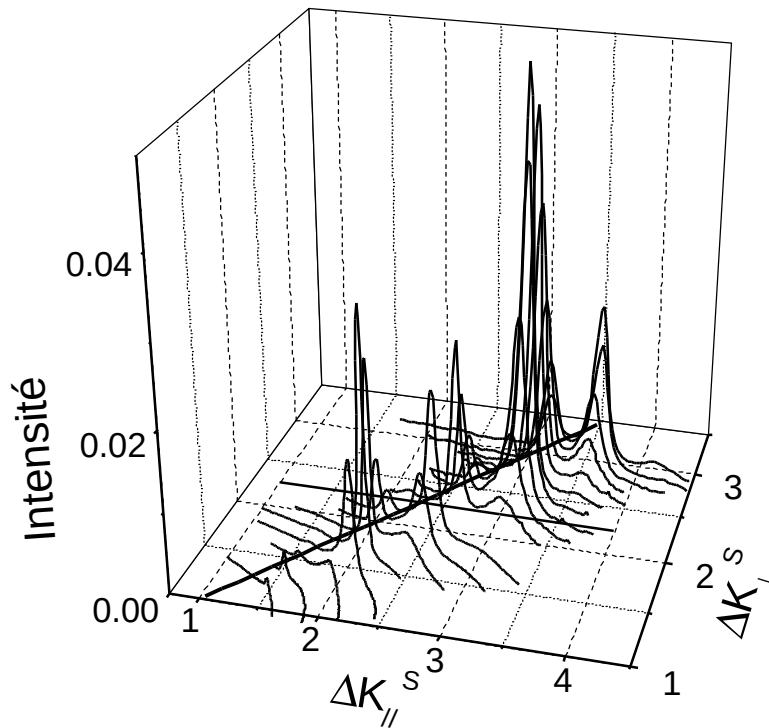


Figure VII-37 : Spectres de diffraction de Cu₈₃Pd₁₇(1,1,11), $T=300 \text{ K} < T_C$, tirés de [19]. L'angle d'incidence varie de $q_i=26^\circ$ (spectre à grandes valeurs de $\Delta K_{\perp}^S$) à 62° par pas de 2° . $\Delta K_{//}^S$ en unité de $2\pi/L$, $\Delta K_{\perp}^S$ en unité de $2\pi/h$. Les pics de diffraction entiers et demi-entiers entre $(1.5,0)_S$ et $(4,0)_S$ sont observables. Le trait noir épais indique la direction spéculaire aux terrasses $(0,0)_t$.

Au-dessus de T_C , la disparition des tiges demi-entières (voir Figure VII-38) traduit le passage d'une structure en marches appariées à une structure marches simples régulière. On obtient alors un ensemble de spectres similaire à celui de la face Cu(1,1,11) (cf. Figure VII-30). Pour $T < T_C$ et pour $T > T_C$, la faible intensité le long de la tige $(0,0)_t$ en condition antiphase montre que les réseaux de marches doubles et de marches simples sont réguliers.

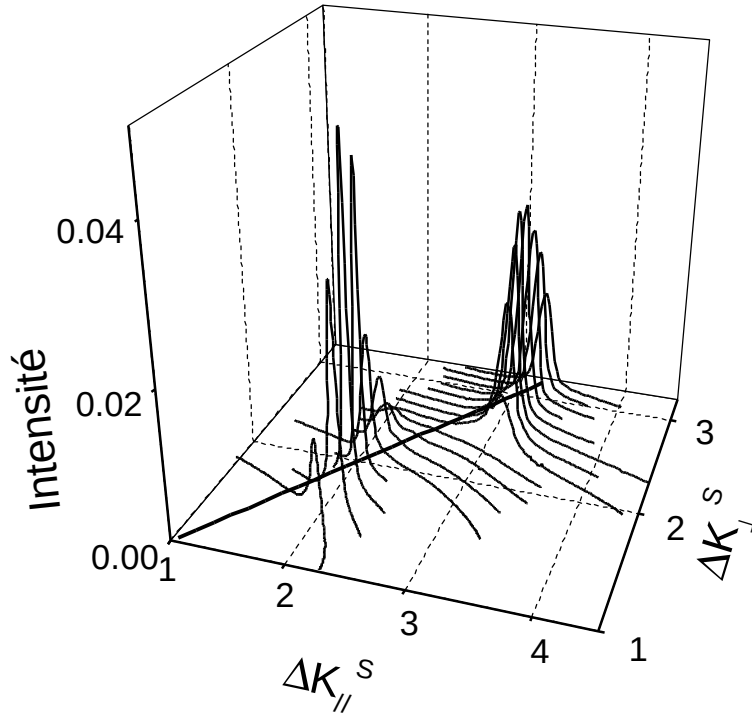


Figure VII-38 : Spectres de diffraction de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$, $T=783 \text{ K} > T_C$, tirés de [19]. L'angle d'incidence varie de $q_i=28^\circ$ (spectre à grandes valeurs de $\Delta K_\perp^S$) à 58° par pas de 2° . $\Delta K_\parallel^S$ en unité de $2\pi/L$, $\Delta K_\perp^S$ en unité de $2\pi/h$. Les pics de diffraction $(2,0)_S$ et $(3,0)_S$ sont observables. Le trait noir épais indique la direction spéculaire aux terrasses. Les spectres sont similaires à ceux de la face $\text{Cu}(1,1,11)$ (voir Figure VII-30).

De l'analyse des spectres en fonction de la température, S. Goapper *et al.*[8,19] ont obtenu l'évolution de l'asymétrie de largeur de deux terrasses adjacentes $d\ell_0$ (cf. Figure VII-39 et Figure VII-40). On observe que la transition morphologique marches appariées – marches simples débute bien avant T_C (vers $T=500 \text{ K}$) et apparaît continue jusqu'à T_C .

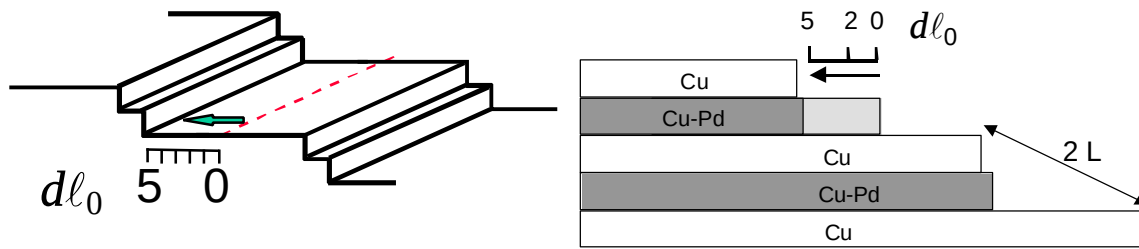


Figure VII-39 : Définition du paramètre $d\ell_0$ décrivant l'asymétrie des terrasses (figure tirée de [8]).

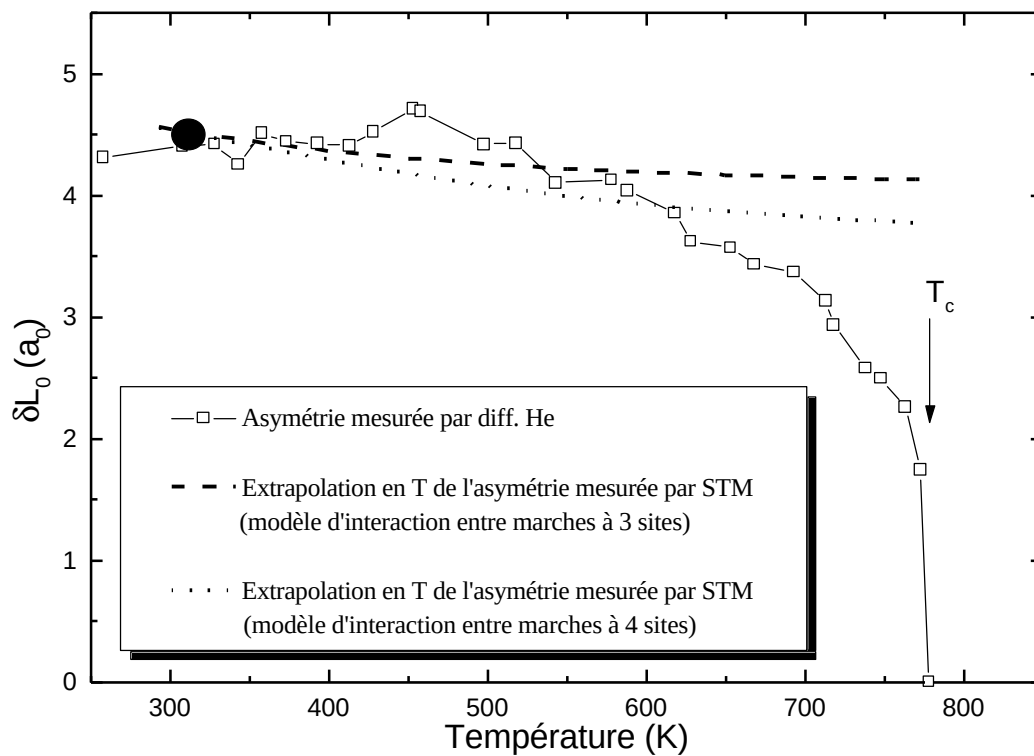


Figure VII-40 : Evolution de l'asymétrie des terrasses en fonction de la température, tirée de [8,19]. (?) Asymétrie mesurée par diffraction d'hélium. Le point noir donne la valeur moyenne de l'asymétrie mesurée par STM à température ambiante.

Les études en fonction de la température de la face de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ et de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ permettent de mettre en évidence les points communs et les différences de comportement entre ces deux systèmes :

- Passage, pour les deux systèmes, d'une structure formée de marches doubles dans la phase chimiquement ordonnée ($T < T_C$) à une structure formée de marches simples dans la phase désordonnée ($T > T_C$) (régulière pour $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$, facettée pour Cu_3Au).
- La séparation des marches appariées débute sous T_C . Dès $T=550$ K ($T_C=778$ K) pour $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$, autour de 650 K ($T_C=663$ K) pour $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$. Pour $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$, l'évolution entre 300 et 690 K est attribuée à l'excitation thermique des marches ($d\ell_0=4.5$ à 3.5). Entre 690 et 778 K, c'est le mouillage de la surface par le désordre chimique qui est responsable de la séparation des marches. Pour $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$, on peut simplement remarquer : 1) l'absence, observée par STM-VT entre 300 et 500 K, d'excitation thermique comparable à celle de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$. 2) Dosch *et al.* [36], on observé le mouillage de la surface $\text{Cu}_3\text{Au}(001)$ par le désordre dès T_C-30 K. Une interprétation pour $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ de la séparation des marches par l'apparition du désordre chimique de surface, identique à celle de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$, est donc parfaitement raisonnable.
- la surface de $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ présente, dans la phase ordonnée et dans la phase désordonnée, un réseau irrégulier de marches (proche d'une distribution markovienne), contrairement à la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$. L'origine de ce comportement reste inexpliqué.

VII-F. Conclusion de l'étude de la face $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,11)$

Deux faces vicinales de Cu_3Au ont été étudiées : $\text{Cu}_{73.25}\text{Au}_{26.75}(1,1,13)$ et $\text{Cu}_{75.77}\text{Au}_{24.23}(1,1,12)$. Les résultats ont été comparés à l'étude précédente de S. Goapper sur $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ [8,19]. On obtient que :

- Dans la phase chimiquement ordonnée, les marches sur les faces $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ et $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)$, comme sur la face de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$, sont appariées.
- Dans la phase désordonnée, on observe la formation de structures à marches simples sur les deux alliages.
- La face $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$, dans la phase désordonnée, est facettée entre la face (001) et la face (1,1,5). Ce résultat contraste avec celui de la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ qui présente, dans la même phase, une structure marches simples régulière.
- Les parois d'antiphase sont visibles sur les faces vicinales, de grandes distances moyennes entre marches, des deux alliages ($\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$, $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)$ et $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$). La comparaison avec les observations de Reichert *et al.*[7] sur la face $\text{Cu}_3\text{Au}(001)$ a permis de montrer que c'est la présence du réseau de marches qui est responsable de l'émergence de ces parois.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] T.M. Buck, G.H. Weatley et L. Marchut, Phys. Rev. Lett. **51** (1983) 43.
- [2] M.A Newton, S.M. Francis, Y. Li, D. Law et M. Bowker, Surf Sci. **259** (1991) 45.
- [3] R.H. Bergmans, M. Van de Grift, A.W. Denier van de Gon et H.H. Brongersma, Surf. Sci. **345** (1996) 303.
- [4] L. Potez et A. Loiseau, Interface Sci. **2** (1994) 7.
- [5] M.J. Hÿtch et L. Potez, Phil. Mag. **A 76** (1997) 1119.
- [6] C. Ricolleau , Thèse de l'Université Paris VI (1992) ; C. Ricolleau, A. Loiseau, F. Ducastelle et R. Caudron, Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 3591.
- [7] H. Reichert, P.J. Eng, H. Dosch et I.K. Robinson, Phys. Rev. Lett. **78** (1997) 3475.
- [8] S. Goapper, Thèse de l'Université de Marne la Vallée (1998).
- [9] S. Goapper, L. Barbier, B. Salanon, A. Loiseau et X. Torrelles, Phys. Rev. **B 57** (1998) 12497.
- [10] M. Hansen, Constitution of binary alloys, Metallurgy and Metallurgical Engineering Series (McGraw-Hill 1958) p 199.
- [11] S.B. Rivers, W.N. Unertl, H.H. Hung et K.S. Liang, Phys. Rev. **B 52** (1995) 12601.
- [12] H. Niehus et C. Achete, Surf Sci. **289** (1993) 19.
- [13] A Aslanides, M. Hayoun et V. Pontikis, Surf. Sci. **370** (1997) L163.
- [14] T. Hashimoto, K. Nishimura et Y. Takeuchi, Phys. Lett. **65 A** (1978) 250.
- [15] G.E. Poquette et D.E. Mikkola, Trans TMS-AIME **245** (1969) 743.
- [16] S.M. Allen et J.W Cahn, Acta Metall. **27** (1979) 1085.
- [17] J.W. Cahn, Scripta Met. **14** (1980) 93.

