

# PRINCIPE ET ANALYSE DE LA DIFFRACTION D'ÉLECTRONS LENTS (LEED) ET RAPIDES (RHEED)

*STÉPHANE ANDRIEU*

*INSTITUT JEAN LAMOUR*

*UNIVERSITÉ DE LORRAINE – CNRS*

*NANCY*

# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts
- V. Les oscillations de RHEED
- VI. Informations sur la distance dans le plan
- VII. Densité de nucléation
- VIII. Conclusions

# PLAN

## I. Principe: exemple d'un monocristal

*principe*

*réseau réciproque*

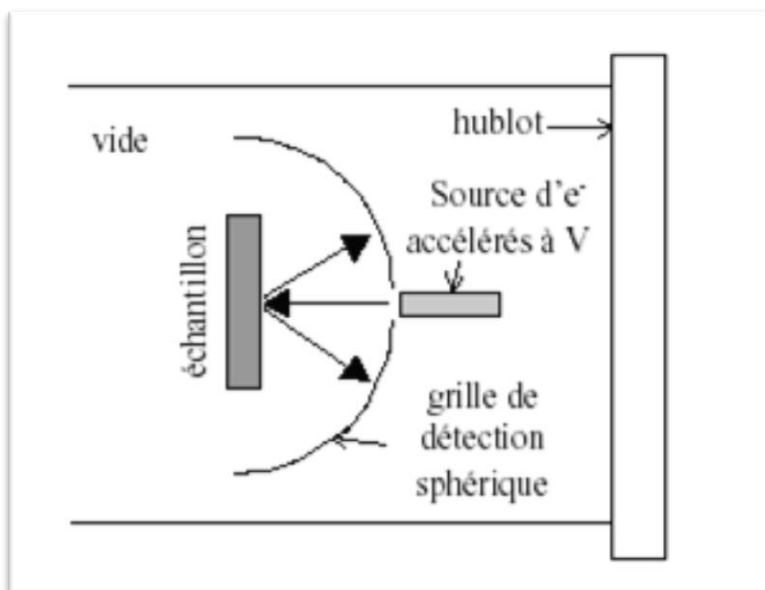
*géométrie en LEED*

*géométrie en RHEED*

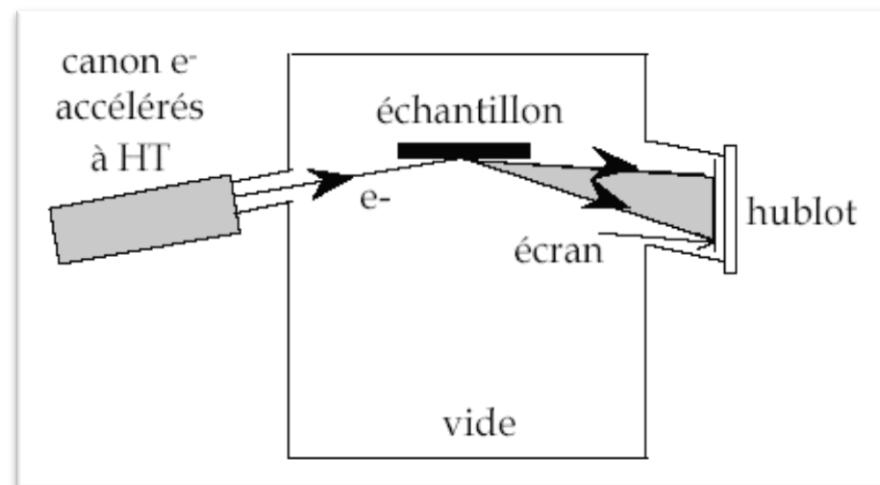
## I - Principe: exemple d'un monocristal

un faisceau d'électrons monocinétique est envoyé sur le substrat et on collecte après l'échantillon l'intensité diffractée par la surface sur un écran fluorescent

LEED (Low Energy Electron Diffraction)



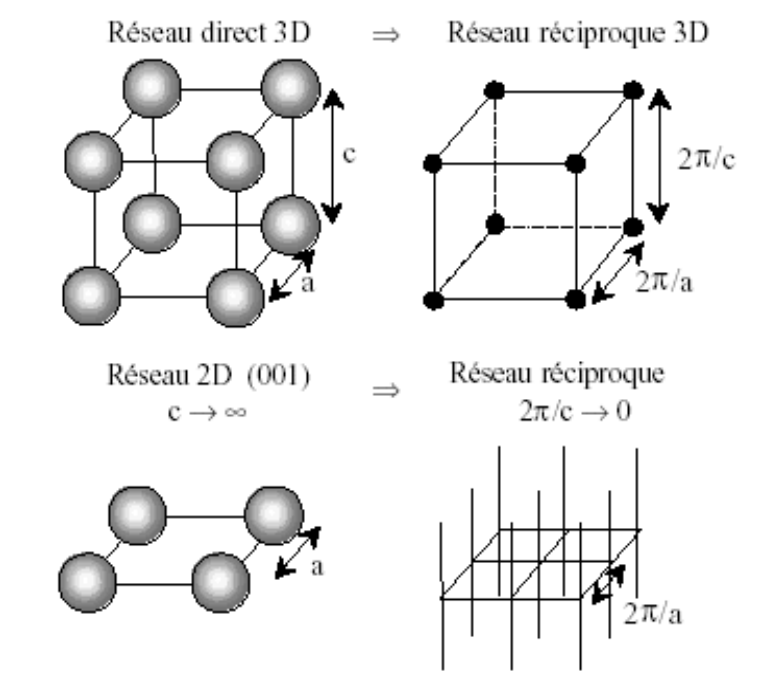
RHEED (Reflexion High Energy Electron Diffraction)



## I - Principe: exemple d'un monocristal

L'image de diffraction résulte de l'intersection du réseau réciproque avec la sphère d'Ewald

réseau réciproque lorsqu'on sonde la surface ???



Pour un seul plan sondé : droites dans la direction  $[hkl]$  passant par les nœuds du réseau réciproque 2D du plan  $(hkl)$  examiné

Réseau réciproque 2D:

$$\vec{a} \cdot \vec{a}^* = \vec{b} \cdot \vec{b}^* = 2\pi$$

$$\vec{a} \cdot \vec{b}^* = \vec{b} \cdot \vec{a}^* = 0$$

Correspond à la disparition de la condition de diffraction selon la normale à la surface

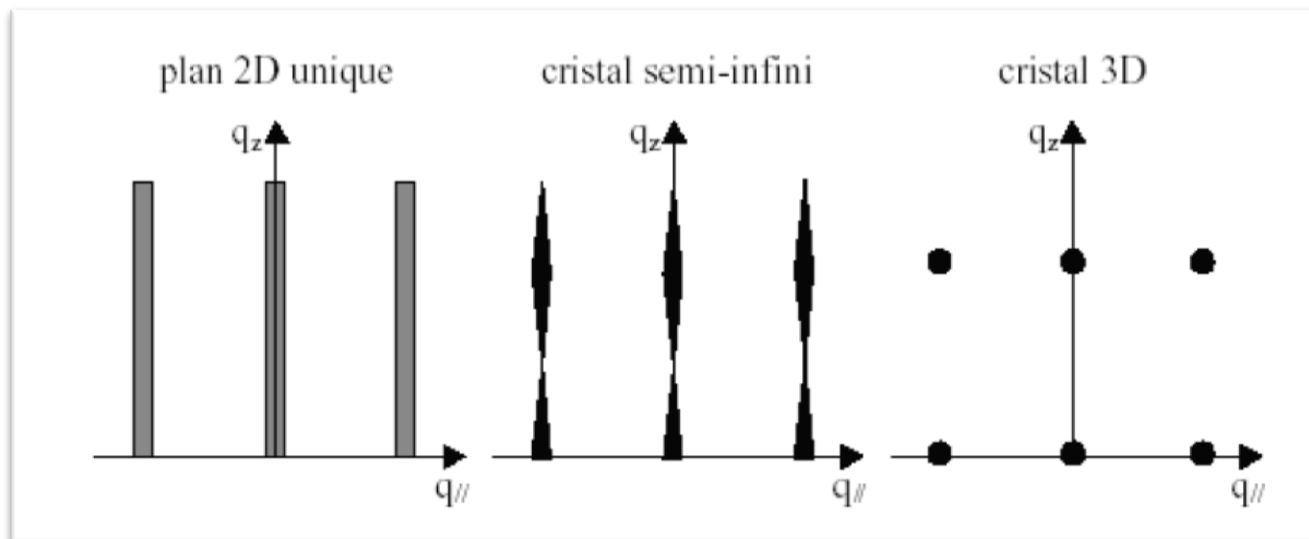
## I - Principe: exemple d'un monocristal

L'image de diffraction résulte de l'intersection du réseau réciproque avec la sphère d'Ewald

réseau réciproque lorsqu'on sonde la surface ???

Dans le cas où le rayonnement incident sonde plusieurs plans atomiques, la situation devient intermédiaire entre le cas idéal 2D et le cas 3D

**Tiges de troncature, modulées en intensité**



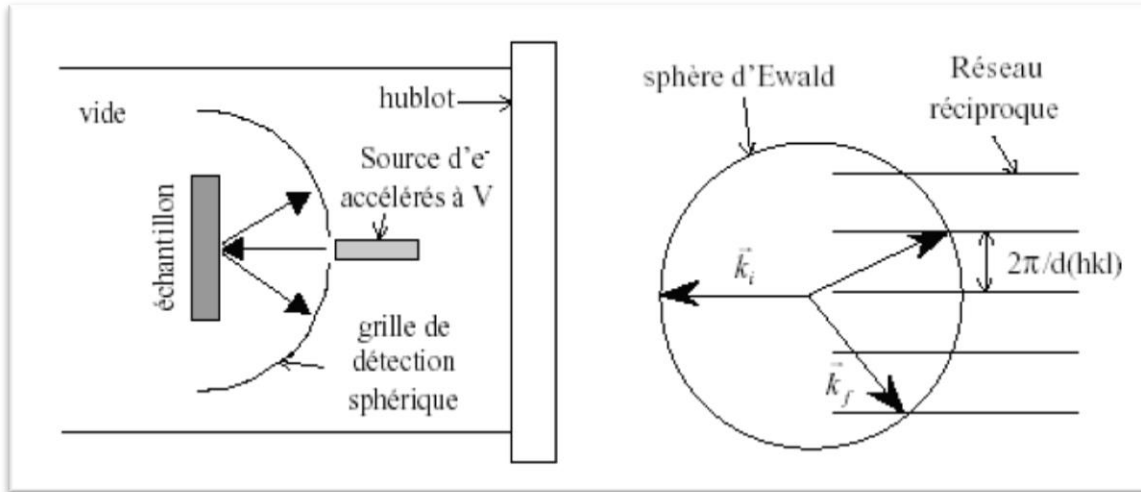
Pour un développement mathématique, voir par exemple S. Andrieu, P. Muller, les surfaces solides, EdP sciences / CNRS édition savoirs actuels 2005



# I - Principe: exemple d'un monocristal

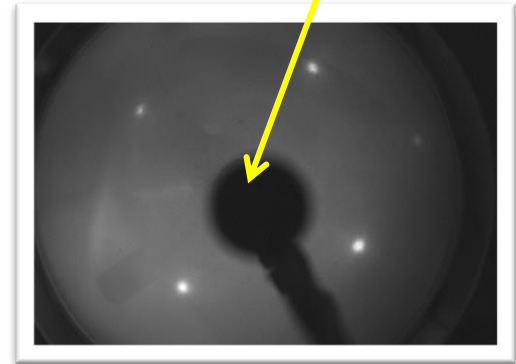
## Géométrie et images obtenues : LEED

Energie des électrons : de 20 à 200eV :  $\lambda=0,2\text{nm}$

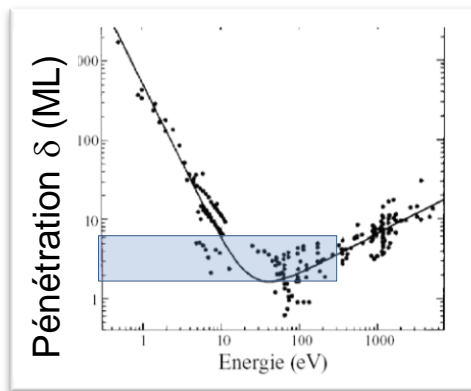
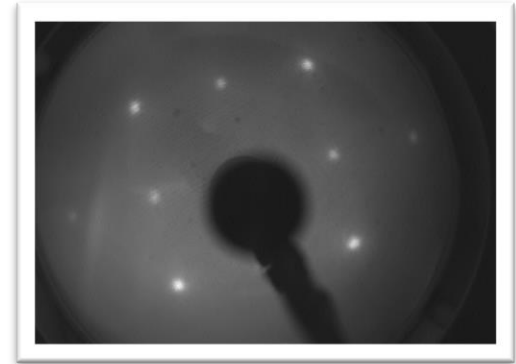


Ombre du canon e- on ne voit pas raie (00)

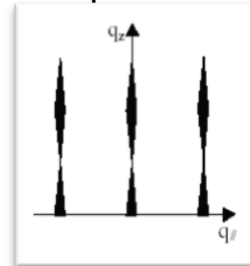
Fer (001) BCC (101eV)



Idem + 2 plans de MgO



95% des e<sup>-</sup> qui ressortent proviennent de 3  $\delta$  : LEED sonde plusieurs plans



grand avantage du LEED: on voit directement le réseau réciproque

# I - Principe: exemple d'un monocristal

## Géométrie et images obtenues : LEED

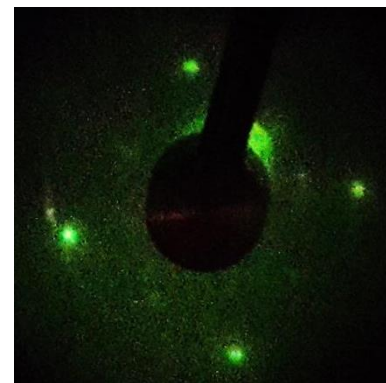
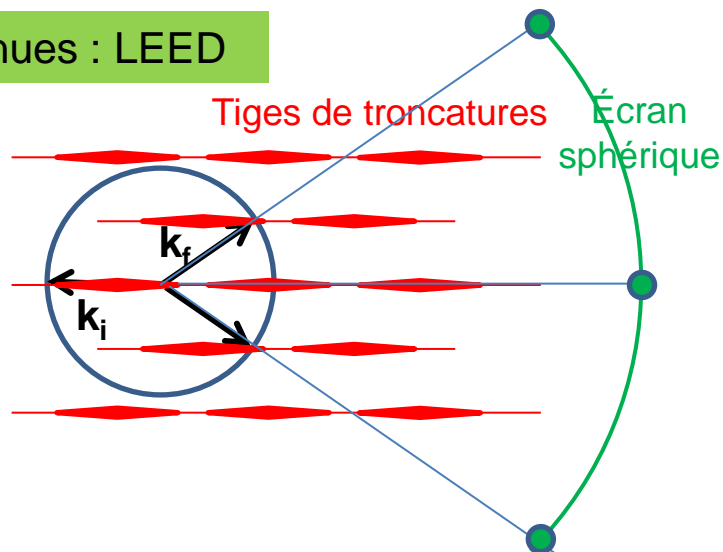
Energie faible

⇒  $k$  faible

⇒ Rayon sphère d'Ewald faible

⇒ Angle diffraction grand

⇒ réseau grand



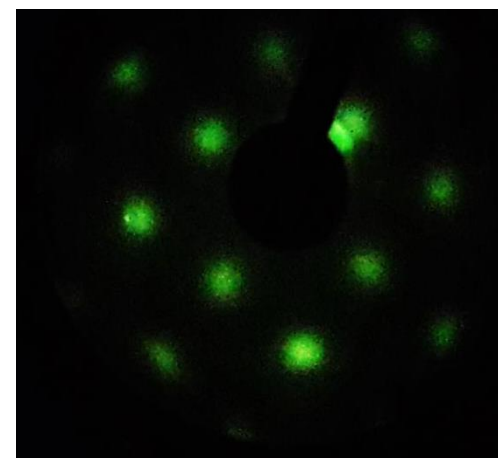
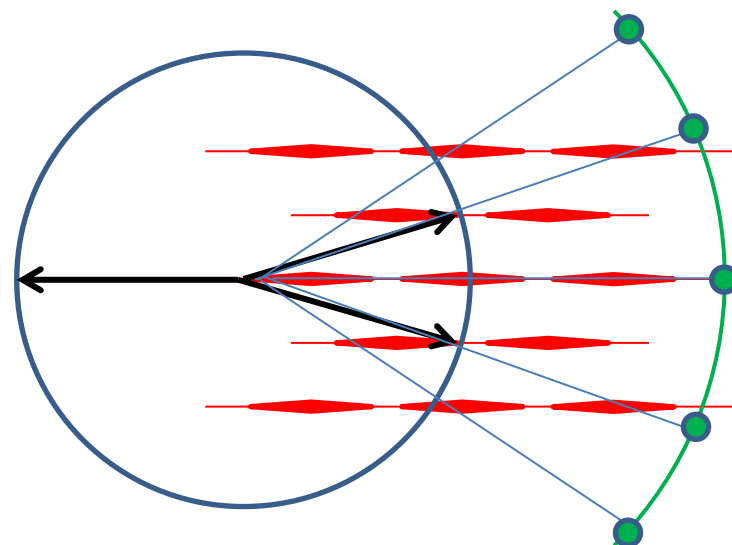
Energie grande

