

Conclusion générale

Ce travail de thèse est constitué de deux parties. Dans la première partie, nous nous sommes intéressés à la transition rugueuse des faces vicinales. Le phénomène de transition rugueuse est essentiel dans la description des morphologies de surface et de la forme d'équilibre des cristaux. Nous avons vu qu'une face vicinale peut être caractérisée par la donnée des deux grandeurs énergétiques E_k (énergie de cran) et A (constante d'interaction entre marches). Une abondante littérature théorique, que nous avons présentée, existe pour déduire ces paramètres de l'expérience. Ces méthodes ont été utilisées et étendues de façon à permettre l'interprétation de nos résultats expérimentaux sur une face non rugueuse.

Nous avons introduit 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 faces vicinales. Cette méthode, très puissante et généralisable à toute forme de potentiel, nous a permis de déterminer le diagramme de phases complet des faces vicinales, dans le cas important d'une interaction répulsive ou attractive en A/ℓ^2 .

Ces méthodes ont ensuite été appliquées à la détermination, à partir des résultats expérimentaux, de la constante d'interaction A (100 ± 5 K) et de l'énergie de cran E_k (1430 ± 20 K) pour Cu(1,1,5). Les valeurs obtenues comparées à celles déterminées par L. Masson dans le cas de Cu(1,1,11) ($A=70$ K et $E_k=1430$ K[1]) montrent une énergie de cran identique et une dépendance de l'interaction en A/ℓ^2 . Cette dépendance est ici vérifiée par une analyse des résultats expérimentaux séparant bien l'interaction entropique de l'interaction élastique. Notons, enfin, que ces mêmes modèles ont conduit Hoogeman *et al.* [2,3] à une interprétation, similaire à la nôtre, de leurs résultats récents sur Ag(1,1,5).

L'observation dans toute la gamme de température explorée d'une dépendance de la fonction de corrélation temporelle en $t^{0.125}$ pour Cu(1,1,5) contraste avec la dépendance en $t^{1/4}$ observée sur Cu(1,1,11) à la température ambiante. Cette observation, faite sur une surface où la distance entre marches est faible et sous la température de transition rugueuse, devrait pouvoir être interprétée en développant un calcul Monte Carlo où la conservation de la matière serait prise en compte.

Le comportement en température des faces vicinales d'alliages, dont l'étude est présentée dans la deuxième partie de cette thèse, est plus complexe que celui des faces vicinales de métaux purs. Leur structure dépend, en effet, de l'ordre chimique. Dans la phase ordonnée, nous avons retrouvé sur les faces Cu₃Au(1,1,13) et Cu₃Au(1,1,12) la même structure en marches appariées que celle observée précédemment sur Cu₈₃Pd₁₇(1,1,11) [4,5]. Ce résultat généralise l'idée de l'influence de l'ordre chimique sur la morphologie de surface.

Nous avons montré que, dans la phase ordonnée, la face Cu₈₃Pd₁₇(1,1,5) présente une structure en marches simples, contrastant avec la structure en marches appariées de Cu₈₃Pd₁₇(1,1,11) [4,5]. Ainsi, si la formation de marches doubles en liaison avec la présence d'ordre chimique est généralement observée pour les grandes distances entre marches, ceci n'est plus vérifié pour les courtes distances.

La distribution des marches sur Cu₃Au est très différente de celle de Cu₈₃Pd₁₇ aussi bien dans la phase ordonnée que dans la phase désordonnée. Sous T_C , cette distribution est pratiquement aléatoire. Pour $T > T_C$, la surface est instable et facette. La morphologie de la surface, de part et d'autre de la transition d'ordre chimique, dépend donc de la nature de l'alliage.

L'ensemble de ces résultats, où nous avons fait varier l'angle de coupe ou la nature de l'alliage, apporte des informations complémentaires sur la structure des faces vicinales d'alliages. La mise en évidence de l'influence de l'ordre chimique, de la distance entre marches et de la nature de l'alliage apporte des informations indispensables pour tester et valider des modèles qui permettront de décrire et comprendre les structures, encore largement inexplicées, de ces surfaces.