- [18] H. Reichert et H. Dosch, Surf. Sci. **345** (1996) 27.
- [19] E. Le Goff, L. Barbier, S. Goapper et B. Salanon (soumis).
- [20] S. Song et S.G.J. Mochrie, Phys. Rev. Lett. **73** (1994) 995; Phys. Rev. **B 51** (1995) 10068.
- [21] S. Song, M. Yoon et S.G.J. Mochrie, Surf. Sci. **334** (1995) 153.
- [22] M. Yoon, S.G.J. Mochrie, M.W. Tate, S.M. Gruner et E.F. Eikenberry, Surf. Sci. **411** (1998) 70.
- [23] M. Yoon, S.G.J. Mochrie, D.M. Zehner, G.M. Watson et D. Gibbs, Phys. Rev. **B 49** (1994) 16702.
- [24] G.M. Watson, D. Gibbs, D.M. Zehner, M. Yoon et S.G.J. Mochrie, Surf. Sci. **407** (1998) 59.
- [25] S. Dey, S. Kirukhin, J. West et E.H. Conrad, Phys. Rev. Lett. **77** (1996) 530.
- [26] L. Masson, Thèse de l'Université Paris XI (1994).
- [27] R. Campargue, Thèse, Paris (1970).
- [28] G. Comsa, Surf. Sci. **81** (1979) 57.
- [29] B. Loisel, Thèse de l'Université Paris VII (1989).
- [30] J. Wollschläger, F. Schäfer et K.M. Schröder, Surf. Sci. **396** (1998) 94.
- [31] N.W. Ashcroft et N.D. Mermin, Solid State Physics, Ed. Holt-Saunders (1976).
- [32] J. Perreau, Thèse de l'Université Paris XI (1982).
- [33] P. Fenter et T.M. Lu, Surf. Sci. **154** (1985) 15.
- [34] J. Sprösser, Thèse de l'Université du Maine, Le Mans (1992).
- [35] T.M. Lu et M.G. Lagally, Surf. Sci. **120** (1982) 47.
- [36] H. Dosh, L. Mailänder, A. Lied, J. Piesl, F. Grey, R.L. Johnson et S. Krummacher, Phys Rev Lett. **60** (1988) 2382.

Conclusion de la seconde partie

Au cours de la seconde partie de ce travail de thèse, nous avons présenté les résultats obtenus sur une face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ et sur deux faces vicinales de Cu_3Au : $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)$ et $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$. Ces résultats ont été obtenus en utilisant la diffraction d'atomes d'hélium et la microscopie à effet tunnel à température ambiante et en fonction de la température.

Nous avons observé que les faces vicinales $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,13)$ et $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ ont une structure en marches appariées dans la phase chimiquement ordonnée. Ce résultat généralise l'idée, introduite par les observations réalisées sur $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ [1,2] et sur une vicinale de (110) [3], que l'ordre chimique de volume a une influence sur la morphologie de surface.

L'émergence des parois d'antiphase en surface est immédiatement observable sur les faces vicinales (possédant la structure en marches doubles) contrairement aux observations de Reichert *et al.* [4] sur une face dense ($\text{Cu}_3\text{Au}(001)$). Nous montrons ainsi que c'est la présence du réseau de marches qui autorise l'émergence de ces parois.

La structure marches simples observée, dans la phase ordonnée, sur la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ est a priori surprenante. Ce résultat montre que la morphologie d'équilibre de ces surfaces résulte d'une balance entre les énergies de terrasses, de marches et de parois d'antiphase. L'observation d'une structure différente entre les faces $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ et $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ est un élément important de validation des futurs modèles traitant de la morphologie des surfaces vicinales d'alliages.

Dans la phase désordonnée, la structure en marches appariées disparaît sur les deux alliages. Les faces vicinales de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$ présentent un réseau régulier de marches simples [1,2,3]. Les surfaces de Cu_3Au étudiées présentent, quant à elles, une structure facettée.

Ainsi, le panorama obtenu sur la structure des faces vicinales d'alliages A_3B cfc L1_2 est plus riche que la simple règle : $T < T_C \rightarrow$ structure marches doubles, $T > T_C \rightarrow$ structure marches simples.

Nous avons exploré, dans l'espace des paramètres, la variation de la morphologie de surface en fonction de l'angle de coupe ($\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ et $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$) et en fonction de la nature de l'alliage ($\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,11)$ et $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,11)$). La structure singulière de $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$ implique la présence de parois d'antiphase parallèlement aux marches. Pour Cu_3Au , les parois d'antiphases présentent une orientation préférentielle dans les directions [100] et [010] différentes de celle des marches pour une face (1,1,5). On peut également remarquer que le facettage observé sur la face $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,12)$ se produit entre les faces (001) et (1,1,5) qui est, par conséquent, une face stable. Enfin, les calculs à $T=0$ K de A. Aslanides *et al.* [5] pour la face $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,5)$ indiquent que l'état de plus basse énergie possède la structure en marches doubles. Tous ces éléments font que l'étude de la $\text{Cu}_3\text{Au}(1,1,5)$ compléterait avantageusement notre étude et apporterait une comparaison nécessaire pour valider l'interprétation proposée pour la structure marches simples de la face $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}(1,1,5)$.

-
- [1] S. Goapper, Thèse de l'Université de Marne la Vallée (1998).
- [2] L. Barbier, S. Goapper, B. Salanon, R. Caudron, A. Loiseau, J. Alvarez, S. Ferrer et X. Torrelles, *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997) 3003.
- [3] L. Barbier, B. Salanon et A. Loiseau, *Phys. Rev.* **B 50** (1994) 4929.
- [4] H. Reichert, P.J. Eng, H. Dosch et I.K. Robinson, *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997) 3475.
- [5] A Aslanides, M. Hayoun et V. Pontikis, *Surf. Sci.* **370** (1997) L163.

ANNEXES

ANNEXE I:

La méthode de la matrice de transfert

L'hamiltonien d'un système formé d'une marche entre deux marches droites ou constitué d'un ensemble de N marches fluctuantes peut être résolu par la méthode de la matrice de transfert. Cette annexe présente en détail cette méthode. Dans le cas d'un ensemble de marches, la méthode de la matrice de transfert est encore appelée *méthode du cylindre*.

I. La méthode de la matrice de transfert à une marche

I-1. Présentation du modèle

On considère une marche fluctuant dans le potentiel créé par deux marches voisines supposées droites et localisées en $h=-\ell_0$ et $h=+\ell_0$ (voir Figure 1). La position de la marche sur un site y , par rapport à sa position d'équilibre, est donnée par h_y . Soit N_s le nombre de sites de la marche, avec la condition aux limites périodiques $h_{N_s} = h_0$. L'hamiltonien symétrisé de ce système dans le cas du modèle ASOS (énergie de cran proportionnelle à sa longueur) est donné par :

$$(1) \quad H_{ASOS} = \sum_{y=0}^{N_s-1} H(h_{y+1}, h_y) \quad \text{avec :}$$

$$(2) \quad H(h_{y+1}, h_y) = E_k |h_{y+1} - h_y| + \frac{1}{2} [V(h_{y+1}) + V(h_y)] .$$

Le potentiel $V(h)$ peut prendre n'importe quelle forme. Pour une interaction de type élastique il s'écrit :

$$(3) \quad V(h) = \frac{A}{(\ell_0 + h)^2} + \frac{A}{(\ell_0 - h)^2} .$$

La configuration de la marche est complètement décrite par l'ensemble des positions $\{h_0, \dots, h_{N_s-1}\}$. Dans la notation bracket, qui sera largement utilisée ici, la position de la marche au site y sera notée $|h_y\rangle$. Dans ce modèle, tous les sites de la marche sont équivalents.

La méthode de la matrice de transfert permet de calculer pour ce modèle l'énergie libre, la distribution des largeurs de terrasses ainsi que la fonction de corrélation le long du bord de marche.

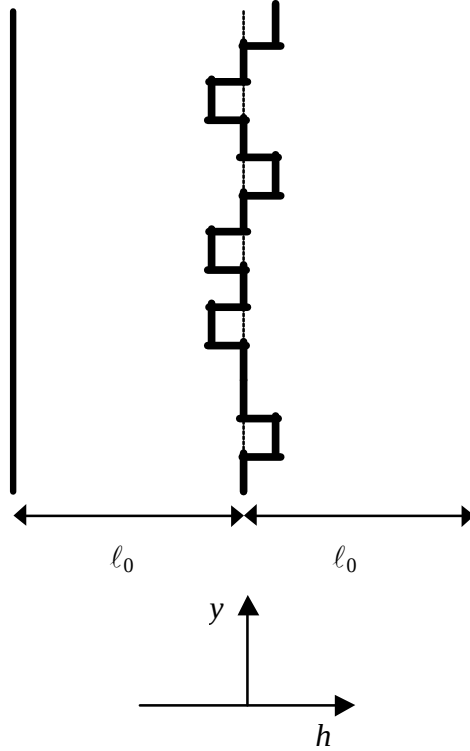


Figure 1 : Schéma du modèle à une marche.

I-2. Fonction de partition, énergie libre

La fonction de partition de cette marche comportant N_s sites s'écrit,

$$(4) \quad Z = \sum_{\{h_0, \dots, h_{N_s-1}\}} \left[\prod_{y=0}^{N_s-1} e^{-\frac{H(h_{y+1}, h_y)}{k_B T}} \right] = \sum_{\{h_0, \dots, h_{N_s-1}\}} \left[\prod_{y=0}^{N_s-1} \langle h_{y+1} | \hat{T} | h_y \rangle \right] = \text{Tr}(\hat{T}^{N_s}) ,$$

où les éléments de la *matrice de transfert* $\hat{T}$ sont définis par :

$$(5) \quad \langle h' | \hat{T} | h \rangle = e^{-\frac{H(h',h)}{k_B T}},$$

avec k_B la constante de Boltzmann.

La somme dans l'expression (4) de la fonction de partition se fait sur toutes les configurations possibles $\{h_0, \dots, h_{N_s-1}\}$ de la marche. La matrice de transfert est une matrice $m \times m$, m étant le nombre de valeurs possibles pour h .

Soit $\{\Lambda_p\}$ l'ensemble des valeurs propres de $\hat{T}$ et $\{\Psi_p\}$ l'ensemble de leurs vecteurs propres associés, l'équation(4) devient alors,

$$(6) \quad Z = \sum_{p=1}^m (\Lambda_p)^{N_s},$$

qui à la limite thermodynamique ($N_s \rightarrow \infty$), se réduit à,

$$(7) \quad Z = \lim_{N_s \rightarrow \infty} (\Lambda_{\max})^{N_s} \sum_{p=1}^m \left(\frac{\Lambda_p}{\Lambda_{\max}} \right)^{N_s} = \lim_{N_s \rightarrow \infty} (\Lambda_{\max})^{N_s},$$

avec $\Lambda_{\max}$ la plus grande valeur propre.

L'énergie libre par site et par unité d'aire projetée sur le plan des terrasses s'écrit :

$$(8) \quad F = -\frac{k_B T}{2 \ell_0} \ln(\Lambda_{\max}).$$

Il est intéressant de noter, afin de mieux comprendre les calculs qui vont suivre, que le rapport $\frac{\langle h' | \hat{T} | h \rangle}{Z}$ est la probabilité que la marche soit à la position h' sur le site $y+1$, sachant qu'elle était à la position h sur le site y .

I-3. Distribution des largeurs de terrasses

La distribution des largeurs de terrasses est déterminée par la probabilité que la marche soit à la position h sur un site y quelconque. Cette probabilité s'exprime en fonction des éléments de la matrice de transfert comme :

$$(9) \quad P(h_y = h) = \frac{\sum_{h_0, h_1, \dots, h_{N_s-1}} \langle h_0 | \hat{T} | h_1 \rangle \langle h_1 | \hat{T} | h_2 \rangle \dots \langle h_{y-1} | \hat{T} (h_y = h) h_y \rangle \langle h_y | \hat{T} | h_{y+1} \rangle \dots \langle h_{N_s-1} | \hat{T} | h_0 \rangle}{Z},$$

qui en utilisant la relation de fermeture $\sum_{h_j} |h_j\rangle \langle h_j| = 1$, se simplifie en,

$$(10) \quad P(h_y = h) = \frac{\langle h_y | \hat{T}^{N_s} (h_y = h) h_y \rangle}{Z}.$$

En appliquant la relation de fermeture $\sum_p |\Psi_p\rangle \langle \Psi_p| = 1$ de part et d'autre de la matrice de transfert et en utilisant l'orthonormalisation des vecteurs propres $\langle \Psi_p | \Psi_{p'} \rangle = d_{p,p'}$, la relation précédente devient :

$$(11) \quad P(h_y = h) = \sum_{p, p'} \frac{\langle h | \Psi_p \rangle \langle \Psi_p | \hat{T}^{N_s} | \Psi_{p'} \rangle \langle \Psi_{p'} | h \rangle}{Z} = \sum_p \frac{(\Lambda_p)^{N_s}}{Z} |\langle h | \Psi_p \rangle|^2,$$

qui pour une marche de longueur infinie ($N_s \rightarrow \infty$) se réduit à,

$$(12) \quad P(h_y = h) = \lim_{N_s \rightarrow \infty} \sum_p \frac{(\Lambda_p)^{N_s}}{(\Lambda_{\max})^{N_s}} |\langle h | \Psi_p \rangle|^2 = |\langle h | \Psi_{\max} \rangle|^2 = |(\Psi_{\max})_h|^2,$$

avec $|\Psi_{\max}\rangle$ le vecteur propre associé à la valeur propre $\Lambda_{\max}$.

Tous les sites étant équivalents, la probabilité que la marche soit positionnée en h , sur un site y quelconque est égale au module carré $|(\Psi_{\max})_h|^2$ de la composante h (les positions possibles $\{|h\rangle\}$ de la marche sur un site quelconque étant la base de la matrice de transfert $\hat{T}$) du vecteur propre associé à la valeur propre maximum.

On en déduit simplement la distribution $D(\ell)$ des largeurs de terrasses :

$$(13) \quad D(\ell) = P(\ell - \ell_0) .$$

I-4. Fonction de corrélation le long du bord de marche

La fonction de corrélation des déplacements du bord de marche h est définie par,

$$(14) \quad G(y) = \langle (h_y - h_0)^2 \rangle = 2 \langle h_0^2 \rangle - 2 \langle h_0 h_y \rangle ,$$

on note que $\langle h_0^2 \rangle = \langle h_y^2 \rangle$, tous les sites de la marche étant équivalents.