⇒  $k$  grand

⇒ Rayon sphère d'Ewald grande

⇒ Angle diffraction petit

⇒ réseau petit



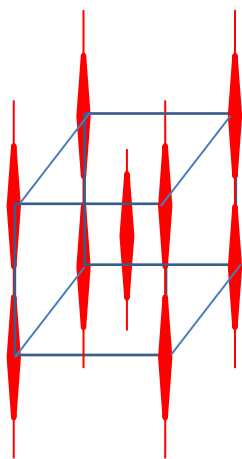
On voit plus de taches



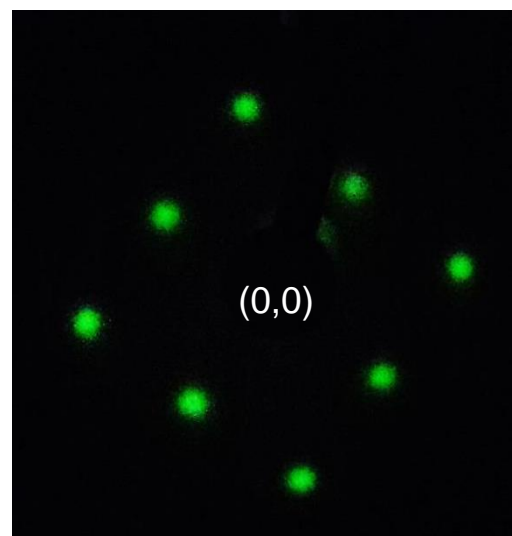
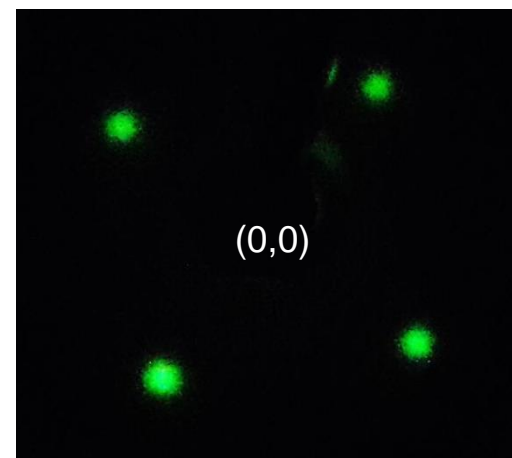
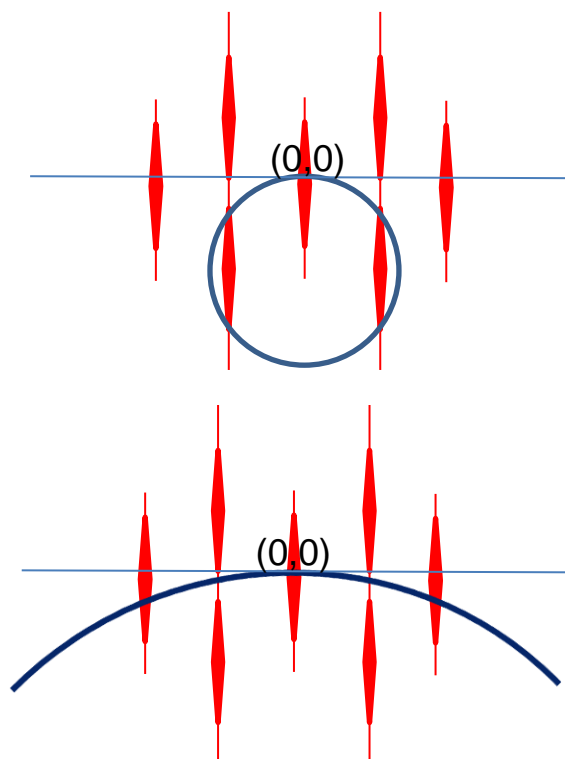
## I - Principe: exemple d'un monocristal

### Géométrie et images obtenues : LEED

Quand on augmente l'énergie des e- incident, on voit défiler les plans du réseau réciproque



Vue de face



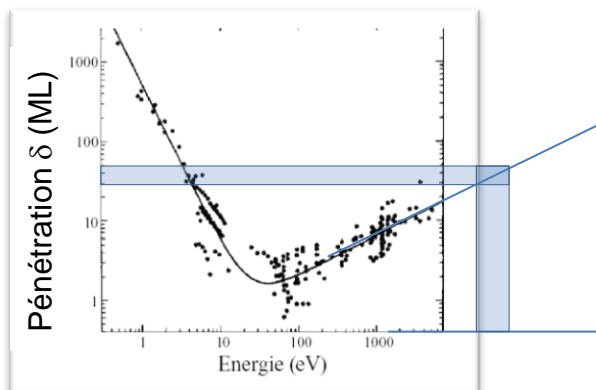
On obtient de l'information sur le réseau réciproque 3D même si la surface est lisse (en RHEED non)



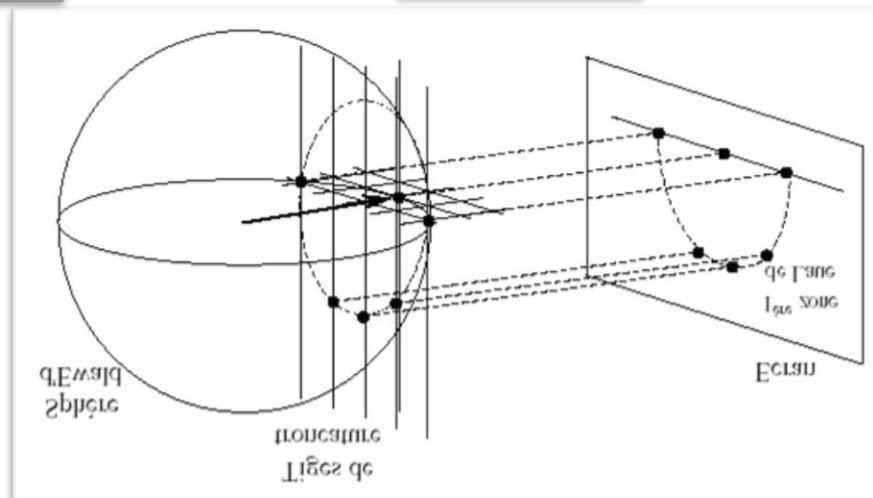
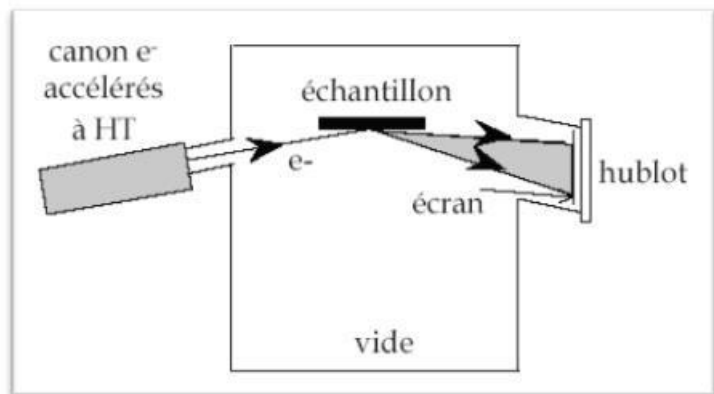
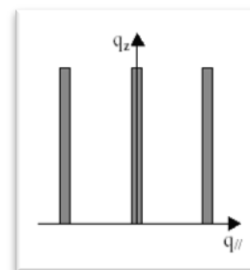
# I - Principe: exemple d'un monocristal

## Géométrie et images obtenues : RHEED

Energie des électrons : de 10 à 40 KeV :  $\lambda \approx 0,01\text{nm}$



$3\delta$  très grand !  $\Rightarrow$  incidence rasante.  
1°: on ne voit que le dernier plan !



dans le cas idéal, cliché de points !  
Réseau réciproque pas accessible directement ! Mais....

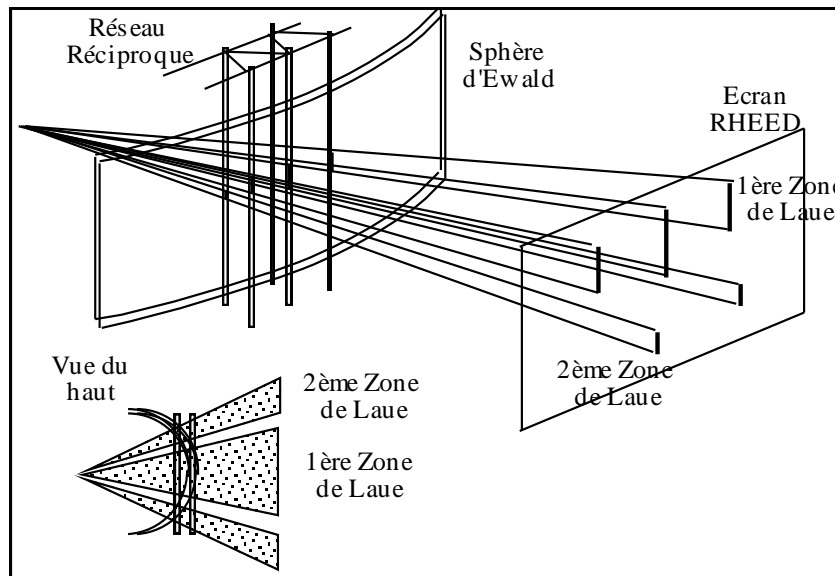
## I - Principe: exemple d'un monocristal

### Géométrie et images obtenues : RHEED

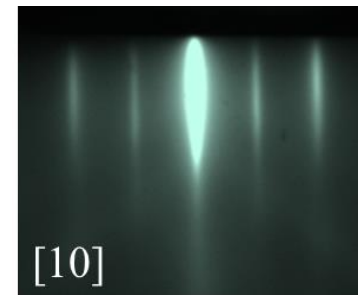
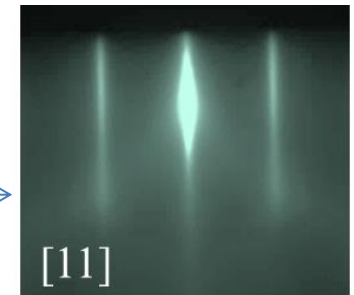
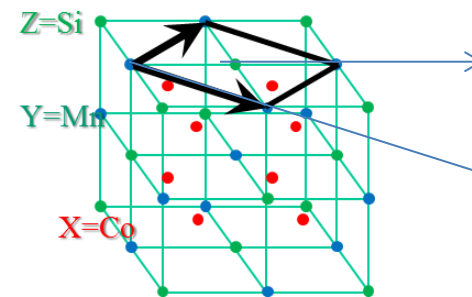
Des contraintes physiques vont simplifier l'analyse :

- la **sphère d'Ewald a une épaisseur finie** (relation d'incertitude)
- les **tiges ont une épaisseur finie** (taille finie des objets diffractants)
- $\lambda$  très petite, **rayon de la sphère d'Ewald très grand  $\approx$  plan**

**=> On « voit » les tiges de troncature**



Exemple :  $\text{Co}_2\text{MnSi}$



**En RHEED on « voit » les tiges.  
Il faut reconstruire le réseau réciproque**

# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED**
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts
- V. Les oscillations de RHEED
- VI. Informations sur la distance dans le plan
- VII. Densité de nucléation
- VIII. Conclusions

## II - Caractéristiques propres en LEED et RHEED

Longueur d'onde

classique correction relativiste  
2% à 40 KeV

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2meV}} \cdot \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{eV}{2m_0c^2}}}$$

LEED:  $V=100\text{eV}$ ,  $\lambda=0.2\text{nm}$   
RHEED:  $V=30\text{ KeV}$ ,  $\lambda=0.007\text{nm}$

cohérence du faisceau

Dispersion en  $\lambda$  (HT V)

$$L_\lambda = \frac{\lambda^2}{4\pi\Delta\lambda} = \frac{\lambda}{2\pi} \frac{V}{\Delta V}$$

Divergence angulaire du faisceau

$$L_\theta = \frac{1}{2\Delta k} = \frac{\lambda}{4\pi\theta}$$

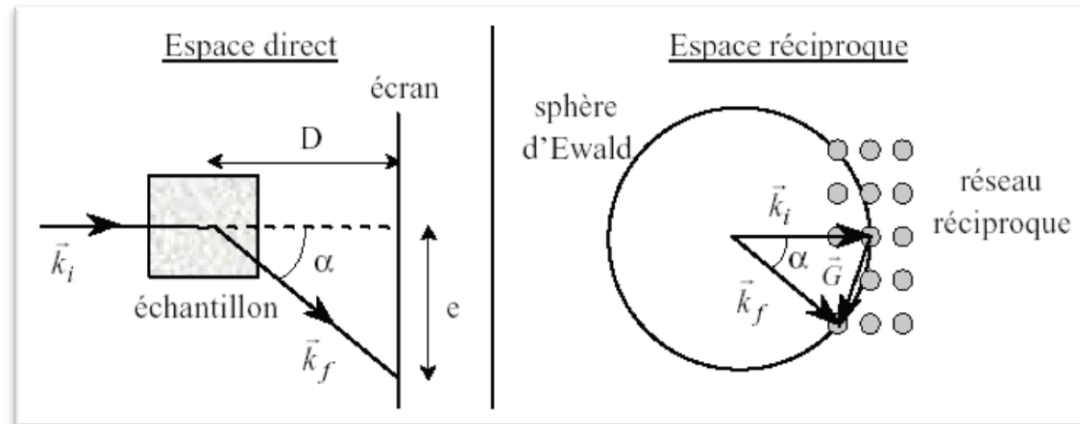
technique	$\lambda$ (nm)	$V/\Delta V$	$\theta$ (°)	$L_\lambda$ (nm)	$L_\theta$ (nm)
LEED	0,2	5000	0,02	160	50
RHEED	0,01	10000	0,01	16	5

Cohérence plus grande en LEED qu'en RHEED (tout au moins latéralement). On récupère une cohérence grande en RHEED en travaillant en incidence rasante (le long du faisceau)

## II - Caractéristiques propres en LEED et RHEED

Ecarts  $e$  entre points de diffraction sur l'écran

Contrainte: l'écran fait 10cm de diamètre  $e$  fixé à qq cm



En LEED :  $\lambda \approx d$

En RHEED :  $\lambda \ll d$

$$1 + \left( \frac{D}{e(hkl)} \right)^2 = \frac{1}{\left( \frac{\lambda}{d(hkl)} \right)^2 \left( 1 - \left( \frac{\lambda}{2d(hkl)} \right)^2 \right)}$$

$$\frac{e(hkl)}{D} \cong \frac{\lambda}{d(hkl)}$$

techniques	$\lambda$ (nm)	D
LEED	0,2	De l'ordre de $e$
RHEED	0,01	jusqu'à 20xe !

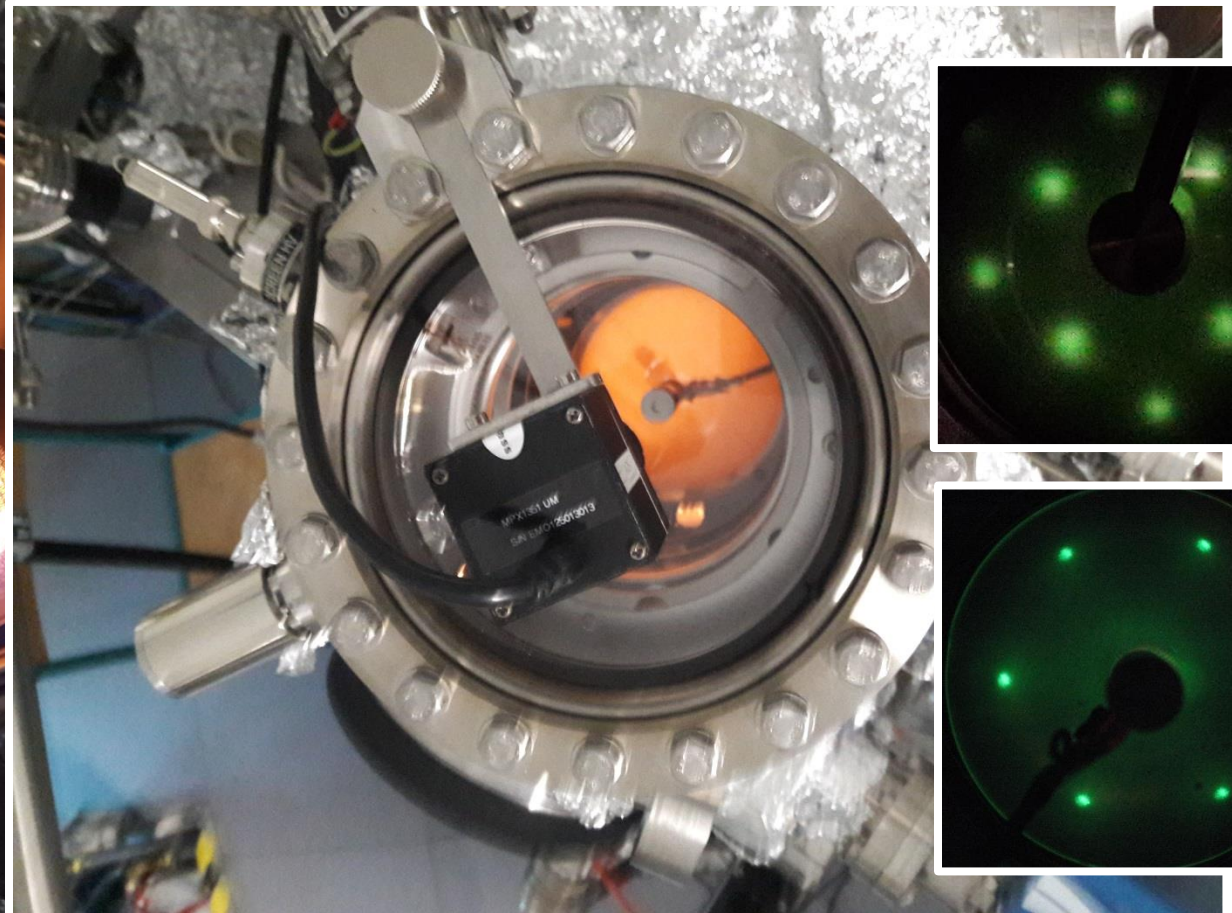
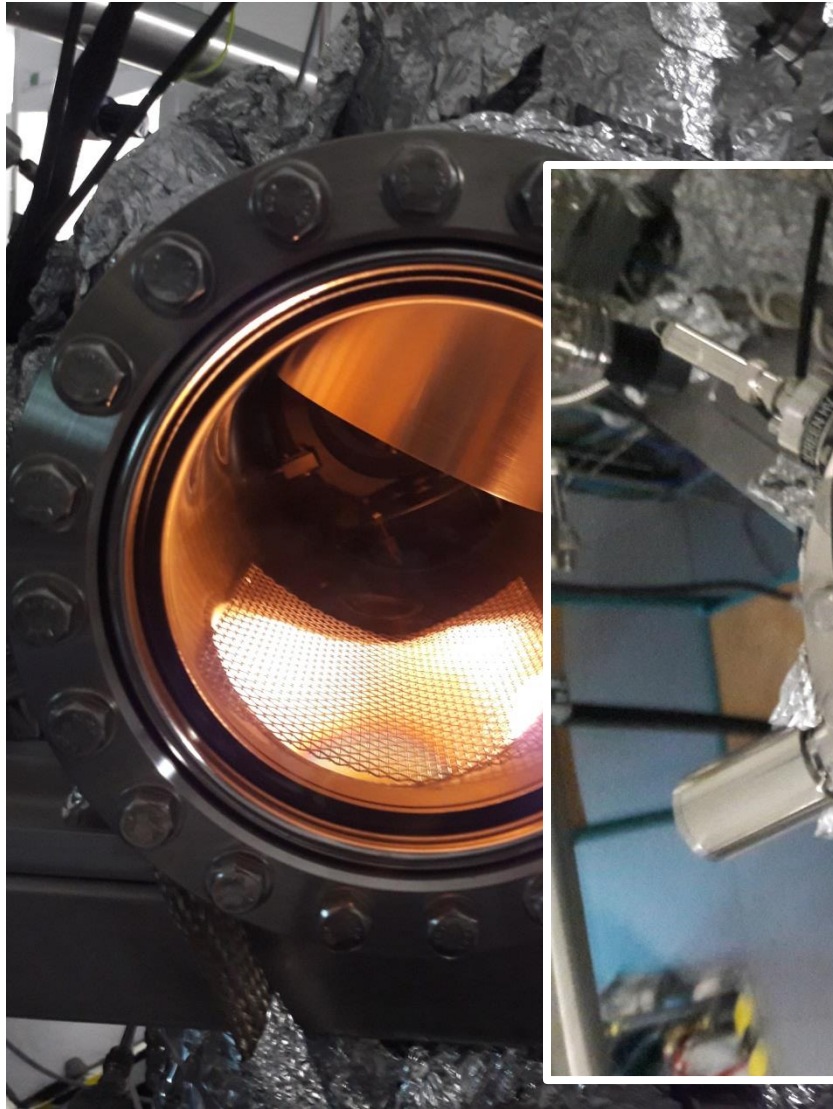
Conséquences très importantes :

LEED : échantillon près de l'écran : pas d'analyse en cours de dépôt  
 RHEED : éloigner l'écran pour avoir une image pas trop petite : analyse en cours de dépôt possible !