Finalement, on peut noter la disproportion, en physique des surfaces, entre les modèles structuraux, difficiles à mettre en œuvre, et le traitement des modèles thermodynamiques qui atteignent un degré de compréhension élevé et qui peuvent être traités à l'aide d'outils puissants. Ainsi, les calculs de structures pour les faces vicinales de métaux purs n'ont conduit que récemment à des résultats compatibles avec l'expérience [6,7]. L'élaboration d'un modèle permettant de rendre compte, de façon fiable, de la structure des surfaces d'alliages reste aujourd'hui un challenge pour le théoricien.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] L. Masson, Thèse de l'Université Paris XI (1994); L. Barbier, L. Masson, J. Cousty et B. Salanon, *Surf. Sci.* **345** (1996) 197.
- [2] M.S. Hoogeman, D.C. Schlößer, J.B. Sanders, L. Kuipers et J.W.M. Frenken, *Phys. Rev.* **B 53** (1996) 13299.
- [3] M.S. Hoogeman, M.A.J. Klik, D.C. Schlößer, L. Kuipers et J.W.M. Frenken, *Phys. Rev. Lett.* **82** (1999) 1728.
- [4] S. Goapper, Thèse de l'Université de Marne la Vallée (1998).
- [5] L. Barbier, S. Goapper, B. Salanon, R. Caudron, A. Loiseau, J. Alvarez, S. Ferrer et X. Torrelles, *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997) 3003.
- [6] P. Hecquet et B. Salanon, *Surf. Sci.* **366** (1996) 415.
- [7] S. Papadia, M.C. Desjonquères et D. Spanjaard, *Phys. Rev.* **B 53** (1996) 4083.

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

Résumé :

Pour les applications technologiques impliquant des propriétés de surface, il est nécessaire de comprendre et de maîtriser les phénomènes de rugosité et d'instabilité de surface des cristaux de métaux purs et d'alliages. Dans ce but, trois surfaces ont été étudiées expérimentalement : Cu(1,1,5), Cu₈₃Pd₁₇(1,1,5) et Cu₃Au(1,1,11). La face Cu(1,1,5) a été étudiée par STM (Scanning Tunneling Microscopy) à température variable entre 300 K et 365 K. Nous avons observé, dans toute la gamme de température explorée, que cette surface est stable et non rugueuse. La comparaison des résultats expérimentaux avec des simulations Monte Carlo a permis de déterminer la constante d'interaction entre marches $A=100$ K (interaction élastique entre marches en A/ℓ^2) et l'énergie de formation de crans en bord de marches $E_k=1430$ K. La détermination de la température de transition rugueuse du Cu(1,1,5) nous a conduit à étendre ce résultat en calculant le diagramme de phases des faces vicinales dans l'espace des paramètres (A , E_k et angle de coupe). Ce diagramme de phases complet ($A>0$, $A<0$) d'un système de marches en interaction a été obtenu par la méthode du cylindre (méthode de la matrice de transfert avec conditions aux limites périodiques). Concernant les alliages, la face Cu₈₃Pd₁₇(1,1,5) a été étudiée par STM à température ambiante. Cette face présente une structure formée de marches simples qui contraste avec la structure en marches appariées de la face Cu₈₃Pd₁₇(1,1,11), en accord avec les prédictions théoriques. Enfin, la face vicinale de Cu₃Au(1,1,11) a été étudiée par STM à température variable (entre 300 K et 700 K) et par diffraction d'hélium. On observe, sur cette surface, que les marches s'apparient sous la température critique T_C (=663 K), tandis qu'au-dessus de T_C la surface présente une structure marches simples qui facettent. Ces résultats illustrent les multiples manifestations de l'influence de l'ordre chimique sur la morphologie de surface.

***The morphology of vicinal surfaces of pure metals and alloys : stability and roughness.
Experimental studies and models.***

Abstract:

For technological applications in relation to the use of surface properties, the understanding and control of roughness and instabilities phenomena for pure metal and alloy crystal surfaces is a prerequisite. For that purpose, three surfaces have been experimentally investigated: Cu(1,1,5), Cu₈₃Pd₁₇(1,1,5) and Cu₃Au(1,1,11). The Cu(1,1,5) surface has been studied by variable temperature STM (Scanning Tunneling Microscopy) (300 K-365 K). For all the explored temperature range, the surface is stable and not rough. Comparison of experimental results with Monte Carlo simulations allowed us to determine the strength of the step-step A/ℓ^2 elastic repulsion $A=100$ K and the formation energy of kinks at step edges $E_k=1430$ K. The determination of the roughening temperature for Cu(1,1,5) lead us to extend this result by calculating the phase diagram of vicinal surfaces in the parameter space (A , E_k and miscut). We have determine the complete ($A>0$, $A<0$) phase diagram of a system of interacting steps by the cylinder method (transfer matrix method with periodic limit conditions). As for alloys, the Cu₈₃Pd₁₇(1,1,5) surface has been studied by STM (300 K). This face exhibits a single step structure in contrast with the paired-step structure of the Cu₈₃Pd₁₇(1,1,11) surface and in agreement with a theoretical prediction. The Cu₃Au(1,1,11) vicinal surface has been studied by variable temperature STM (300 K - 700 K) and by helium diffraction. We find that steps are paired below the critical temperature for chemical disordering T_C (=663 K) while above T_C , the surface shows a faceted single-step structure. These findings illustrate the varied manifestation of the influence of chemical order on surface morphology.