Le premier terme de la fonction de corrélation s'exprime simplement :

$$(15) \quad \langle h_0^2 \rangle = \sum_h h^2 |\langle h | \Psi_{\max} \rangle|^2 .$$

Le deuxième terme, quant à lui, s'écrit :

$$(16) \quad \langle h_0 h_y \rangle = \frac{\sum_{h_0, h_y} h_0 \langle h_0 | \hat{T}^y | h_y \rangle h_y \langle h_y | \hat{T}^{Ns-y} | h_0 \rangle}{Z} .$$

En introduisant la relation de fermeture $\sum_p |\Psi_p\rangle \langle \Psi_p| = 1$ de part et d'autre de la matrice de transfert, on obtient :

$$(17) \quad \langle h_0 h_y \rangle = \frac{\sum_{h_0, h_y} h_0 h_y \left[\sum_{p, p', p'', p'''} \langle h_0 | \Psi_p \rangle \langle \Psi_p | \hat{T}^y | \Psi_{p'} \rangle \langle \Psi_{p'} | h_y \rangle \langle h_y | \Psi_{p''} \rangle \langle \Psi_{p''} | \hat{T}^{Ns-y} | \Psi_{p'''} \rangle \langle \Psi_{p'''} | h_0 \rangle \right]}{Z} ,$$

qui se simplifie en :

$$(18) \quad \langle h_0 h_y \rangle = \frac{\sum_{h_0, h_y} h_0 h_y \left[\sum_{p, p'} \langle h_0 | \Psi_p \rangle (\Lambda_p)^y \langle \Psi_p | h_y \rangle \langle h_y | \Psi_{p'} \rangle (\Lambda_{p'})^{Ns-y} \langle \Psi_{p'} | h_0 \rangle \right]}{Z}.$$

En remarquant que :

$$(19) \quad \lim_{Ns \rightarrow \infty} \frac{(\Lambda_{p'})^{Ns-y}}{Z} = \lim_{Ns \rightarrow \infty} \frac{(\Lambda_{p'})^{Ns-y}}{(\Lambda_{\max})^{Ns}} = 0 \quad \text{si} \quad \Lambda_{p'} \neq \Lambda_{\max}$$

On obtient à la limite thermodynamique ($Ns \rightarrow \infty$),

$$(20) \quad \langle h_0 h_y \rangle = \frac{\sum_{h_0, h_y} h_0 h_y \left[\sum_p \langle \Psi_{\max} | h_0 \rangle \langle h_0 | \Psi_p \rangle (\Lambda_p)^y \langle \Psi_p | h_y \rangle \langle h_y | \Psi_{\max} \rangle \right]}{(\Lambda_{\max})^y},$$

La fonction de corrélation des déplacements du bord de marche s'écrit finalement :

$$(21) \quad G(y) = 2 \sum_h h^2 \left| \langle h | \Psi_{\max} \rangle \right|^2 - 2 \frac{\sum_{h_0, h_y} h_0 h_y \left[\sum_p \langle \Psi_{\max} | h_0 \rangle \langle h_0 | \Psi_p \rangle (\Lambda_p)^y \langle \Psi_p | h_y \rangle \langle h_y | \Psi_{\max} \rangle \right]}{(\Lambda_{\max})^y}.$$

II. La méthode du cylindre

II-1. Présentation de la méthode

La méthode du cylindre permet de traiter le problème d'un ensemble de marches interagissant sur une surface. Le système se compose de N marches de longueur infinie séparées en moyenne par ℓ_0 sites et respectant une condition de non croisement. Dans la direction des marches tous les sites sont équivalents. Des conditions aux limites périodiques sont appliquées parallèlement et perpendiculairement à la direction des marches. Dans la direction perpendiculaire, une marche particulière, appelée *marche de référence*, est utilisée

comme limite périodique. Dans la direction parallèle aux marches, ces dernières se bouclent sur elle même. Le système complet forme un tore qui tend vers un cylindre pour des marches de longueur infinie (voir Figure 2). La méthode est applicable à toute forme de potentiel.

La position de la marche m sur le site y par rapport à sa position d'équilibre est notée $h_{m,y}$. Sur chaque site y , la même marche est prise comme marche de référence, les autres marches sont positionnées sur les $N\ell_0-1$ sites restant du tore. La configuration des marches sur un site (pour laquelle on utilisera la notation bracket) est décrite par l'ensemble des distances relatives séparant la marche de référence ($m=0$) des $N-1$ autres marches :

$$(22) \quad \begin{aligned} |\Delta h_y\rangle &= \{(h_{1,y} + \ell_0 - h_{0,y}), (h_{2,y} + 2\ell_0 - h_{0,y}), \dots, (h_{N-1,y} + (N-1)\ell_0 - h_{0,y})\} \\ &= \{dh_{1,y}, dh_{2,y}, \dots, dh_{N-1,y}\} \end{aligned}$$

avec $dh_{n,y} = h_{n,y} + n\ell_0 - h_{0,y}$.

L'énergie d'un tel système de marches constituées chacune de Ns sites est donnée par :

$$(23) \quad H = \sum_{y=0}^{Ns-1} H(y)$$

avec :

$$(24) \quad H(y) = \sum_{m=0}^{N-1} \left[|h_{m,y+1} - h_{m,y}| E_k + \sum_{m' > m} V_{sym}(dh_{m',y+1}, dh_{m,y+1}, dh_{m',y}, dh_{m,y}) \right],$$

où E_k est l'énergie de formation d'un cran simple. Dans le modèle ASOS (Absolute Solid On Solid) utilisé ici, l'énergie de cran, correspondant au premier terme, est linéaire avec la taille du cran. Le deuxième terme est, quant à lui, associé à l'interaction entre les marches par l'intermédiaire d'un potentiel symétrisé :

$$(25) \quad V_{sym}(dh_{m',y+1}, dh_{m,y+1}, dh_{m',y}, dh_{m,y}) = \frac{V(dh_{m',y+1} - dh_{m,y+1}) + V(dh_{m',y} - dh_{m,y})}{2}.$$

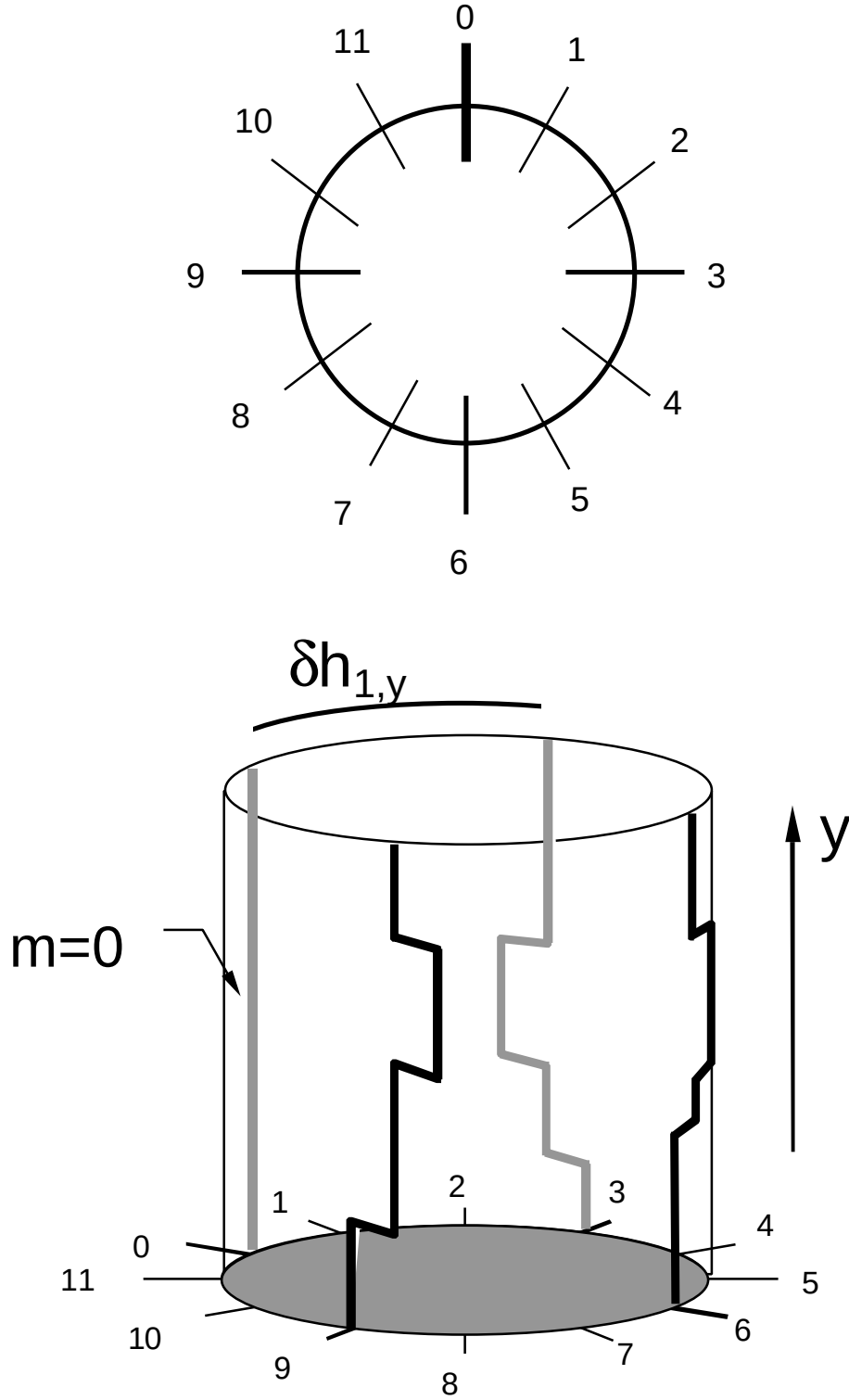


Figure 2 : Schéma du cylindre pour $N=4$ marches, $\ell_0=3$. A chaque site (y) les marches sont localisées par leurs positions relatives $|\Delta h_y\rangle = \{dh_{1,y}, dh_{2,y}, \dots, dh_{N-1,y}\}$ par rapport à la marche de référence. La marche $m=0$ a des crans mais elle est prise comme origine à chaque sites y .

Les déplacements de la marche de référence d'un site y au site $y+1$, sont notés $\P h_{0,y+1} = (h_{0,y+1} - h_{0,y})$.

La méthode de matrice de transfert appliquée à un système de N marches permet de déterminer l'énergie libre, la distribution des largeurs de terrasses et les fonctions de corrélation des marches d'une surface vicinale.

II-2. Fonction de partition, énergie libre

On définit les éléments de la matrice $\hat{T}$, appelée *matrice de transfert*, par :

$$(26) \quad \langle \Delta h' | \hat{T} | \Delta h \rangle = \langle \Delta h' | \sum_{n=0, \pm 1, \pm 2, \dots} e^{\frac{dH_n}{k_B T}} | \Delta h \rangle .$$

L'énergie $dH_n(y)$ associée au déplacement $\P h_{0,y+1} = h_{0,y+1} - h_{0,y} = n$ de la marche de référence s'écrit :

$$(27) \quad dH_n(y) = |n|E_k + \sum_{m=1}^{N-1} \left[|dh_{m,y+1} - dh_{m,y} + n|E_k + \sum_{m'>m} V(dh_{m',y+1}, dh_{m,y+1}, dh_{m',y}, dh_{m,y}) \right] .$$

La matrice $\hat{T}$ apparaît comme la somme de plusieurs matrices $\hat{T}_n$ associées chacune à une valeur de la taille n des crans possibles de la marche de référence (pour $T \ll E_k$ n peut se limiter à 2):

$$(28) \quad \langle \Delta h' | \hat{T} | \Delta h \rangle = \sum_{n=0, \pm 1, \pm 2, \dots} \langle \Delta h' | \hat{T}_n | \Delta h \rangle = \sum_{n=0, \pm 1, \pm 2, \dots} \langle \Delta h' | e^{\frac{dH_n}{k_B T}} | \Delta h \rangle .$$

On peut remarquer que la matrice $\hat{T}_{-n}$ est la transposée de la matrice $\hat{T}_n$. La taille de la matrice de transfert $\hat{T}$ est donnée par le nombre total N_C de configurations possibles $\{\Delta h\}$ sur chaque site y :

$$(29) \quad N_C = \frac{(N \ell_0 - 1)!}{(N-1)!(N \ell_0 - N)!} .$$

La fonction de partition du système étudié s'écrit en fonction de la matrice de transfert :

$$(30) \quad Z = \sum_{\Delta h_0, \Delta h_1, \dots, \Delta h_{N_s-1}} \langle \Delta h_0 | \hat{T} | \Delta h_1 \rangle \langle \Delta h_1 | \hat{T} | \Delta h_2 \rangle \dots \langle \Delta h_{N_s-1} | \hat{T} | \Delta h_0 \rangle ,$$

avec la condition aux limites périodiques $|\Delta h_{N_s}\rangle = |\Delta h_0\rangle$.