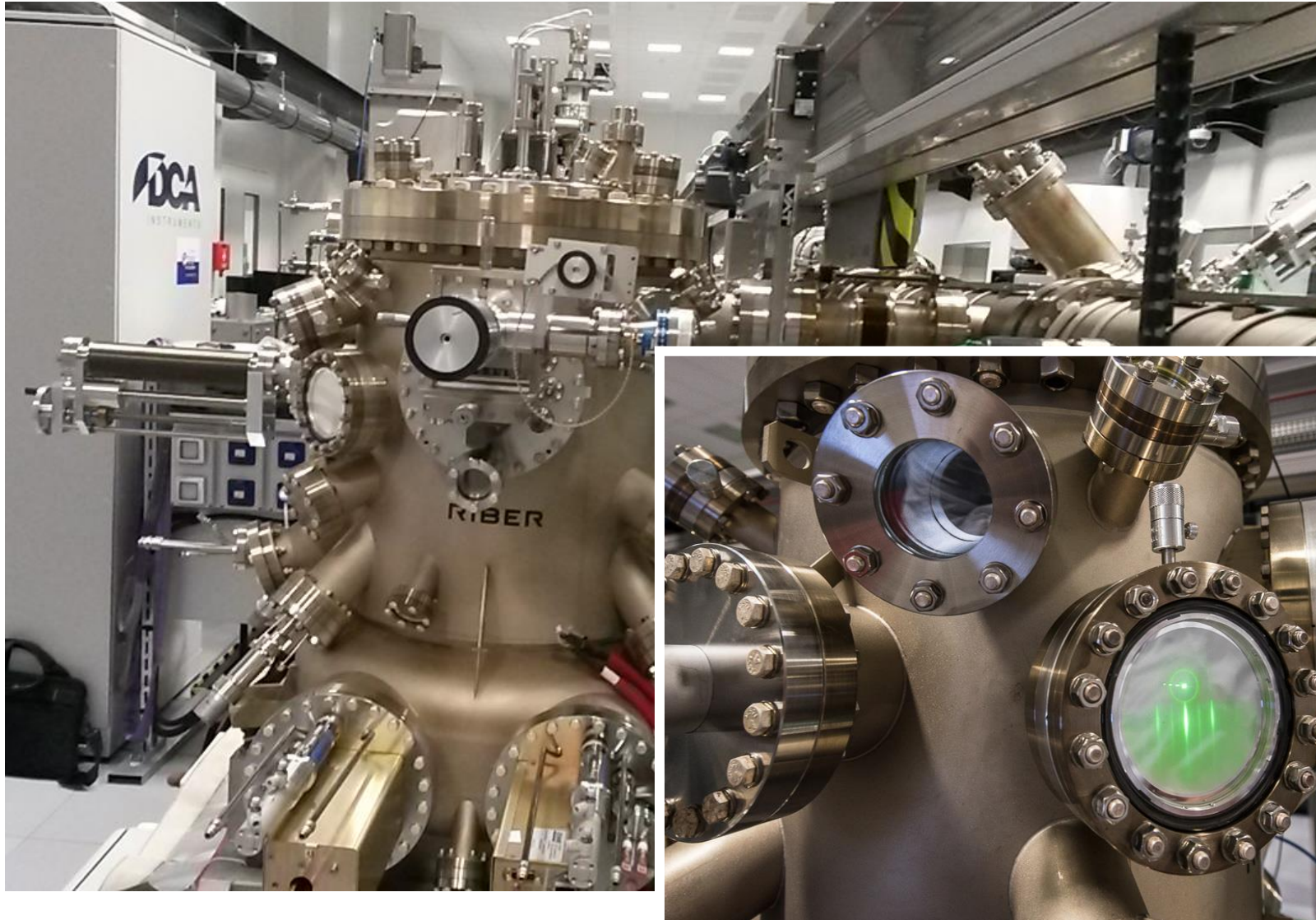
## I - Principe: exemple d'un monocristal

Géométrie et images obtenues : LEED





## I - Principe: exemple d'un monocristal





# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED**
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts
- V. Les oscillations de RHEED
- VI. Informations sur la distance dans le plan
- VII. Densité de nucléation
- VIII. Conclusions

# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED

*Détermination des diagrammes RHEED à partir du réseau direct*

*Détermination du réseau direct à partir des diagrammes RHEED*

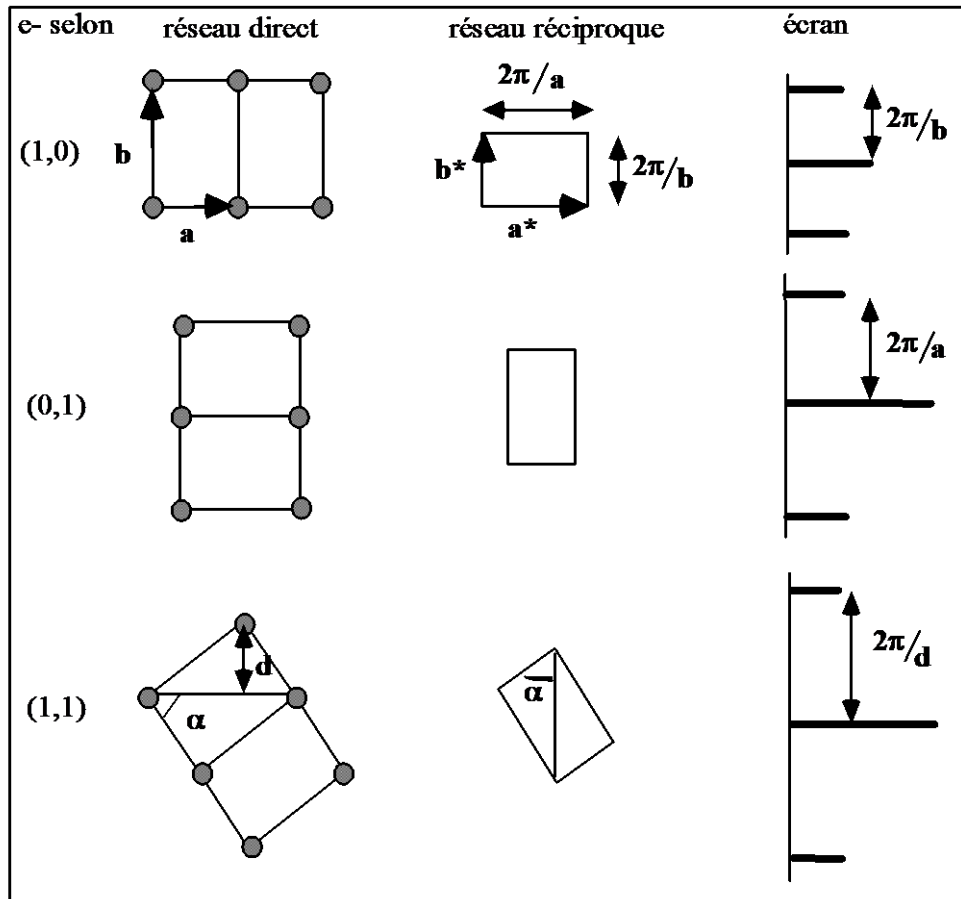
*Cas d'une surface avec motif à deux atomes différents*

*Surstructure de surface*

*Détermination de surstructure: limitations*

### III - Détermination d'une structure de surface en RHEED

#### Détermination des diagrammes RHEED à partir du réseau direct



$$\vec{a} \cdot \vec{a}^* = \vec{b} \cdot \vec{b}^* = 2\pi$$

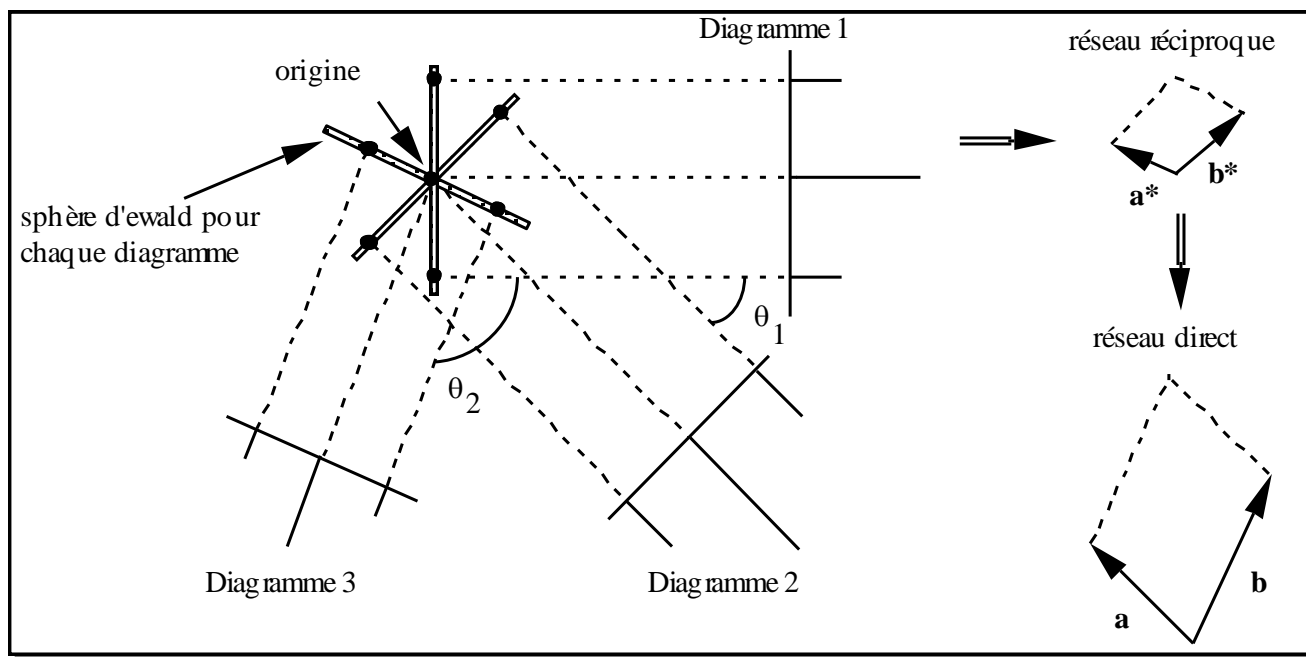
$$\vec{a} \cdot \vec{b}^* = \vec{b} \cdot \vec{a}^* = 0$$

On a sur le papier les distances entre raies pour chaque image, et l'angle entre chaque image

A partir des images obtenues, il suffit de les identifier par rapport au calcul et le cristal est orienté

### III - Détermination d'une structure de surface en RHEED

#### Détermination du réseau direct à partir des diagrammes RHEED



Cette fois on repère les différentes images avec les angles entre elles, on choisit une image de référence, et on reconstruit le réseau.

On obtient le réseau, mais pas le motif

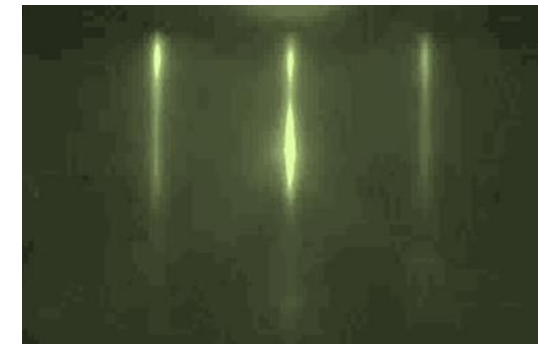
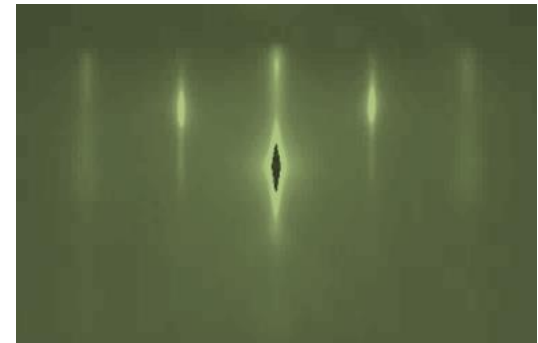
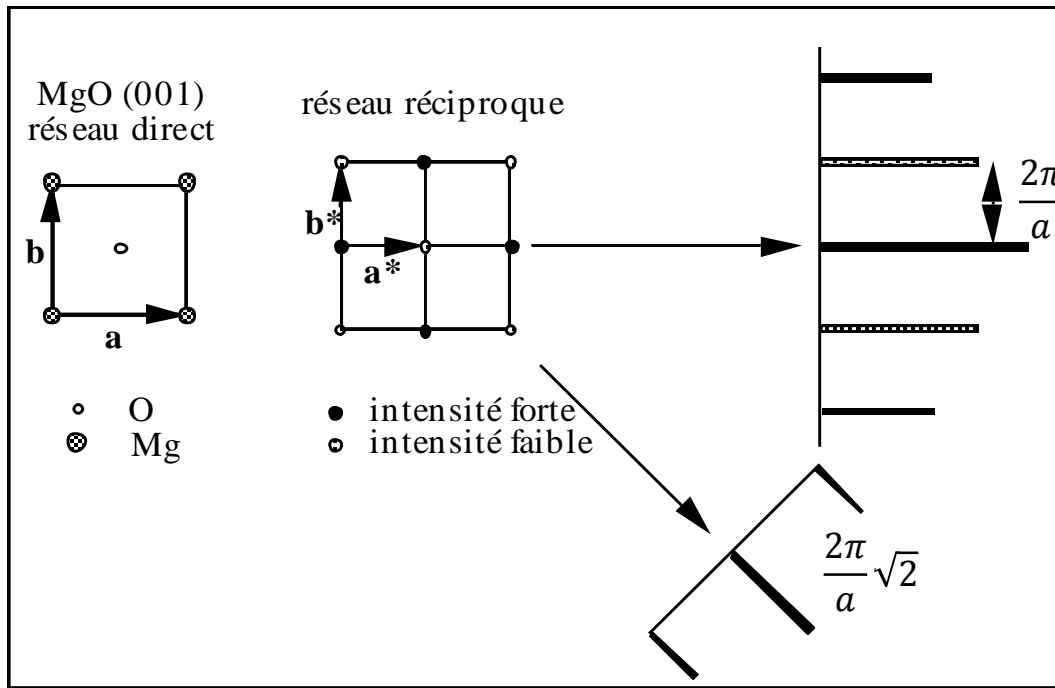


### III - Détermination d'une structure de surface en RHEED

#### Cas d'une surface avec motif à deux atomes différents

On calcule le facteur de structure comme en diff. RX  
Cas du MgO

$$\begin{aligned}
 F(hkl) &= F_{Mg} + F_O \exp i\pi(h+k) = F_{Mg} + F_O \quad \text{si } h+k=2p \\
 &= F_{Mg} - F_O \quad \text{si } h+k=2p+1
 \end{aligned}$$



### III - Détermination d'une structure de surface en RHEED

#### Surstructure de surface

On écrit le réseau de surface mesuré / réseau de la structure massive

$$\begin{pmatrix} \vec{a}_s \\ \vec{b}_s \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} u_{11} & u_{12} \\ u_{21} & u_{22} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \vec{a} \\ \vec{b} \end{pmatrix}$$

Cas simple ou la matrice est diagonale

○ plan du dessous  
● plan du dessus

$$\begin{pmatrix} \vec{a}_s \\ \vec{b}_s \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 2 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \vec{a} \\ \vec{b} \end{pmatrix}$$

**Reconstruction 2x1**

matrice non diagonale

$$\begin{pmatrix} \vec{a}_s \\ \vec{b}_s \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 2 & -1 \\ 1 & 1 \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \vec{a} \\ \vec{b} \end{pmatrix}$$

Mais réseau hexagonal plus grand tourné de 30°

$$\|\vec{a}_s\| = \|\vec{b}_s\| = \sqrt{3}a$$

**Reconstruction**  
 $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$

si les bases sont colinéaires, on note la surstructure (as/a x bs/b) et si la structure à la même symétrie mais est tournée d'un angle  $\alpha$ , on note alors (as/a x bs/b) $R\alpha$

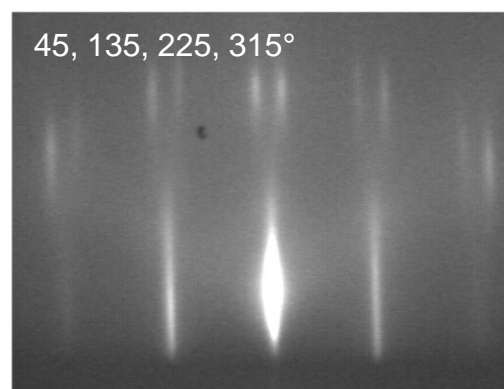
### III - Détermination d'une structure de surface en RHEED

#### Détermination de surstructure: limitations

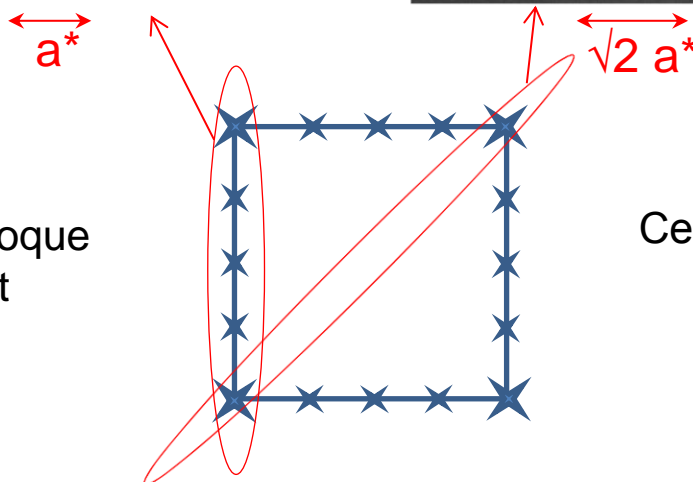
Alliage d'Heusler cubique NiMnSb – surface (001)

On observe un réseau carré / symétrie d'ordre 4 : mêmes clichés par rotation de 90°

Raies en  $\frac{1}{4}$   $\frac{1}{2}$   $\frac{3}{4}$



recuit à 650C  
Reconstruction  
semble être  
une 4x4 ?



Réseau réciproque  
reconstruit

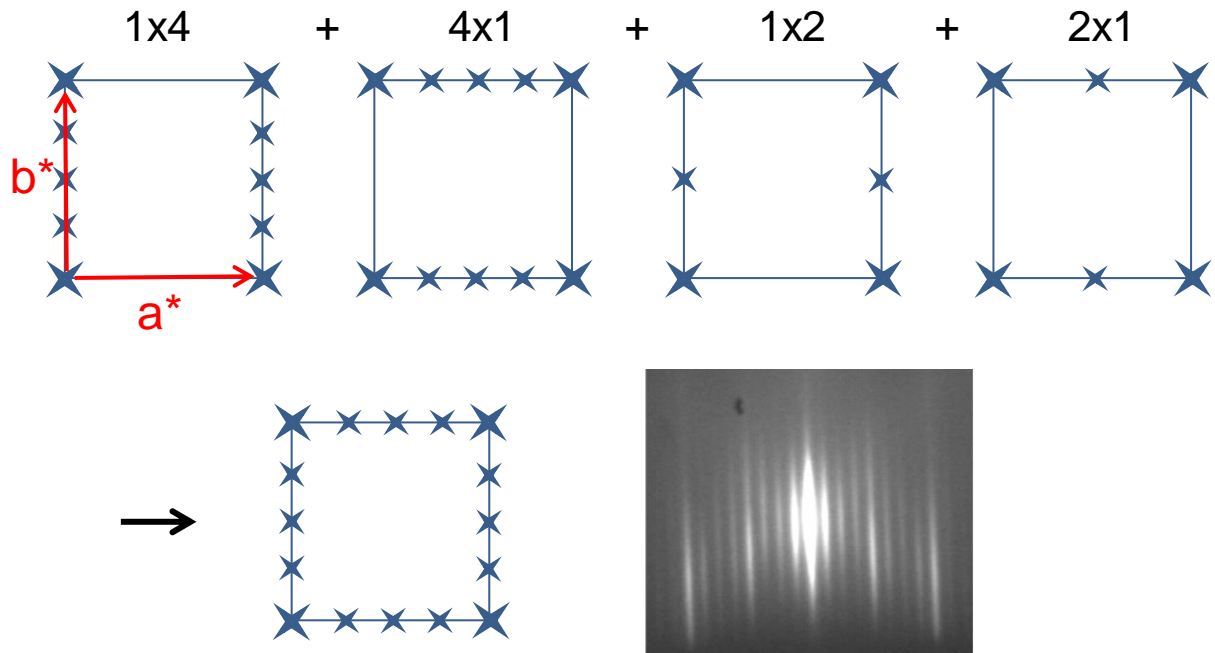
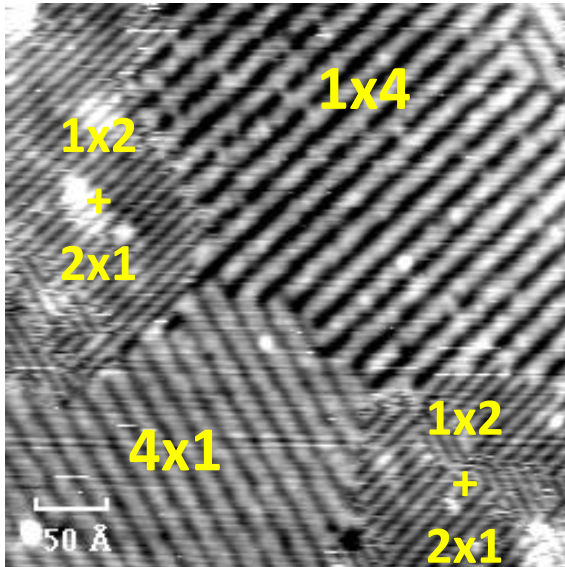
Ce n'est pas un réseau 4x plus petit  
C'est plus compliqué

### III - Détermination d'une structure de surface en RHEED

Détermination de surstructure: limitations

Alliage d'Heusler cubique NiMnSb – surface (001): **Le STM montre tout autre chose !**

STM mélange de  
 $4 \times 1 + 1 \times 4 + 2 \times 1 + 1 \times 2$  !!!





# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts**
- V. Les oscillations de RHEED
- VI. Informations sur la distance dans le plan
- VII. Densité de nucléation
- VIII. Conclusions

# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts

*Polycristal rugueux*

*Polycristal lisse*

*Monocristal rugueux*

*Mosaïcité, facettage*

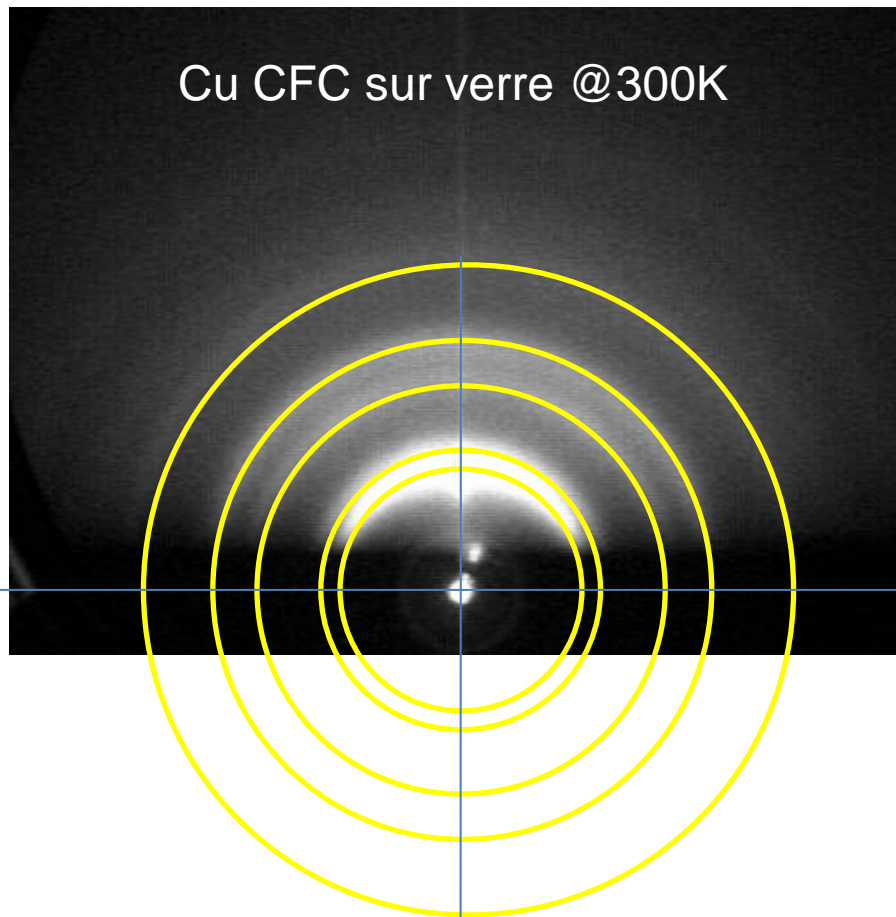
*Ordre à une dimension*

*Réseau de dislocations*

## IV - Surface non monocristalline, surface à défauts

Polycrystal rugueux

Polycrystal avec orientation des grains aléatoire : anneaux, structure cristalline identifiable



Rayon R des anneaux pour une structure cubique

$$R \propto \sqrt{h^2 + k^2 + l^2}$$

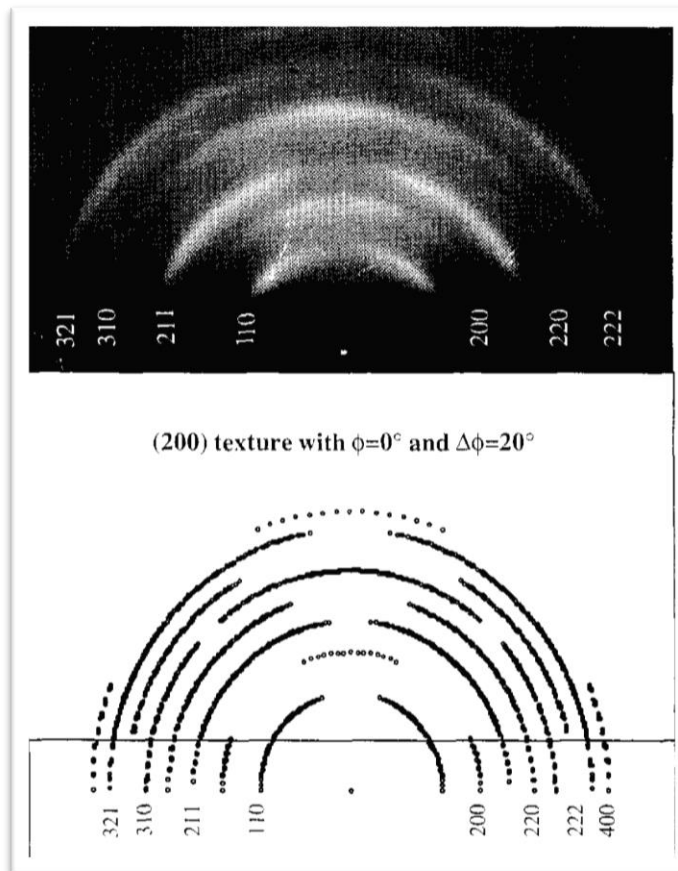
CFC : h,k,l même parité  
(111) (200) (220) (311) (222)...

CC : h+k+l pair  
(110) (200) (211) (220) (310)...

## IV - Surface non monocristalline, surface à défauts

### Polycristal rugueux

Polycristal avec orientation des grains non aléatoire



Polycristal avec texture de fibre:

Exemple fer bcc pousse en plan dense (110) => grains orientés selon (110) suivant la normale, orientation aléatoire dans le plan => certaines directions non décrites  
C'est modélisable !

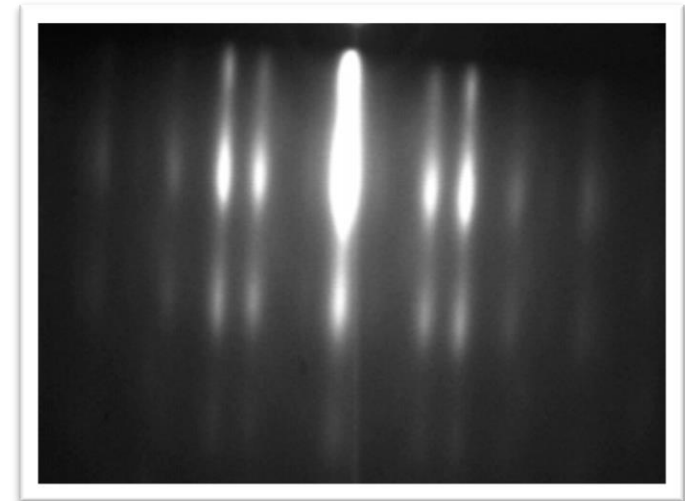
Tiré de P. Fréchard, S.Andrieu  
*Surf. Sci.*, 360, (1996), p.289

## IV - Surface non monocristalline, surface à défauts

polycristal lisse

Axe de texture de fibre mais lisse : On ne verra donc pas l'image RHEED changer lorsqu'on tournera l'échantillon !

Résultat tout à fait surprenant pour des habitués des monocristaux, mais résultat explicable !

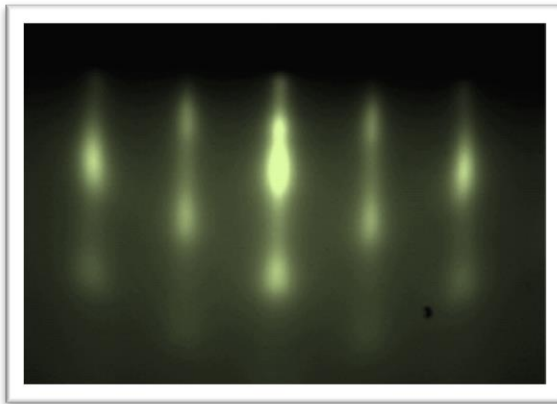
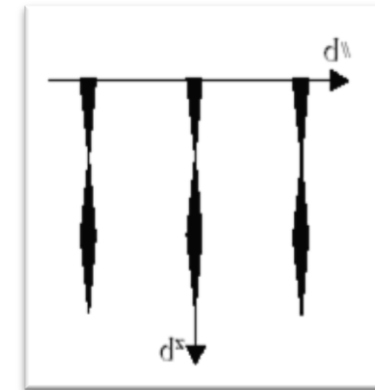


Superposition des 2 images RHEED obtenue sur le plan (110) du Fe CC

## IV - Surface non monocristalline, surface à défauts

Monocristal rugueux

certaines électrons « traversent » la matière par endroit et ressortent si la taille traversée est inférieure au libre parcours moyen des électrons

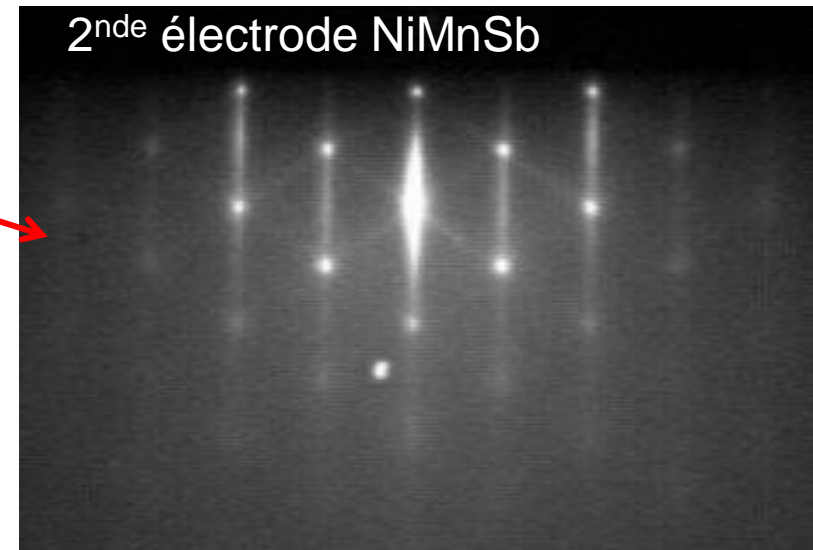
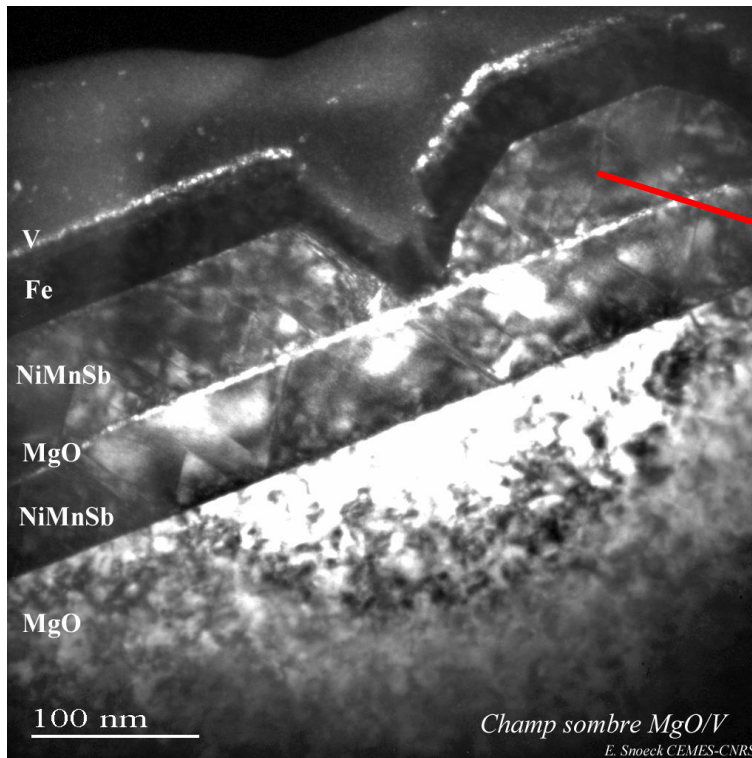


Ce type d'images dit immédiatement à l'expérimentateur que la surface n'est pas plane... mais quelle rugosité ???  
Le RHEED ne permet pas de répondre

## IV - Surface non monocristalline, surface à défauts

### Mosaïcité, facettage

certains électrons « traversent » la matière par endroit et ressortent si la taille traversée est inférieure au libre parcours moyen des électrons



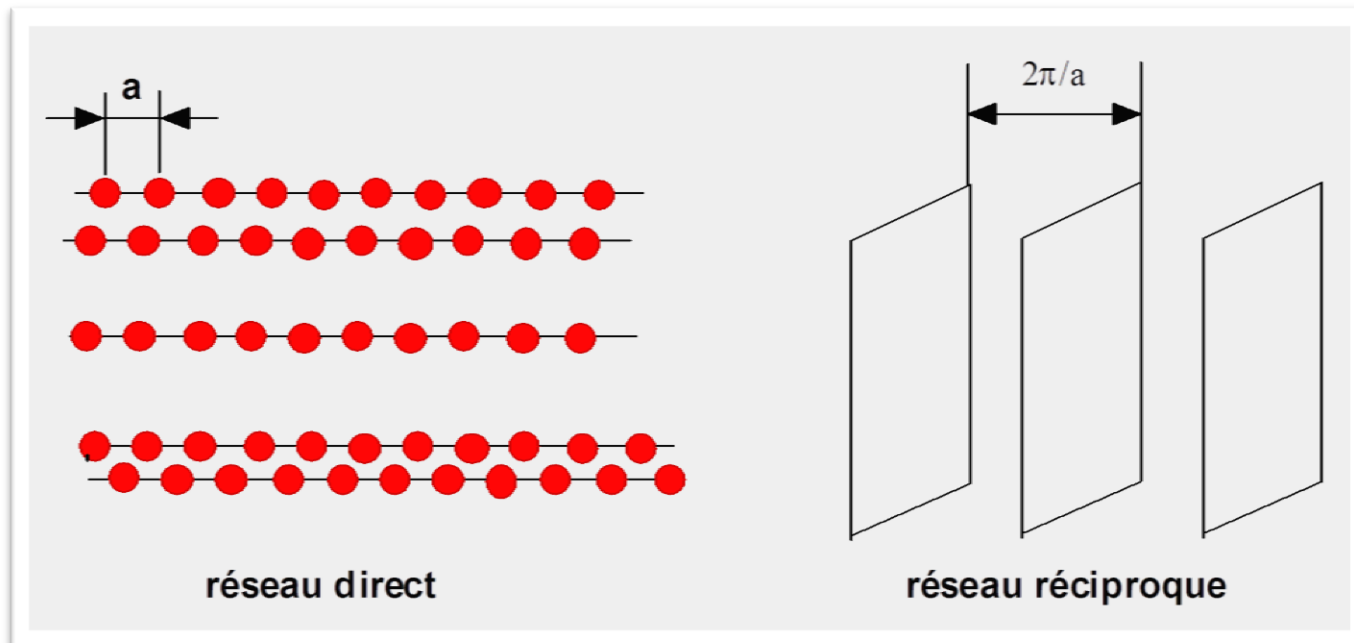
Points : diffraction 3D à travers les îlots  
Raies verticales : facette du dessus  
Raies inclinées : facettes latérales