En utilisant la relation de fermeture $\sum_{\Delta h_i} |\Delta h_i\rangle \langle \Delta h_i| = 1$, l'expression (30) se simplifie

en :

$$(31) \quad Z = \sum_{\Delta h_0} \langle \Delta h_0 | \hat{T}^{N_s} | \Delta h_0 \rangle = \text{Tr}(\hat{T}^{N_s}) .$$

Soit $\{\Lambda_p\}$ l'ensemble des valeurs propres de $\hat{T}$ et $\{\Psi_p\}$ l'ensemble de leurs vecteurs propres associés, la fonction de partition s'écrit finalement

$$(32) \quad Z = \sum_p \Lambda_p^{N_s} .$$

Pour des marches de longueur infinie ($N_s \rightarrow \infty$) Z s'exprime en fonction de $\Lambda_{\max}$ la plus grande valeur propre :

$$(33) \quad Z = \lim_{N_s \rightarrow \infty} \left\{ (\Lambda_{\max})^{N_s} \left[1 + \sum_{p \neq p_{\max}} \left(\frac{\Lambda_p}{\Lambda_{\max}} \right)^{N_s} \right] \right\} = \lim_{N_s \rightarrow \infty} (\Lambda_{\max})^{N_s} ,$$

d'où l'énergie libre par site et par unité d'aire projetée sur le plan des terrasses s'écrit :

$$(34) \quad F(T) = - \frac{k_B T}{N \ell_0} \ln(\Lambda_{\max}) .$$

II-3. Distribution des largeurs de terrasses

La distribution des largeurs de terrasses $D(dh)$ est déterminée par la probabilité $P(|\Delta h_i\rangle)$ d'être dans une configuration donnée $|\Delta h_i\rangle$ sur un site y quelconque. Cette probabilité est donnée par :

(35)

$$P(\Delta h_y = \Delta h_i) = \frac{\sum_{\Delta h_0, \Delta h_1, \dots, \Delta h_{Ns-1}} \langle \Delta h_0 | \hat{T} | \Delta h_1 \rangle \langle \Delta h_1 | \hat{T} | \Delta h_2 \rangle \dots \langle \Delta h_{y-1} | \hat{T} (\Delta h_y = \Delta h_i) \Delta h_y \rangle \langle \Delta h_y | \hat{T} | \Delta h_{y+1} \rangle \dots \langle \Delta h_{Ns-1} | \hat{T} | \Delta h_0 \rangle}{Z} .$$

En utilisant la relation de fermeture $\sum_{\Delta h_i} |\Delta h_i\rangle \langle \Delta h_i| = 1$, on obtient :

$$(36) \quad P(\Delta h_y = \Delta h_i) = \frac{\langle \Delta h_y | \hat{T}^{Ns} (\Delta h_y = \Delta h_i) \Delta h_y \rangle}{Z} .$$

En appliquant la relation de fermeture $\sum_p |\Psi_p\rangle \langle \Psi_p| = 1$ de part et d'autre de la matrice de transfert et en utilisant l'orthonormalisation des vecteurs propres $\langle \Psi_p | \Psi_{p'} \rangle = d_{p,p'}$, la relation précédente devient :

(37)

$$P(\Delta h_y = \Delta h_i) = \sum_{p, p'} \frac{\langle \Delta h_i | \Psi_p \rangle \langle \Psi_p | \hat{T}^{Ns} | \Psi_{p'} \rangle \langle \Psi_{p'} | \Delta h_i \rangle}{Z} = \sum_p \frac{(\Lambda_p)^{Ns}}{Z} |\langle \Delta h_i | \Psi_p \rangle|^2$$

qui pour des marches de longueur infinie ($Ns \rightarrow \infty$), se réduit à :

$$(38) \quad P(\Delta h_y = \Delta h_i) = \lim_{Ns \rightarrow \infty} \sum_p \frac{(\Lambda_p)^{Ns}}{(\Lambda_{\max})^{Ns}} |\langle \Delta h_i | \Psi_p \rangle|^2 = |\langle \Delta h_i | \Psi_{\max} \rangle|^2 = |(\Psi_{\max})_i|^2 .$$

Tous les sites du modèle étant équivalents, la probabilité d'être dans une configuration donnée $|\Delta h_i\rangle$ sur un site quelconque y est le module carré de la composante i du vecteur propre $|\Psi_{\max}\rangle$.

Connaissant la probabilité d'être dans une configuration donnée $|\langle \Delta h_i | \Psi_{\max} \rangle|^2$, la distribution des largeurs de terrasses s'en déduit simplement :

$$(39) \quad D(dh) = \sum_i |\langle \Delta h_i | \Psi_{\max} \rangle|^2 \langle \Delta h_i | (dh_{m,y} \hat{=} dh) | \Delta h_i \rangle$$

où l'opérateur $(dh_{m,y} \hat{=} dh)$ est défini par :

$$(40) \quad \langle \Delta h_i | (dh_{m,y} \hat{=} dh) | \Delta h_i \rangle = 1 \quad \text{si,} \quad ((dh_{m+1,y})_i - (dh_{m,y})_i) = dh$$

$$= 0 \quad \text{autrement}$$

$(dh_{m,y})_i$ désignant la distance entre la marche m et la marche de référence pour la configuration i sur le site y .

II-4. Fonctions de corrélation spatiale

La fonction de corrélation dans la direction perpendiculaire aux bords de marches $G(m,0) = \langle (h_{m,0} - h_{0,0})^2 \rangle$ s'exprime simplement en fonction de la probabilité $|\langle \Psi_{\max} \rangle_i|^2$ d'être dans une configuration donnée $|\Delta h_i\rangle$ sur un site quelconque y , on a :

$$(41) \quad G(m,0) = \langle (h_{m,0} - h_{0,0})^2 \rangle = \langle (dh_{m,0} - n \cdot \ell_0)^2 \rangle = \sum_i \left(([dh_{m,0} - n \cdot \ell_0]_i)^2 |\langle \Psi_{\max} \rangle_i|^2 \right) .$$

Néanmoins, le calcul de la fonction de corrélation $G(m,0)$ est limité par la taille de la matrice de transfert qui croît très fortement avec le nombre de marches du modèle comme le montre la table 1 du chapitre II-C.5.2. . Le nombre de marches étant ainsi limité, seule $G(m=1,0)$ peut être obtenue du fait des conditions aux limites périodiques ($G(m,0)$ est symétrique par rapport à $m = \frac{N}{2}$).

Dans le cas de la fonction de corrélation dans la direction parallèle aux marches $G(0, y) = \langle (h_{0,y} - h_{0,0})^2 \rangle$, la longueur des marches étant infinie, il n'y a pas de limitation sur la valeur maximum de y .

La fonction $G(0, y)$ peut se développer en termes de longueur de cran $\mathbb{I}h_{m,j} = h_{m,j} - h_{m,j-1}$ pour chaque site compris entre 0 et y :

$$(42) \quad G(0, y) = \left\langle \left(\sum_{j=1}^y \partial h_{m,j} \right)^2 \right\rangle = \sum_{j=1}^y \langle \partial h_{m,j}^2 \rangle + 2 \sum_{\substack{i,j=1 \\ i>j}}^y \langle \partial h_{m,j} \cdot \partial h_{m,i} \rangle .$$

Tous les éléments de la première somme dans l'expression ci-dessus sont identiques et égaux à $G(0,1)$:

$$(43) \quad \sum_{j=1}^y \langle \partial h_{m,j}^2 \rangle = y \langle \partial h_{m,1}^2 \rangle = y G(0,1) .$$

$G(0,1) = \langle \partial h_{m,1}^2 \rangle$ peut s'écrire dans la base des vecteurs propres de la matrice de transfert comme :

$$(44) \quad G(0,1) = \frac{1}{Z} \sum_{\{p,p'\}} \langle \Psi_p | \hat{\partial} h_{m,1}^2 \hat{T} | \Psi_{p'} \rangle \langle \Psi_{p'} | \hat{T}^{N_s-1} | \Psi_p \rangle ,$$

avec $\hat{\partial} h_{m,j}$ l'opérateur donnant la taille n des crans de la marche m entre les sites j et $j-1$. Les propriétés d'orthonormalisation de la base des vecteurs propres nous conduisent à :

$$(45) \quad G(0,1) = \sum_p \frac{(\Lambda_p)^{N_s-1}}{Z} \langle \Psi_p | \hat{\partial} h_{m,1}^2 \hat{T} | \Psi_p \rangle$$

qui pour $N_s \rightarrow \infty$ devient

$$(46) \quad G(0,1) = \frac{\langle \Psi_{\max} | \hat{\partial} h_{m,1}^2 \hat{T} | \Psi_{\max} \rangle}{\Lambda_{\max}} = \frac{\langle \Psi_{\max} | \sum_{n=0,\pm 1,\pm 2} n^2 \cdot \hat{T}_n | \Psi_{\max} \rangle}{\Lambda_{\max}} .$$

Chaque terme de la seconde somme de (42) s'écrit :

(47)

$$\langle \partial h_{m,j} . \partial h_{m,i} \rangle = \frac{\sum_{p,p',p'',p'''} \langle \Psi_p | \hat{\partial} h_{m,i} \hat{T} | \Psi_{p'} \rangle \langle \Psi_{p'} | \hat{T}^{i-j-1} | \Psi_{p''} \rangle \langle \Psi_{p''} | \hat{\partial} h_{m,j} \hat{T} | \Psi_{p'''} \rangle \langle \Psi_{p'''} | \hat{T}^{N_s-i+j-1} | \Psi_p \rangle}{Z}$$

Pour un cran positif ou négatif de longueur n on a la relation :

$$\langle \Psi_p | n.\hat{T}_n | \Psi_{p'} \rangle = -\langle \Psi_{p'} | n.\hat{T}_{-n} | \Psi_p \rangle,$$

qui conduit à

$$\langle \Psi_p | \hat{\partial}h_{m,i} \hat{T} | \Psi_{p'} \rangle = \sum_{n=0,\pm 1,\pm 2,\dots} \langle \Psi_p | n.\hat{T}_n | \Psi_{p'} \rangle = -\langle \Psi_{p'} | \hat{\partial}h_{m,i} \hat{T} | \Psi_p \rangle,$$

de plus, tous les sites sont équivalents :

$$\langle \Psi_p | \hat{\partial}h_{m,i} \hat{T} | \Psi_{p'} \rangle = \langle \Psi_p | \hat{\partial}h_{m,j} \hat{T} | \Psi_{p'} \rangle = \langle \Psi_p | \hat{\partial}h_{m,1} \hat{T} | \Psi_{p'} \rangle.$$

En utilisant les deux relations précédentes ainsi que l'orthonormalisation des vecteurs propres $\langle \Psi_p | \Psi_{p'} \rangle = d_{p,p'}$, (47) se réduit à :

$$(48) \quad \langle \partial h_{m,j} \partial h_{m,i} \rangle = - \frac{\sum_{p,p'} (\Lambda_{p'})^{i-j-1} \left| \langle \Psi_{p'} | \hat{\partial}h_{m,1} \hat{T} | \Psi_p \rangle \right|^2 (\Lambda_p)^{N_s-i+j-1}}{Z},$$

qui pour $N_s \rightarrow \infty$ devient

$$(49) \quad \langle \partial h_{m,j} \partial h_{m,i} \rangle = - \sum_p \frac{(\Lambda_p)^{i-j-1}}{(\Lambda_{\max})^{i-j+1}} \left| \langle \Psi_p | \sum_{n=0,\pm 1,\pm 2,\dots} n.\hat{T}_n | \Psi_{\max} \rangle \right|^2$$

$$(50) \quad \sum_{\substack{i,j=1 \\ i>j}}^y \langle \partial h_{m,j} \partial h_{m,i} \rangle = - \sum_{\substack{i,j=1 \\ i>j}}^y \left[\sum_p \frac{(\Lambda_p)^{i-j-1}}{(\Lambda_{\max})^{i-j+1}} \left| \langle \Psi_p | \sum_{n=0,\pm 1,\pm 2,\dots} n.\hat{T}_n | \Psi_{\max} \rangle \right|^2 \right]$$

$G(0,y)$ étant la somme de (43) et (50), on obtient finalement :

$$(51) \quad G(0, y) = y G(0,1) - 2 \sum_{\substack{i,j=1 \\ i>j}}^y \left[\sum_p \frac{(\Lambda_p)^{i-j-1}}{(\Lambda_{\max})^{i-j+1}} \left| \langle \Psi_p | \sum_{n=0,\pm 1,\pm 2,\dots} n.\hat{T}_n | \Psi_{\max} \rangle \right|^2 \right]$$

L'expression ci-dessus, nécessite le calcul de toutes les valeurs propres et vecteurs propres de la matrice de transfert.

On peut également calculer le second terme de l'équation (42) sans utiliser la relation de fermeture, on a alors :

$$(52) \quad \langle \partial h_{m,j} . \partial h_{m,i} \rangle = \frac{\sum_p \langle \Psi_p | \hat{\partial} h_{m,i} \hat{T} (\hat{T}^{i-j-1}) (\hat{\partial} h_{m,j} \hat{T}) \hat{T}^{N_s-i+j-1} | \Psi_p \rangle}{Z}$$

qui se simplifie en :

$$(53) \quad \langle \partial h_{m,j} . \partial h_{m,i} \rangle = \frac{\sum_p (\Lambda_p)^{N_s-i+j-1} \langle \Psi_p | (\hat{\partial} h_{m,i} \hat{T}) (\hat{T}^{i-j-1}) (\hat{\partial} h_{m,j} \hat{T}) | \Psi_p \rangle}{Z} .$$

Pour $N_s \rightarrow \infty$, la relation précédente devient :

$$(54) \quad \langle \partial h_{m,j} . \partial h_{m,i} \rangle = \frac{\langle \Psi_{\max} | (\hat{\partial} h_{m,i} \hat{T}) (\hat{T}^{i-j-1}) (\hat{\partial} h_{m,j} \hat{T}) | \Psi_{\max} \rangle}{(\Lambda_{\max})^{i-j+1}} .$$

Finalement $G(0,y)$ peut se calculer par cette autre expression :

$$(55) \quad G(0, y) = y G(0,1) - 2 \sum_{\substack{i,j=1 \\ i>j}}^y \left[\frac{\langle \Psi_{\max} | \left[\sum_{n=0,\pm 1,\pm 2 \dots} n \hat{T}_n \right] \hat{T}^{i-j-1} \left[\sum_{n=0,\pm 1,\pm 2 \dots} n \hat{T}_n \right] | \Psi_{\max} \rangle}{(\Lambda_{\max})^{i-j+1}} \right] ,$$

qui ne nécessite, elle, que la connaissance de la valeur propre maximum et de son vecteur propre associé. En contrepartie elle impose de calculer des puissances de $\hat{T}$.

Nous disposons ainsi de tous les éléments pour réaliser un calcul de matrice de transfert pour un système à N marches en interaction. Le résultat pour un nombre infini de marches (surface réelle) est obtenu en étudiant la convergence, pour chacune des grandeurs calculées, en fonction du nombre de marches N . Cette étude de convergence, ainsi que ses liens avec la théorie de l'invariance conforme, sont présentés chapitre II-C.5.3. .

ANNEXE II :

Calcul des fonctions de corrélation dans le cadre du modèle des ondes capillaires

Dans le modèle des ondes capillaires, l'interface solide/vide est considérée comme une membrane fluctuante. J. Villain *et al.* [1] et José *et al.* [2] ont introduit l'idée que l'énergie libre de cette membrane F_{cap} pouvait s'écrire :

$$(1) \quad F_{cap} = \sum_{m,y} \left[\frac{h_x}{2} (h_{m+1,y} - h_{m,y})^2 + \frac{h_y}{2} (h_{m,y+1} - h_{m,y})^2 \right] + V_{loc}(T) \sum_{m,y} 2(1 - \cos(2p h_{m,y})),$$

où h_x et h_y sont respectivement les rigidités de la membrane dans la direction perpendiculaire et parallèle aux marches. $h_{m,y}$ est le déplacement de la marche m au site y par rapport à sa position d'équilibre. $V_{loc}(T)$ est un potentiel de localisation favorisant les déplacements entiers des marches.

En remplaçant, le cosinus par son développement de Taylor au second ordre, on a :

$$(2) \quad F_{cap} = \sum_{m,y} \left[\frac{h_x}{2} (h_{m+1,y} - h_{m,y})^2 + \frac{h_y}{2} (h_{m,y+1} - h_{m,y})^2 \right] + V_{loc}(T) \sum_{m,y} 4p^2 (h_{m,y})^2,$$

Le développement en série de Fourier du déplacement $h_{m,y}$ de la marche m au site y s'écrit :

$$(3) \quad h_{m,y} = \frac{1}{\sqrt{N_x N_y}} \sum_{q_x < q_{xc}, q_y < q_{yc}} h_q \exp(i q_x m + i q_y y),$$

où N_x et N_y sont respectivement le nombre de marches et le nombre de sites par marche, q_{xc} et q_{yc} sont des fréquences de coupure et h_q sont les amplitudes des composantes de Fourier.

Les expressions apparaissant dans la première somme de (2) s'expriment sous la forme :

$$(4) \quad (h_{m+1,y} - h_{m,y}) = \frac{1}{\sqrt{N_x N_y}} \sum_{q_x, q_y} [h_q \cdot \exp(i q_x \cdot m + i q_y \cdot y) (\exp(i q_x \cdot 1) - 1)]$$

$$(5) \quad (h_{m,y+1} - h_{m,y}) = \frac{1}{\sqrt{N_x N_y}} \sum_{q_x, q_y} [h_q \cdot \exp(i q_x \cdot m + i q_y \cdot y) (\exp(i q_y \cdot 1) - 1)] .$$

Les termes quadratiques se simplifient de la façon suivante :

$$(6) \quad \sum_{m,y} [(h_{m+1,y} - h_{m,y})^2] \\ = \frac{1}{N_x N_y} \sum_{m,y} \sum_{\substack{q_x, q'_x \\ q_y, q'_y}} [h_q \cdot \exp(i q_x \cdot m + i q_y \cdot y) (\exp(i q_x) - 1)] [h_{q'} \cdot \exp(i q'_x \cdot m + i q'_y \cdot y) (\exp(i q'_x) - 1)]$$

en effectuant la somme sur m, y :

$$(7) \quad \sum_{m,y} [(h_{m+1,y} - h_{m,y})^2] = \sum_{\substack{q_x, q'_x \\ q_y, q'_y}} [h_q \cdot (\exp(i q_x) - 1)] [h_{q'} \cdot (\exp(i q'_x) - 1)] \delta(q_x + q'_x) \delta(q_y + q'_y)$$

puis la somme sur q'_x, q'_y , on obtient :

$$(8) \quad \sum_{m,y} [(h_{m+1,y} - h_{m,y})^2] = \sum_{q_x, q_y} [h_q \cdot (\exp(i q_x) - 1)] [h_{-q} \cdot (\exp(-i q_x) - 1)] \\ = \sum_{q_x, q_y} 2(1 - \cos(q_x)) |h_q|^2$$

En réalisant le même calcul pour les autres termes :

$$(9) \quad F_{cap} = \sum_{q_x < q_{xc}, q_y < q_{yc}} [h_x (1 - \cos(q_x)) + h_y (1 - \cos(q_y))] |h_q|^2 + V_{loc}(T) \sum_{q_x < q_{xc}, q_y < q_{yc}} 4p^2 |h_q|^2$$

La fonction de corrélation des déplacements des bords de marches est définie par :

$$(10) \quad G(m, y) = \left\langle (h_{m,y} - h_{0,0})^2 \right\rangle .$$

En suivant la méthode de J. Villain *et al.* [1], on peut déterminer les expressions analytiques des fonctions de corrélation dans les directions perpendiculaire et parallèle aux bords de marches.

En fonction des composantes de Fourier de $h_{m,y}$, $G(m, y)$ s'écrit :

$$(11) \quad \begin{aligned} G(m, y) &= \left\langle \left(\frac{1}{\sqrt{N_x N_y}} \sum_{q_x, q_y} h_q (\exp(iq_x m + iq_y y) - 1) \right)^2 \right\rangle \\ &= \frac{1}{N_x N_y} \sum_{q_x, q_y; q'_x, q'_y} \langle h_q h_{q'} \rangle (\exp(iq_x m + iq_y y) - 1) (\exp(iq'_x m + iq'_y y) - 1). \end{aligned}$$

Le premier terme de la fonction de corrélation $\langle h_q h_{q'} \rangle$ est non nul dès lors que h_q et $h_{q'}$ ne sont pas indépendants, c'est-à-dire pour $q = q'$ ou $q = -q'$ (h_q et h_{-q} étant complexes conjugués $h_{-q} = h_q^*$).

En écrivant h_q sous la forme $h_q = a_q + i b_q$, on obtient pour $q = q'$:

$$(12) \quad \langle h_q h_{q'} \rangle = \langle (h_q)^2 \rangle = \langle (a_q)^2 \rangle - \langle (b_q)^2 \rangle + 2i \langle a_q b_q \rangle$$

La partie réelle a_q et la partie imaginaire b_q de h_q sont les amplitudes de deux modes indépendants, car déphasés de $\frac{\pi}{2}$, et de même fréquence. Ceci entraîne que la moyenne thermodynamique $\langle a_q b_q \rangle$ est nulle et que les moyennes thermodynamiques $\langle (a_q)^2 \rangle$ et $\langle (b_q)^2 \rangle$ sont égales. On a alors, $\langle (h_q)^2 \rangle = 0$.

$$\text{Pour } q = -q' : \quad \langle h_q h_{q'} \rangle = \langle |h_q|^2 \rangle.$$

D'où :

$$(13) \quad G(m, y) = \frac{1}{N_x N_y} \sum_{q_x, q_y} \langle |h_q|^2 \rangle |\exp(iq_x m + iq_y y) - 1|^2 = \frac{2}{N_x N_y} \sum_{q_x, q_y} \langle |h_q|^2 \rangle (1 - \cos(q_x m + q_y y)).$$

En appliquant l'équipartition de l'énergie à F_{cap} , on obtient :

$$(14) \quad \left\langle \left[h_x (1 - \cos(q_x)) + h_y (1 - \cos(q_y)) \right] + V_{loc}(T) 4p^2 \right\rangle \left\langle |h_q|^2 \right\rangle = \frac{k_B T}{2} ,$$

et la fonction de corrélation (13) s'écrit :

$$(15) \quad G(m, y) = \frac{k_B T}{N_x N_y} \sum_{q_x, q_y} \frac{1 - \cos(q_x m + q_y y)}{h_x (1 - \cos(q_x)) + h_y (1 - \cos(q_y)) + 4p^2 V_{loc}(T)} .$$

En remplaçant la somme discrète par une intégrale, on obtient pour $G(m, 0)$ et $G(0, y)$:

$$(16) \quad G(m, 0) = \frac{4k_B T}{(2p)^2} \int_0^p \int_0^p \frac{1 - \cos(q_x m)}{h_x (1 - \cos(q_x)) + h_y (1 - \cos(q_y)) + 4p^2 V_{loc}(T)} dq_x dq_y$$
$$= \frac{k_B T}{p} \int_0^p \frac{1 - \cos(q_x m)}{\sqrt{h_x (1 - \cos(q_x)) + 4p^2 V_{loc}(T)} \sqrt{2h_y + h_x (1 - \cos(q_x)) + 4p^2 V_{loc}(T)}} dq_x$$

$$(17) \quad G(0, y) = \frac{4k_B T}{(2p)^2} \int_0^p \int_0^p \frac{1 - \cos(q_y y)}{h_x (1 - \cos(q_x)) + h_y (1 - \cos(q_y)) + 4p^2 V_{loc}(T)} dq_x dq_y$$
$$= \frac{k_B T}{p} \int_0^p \frac{1 - \cos(q_y y)}{\sqrt{h_y (1 - \cos(q_y)) + 4p^2 V_{loc}(T)} \sqrt{2h_x + h_y (1 - \cos(q_y)) + 4p^2 V_{loc}(T)}} dq_y .$$

Bibliographie

- [1] J. Villain, D.R. Grimpel et J. Lapujoulade, J. Phys. **F 15** (1985) 809.

- [2] J.V. José, L.P. Kadanoff, S. Kirkpatrick et D.R. Nelson, Phys. Rev. **B 16** (1977) 1217.

ANNEXE III:

Equivalence entre un ensemble de marches fluctuant dans un potentiel et une assemblée de particules quantiques se déplaçant dans un potentiel à une dimension.

Le comportement quantique d'une assemblée de fermions sur une ligne est équivalent à un modèle décrivant le comportement d'objets linéaires tels que les marches à la surface d'un cristal. Cette équivalence a été établie par P. G. De Gennes [1] dans le cas d'objets sans interaction et a été étendue au cas d'objets en interaction par Bartelt *et al.* [2].

L'équivalence entre les deux modèles, quantique et thermodynamique, présente un grand intérêt puisque le modèle des fermions en interaction par un potentiel de paire en A/ℓ^2 (avec ℓ la distance entre fermions) ou modèle de Calogero-Sutherland [3] est exactement soluble. Joós *et al.* [4] ont utilisé cette équivalence pour traiter spécifiquement le cas d'une surface vicinale.

La démonstration de cette équivalence se trouvant dispersée sur plusieurs publications étalées sur de nombreuses années, il nous a paru utile de reprendre dans cette annexe le cheminement complet.

Pour ce faire, nous rappellerons tout d'abord le formalisme de Feynman [5] qui permet, dans le cas d'une particule plongée dans un potentiel, de déterminer une fonction d'onde vérifiant l'équation de Schrödinger, à partir de son Lagrangien. La fonction d'onde ainsi obtenue peut être comparée de façon formelle au coefficient de Boltzmann associé à la présence de la marche sur un site donné, ce qui permet d'en déduire l'équivalence entre les fluctuations quantiques d'une particule et les fluctuations thermodynamiques d'une marche. Ce résultat sera ensuite généralisé au cas d'un ensemble de marches, la condition de non croisement des marches étant équivalente à l'antisymétrisation de la fonction d'onde d'une assemblée de fermions.

I. Formulation lagrangienne de la mécanique quantique

I-1. Notions de chemin d'espace temps, d'opérateur d'évolution et d'opérateur de propagation

Soit une particule de masse m plongée dans un potentiel $V(x)$ se déplaçant sur un axe x . Entre les instants t_1 et t_2 la fonction $x(t)$ donnant à chaque instant t la position x de la particule définit dans l'espace temps une trajectoire appelée *chemin d'espace temps*. Il existe entre deux instants quelconques t_1 et t_2 une infinité de chemin d'espace temps possibles.

La fonction d'onde $|\Psi(t)\rangle$ décrivant la particule est définie par l'équation de Schrödinger :

$$(1) \quad \hat{H}|\Psi(t)\rangle = i\hbar \frac{\partial |\Psi(t)\rangle}{\partial t} .$$

La dérivée $\frac{\partial}{\partial t}|\Psi(t)\rangle$ donne l'évolution de la fonction d'onde au cours du temps. Etant donnée la fonction d'onde $|\Psi(t_1)\rangle$ à l'instant t_1 on peut obtenir la fonction d'onde $|\Psi(t_2)\rangle$ à l'instant ultérieur t_2 en appliquant l'opérateur d'évolution $\hat{U}(t_2, t_1)$ comme suit [6] :

$$(2) \quad |\Psi(t_2)\rangle = \hat{U}(t_2, t_1) |\Psi(t_1)\rangle .$$

En reportant (2) dans l'équation de Schrödinger (1) on obtient :

$$(3) \quad \hat{H}\hat{U}(t_2, t_1) = i\hbar \frac{\partial \hat{U}(t_2, t_1)}{\partial t_2} ,$$

qui pour un hamiltonien indépendant du temps, comme c'est le cas ici, s'intègre simplement en :

$$(4) \quad \hat{U}(t_2, t_1) = \exp\left[-\frac{i\hat{H}}{\hbar}(t_2 - t_1)\right] .$$

On connaît donc l'évolution au cours du temps de $|\Psi(t)\rangle$.

La fonction d'onde $\Psi(x_2, t_2) = \langle x_2 | \Psi(t_2) \rangle$ au point x_2 à l'instant t_2 peut être déterminée connaissant en tous points x_1 la fonction d'onde $\Psi(x_1, t_1) = \langle x_1 | \Psi(t_1) \rangle$ à l'instant t_1 (avec $t_2 > t_1$), en utilisant l'opérateur de propagation $\hat{K}(x_2, t_2 | x_1, t_1)$ défini par [6] :

$$(5) \quad \langle x_2 | \Psi(t_2) \rangle = \int \hat{K}(x_2, t_2 | x_1, t_1) \langle x_1 | \Psi(t_1) \rangle dx_1 .$$

L'opérateur de propagation représente l'amplitude de probabilité pour que, étant partie initialement du point x_1 à l'instant t_1 , la particule aboutisse au point x_2 à l'instant ultérieur t_2 .

Ces deux opérateurs de propagation et d'évolution sont liés entre eux. En effet, en insérant la relation de fermeture $\int dx_1 |x_1\rangle \langle x_1| = 1$ dans l'équation (2), $\Psi(x_2, t_2)$ s'écrit :

$$(6) \quad \Psi(x_2, t_2) = \langle x_2 | \Psi(t_2) \rangle = \int dx_1 \langle x_2 | \hat{U}(t_2, t_1) | x_1 \rangle \langle x_1 | \Psi(t_1) \rangle$$

On obtient ainsi une formule identique à (5), à condition de poser :

$$(7) \quad \hat{K}(x_2, t_2 | x_1, t_1) = \langle x_2 | \hat{U}(t_2, t_1) | x_1 \rangle .$$

Soit $\Psi_s(x)$ les états propres et E_s les valeurs propres vérifiant l'équation de Schrödinger stationnaire :

$$(8) \quad -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2 \Psi_s(x)}{dx^2} + V(x) \Psi_s(x) = E_s \Psi_s(x) .$$

On peut déterminer l'amplitude de probabilité $\hat{K}(x_2, t_2 | x_1, t_1)$ en insérant deux fois la relation de fermeture $\sum_s |\Psi_s\rangle \langle \Psi_s| = 1$ dans l'expression (7) :

$$(9) \quad \hat{K}(x_2, t_2 | x_1, t_1) = \sum_{s, s'} \langle x_2 | \Psi_s \rangle \langle \Psi_s | \hat{U}(t_2, t_1) | \Psi_{s'} \rangle \langle \Psi_{s'} | x_1 \rangle$$

qui devient en utilisant l'expression (4) explicitant l'opérateur évolution :

$$(10) \quad \hat{K}(x_2, t_2 | x_1, t_1) = \sum_s \exp \left[-\frac{iE_s(t_2 - t_1)}{\hbar} \right] \cdot \Psi_s(x_2) \Psi_s^*(x_1) .$$

L'opérateur de propagation $\hat{K}(x_2, t_2 | x_1, t_1)$ correspond à l'opérateur d'évolution $\hat{U}(t_2, t_1)$ en ne considérant qu'un point initial et final de la fonction d'onde et non sa globalité. Les opérateurs d'évolution et de propagation sont deux façons d'aborder l'évolution de la fonction d'onde au cours du temps.