Tiré de Thèse de P. Turban (2002) Université H. Poincaré

## IV - Surface non monocristalline, surface à défauts

### Ordre à une dimension

chaînes linéaires d'atomes de paramètre  $a$ , toutes parallèles, mais dont la distance entre ces chaînes est aléatoire : réseau réciproque constitué de plans



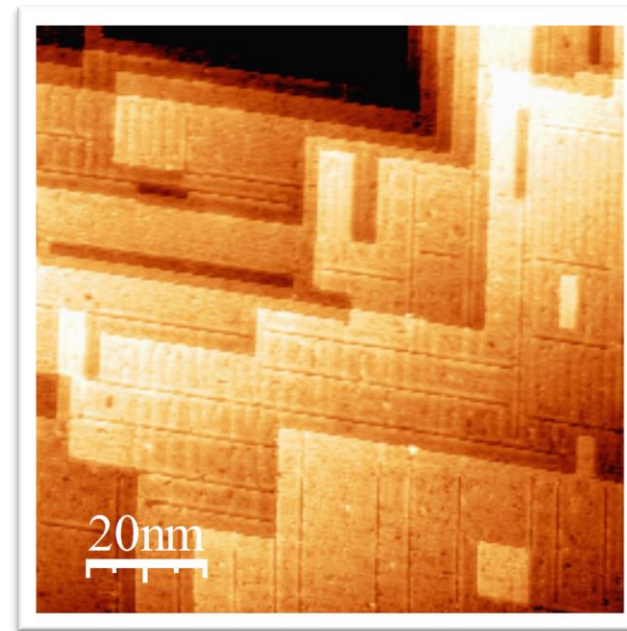
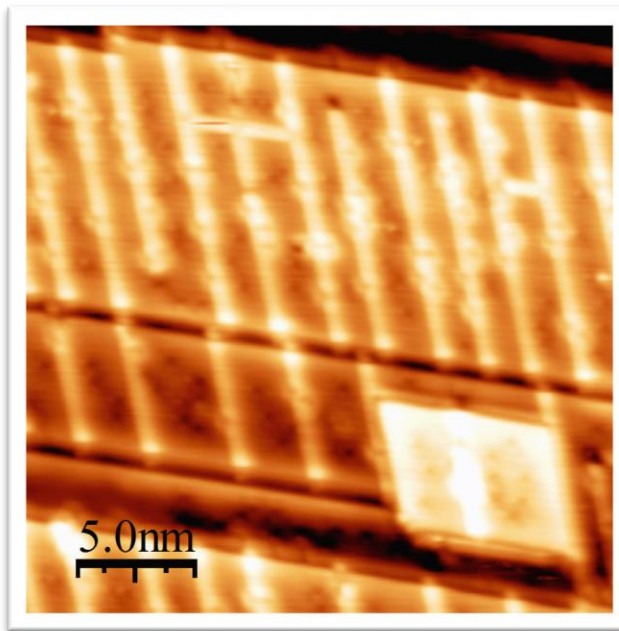
Voir Delescluse et Masson, *Surf. Sci.*, 100, (1980), p.423



## IV - Surface non monocristalline, surface à défauts

Ordre à une dimension

Exemple : pollution oxygène sur V(001)  
 Au STM on voit des lignes parallèle distribuées « aléatoirement »  
 selon (100) et (010)



*Tiré de Andrieu et al, Surface Science 651, 154-163 (2016)*

## IV - Surface non monocristalline, surface à défauts

Ordre à une dimension

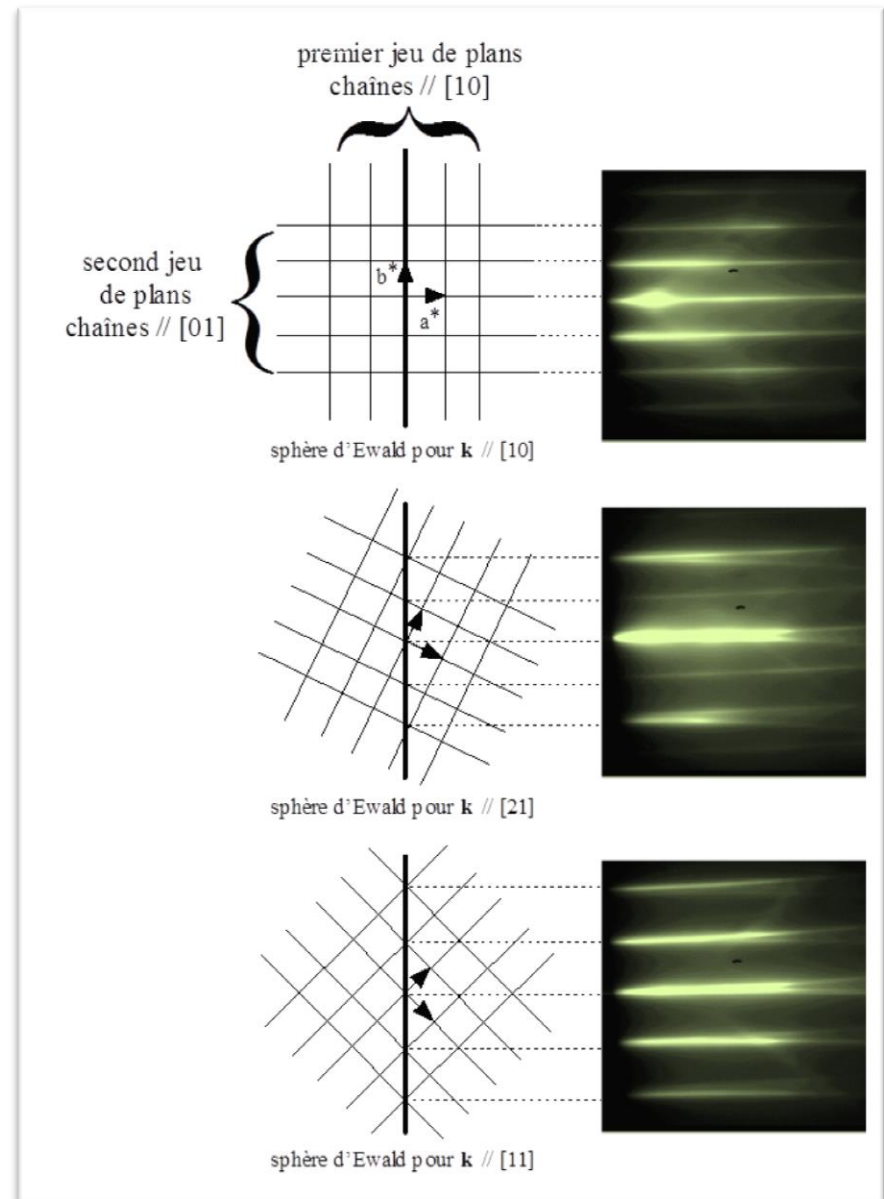
Exemple : pollution oxygène sur V(001)

En RHEED ?

Lignes selon (100) et (010) donc 2 jeux de plans dans le rés.réc. Perpendiculaires aux lignes

Intersection d'un plan avec la sphère = disque  
Projection sur l'écran = lignes ou paraboles

Tiré de F.Dulot et al, Surf. Sci. 473, p.172-182 (2001)



## IV - Surface non monocristalline, surface à défauts

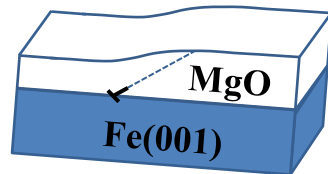
### Réseau de dislocations

#### Croissance de MgO sur Fe(001)

Misfit 4%, relaxation plastique à 5 plans

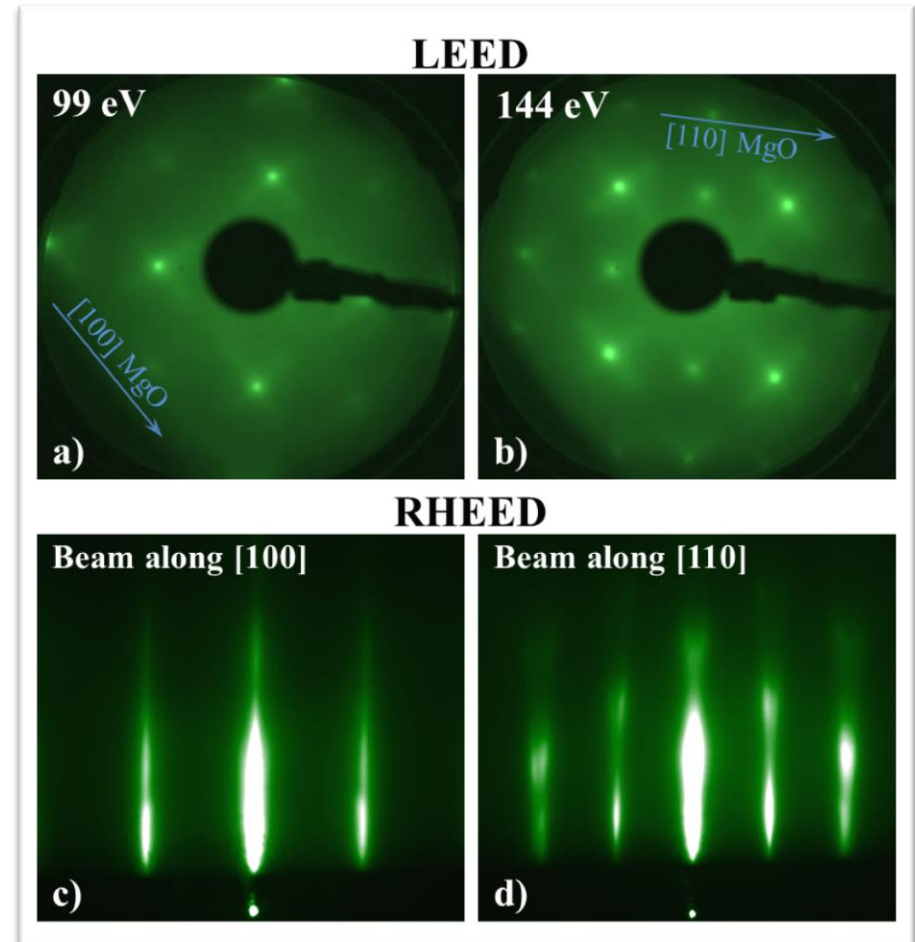
Apparition de dislocations

Les images LEED/RHEED changent



- Dislocations émergentes
- ⇒ Courbure de la surface
- ⇒ Raies courbes en RHEED
- ⇒ « croix » autour des tâches en LEED

*Surf. Sci.* 656, 140–147 (2017)



## IV - Surface non monocristalline, surface à défauts

### Réseau de dislocations

On filme la croissance, et on peut faire des différences d'images pour mieux voir ce qui se passe



film1-100-raw.avi



film2-110-raw.avi



film1-100-diff.avi



film2-110-diff.avi

*Films disponibles sur la page web de surface science  
Bonell, Andrieu, Surf. Sci. 656, 140–147 (2017)*

# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts
- V. Les oscillations de RHEED**
- VI. Informations sur la distance dans le plan
- VII. Densité de nucléation
- VIII. Conclusions

# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts
- V. **Les oscillations de RHEED**

*croissance 2D sur une surface plane*

*Passage d'une croissance 2D à 3D*

*Pas d'oscillations = croissance 3D ?*

# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts
- V. **Les oscillations de RHEED**

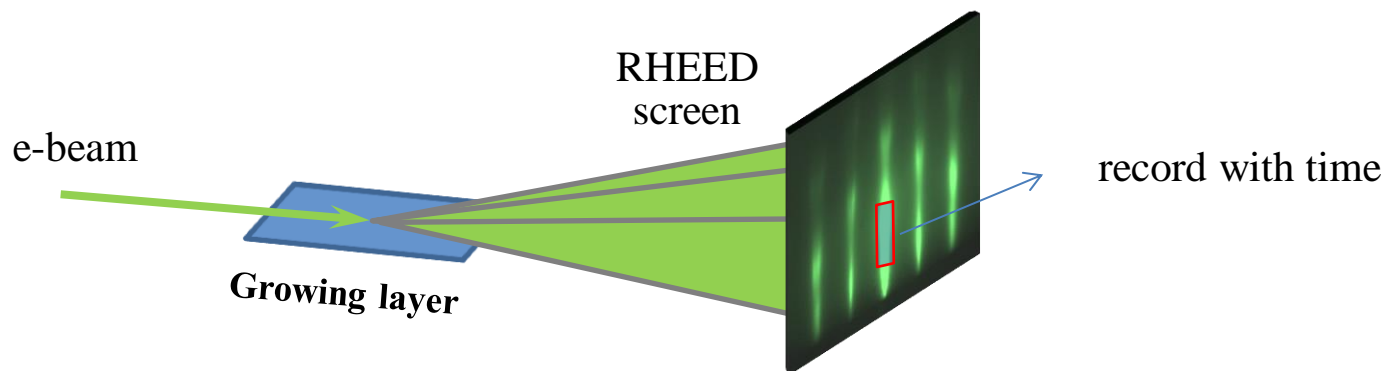
*croissance 2D sur une surface plane*

*Passage d'une croissance 2D à 3D*

*Pas d'oscillations = croissance 3D ?*

## V - Les oscillations de RHEED

croissance 2D sur une surface plane



film2-110-raw.avi



## V - Les oscillations de RHEED

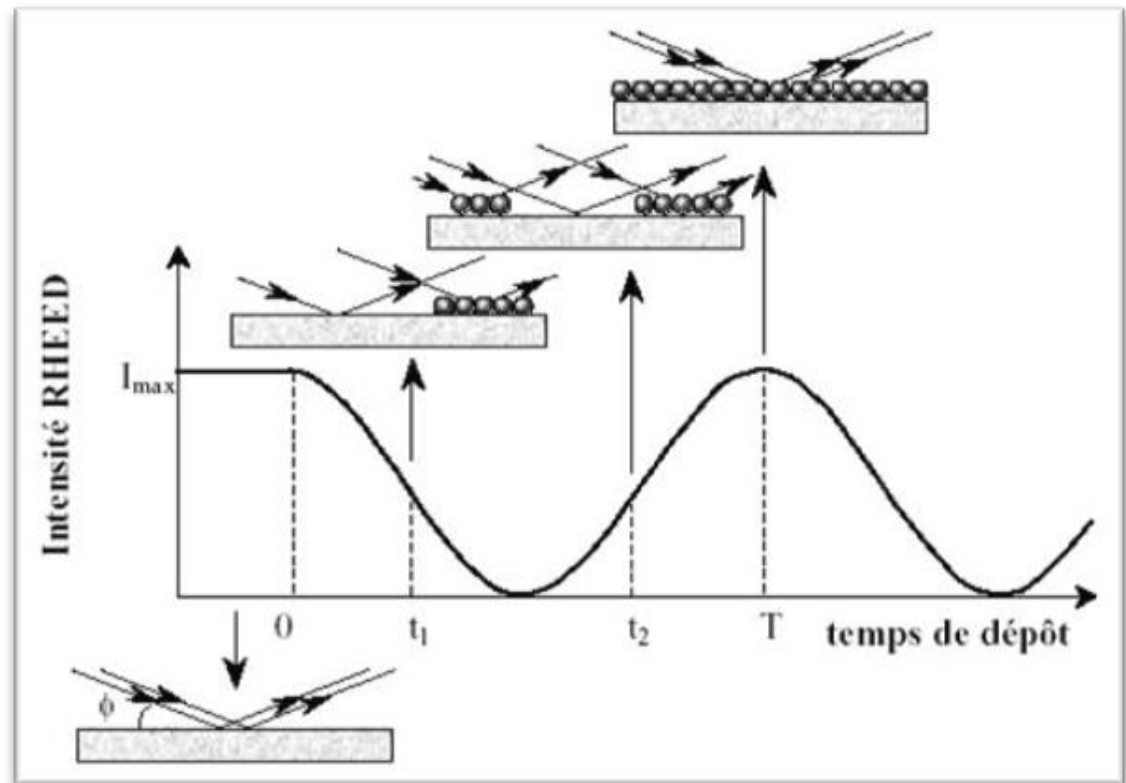
croissance 2D sur une surface plane

Phénomène d'interférence

1 oscillation = 1 plan atomique

Amplitude max en condition d'anti-Bragg

$$2h \sin \phi = \left( n + \frac{1}{2} \right) \lambda$$



## V - Les oscillations de RHEED

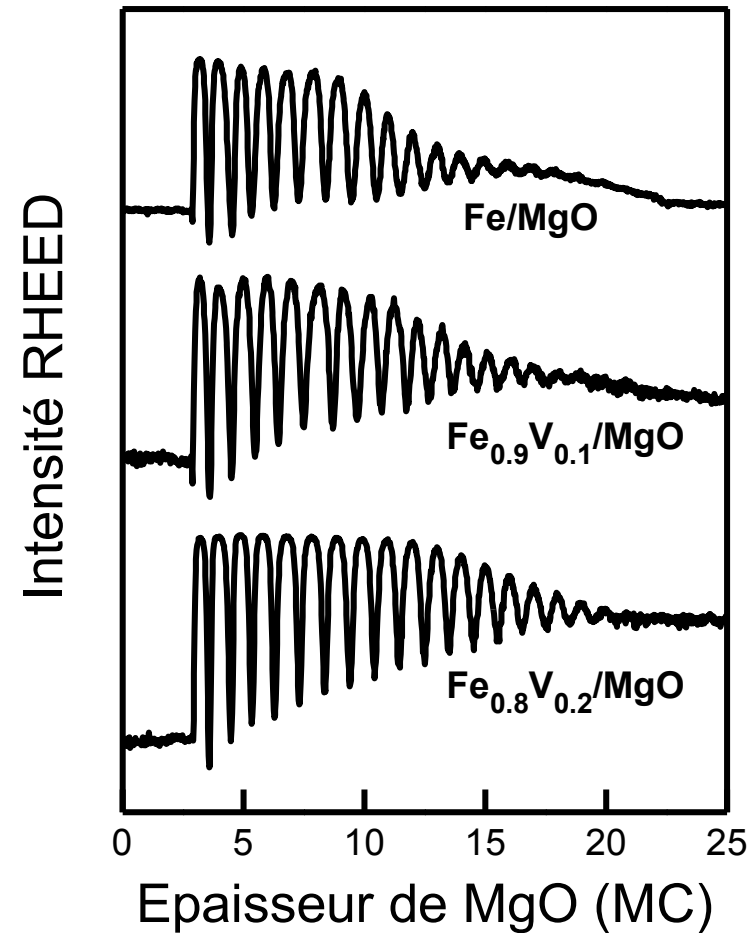
croissance 2D sur une surface plane

Exemple :

Croissance de MgO sur  $\text{Fe}_x\text{V}_{1-x}$   
(variation du misfit)

1 oscillation = 1 plan

Atténuation des oscillations  
après la relaxation plastique



Bonell, Andrieu, *Surf. Sci.* 656, 140–147 (2017)

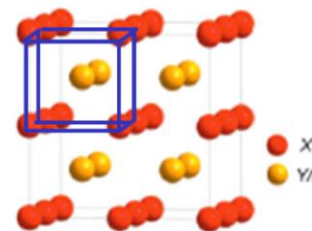
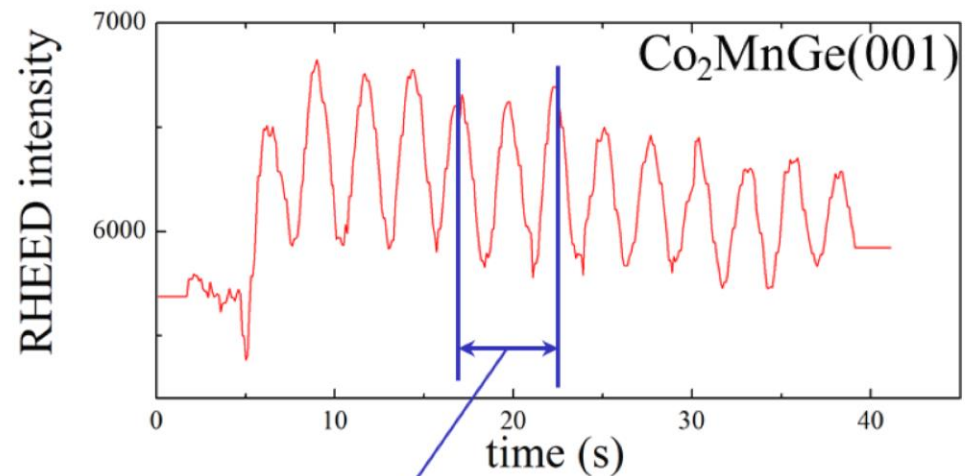
## V - Les oscillations de RHEED

croissance 2D sur une surface plane

Mais parfois  
1 oscillation = 2 plans atomiques !