I-2. Postulats de Feynman, fonction d'onde, équation de Schrödinger

Les notions de chemin d'espace temps et d'opérateur de propagation ont permis à Feynman de donner une nouvelle formulation de l'évolution d'un système physique dans le temps. Cette formulation est basée sur deux postulats dont nous allons indiquer ici les idées générales [5].

On définit $\hat{K}(i+1, i) = \hat{K}(x_{i+1}, t_{i+1} | x_i, t_i)$ comme l'amplitude de probabilité pour que la particule partie en x_i à l'instant t_i arrive en x_{i+1} à l'instant t_{i+1} . On postule ensuite que :

(i) $\hat{K}(i+1, i)$ est la somme d'une infinité d'amplitudes partielles $\hat{K}_\Gamma(i+1, i)$ liées à l'infinité des chemins d'espace temps possibles reliant (x_i, t_i) à (x_{i+1}, t_{i+1}) .

(ii) L'amplitude partielle $\hat{K}_\Gamma(i+1, i)$ associée à un chemin Γ s'écrit :

$$(11) \quad \hat{K}_\Gamma(i+1, i) = C \exp \left[\frac{i}{\hbar} S_\Gamma(x_{i+1}, x_i) \right]$$

où C est une constante de normalisation et $S_\Gamma(x_{i+1}, x_i)$ est l'action classique calculée le long du chemin Γ entre x_{i+1} et x_i , définie par :

$$(12) \quad S_{\Gamma}(x_{i+1}, x_i) = \left[\int_{t_i}^{t_{i+1}} L(\dot{x}(t), x(t)) dt \right]_{\Gamma}$$

avec $L(\dot{x}(t), x(t))$ le lagrangien de la particule, qui s'écrit dans notre cas :

$$(13) \quad L(\dot{x}(t), x(t)) = \frac{1}{2} m \dot{x}(t)^2 - V(x) .$$

Pour calculer l'action S_{Γ} , il est nécessaire de connaître tous les points du chemin Γ , les points x_i et x_{i+1} ne sont pas suffisant. Feynman [5] postule alors que la particule suit entre les instants t_i et t_{i+1} le chemin suivi par la particule classique. Le chemin classique est celui qui minimise l'action, soit :

$$(14) \quad S_C(x_{i+1}, x_i) = \text{Min} \int_{t_i}^{t_{i+1}} L(\dot{x}(t), x(t)) dt ,$$

et $\hat{K}(i+1, i)$ se réduit à,

$$(15) \quad \hat{K}(i+1, i) = C \exp \left[\frac{i}{\hbar} S_C(x_{i+1}, x_i) \right] .$$

Les postulats de Feynman nous ont permis de définir un opérateur de propagation. L'équation (5) s'écrit maintenant :

$$(16) \quad \Psi(x_{k+1}, t+e) = \int \exp \left[\frac{i}{\hbar} S_C(x_{k+1}, x_k) \right] \Psi(x_k, t) \frac{dx_k}{A} ,$$

$$\text{où } A = \frac{1}{C} .$$

L'intégrale se fait sur tous les points de départ possibles x_k . On suppose ici que le temps t correspond à un point particulier k de la subdivision du temps en pas de e , c'est à dire $t=t_k=k.e$ et $x_k=x(k.e)$, avec $e \rightarrow 0$.

Dans le cas d'une particule de masse m se déplaçant sur une ligne et plongée dans un potentiel $V(x)$, l'action entre deux points infiniment proches s'écrit :

$$(17) \quad S_C(x_{k+1}, x_k) = \frac{me}{2} \left(\frac{x_{k+1} - x_k}{e} \right)^2 - e V(x_{k+1})$$

et l'équation (16) devient :

$$(18) \quad \Psi(x_{k+1}, t+e) = \int \exp \left[\frac{ie}{\hbar} \left\{ \frac{m}{2} \left(\frac{x_{k+1} - x_k}{e} \right)^2 - V(x_{k+1}) \right\} \right] \Psi(x_k, t) \frac{dx_k}{A} .$$

Feynman montre [5] que la fonction d'onde ainsi définie est solution de l'équation de Schrödinger,

$$(19) \quad -\frac{\hbar}{i} \frac{\partial \Psi(x, t)}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2 \Psi(x, t)}{\partial x^2} + V(x) \Psi(x, t) .$$

Ainsi, la donnée de l'équation de Schrödinger est équivalente à la donnée de l'opérateur de propagation construit à partir des postulats de Feynman.

II. Fluctuations statistiques d'une marche, équivalence quantique

L'équivalence entre un ensemble de chaînes flexibles à deux dimensions sans interactions et une assemblée de particules quantiques a été étudiée par P. G. De Gennes [1]. Nous allons appliquer ici la même méthode au cas des marches interagissantes.

Considérons une marche serpentant entre deux marches droites séparées par une distance $2\ell_0$, la configuration de la marche est donnée, à chaque instant, par $x(y)$ comme représenté sur la Figure 1. L'énergie totale de cette marche pour une configuration donnée $x(y)$ s'écrit [2] (voir aussi [7] et [8]) :

$$(20) \quad E_{x(y)} = \int dy \left[b(T) + \frac{1}{2} \tilde{b}(T) \left(\frac{dx}{dy} \right)^2 + V(x(y)) \right]$$

où $b(T)$ est l'énergie de création par unité de longueur a_l d'une marche orientée dans la direction moyenne (parallèlement à y) et $\tilde{b}(T)$ est la rigidité du bord de marche par unité de

longueur $a_{//}$. Ces deux paramètres caractérisent une marche isolée. Le potentiel $V(x(y))$ fixe l'interaction entre la marche et les marches droites adjacentes.

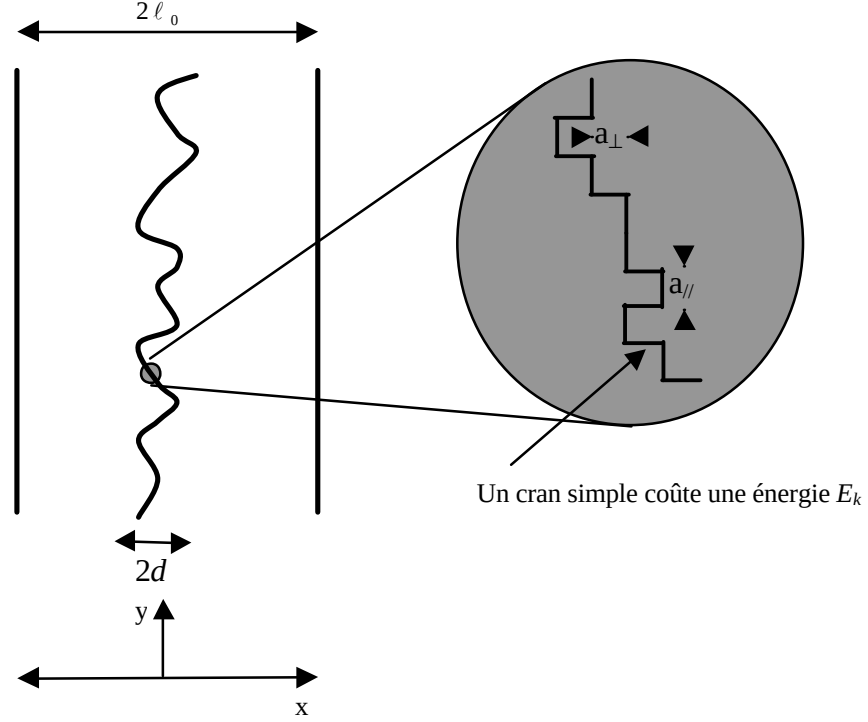


Figure 1 : A gauche, représentation schématique d'une marche serpentant entre deux marches droites séparées par $2\ell_0$. Les interactions dues aux marches voisines limitent le déplacement de la marche à $2d$. A droite, structure en crans du bord de marche correspondant aux fluctuations de la marche. $a_{//}$ et $a_{\perp}$ sont les distances entre sites parallèlement et perpendiculairement à la direction des marches.

La variation avec la température de $\tilde{b}(T)$ est discutée dans [8,9], on obtient :

$$(21) \quad \tilde{b}(T) = \frac{k_B T}{b^2(T)},$$

avec k_B la constante de Boltzmann et $b^2(T)$ la diffusivité d'une marche libre définie par :

$$(22) \quad b^2(T) = \frac{2 \sum_{n=1}^{\infty} (n a_{\perp})^2 \exp(-n E_k / k_B T)}{1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \exp(-n E_k / k_B T)},$$

où E_k est l'énergie nécessaire pour créer un cran simple de longueur $a_{\perp}$ (voir Figure 1). L'expression de la diffusivité est donnée ici dans le cadre d'un modèle ASOS (Absolute Solid On Solid), pour lequel l'énergie d'un cran est proportionnel à sa taille n . Il faut souligner ici que l'expression (20) n'est valable que pour les faibles températures, pour lesquelles les déplacements de la marche sont petits, c'est à dire tels que $\sqrt{b^2} \ll a_{\perp}$ [2].

Appelons $G(x'', y'' | x', y')$ le poids statistique total de toutes les configurations de la marche liant les sites (x', y') et (x'', y'') ; ($y'' > y'$). G peut s'écrire [1] comme la somme $\int_{D_{x', x''}}$ des facteurs de Boltzmann de tous les chemins $x(y)$ liant les deux points x^{ℓ} et x^2 :

$$(23) \quad G(x'', y'' | x', y') = \int_{D_{x', x''}} \exp - \frac{\int_{y'}^{y''} \frac{\tilde{b}}{2} \left(\frac{dx}{dy} \right)^2 + V(x(y)) dy}{k_B T}$$

Le premier terme de l'énergie de la marche b étant indépendant du chemin suivis, il n'introduit qu'une constante multiplicative.

Réécrivons l'équation (23) pour $y'' = y'' + a_{\parallel}$, en posant

$$x_i = x(y'') \text{ et } x_{i+1} = x(y'' + a_{\parallel}),$$

(24)

$$G(x_{i+1}, y'' + a_{\parallel} | x', y') = \int_{D_{x', x_{i+1}}} \exp - \frac{\left[a_{\parallel} \frac{\tilde{b}}{2} \left(\frac{x_{i+1} - x_i}{a_{\parallel}} \right)^2 + a_{\parallel} V(x_{i+1}) \right] + \left[\int_{y'}^{y''} \frac{\tilde{b}}{2} \left(\frac{dx}{dy} \right)^2 + V(x(y)) dy \right]}{k_B T}$$

qui se simplifie en :

$$(25) \quad G(x_{i+1}, y'' + a_{\parallel} | x', y') = \int \exp - \frac{a_{\parallel} \left[\frac{\tilde{b}}{2} \left(\frac{x_{i+1} - x_i}{a_{\parallel}} \right)^2 + V(x_{i+1}) \right]}{k_B T} G(x_i, y'' | x', y') dx_i$$

En comparant l'équation (25) décrivant une marche dans un potentiel et l'équation (18) décrivant une particule quantique dans un potentiel unidimensionnel, on observe que ces deux équations sont formellement identiques en faisant l'identification :

$$\begin{cases} ie \rightarrow a_{//} \\ \hbar \rightarrow k_B T \\ m \rightarrow \tilde{b} \end{cases} .$$

La fonction $G(x'', y'' | x', y')$ qui est donc solution de l'équation de type "Schrödinger" :

$$(26) \quad -k_B T \frac{\partial G(x'', y'' | x', y')}{\partial y''} = -\frac{(k_B T)^2}{2\tilde{b}} \frac{\partial^2 G(x'', y'' | x', y')}{\partial x''^2} + V(x'') G(x'', y'' | x', y') ,$$

représente l'amplitude de probabilité quantique qu'une particule partie en x' à l'instant y' , arrive en x'' à l'instant y'' .

Le problème d'une marche fluctuant dans un potentiel est donc équivalent à celui d'une particule quantique de masse $\tilde{b}(T)$ dans un potentiel à une dimension. Cette particule se déplace au cours d'un temps imaginaire découpé en intervalle $a_{//}$ et dont l'énergie est définie par rapport à $k_B T$.

On obtient une expression pour l'amplitude de probabilité $G(x'', y'' | x', y')$ en utilisant l'expression (10) explicitant l'opérateur propagation :

$$(27) \quad G(x'', y'' | x', y') = \sum_s \exp\left[-\frac{E_s(y'' - y')}{k_B T}\right] \cdot \Psi_s(x'') \Psi_s^*(x')$$

Il faut bien remarquer que cette analogie marche-particule n'est valable qu'à basse température, c'est-à-dire plus précisément pour une faible excitation du bord de marche. Ce n'est que dans ce cas que l'équation de départ (20) est valable.

III. Problème à N marches

Considérons un ensemble de N marches placées entre deux marches droites et caractérisées, à chaque instant, par $x_1(y), x_2(y), \dots, x_N(y)$. On peut définir, comme précédemment, le poids statistique total $G_N(x'_1, x'_2, \dots, x'_N, y' | x''_1, x''_2, \dots, x''_N, y'')$ de toutes les configurations possibles liant les sites $(x'_1, x'_2, \dots, x'_N)$ à l'instant y' et les sites $(x''_1, x''_2, \dots, x''_N)$ à l'instant ultérieur y'' ; avec $(y' < y'')$. Pour simplifier les notations on écrira $X = (x_1, x_2, \dots, x_N)$.

$G_N(X'', y'' | X', y')$ peut se développer en termes des fonctions propres $\Psi_s(x_1, x_2, \dots, x_N)$ du problème à N corps :

$$(28) \quad G_N(X'', y'' | X', y') = \sum_s \exp\left[-\frac{E_s}{k_B T}(y'' - y')\right] \Psi_s(X'') \Psi_s^*(X') \quad \text{avec} \quad (y' < y'')$$

Mais nous voulons ici, de plus, que les marches ne se croisent pas, c'est-à-dire que G s'annule lorsque deux arguments x'_n et x'_m (ou x''_n et x''_m) coïncident. Cette condition est vérifiée par antisymétrisation. Plus précisément, on obtient une correspondance univoque entre la fonction d'onde $\Psi_s(x)$ de notre problème de marches et la fonction d'onde Φ_s de N fermions interagissant le long de l'axe x , en prenant [1] :

$$(29) \quad \begin{aligned} \Psi_s(x_1, x_2, \dots, x_N) &= (N!)^{\frac{1}{2}} \Phi_s(x_1, x_2, \dots, x_N) \quad \text{pour } X \in R_1, \\ &= 0 \quad \text{ailleurs,} \end{aligned}$$

où R_1 est la région physiquement acceptable pour notre problème de marches et définie par :

$$0 < x_1 < x_2 < \dots < x_N < L_N \quad .$$

Le facteur $(N!)^{\frac{1}{2}}$ est nécessaire pour la normalisation et $L_N = (N+1)\ell_0$ est la taille totale du système de marches. Les niveaux d'énergie de Ψ_s et Φ_s sont les mêmes.