Très courant pour les semi-conducteurs (covalent) : la brique de base Si entouré de 4 Si par exemple très stable

Se voit aussi sur les Heusler



Co flux :  $2 \cdot 10^{14}$  at/cm<sup>2</sup>.s  
Ge and Mn fluxes:  $10^{14}$  at/cm<sup>2</sup>.s  
Surface density:  $1.2 \cdot 10^{15}$  at/cm  
Time to complete 1 ML : 3 sec  
RHEED période: 6.0 sec

# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts
- V. **Les oscillations de RHEED**

*croissance 2D sur une surface plane*

*Passage d'une croissance 2D à 3D*

*Pas d'oscillations = croissance 3D ?*

## V - Les oscillations de RHEED

### Passage d'une croissance 2D à 3D

Modèle cinétique en prenant en compte la diffusion de surface - *Cohen et coll. (Surf. Sci., 1989)*

$$\frac{d\theta_n}{dt} = \frac{(\theta_{n-1} - \theta_n)}{\tau} + k(\theta_{n+1} - \theta_{n+2})(\theta_{n-1} - \theta_n) - k(\theta_n - \theta_{n+1})(\theta_{n-2} - \theta_{n-1})$$

Flux incident  
alimentant la  
couche n

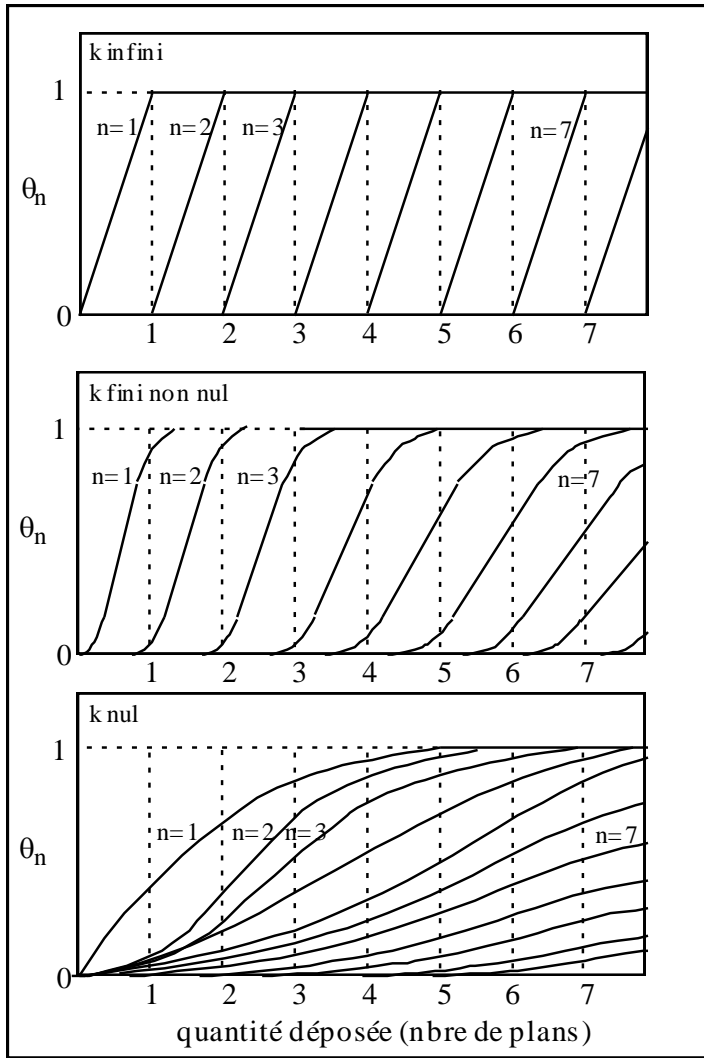
Flux provenant de la couche  
n+1 non recouverte (par  
n+2) alimentant la couche n

Flux quittant la couche n  
alimentant la couche n-1

La diffusion de surface est représentée par le paramètre k:

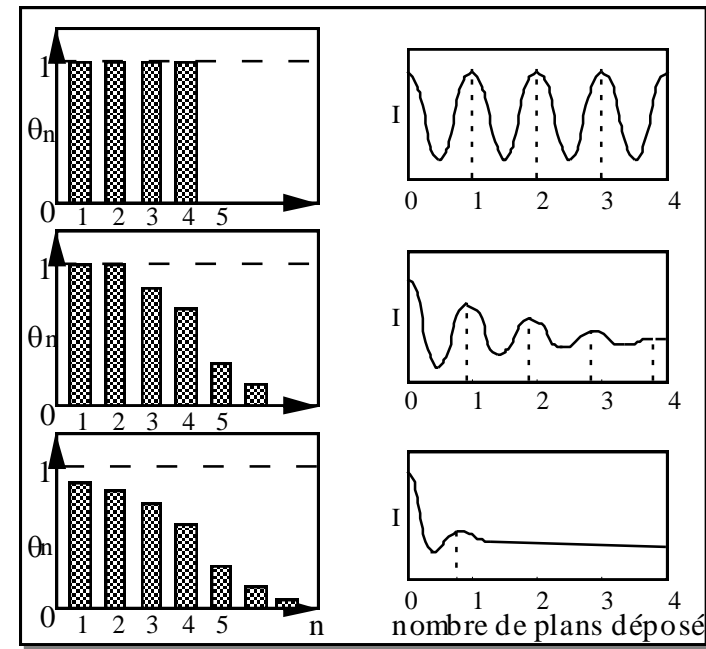
- k infini : la croissance est 2D, la couche  $n$  ne pousse pas tant que la couche  $n-1$  n'est pas terminée
- k nul : pas de diffusion de surface, croissance 3D
- k fini : début de croissance 2D puis la rugosité se développe

## V - Les oscillations de RHEED



### Passage d'une croissance 2D à 3D

A partir du calcul du recouvrement, on peut calculer le facteur de diffusion (surface) et modéliser très simplement l'évolution de l'intensité RHEED

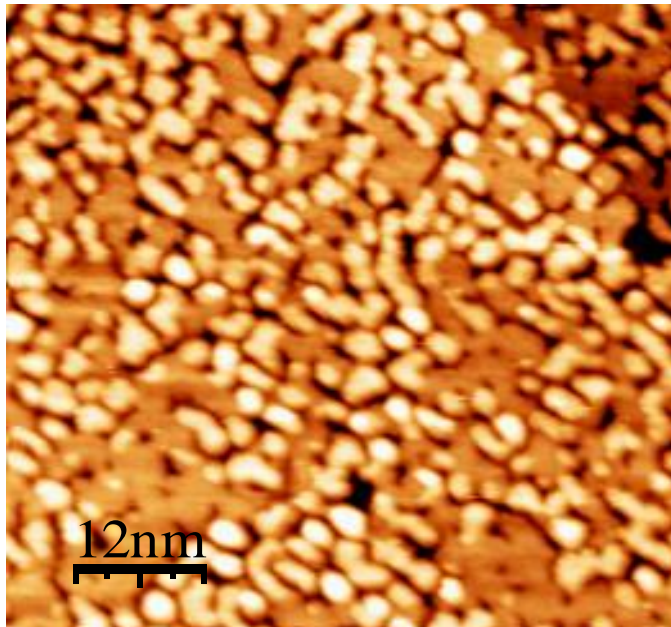


**Message : même une très faible rugosité atténue l'amplitude des oscillations !**

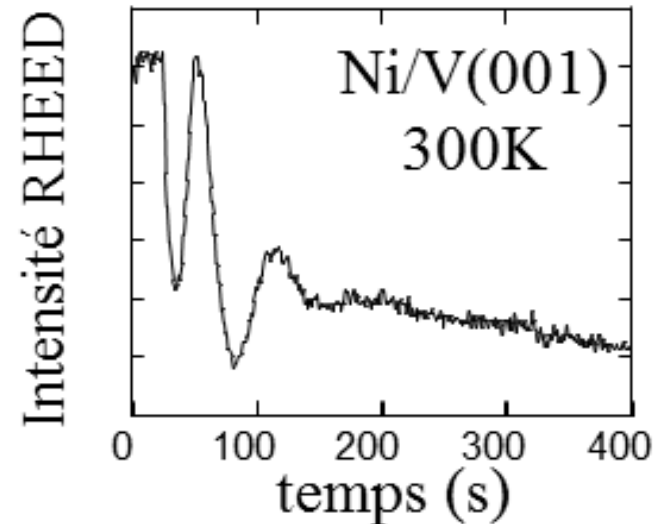
## V - Les oscillations de RHEED

Passage d'une croissance 2D à 3D

Exemple : croissance de Ni sur V(001)  
 Dépôt de 2 plans examinés en STM:  
 La 3<sup>ème</sup> couche commence avant que la  
 2<sup>nd</sup>e soit complète



Forte atténuation des oscillations dès le 2<sup>nd</sup> plan



Attention : le moteur ici est sans doute le fort désaccord paramétrique plutôt que la diffusion de surface

# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts
- V. **Les oscillations de RHEED**

*croissance 2D sur une surface plane*

*Passage d'une croissance 2D à 3D*

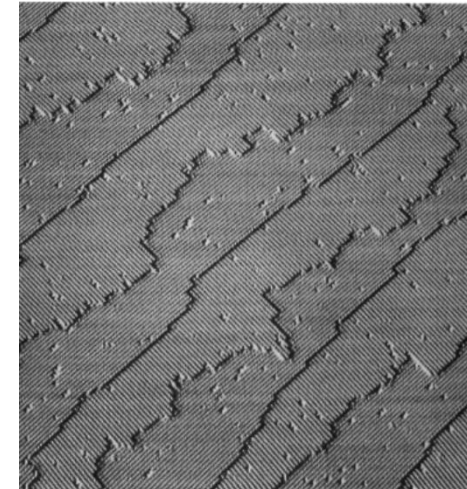
*Pas d'oscillations = croissance 3D ?*



## V - Les oscillations de RHEED

Pas d'oscillation veut dire croissance 3D ?

**NON !!!!** Croissance par avancée de marches



Atténuation des oscillations veut dire rugosité ?

**NON !!!!** Croissance hors équilibre, densité de marche augmente => diffusion de surface insuffisante pour atteindre les marches au départ, peut être suffisante ensuite

*Voir Baye & Massies, Europhys. Lett. 11, (1990), p.769  
Et Sudijono et coll. Phys. Rev. Lett., 69, (1992), p.2811*

Comment distinguer croissance 3D et 2D s'il n'y a pas d'oscillations RHEED ?

En 3D, les images deviennent spotty, en 2D non.

# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts
- V. Les oscillations de RHEED

## VI. Informations sur la distance dans le plan

*Détermination de l'épaisseur de relaxation plastique*

*Relaxation par changement de structure*

*Autre exemple : Réseau de dislocations*

*Oscillations du paramètre dans le plan*

# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts
- V. Les oscillations de RHEED
- VI. Informations sur la distance dans le plan**

*Détermination de l'épaisseur de relaxation plastique*

*Relaxation par changement de structure*

*Autre exemple : Réseau de dislocations*

*Oscillations du paramètre dans le plan*

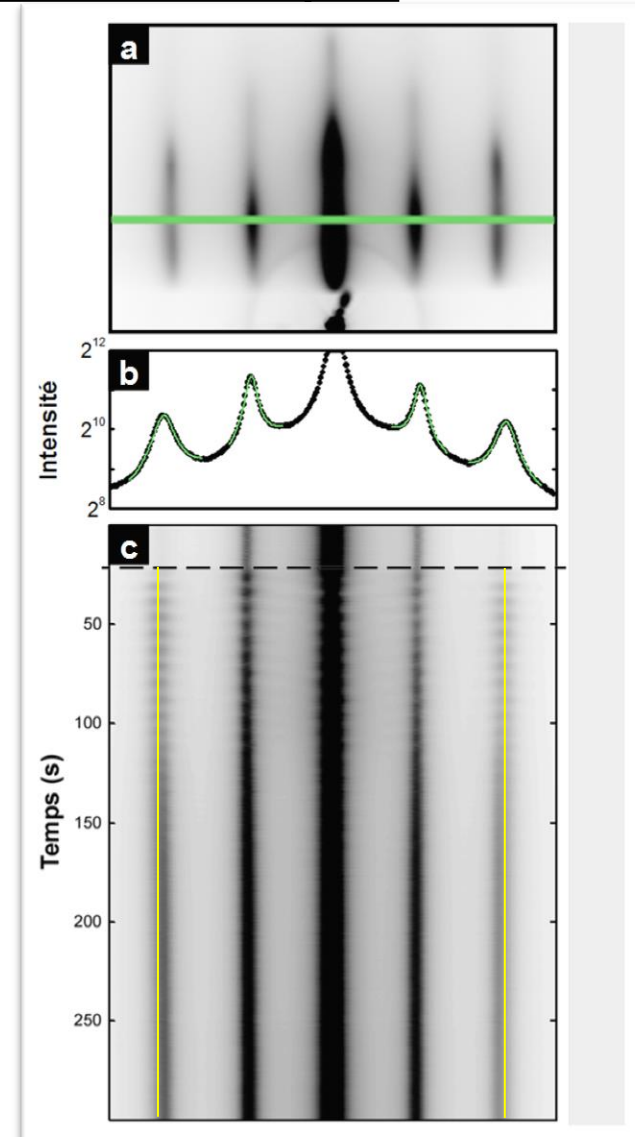
## VI - Informations sur la distance dans le plan

### Détermination de l'épaisseur de relaxation plastique

Cette fois on suit en temps réel  
un profil de raie

⇒ On obtient un graphe  
pixels=f(t) avec l'intensité en  
niveau de gris

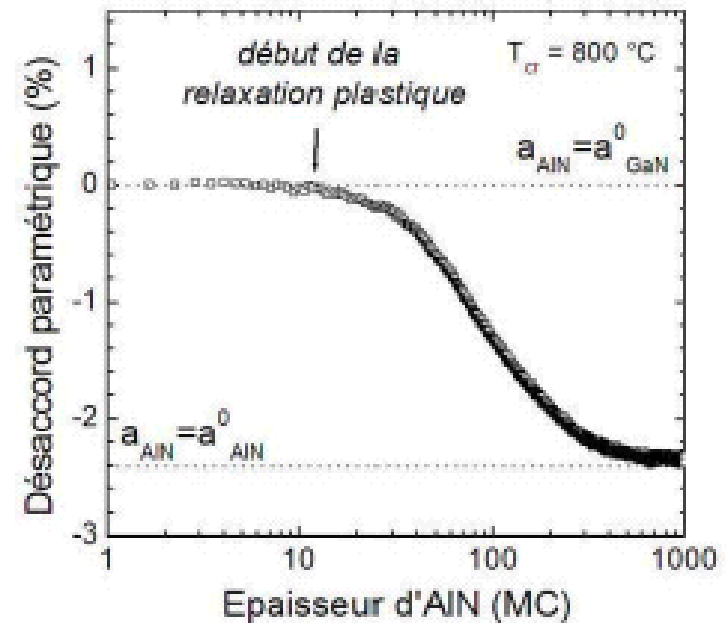
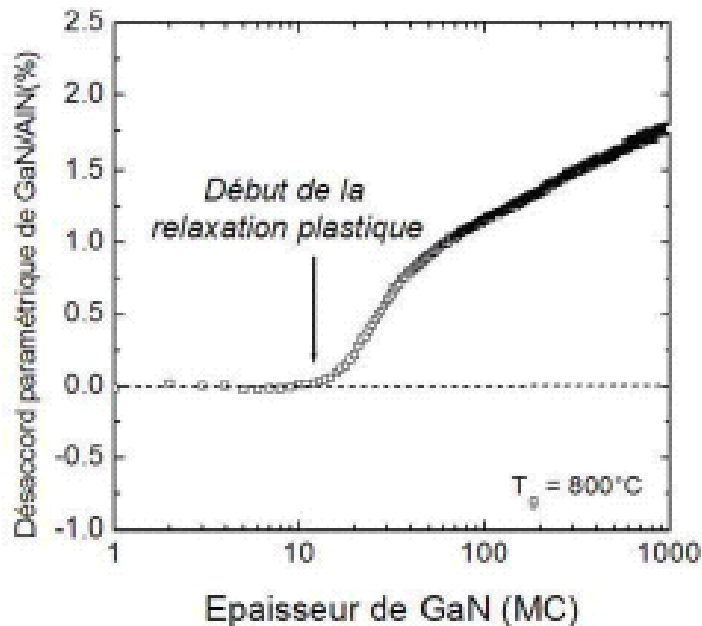
On voit très bien les  
oscillations d'intensité  
Mais on voit aussi que la  
distance entre raies changent



## VI - Informations sur la distance dans le plan

### Détermination de l'épaisseur de relaxation plastique

2 exemples de détermination de l'épaisseur critique en utilisant le RHEED lors de la croissance de GaN sur AlN à gauche et AlN sur GaN à droite (*courtoisie de J. Massies CRHEA*)



# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts
- V. Les oscillations de RHEED
- VI. Informations sur la distance dans le plan**

*Détermination de l'épaisseur de relaxation plastique*

*Relaxation par changement de structure*

*Autre exemple : Réseau de dislocations*

*Oscillations du paramètre dans le plan*

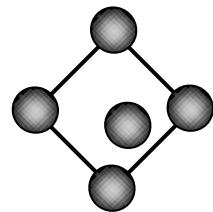
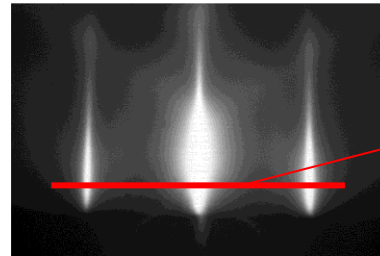
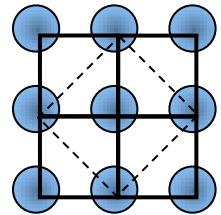
## VI - Informations sur la distance dans le plan

### Relaxation par changement de structure

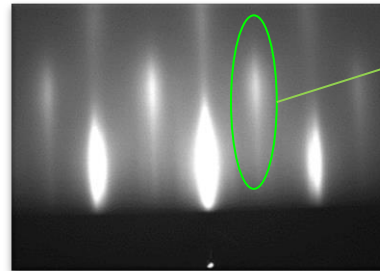
On peut aussi détecter un changement de structure si de nouvelles raies apparaissent !

Co déposé sur une surface de fer (001)

a) BCC Fe(001)



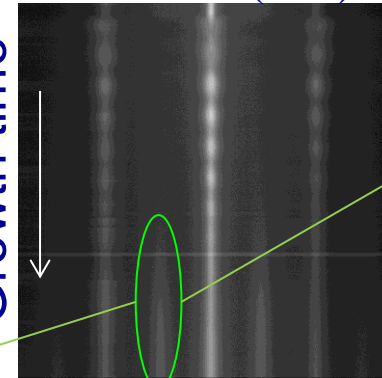
HCP Co(11 $\bar{2}$ 0)



La phase stable de Co est HCP, mais il pousse d'abord BCC sur Fe puis relaxe dans sa structure HCP qui s'épitaxie selon (11-20)

Co on Fe(001)

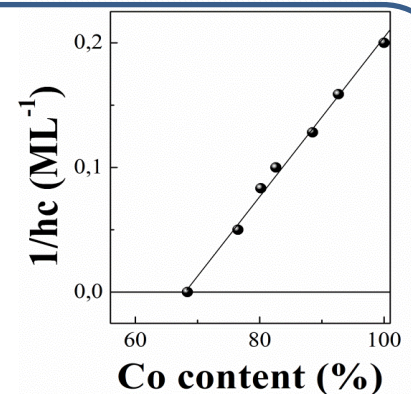
Growth time



HCP relaxation

On suit le profil en cours de dépôt. Lorsque la structure de Co passe de BCC à HCP, de nouvelles raies apparaissent  $\Rightarrow$  On détermine  $h_c$

Manip identique pour des dépôts d'alliages  $\text{Co}_x\text{Fe}_{1-x}$  on Fe(001)  
 $h_c = f(x)$



# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts
- V. Les oscillations de RHEED
- VI. Informations sur la distance dans le plan**

*Détermination de l'épaisseur de relaxation plastique*

*Relaxation par changement de structure*

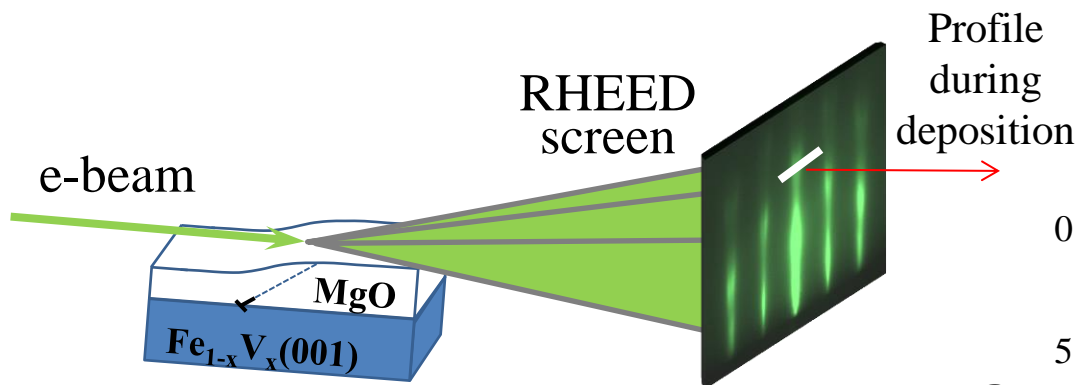
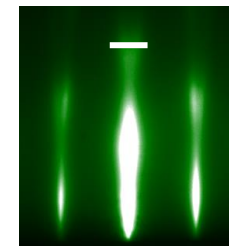
*Autre exemple : Réseau de dislocations*

*Oscillations du paramètre dans le plan*

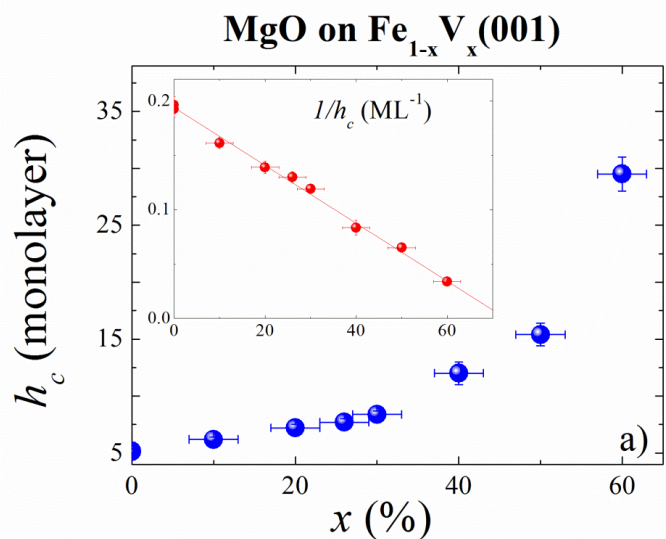
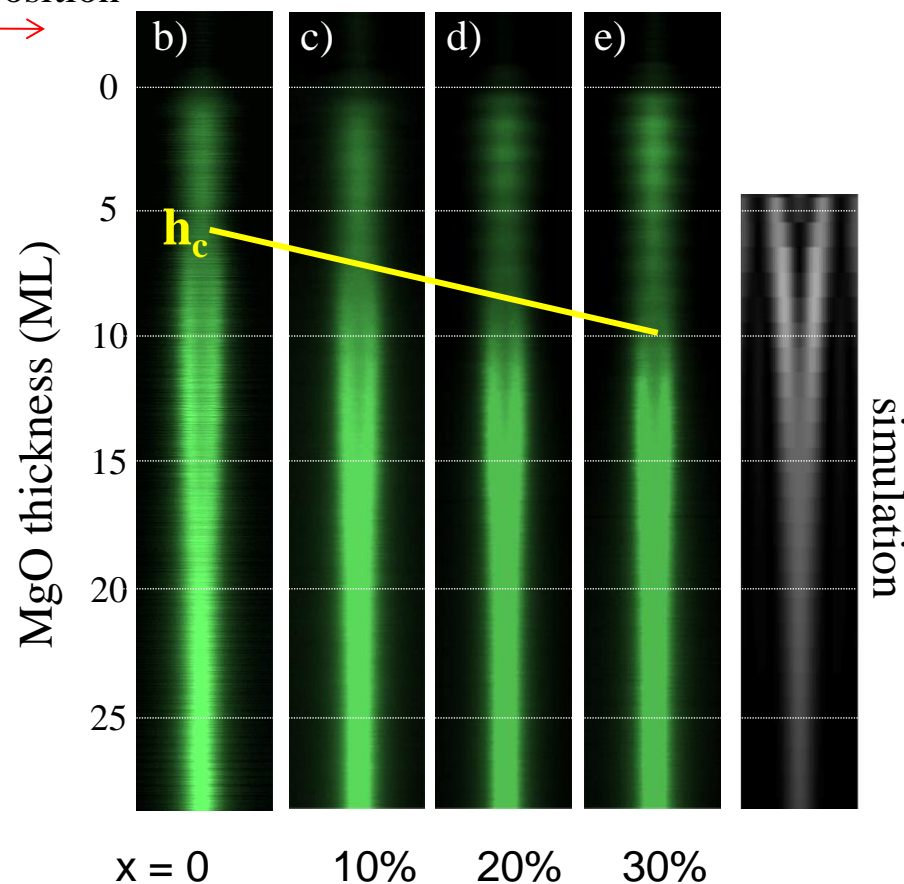


## VI - Informations sur la distance dans le plan

Autre exemple : Réseau de dislocations



MgO on  $Fe_{1-x}V_x(001)$



# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts
- V. Les oscillations de RHEED
- VI. Informations sur la distance dans le plan**

*Détermination de l'épaisseur de relaxation plastique*

*Relaxation par changement de structure*

*Autre exemple : Réseau de dislocations*

*Oscillations du paramètre dans le plan*

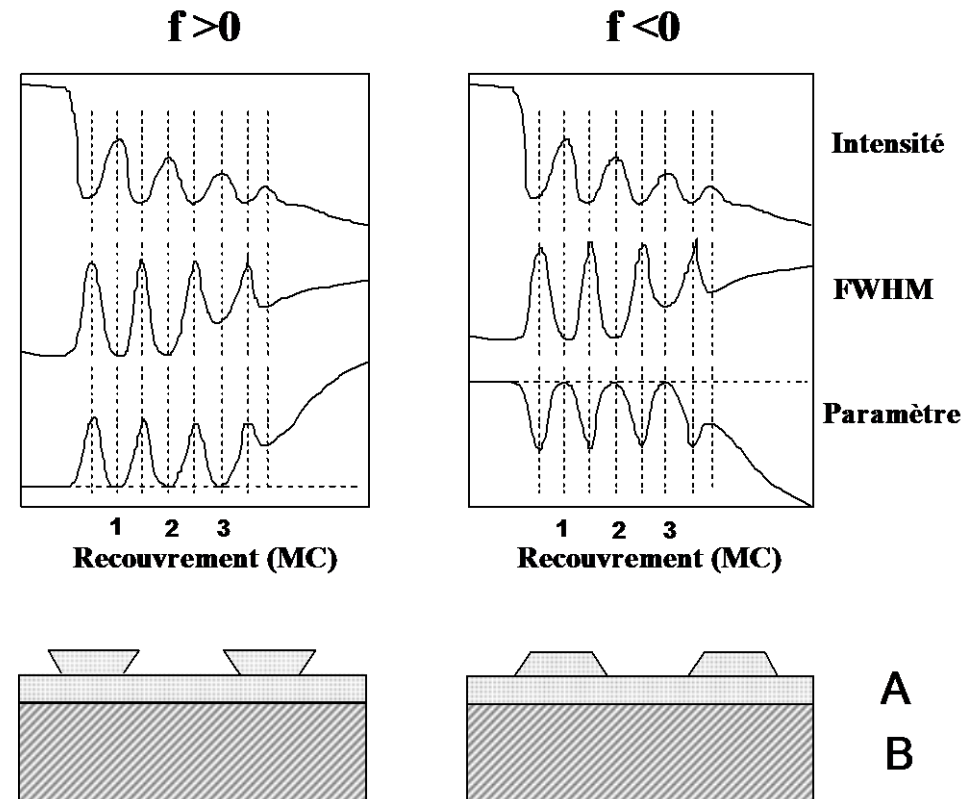
## VI - Informations sur la distance dans le plan

### Oscillations du paramètre dans le plan

Pendant le régime élastique (avant la relaxation) on peut voir des oscillations du paramètre moyen dans le plan !?

Massies et Grandjean  
(*Phys. Rev. Lett.*, 71, 1993, p.1441)  
Relaxation en bord d'îlots

Ce qui est aussi intéressant, c'est que la largeur à mi-hauteur (FWHM) varie aussi, en opposition de phase avec les oscillations d'intensité !

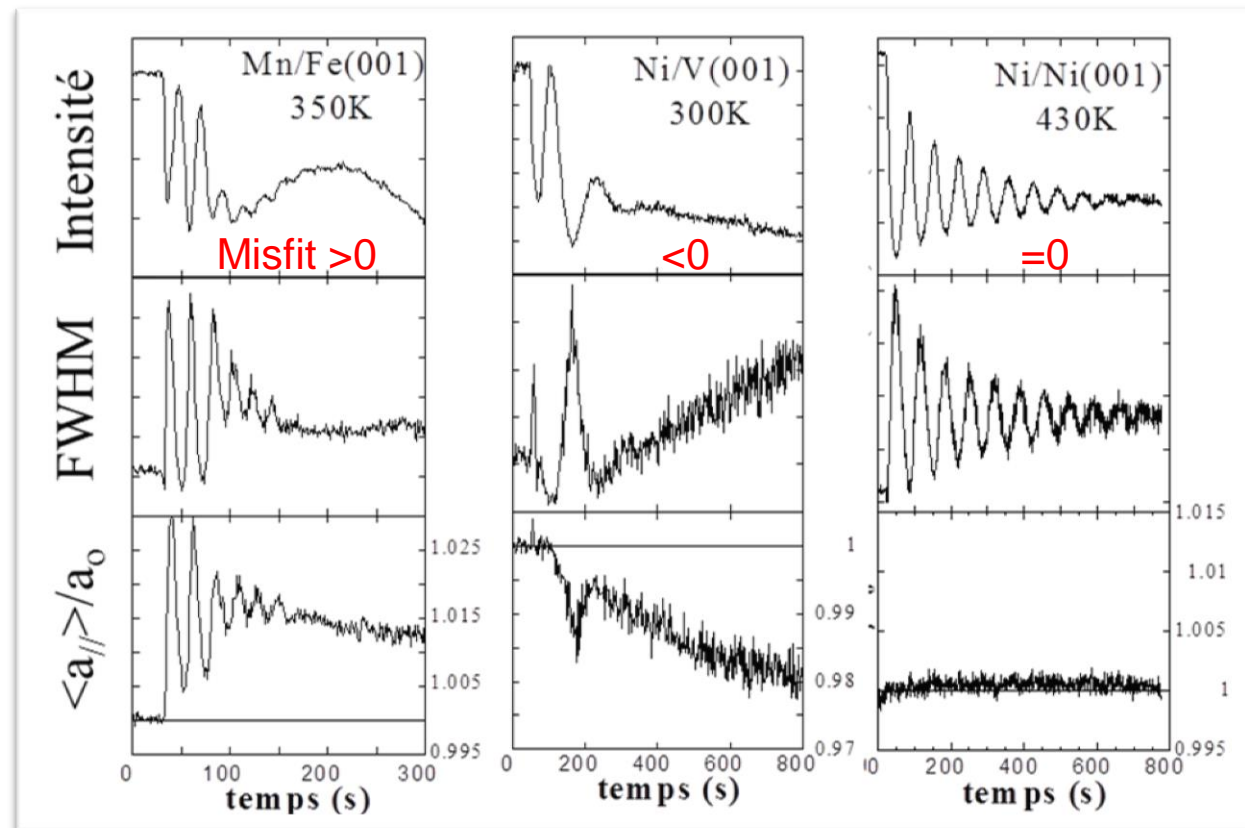


## VI - Informations sur la distance dans le plan

### Oscillations du paramètre dans le plan

Observé sur de nombreux systèmes  
En accord avec relaxation en bord d'îlots

*Surf. Sci.* 446, p.241-253, (2000)  
*Surf. Sci.* 488, p.52-72, (2001)

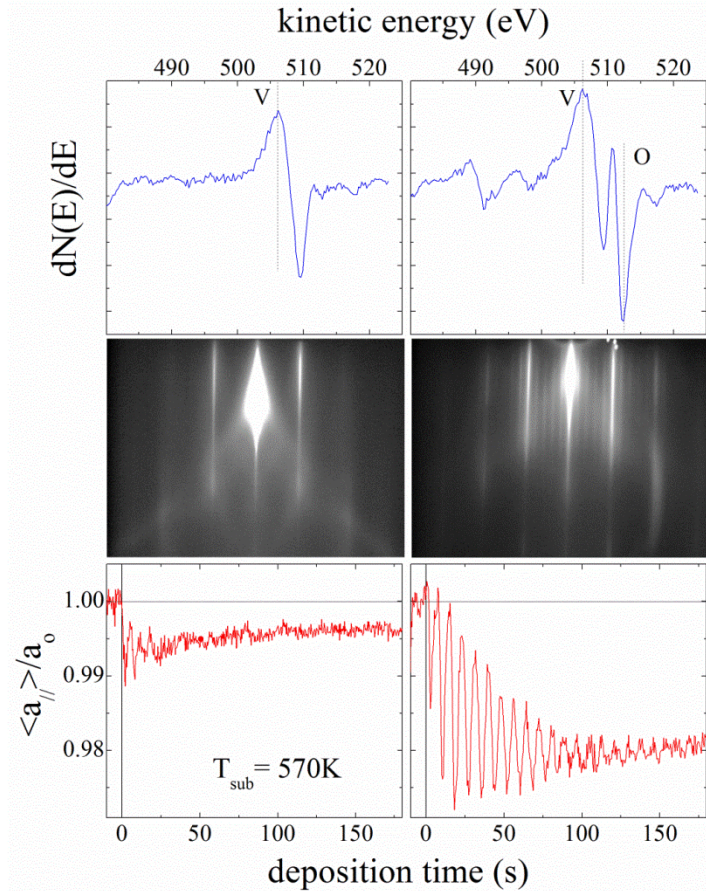
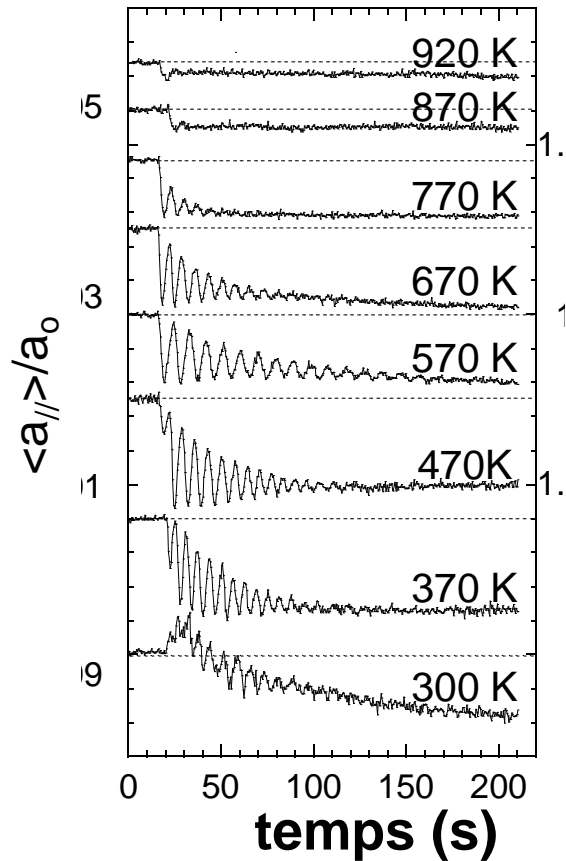


## VI - Informations sur la distance dans le plan

### Oscillations du paramètre dans le plan

Même parfois observé en homoépitaxie !

Exemple V sur V(001) *Surf. Sci.* 446, p.241-253, (2000)



*Surf. Sci.* 651, 154-163 (2016)

paramètre moyen de départ = surface reconstruite  $\neq$  du massif => misfit !