IV. Conclusion

L'équivalence entre un ensemble de marches fluctuant dans un potentiel et une assemblée de fermions se déplaçant dans un potentiel unidimensionnel est obtenue en identifiant la rigidité du bord des marches $\tilde{b}(T)$ à la masse des particules et la direction le long des marches à un temps imaginaire.

Calogero et Sutherland [3] ayant obtenu une solution exacte pour le problème quantique d'une assemblée de fermions interagissant par l'intermédiaire d'un potentiel en A/ℓ^2 , une solution est donc connue pour le problème des marches avec une interaction de type élastique présentant la même dépendance (A/ℓ^2).

Cependant, il existe une différence très importante entre le modèle de Calogero-Sutherland et le système de marches. En effet, les positions des marches sont discrètes, les marches sont localisées sur des sites, tandis que le modèle des fermions est continu. Les fermions peuvent s'approcher aussi près les uns des autres qu'ils le veulent, alors qu'il existe, pour les marches, une distance minimale d'approche.

Cette différence qui ne se fait pas trop sentir dans le cas d'une interaction répulsive ou nulle, introduira un comportement radicalement différent dans le cas d'une interaction attractive.

BIBLIOGRAPHIE

-
- [1] P.-G. de Gennes, J. Chem. Phys. **48** (1968) 2257.
 - [2] N.C. Bartelt, T.L. Einstein et E.D. Williams, Surf. Sci. Lett. **240** (1990) L591.
 - [3] F. Calogero, J. Math. Phys. **10** (1969) 2191 ; **10** (1969) 2197 ; B. Sutherland, J. Math. Phys. **12** (1971) 246 ; **12** (1971) 251 ; Phys. Rev. A **4** (1971) 2019.
 - [4] B. Joós, T.L. Einstein et N.C. Bartelt, Phys. Rev. B **43** (1991) 8153.

- [5] R.P. Feynman, Rev. Mod. Phys. **20** (1948) 367.
- [6] Mécanique Quantique, C . Cohen-Tannoudji, B. Diu et F. Laloë page 308 et 328.
- [7] R. Kariotis, B.S. Swartzentruber et M.G. Lagally, J. Appl. Phys. **67** (1990) 2848.
- [8] M.E. Fisher, J. Chem. Soc. Faraday Trans. 2, **82** (1986) 1569.
- [9] M.E. Fisher et D.S. Fisher, Phys. Rev. **B 25** (1982) 3192.

ANNEXE IV :

Les distributions des largeurs de terrasses dans le modèle des fermions.

Comme il a été montré dans l'annexe III, le comportement quantique d'une assemblée de fermions sur une ligne est équivalent à un modèle décrivant le comportement d'objets linéaires tels que les marches à la surface d'un cristal. A partir de cette équivalence, Joós *et al.* [1] ont déterminé la distribution des largeurs de terrasses d'une surface à marches, connaissant la solution exacte du modèle des fermions interagissant¹ en g/ℓ^2 (ℓ la distance entre fermions) donnée par Sutherland [2,3].

Ce calcul exact de la distribution des largeurs de terrasses est une référence très utilisée dans la littérature. Cependant, le calcul de la solution exacte n'est possible que pour trois valeurs particulières de l'interaction g ($g=0$, une valeur attractive et une valeur répulsive). Il n'est explicité, dans la littérature [1], que dans le cas le plus simple correspondant à l'interaction nulle. Ils nous a donc apparu utile d'explicitier dans cette annexe les calculs associés aux trois valeurs possibles de l'interaction, ce qui nous permettra de préciser l'origine de ces trois valeurs particulières.

La solution exacte du modèle des fermions de Sutherland est tout d'abord rappelée, avant de décrire le calcul de la distribution des largeurs de terrasses.

¹ L'amplitude de l'interaction est notée g dans le cas du modèle des fermions et A pour le modèle de marches, le lien entre ces deux constantes est précisé au chapitre II-C.2.2.

I. Le modèle des fermions

Dans ce modèle, N fermions sont disposés sur un anneau de circonférence $L=N.\ell_0$, avec ℓ_0 la distance moyenne entre fermions. Ces fermions interagissent via un potentiel périodique de la forme [2] :

$$(1) \quad V(r) = g \sum_{n=-\infty}^{\infty} (r + nL)^{-2} = \frac{gp^2}{L^2} \left[\sin\left(\frac{pr}{L}\right) \right]^{-2}.$$

Pour un système suffisamment grand les termes additionnels correspondant à plus d'un tour d'anneau deviennent négligeables. Néanmoins, le traitement mathématique est considérablement simplifié en partant d'équations périodiques.

L'Hamiltonien du système s'écrit :

$$(2) \quad H = - \sum_{i=1}^N \frac{\partial^2}{\partial x_i^2} + \frac{gp^2}{L^2} \sum_{i>j} \left[\sin\left(\frac{p(x_i - x_j)}{L}\right) \right]^{-2} + \frac{p^2}{6} \frac{g}{L^2}.$$

Le troisième terme dans l'expression de H , correspondant à l'interaction d'une marche avec elle-même après plusieurs tours, est manquant dans la solution originale de Sutherland [2] (voir § II-C.2.1). Sutherland a résolu l'équation de Schrödinger associée à cet Hamiltonien. Il a obtenu, pour l'état fondamental, la fonction propre [2] :

$$(3) \quad \Psi = \sqrt{C} \prod_{j>l} \left| e^{iq_j} - e^{iq_l} \right|^l, \quad q_j > q_l$$

$$(4) \quad \Psi^2 = C \prod_{j>l} \left| e^{iq_j} - e^{iq_l} \right|^{2l},$$

où le paramètre λ est relié à l'amplitude g de l'interaction par

$$(5) \quad 2l(l-1) = g \quad \text{ou} \quad l = \frac{1}{2} \left[1 + (1+2g)^{\frac{1}{2}} \right],$$

C est une constante de normalisation et q_j s'écrit en fonction de la position x_j du fermion j

$$(6) \quad q_j = \frac{2p x_j}{L} \quad .$$

L'énergie totale de l'état fondamental s'écrit sous la forme :

$$(7) \quad E = \frac{1}{3} \frac{l^2 p^2 N(N^2 - 1)}{L^2} \quad .$$

Connaissant la fonction d'onde de l'état fondamental nous pouvons déterminer la probabilité que deux fermions soient séparés par $\ell-1$ sites inoccupés, ce qui correspond, en faisant l'équivalence avec le système de marches, à la distribution des largeurs de terrasses $D(\ell)$. Dans cette annexe, le calcul est poursuivi dans le cadre du modèle des fermions. L'équivalence entre les paramètres du modèle de particules quantiques et ceux du modèle de marches est explicitée dans l'annexe III.

II. Distribution des largeurs de terrasses

II-1. Expression de la distribution des largeurs de terrasses

Considérons un système de fermions de densité $Q = \frac{1}{\ell_0}$. Soit $G(\ell, Q)$ la fonction de corrélation de deux fermions plus proches voisins. $G(\ell, Q)$ est égale à la probabilité $Q = \frac{1}{\ell_0}$ d'avoir un fermion à une position quelconque (prise comme origine), multipliée par la probabilité $D(\ell)$ de trouver deux fermions voisins séparés par une distance ℓ .

On a donc [1] :

$$(8) \quad D(\ell) = \frac{G(\ell, Q)}{Q}$$

Plaçons maintenant un réseau sous-jacent de pas unité ($a=1$). $G(\ell, Q)$ est la probabilité d'avoir un fermion au site origine et au site ℓa , séparés par $\ell-1$ trous juxtaposés. En

introduisant les opérateurs a_j^+ et a_j de création et d'annihilation d'un fermion sur un site j , $G(\ell, Q)$ s'écrit :

$$(9) \quad G(\ell, Q) = \langle 0 | a_0^+ a_0 (1 - a_1^+ a_1) \dots (1 - a_{\ell-1}^+ a_{\ell-1}) a_\ell^+ a_\ell | 0 \rangle \quad .$$

où $|0\rangle$ symbolise l'état fondamental.

En développant cette relation on obtient $2^{\ell-1}$ termes de la forme :

$$(10) \quad (-1)^n \langle 0 | a_0^+ a_0 a_m^+ a_m \dots a_p^+ a_p \dots a_q^+ a_q a_\ell^+ a_\ell | 0 \rangle \quad ,$$

avec $0 < m < p < q < \ell$ et n le nombre de couple d'opérateurs $a_j^+ a_j$.

Pour déterminer $D(\ell)$ il suffit de connaître les fonctions de corrélation à n corps :

$$(11) \quad P_n(0, m, \dots, p, \dots, q, \ell) = \langle 0 | a_0^+ a_0 a_m^+ a_m \dots a_p^+ a_p \dots a_q^+ a_q a_\ell^+ a_\ell | 0 \rangle \quad .$$

II-2. Fonction de corrélation à n corps

La distribution de probabilité des configurations des fermions est donnée par la relation (4). Joós *et al.* [1] ont remarqué que cette expression est identique à la distribution de probabilité d'une série complète d'angles $(q_1, q_2, \dots, q_N)$ dans un ensemble circulaire :

$$(12) \quad Q_{Nl}(q_1, \dots, q_N) = C_{Nl} \prod_{j < k} |e^{iq_j} - e^{iq_k}|^{2l} \quad .$$

pour laquelle Dyson [4,5] a obtenu pour $l = \frac{1}{2}, 1$ et 2 (soit $g = -\frac{1}{2}, 0$ et 4) la fonction de corrélation à n corps $P_{nl}(q_1, \dots, q_n)$ dans la limite $N \rightarrow \infty$. En utilisant le résultat de Dyson et

en identifiant $q_j = \frac{2p}{N\ell_0} x_j$, on a :

$$(13) \quad P_{nl}(x_1, x_2, \dots, x_n) = (\ell_0)^{-n} \sqrt{\text{Det} \left[A \left(s_l \left(\frac{x_i - x_j}{\ell_0} \right) \right) \right]_{i,j=1,2,\dots,n}}.$$

Dans cette expression A est une matrice dont les éléments $s_l(r)$ sont des quaternions, qui en représentation matricielle $[2 \times 2]$ s'écrivent :

$$(14) \quad s_{1/2}(r) = \begin{bmatrix} s(r) & Ds(r) \\ Js(r) & s(r) \end{bmatrix},$$

$$(15) \quad s_2(r) = \begin{bmatrix} s(2r) & Ds(2r) \\ Is(2r) & s(2r) \end{bmatrix},$$

pour $l=1$, $s_l(r)$ se réduit à une fonction scalaire

$$(16) \quad s_1(r) = s(r).$$

Les fonctions $s(r)$, $Ds(r)$, $Is(r)$ et $Js(r)$ sont définies par

$$(17) \quad s(r) = \frac{\sin(pr)}{pr},$$

$$(18) \quad Ds(r) = \frac{ds(r)}{dr},$$

$$(19) \quad Is(r) = \int_0^r s(r') dr',$$

$$(20) \quad Js(r) = Is(r) - e(r),$$

où $e(r)$ est la fonction marche

$$e(r) = \frac{1}{2}, \quad (r > 0),$$
$$= 0, \quad (r = 0),$$

$$= -\frac{1}{2} \quad (r < 0).$$

Pour $l=1$, $s_1(r)$ se réduisant à une fonction scalaire, on a simplement :

$$(21) \quad P_{n1}(x_1, x_2, \dots, x_n) = (\ell_0)^{-n} \sqrt{\text{Det} \left(\left[s_1 \left(\frac{x_i - x_j}{\ell_0} \right) \right]_{i,j=1,2,\dots,n} \right)}.$$

Afin de fixer les idées, considérons un système de trois fermions sur quatre sites et la configuration (1,1,0,1). Les 1 représentent les sites occupés par les fermions et les 0 symbolisent les sites occupés par les trous. Cette configuration fait partie du développement de $G(\ell=3, Q)$ (cf. Eq. (9)). La probabilité de cette configuration $P_{3\frac{1}{2}}(0,1,3)$, pour $l=1/2$ est

obtenue en calculant le déterminant suivant :

$$\begin{vmatrix} s_{1/2} \left(\frac{0}{\ell_0} \right) & s_{1/2} \left(\frac{-1}{\ell_0} \right) & s_{1/2} \left(\frac{-3}{\ell_0} \right) \\ s_{1/2} \left(\frac{1}{\ell_0} \right) & s_{1/2} \left(\frac{0}{\ell_0} \right) & s_{1/2} \left(\frac{-2}{\ell_0} \right) \\ s_{1/2} \left(\frac{3}{\ell_0} \right) & s_{1/2} \left(\frac{2}{\ell_0} \right) & s_{1/2} \left(\frac{0}{\ell_0} \right) \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} s \left(\frac{0}{\ell_0} \right) & Ds \left(\frac{0}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{-1}{\ell_0} \right) & Ds \left(\frac{-1}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{-3}{\ell_0} \right) & Ds \left(\frac{-3}{\ell_0} \right) \\ Js \left(\frac{0}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{0}{\ell_0} \right) & Js \left(\frac{-1}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{-1}{\ell_0} \right) & Js \left(\frac{-3}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{-3}{\ell_0} \right) \\ s \left(\frac{1}{\ell_0} \right) & Ds \left(\frac{1}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{0}{\ell_0} \right) & Ds \left(\frac{0}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{-2}{\ell_0} \right) & Ds \left(\frac{-2}{\ell_0} \right) \\ Js \left(\frac{1}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{1}{\ell_0} \right) & Js \left(\frac{0}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{0}{\ell_0} \right) & Js \left(\frac{-2}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{-2}{\ell_0} \right) \\ s \left(\frac{3}{\ell_0} \right) & Ds \left(\frac{3}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{2}{\ell_0} \right) & Ds \left(\frac{2}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{0}{\ell_0} \right) & Ds \left(\frac{0}{\ell_0} \right) \\ Js \left(\frac{3}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{3}{\ell_0} \right) & Js \left(\frac{2}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{2}{\ell_0} \right) & Js \left(\frac{0}{\ell_0} \right) & s \left(\frac{0}{\ell_0} \right) \end{vmatrix}$$

Pour $l=2$, il suffit de remplacer $Js(r)$ par $Is(r)$ et r par $2r$, pour $l=1$, $s_1 \left(\frac{r}{\ell_0} \right)$ est une fonction scalaire.