# PLAN

- I. Principe: exemple d'un monocristal
- II. Caractéristiques propres en LEED et RHEED
- III. Détermination d'une structure de surface en RHEED
- IV. Surface non monocristalline, surface à défauts
- V. Les oscillations de RHEED
- VI. Informations sur la distance dans le plan
- VII. Densité de nucléation**
- VIII. Conclusions

## VII – Densité de nucléation

### Oscillation de la largeur à mi-hauteur, densité de nucléation

On fait 2 manips a priori identique sur 2 échantillons différents

Amplitude de relaxation variable ??? Dépend de la taille des îlots, qui se voit sur FWHM !

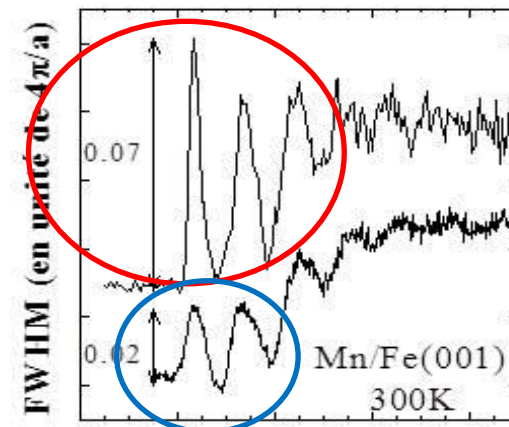
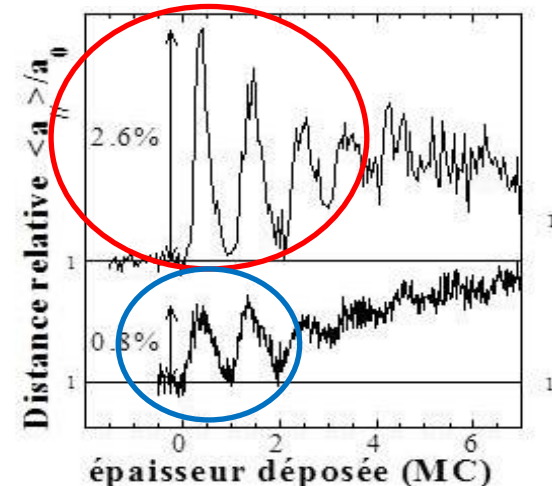
Exemple : Mn sur Fe(001)

Mn fortement sensible à contamination en oxygène

⇒ beaucoup d'O, nombreux petits îlots 2D, proche les uns des autres FWHM large, relaxation en bord d'îlots importante

⇒ Peu d'O, peu d'îlots gros et espacés, FWHM petite, relaxation en bord d'îlots moyennée avec la distance atomique dans l'îlot (contraint) donc faible

*Appl. Surf. Sci.*, **188**, (2002), p.97-102



## VII – Densité de nucléation

### Oscillation de la largeur à mi-hauteur, densité de nucléation

Pourquoi oscillations de largeur ?

Distribution d'îlots en surface régulière  
 (imposée par diffusion de surface):  
 distance entre îlots =  $L$

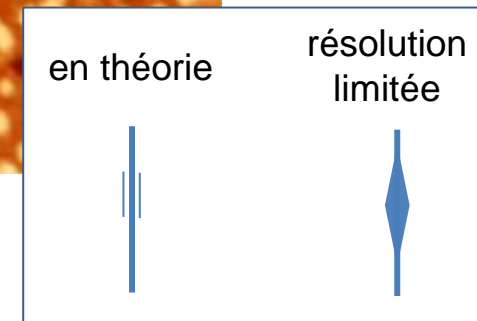
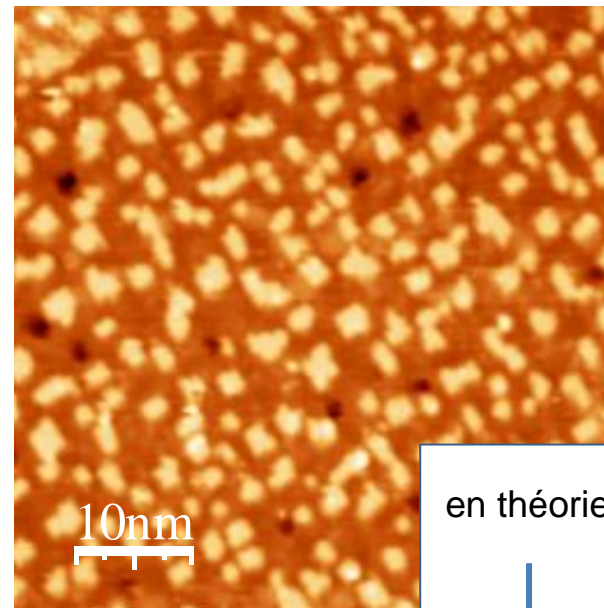
Les îlots forment alors un réseau de  
 plots qui vont donner des satellites  
 autour des raies spéculaires à  $2\pi/L$

En général, résolution insuffisante en  
 RHEED,  $\text{FWHM} \approx 2\pi/L$ .

$\Rightarrow$  Densité de nucléation  
 $1/L^2 \approx (\text{FWHM}/4\pi)^2$

*Appl. Surf. Sci.*, **188**, (2002), p.97-102

Fer sur fer(001)



**Diminuer la tension du RHEED pour augmenter la taille de l'image et donc la résolution**



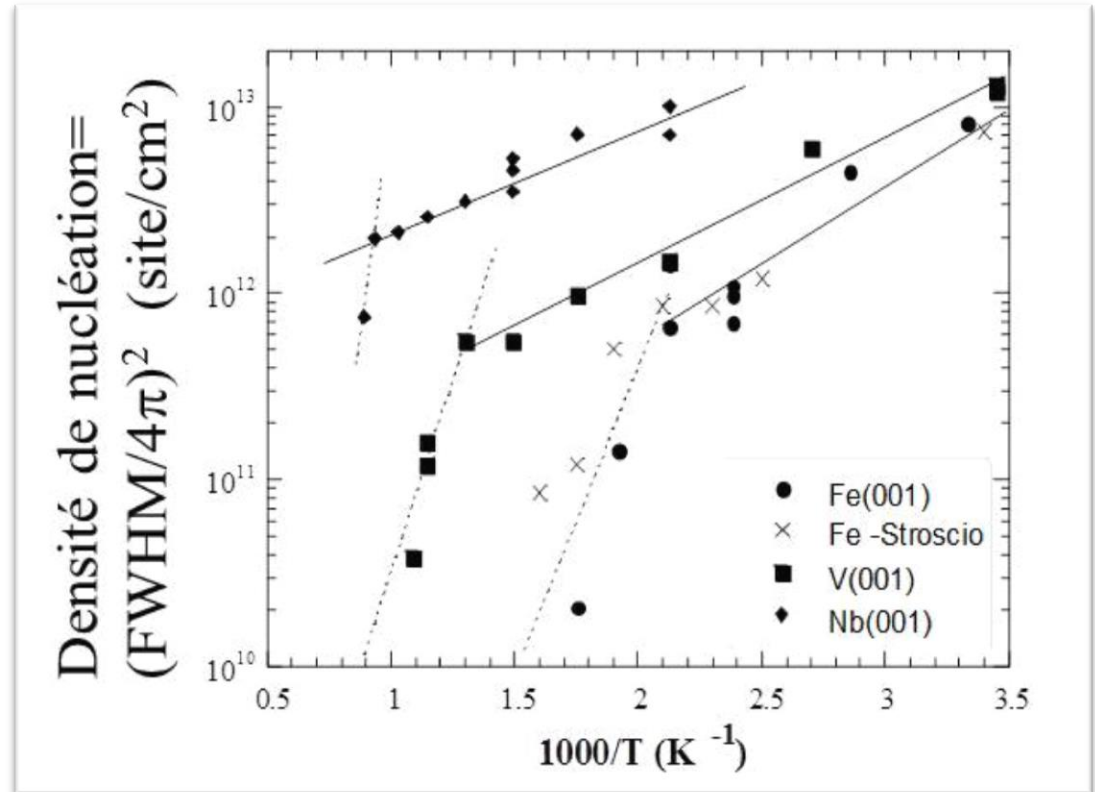
## VII – Densité de nucléation

Oscillation de la largeur à mi-hauteur, densité de nucléation

Densité de nucléation calculée  
 $1/L^2 \approx (\text{FWHM}/4\pi)^2$

Comparaison avec STM  
 pour Fe(001) en température

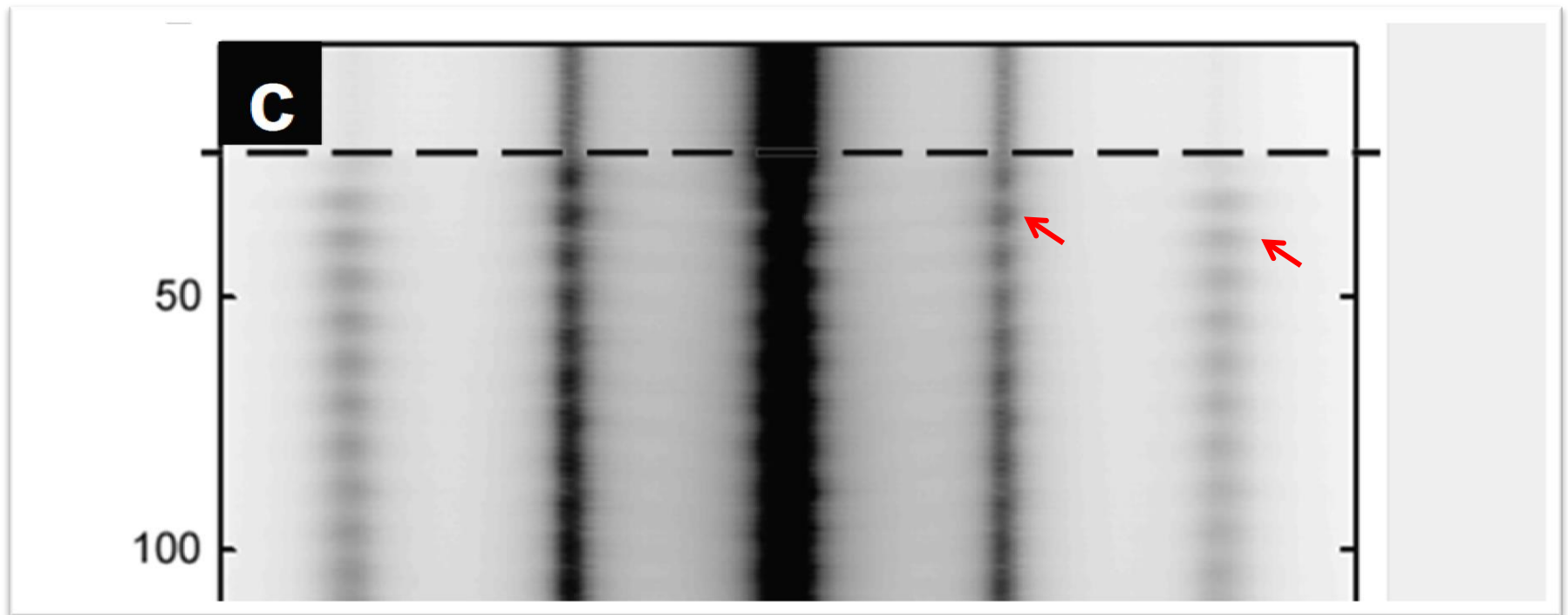
*Appl. Surf. Sci.*, **188**, (2002), p.97-102



La largeur à mi-hauteur max donne une très bonne idée de la densité de nucléation

## VII – Densité de nucléation

Oscillation de la largeur à mi-hauteur, densité de nucléation



Donc attention, on obtient l'ordre de grandeur de la densité de nucléation, car s'ajoute des effets de diffraction !

# Conclusions

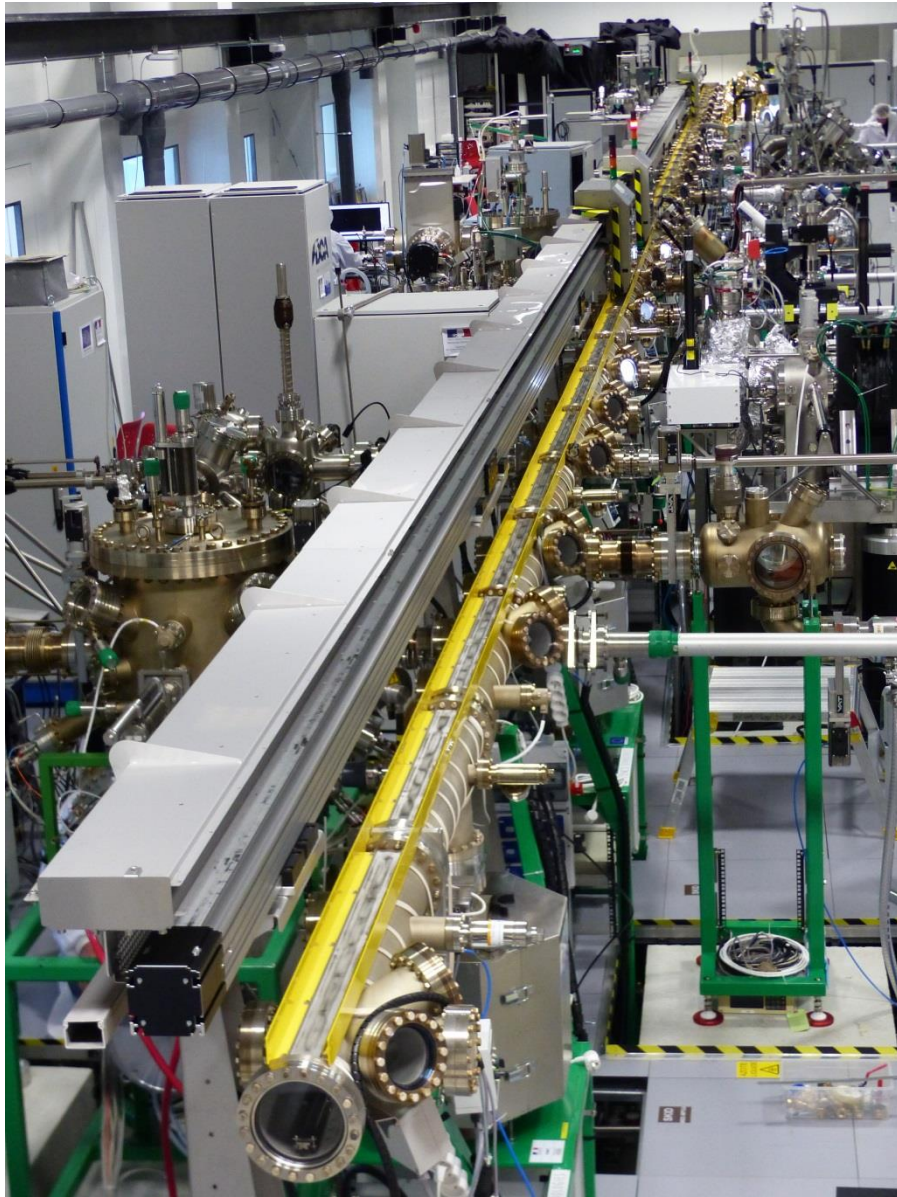
- **LEED - beaucoup utilisé par physicien et chimiste des surfaces:**
  - on a directement le réseau réciproque, mais pas les tiges
  - pas en cours de croissance
  - Modélisable en intensité (surstructure)
  
- **RHEED – indispensable pour les gens de la croissance épitaxiale (MBE, PLD) :**
  - On a les tiges mais il faut reconstruire le réseau réciproque
  - Utilisation en cours de croissance en épitaxie
    - Oscillation d'intensité  $\Leftrightarrow$  mode de croissance
    - Variation relative du paramètre moyen dans le plan  $\Leftrightarrow$  relaxation
    - Densité de nucléation en croissance 2D
    - Ordre à une dimension, mosaïcité, facettage, réseau de dislocations
  - Modélisation en intensité extrêmement difficile

On ne peut pas faire de MBE / PLD sans RHEED ! Aujourd'hui, on "filme" systématiquement la croissance. Et on travaille à la tension la plus basse possible.

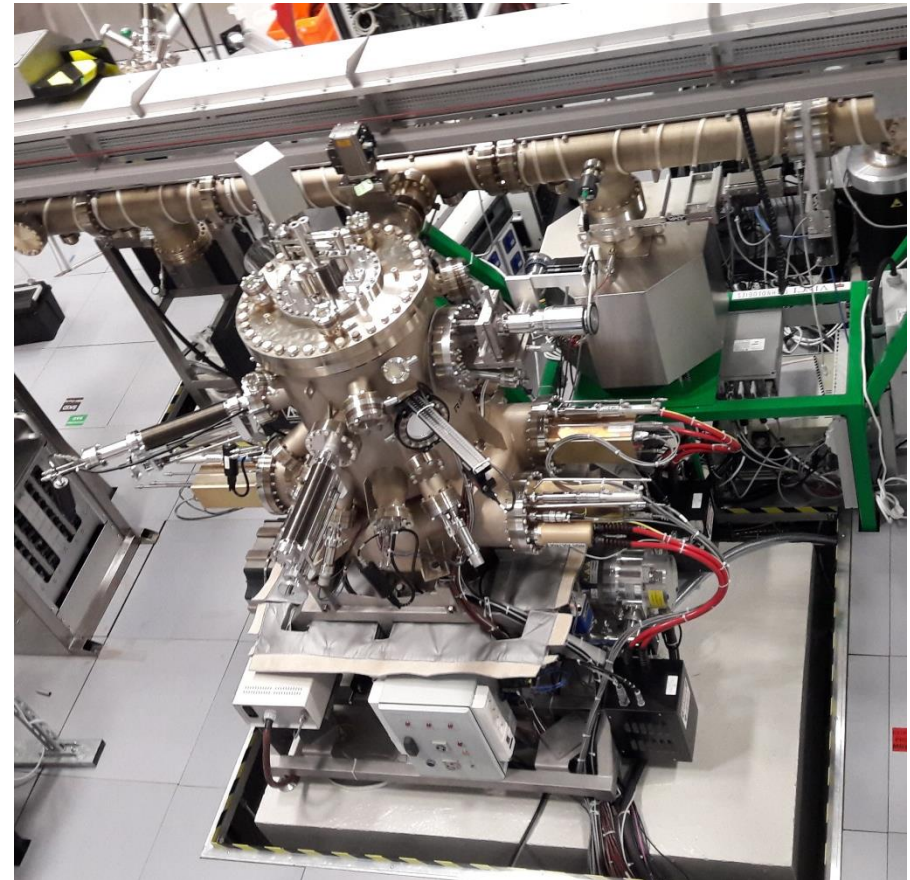
Aussi un outil très précieux pour des films polycristallins (pulvérisation cathodique) et très peu utilisé !!!



UHV tube 40m (+ 30m for industry): 23 experiments connected – 6 MBE, 1 PLD, 3 sputtering, 1 ALD, 3  $\mu$ scopes, 3 AES/Auger, 1 Kerr in situ, 1 Spin-resolved ARPES...



November 2017



June 2017 : A new RIBER  
MBE with 24 elements (3 e-  
gun 6 pockets, 6 cells) to  
grow ternary & quaternary  
Heusler