Il faut bien remarquer que le calcul de la probabilité d'une configuration particulière ne fait intervenir que la distribution de fermions sur les $\ell+1$ premiers sites, quelle que soit la configuration des sites suivants.

II-3. Distributions de largeur de terrasses

L'allure de la distribution doit être indépendante du pas du réseau que l'on considère. Elle ne dépend que de la densité des fermions. Ceci résulte du caractère continu des positions des fermions. Cette propriété se traduit par une loi d'échelle. Pour chaque valeur de l , on peut

définir une distribution continue $f_l\left(\frac{\ell}{\ell_0}\right)$ traduisant cette loi d'échelle, soit [1]

$$(22) \quad D_l(\ell) \cdot \ell_0 = f_l\left(\frac{\ell}{\ell_0}\right) .$$

Sur la Figure 1, la Figure 2 et la Figure 3 sont représentées les distributions $\ell_0 D_l(\ell)$ en fonction de ℓ/ℓ_0 pour $l=1/2$, $l=1$ et $l=2$ (respectivement). Pour $l=1/2$ et $l=2$ les résultats obtenus sont comparés aux calculs originaux de Joós *et al.* tirés de la référence [1] qui ont été réalisés pour $\ell_0=10$. Dans le cas des fermions libres ($l=1$) la courbe en pointillé a été obtenue pour la même densité de fermions mais en utilisant ici la propriété de symétrie particule-trou [1]. Le calcul utilisant cette symétrie, décrit au paragraphe II-4, permet de déterminer plus aisément que par le calcul direct des quaternions la distribution pour des grandes valeurs de ℓ_0 dans le cas des fermions libres.

Comme on l'observe sur ces trois figures, la distribution $\ell_0 D_l(\ell)$ en fonction de ℓ/ℓ_0 suit bien une loi d'échelle : quelles que soient les valeurs de ℓ_0 toutes les courbes sont superposées. L'augmentation de la distance moyenne entre fermions conduit simplement à un accroissement de la densité de points sur la courbe.

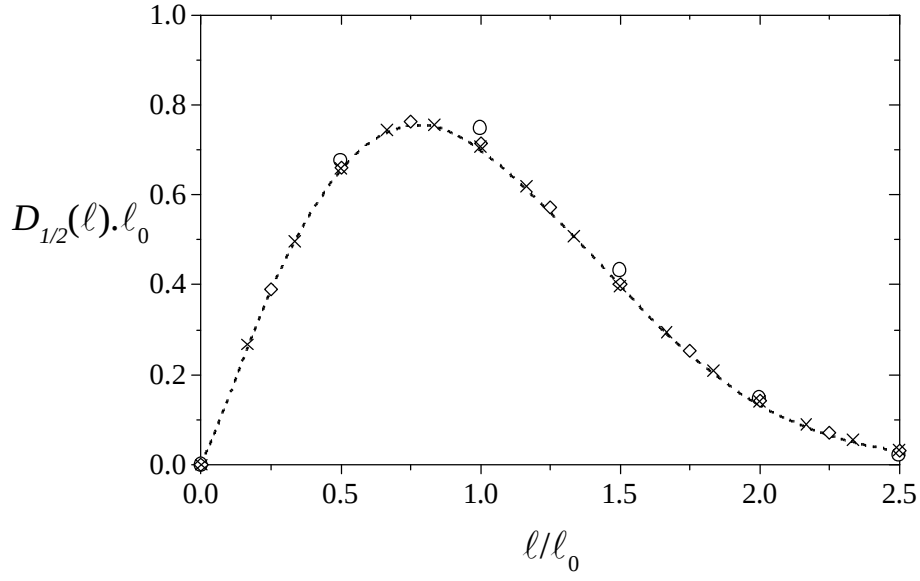


Figure 1 : Distribution des largeurs de terrasses $\ell_0 D_l(\ell)$ en fonction de ℓ/ℓ_0 pour $l=1/2$ ($g=-1/2$). (○) $\ell_0=2$, (□) $\ell_0=4$ et (×) $\ell_0=6$. Les distributions sont obtenues à partir des expressions (9) et (13). (---) $\ell_0=10$ tirée de [1]. Les distributions suivent la loi d'échelle $D_l(\ell) \cdot \ell_0 = f_l\left(\frac{\ell}{\ell_0}\right)$.

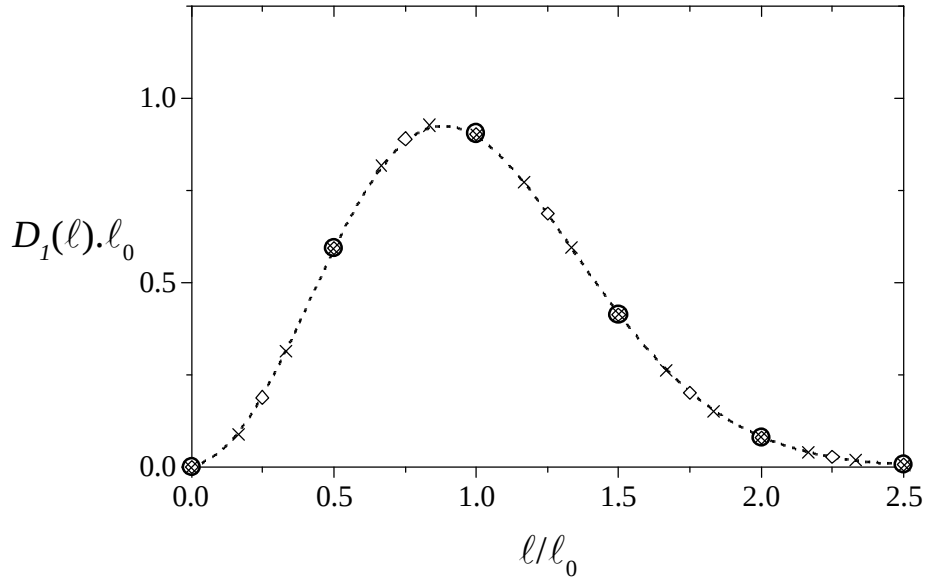


Figure 2 : Distribution des largeurs de terrasses $\ell_0 D_l(\ell)$ en fonction de ℓ/ℓ_0 pour $l=1$ ($g=0$). (○) $\ell_0=2$, (□) $\ell_0=4$ et (×) $\ell_0=6$. Les distributions sont obtenues à partir des expressions (9) et (13).

(---) $\ell_0=10$ calculée en utilisant la symétrie particule-trou. Les distributions suivent la loi d'échelle $D_l(\ell).\ell_0 = f_l\left(\frac{\ell}{\ell_0}\right)$.

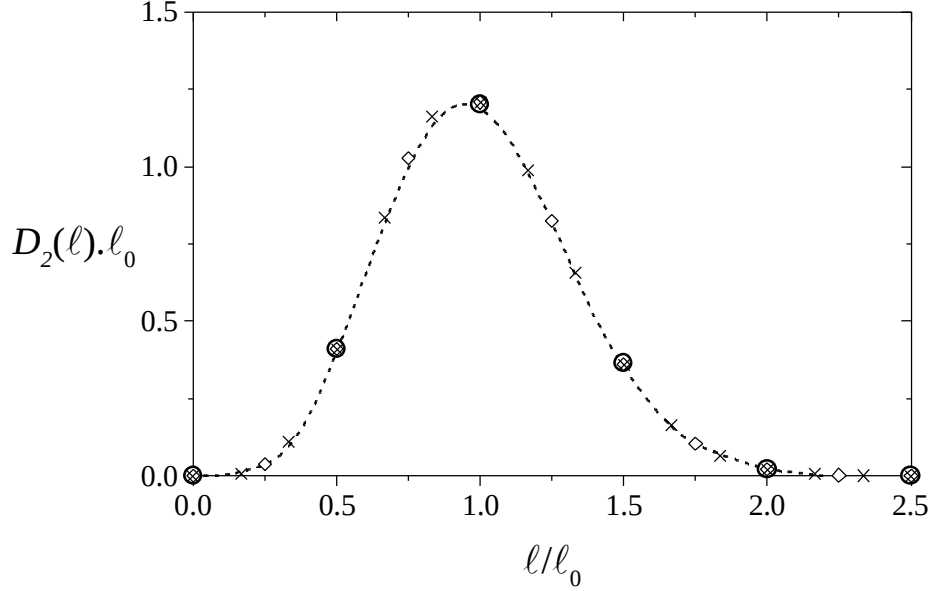


Figure 3 : Distribution des largeurs de terrasses $\ell_0 D_l(\ell)$ en fonction de ℓ/ℓ_0 pour $l=2$ ($g=4$). (?) $\ell_0=2$, (?) $\ell_0=4$ et (×) $\ell_0=6$. Les distributions sont obtenues à partir des expressions (9) et (13). (---) $\ell_0=10$ tirée de [1]. Les distributions suivent la loi d'échelle $D_l(\ell).\ell_0 = f_l\left(\frac{\ell}{\ell_0}\right)$.

II-4. Symétrie particule-trou

Pour chaque calcul de $D_l(\ell)$ il est nécessaire de déterminer $2^{\ell-1}$ termes P_{n_l} . Dans le cas des fermions libres ($l=1$) le calcul se simplifie en utilisant la symétrie particule-trou [1]. La relation (9) devient :

$$(23) \quad G(\ell, Q) = G(\ell, 1-Q) = \langle 0 | (1 - a_0^+ a_0) a_1^+ a_1 \dots a_{\ell-1}^+ a_{\ell-1} (1 - a_\ell^+ a_\ell) | 0 \rangle ,$$

en développant, on fait apparaître des termes de la forme :

$$(24) \quad G_p(\ell, 1-Q) = \langle 0 | a_0^+ a_0 a_1^+ a_1 \dots a_{\ell-1}^+ a_{\ell-1} a_\ell^+ a_\ell | 0 \rangle = P_{\ell+1}(0, 1, \dots, \ell) ,$$

correspondant à la probabilité d'avoir $\ell+1$ particules occupant $\ell+1$ sites consécutifs.

On obtient :

$$(25) \quad G(\ell, 1-Q) = G_p(\ell, 1-Q) - 2G_p(\ell-1, 1-Q) + G_p(\ell-2, 1-Q) .$$

où les termes $G_p(\ell, 1-Q)$ sont calculés à l'aide de l'expression (21). Ainsi trois déterminants seulement sont nécessaires au calcul de la distribution dans le cas des fermions libres. L'avantage de cette méthode est qu'elle permet de calculer simplement les distributions pour des grandes valeurs de ℓ_0 . Le résultat pour $\ell_0 = 10$ reporté Figure 2 a été obtenu par cette méthode.

A titre de vérification la distribution $D_{l=1}(\ell)$ pour $\ell_0 = 6$ a été calculée par la méthode des quaternions de Dyson et par la méthode décrite ci-dessus. La Figure 4 montre que l'on obtient bien le même résultat.

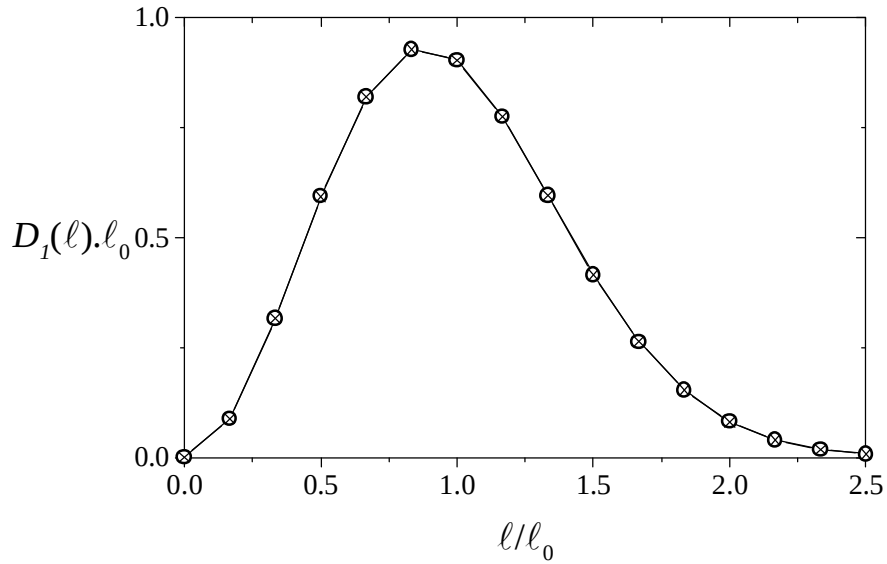


Figure 4 : Distribution des largeurs de terrasses $\ell_0 D_{l=1}(\ell)$ pour $\ell_0=6$ en fonction de ℓ/ℓ_0 dans le cas $l=1$ ($g=0$ fermions libres). Les cercles correspondent au calcul direct des quaternions de Dyson et les croix sont associées au calcul utilisant la symétrie particule-trou.

III. Conclusion

Nous avons vu dans cette annexe comment déterminer les distributions des largeurs de terrasses dans le cadre du modèle des fermions. Le calcul est possible pour trois valeurs particulières de l'interaction $l = \frac{1}{2}, 1$ et 2 (soit $g = -\frac{1}{2}, 0$ et 4). Les distributions suivent une loi d'échelle $f_l\left(\frac{\ell}{\ell_0}\right)$.

La mise en œuvre de ce calcul n'est pas simple du fait du grand nombre de configurations nécessaires pour les grandes valeurs de ℓ_0 . Dans le cas des fermions libres la symétrie particule-trou simplifie considérablement le calcul.

Des expressions analytiques approchées de ces distributions ont été proposées par T.L. Einstein et O. Pierre-Louis [6].

BIBLIOGRAPHIE

-
- [1] B. Joós, T.L. Einstein et N.C. Bartelt, Phys. Rev. **B 43** (1991) 8153.
 - [2] B. Sutherland, Phys. Rev. **A 4** (1971) 2019.
 - [3] B. Sutherland, J. Math. Phys. **12** (1971) 246.
 - [4] F.J. Dyson, Commun. Math. Phys. **19** (1970) 235.
 - [5] F.J. Dyson, J. Math. Phys. **3** (1962) 140.

[6]T.L. Einstein et O. Pierre-Louis, Surf. Sci. **424** (1999) L299.