

Instabilités cinétiques de croissance, aspects expérimentaux

L. Douillard

CEA Saclay, DSM / DRECAM / SPCSI, F-91191 Gif sur Yvette, France

ldouillard@cea.fr

L'emploi d'instabilités cinétiques de croissance constitue un moyen élégant de structuration des surfaces à des échelles de l'ordre du nanomètre. Dans cet exposé, j'illustrerai, d'un point de vue expérimental, la mise en œuvre et l'étude de tels phénomènes d'auto-organisation dans le cas de la croissance par homoépitaxie de surfaces de monocristaux de cuivre.

Dans le cas d'une surface plane Cu(001), la croissance s'accompagne d'une augmentation significative de la rugosité, suite à l'occurrence d'une instabilité cinétique responsable de la **formation de structures pyramidales** pendant le dépôt. L'apparition de ces pyramides s'interprète par la prise en compte d'une barrière énergétique associée au franchissement des bords de marche, barrière à l'origine du confinement des adatoms aux îlots sur lesquels ils ont été déposés (barrière de Ehrlich-Schwöbel). La distance initiale entre ces pyramides correspond à la distance de nucléation dans le plan et montre une forte dépendance avec les paramètres flux et température.

Dans le cas de surfaces à marches, surfaces dites vicinales Cu(11n), l'existence de telles barrières cinétiques se traduit à basse température par un mode de croissance par écoulement de marches avec oscillations collectives (dans le plan) des fronts de marche suivant une longueur d'onde spécifique. Il s'agit de **l'instabilité de méandre**. A plus haute température, l'instabilité transverse de méandre fait place à une nouvelle instabilité dite **de mise en paquets des bords de marche** à l'origine d'un facettagage du train dans la direction d'avance des marches.

Observation of a growth instability during low temperature molecular beam epitaxy, H.-J. Ernst, F. Fabre, R. Folkerts, J. Lapujoulade, *Phys. Rev. Lett.* **72** (1994) 112

Kinetics of growth of Cu on Cu(100), H.-J. Ernst, F. Fabre, R. Folkerts, J. Lapujoulade, *J. Vac. Sci. Technol. A* **12** (1994) 1809

Evolution of Mound Morphology in Reversible Homoepitaxy on Cu(100), J.-K. Zuo, J.F. Wendelken, *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997) 2791

Wavelength selection in unstable homoepitaxial step flow growth, T. Maroutian, L. Douillard, H.-J. Ernst, *Phys. Rev. Lett.* **83** (1999) 4353

Morphological instability of Cu vicinal surfaces during step-flow growth, T. Maroutian, L. Douillard, H.-J. Ernst, *Phys. Rev. B* **64** (2001) 165401

Instabilités cinétiques de croissance, aspects expérimentaux

L. Douillard, ldouillard@cea.fr

CEA Saclay, DSM / DRECAM / SPCSI, F-91191 Gif sur Yvette, France

Instabilités morphologiques

Introduction – Exemples historiques

Outil de nanostructuration des surfaces

Moyens d'investigation expérimentaux

Techniques d'imagerie dans l'espace directe

Techniques de diffraction (espace réciproque)

Instabilités morphologiques de surfaces vicinales

Surfaces vicinales non reconstruites (système modèle)

Croissance par avancement de marches

Barrières de Ehrlich-Schwöbel...

Instabilité de méandre

Principe

Expérience Cu(1 1 n), Cu(0 2 24)

Mesures quantitatives: approche manuelle, traitement d'images

Caractérisation physique en flux, en température...

Instabilité de mise en paquets

Expérience Cu(1 1 n)

Caractérisation physique en flux, en température...

Surfaces vicinales reconstruites

Instabilité de méandre – Si(111)

Instabilité de mise en paquets – Si(111)

Instabilités morphologiques de surfaces de haute symétrie

Surfaces singulières non reconstruites

Croissance d'une surface singulière non reconstruite

Instabilité de monticules d'adatomes (via croissance) - Cu(001), Fe(001), Ag(001)...

Caractérisation physique: taille des pyramides, mûrissement...

Instabilité de monticules de lacunes (via abrasion)

Surfaces singulières reconstruites

Instabilité de monticules – Si(001), Ge(001), GaSb(001), InAs(001)...

Conclusion

Références bibliographiques

Instabilités morphologiques

Aspects expérimentaux – Introduction

Instabilités morphologiques = Phénomènes physiques spontanés d'auto-organisation spatiale:

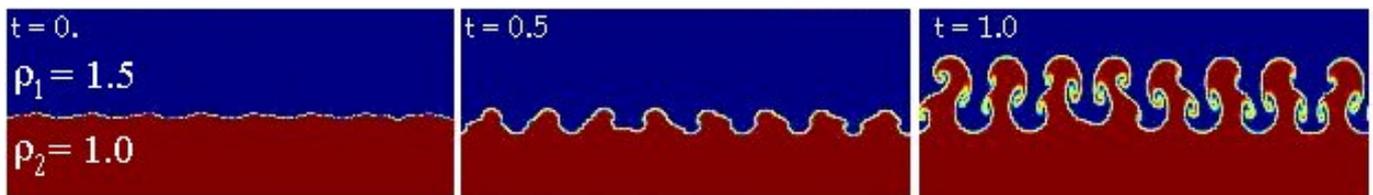
- Processus dynamiques hors équilibre,
- Manifestation de forces antagonistes à la frontière entre deux milieux,
- Auto-organisation spatiale spontanée de la région d'interface avec apparition d'une longueur d'onde intrinsèque λ .

Instabilité de Rayleigh (1883) – Taylor (1950)

Superposition de deux fluides de densités différentes, fluide dense au-dessus.

- . **minimisation de l'énergie potentielle – action déstabilisatrice,**
- . **minimisation de la longueur du front – action stabilisatrice.**

➤ Instabilité morphologique du front entre les deux fluides – occurrence d'une structure cellulaire de longueur d'onde λ .



— temps —>

Los Alamos National Lab.

- . Astronomie: supernova, nébuleuses (gaz chaud en expansion)...
- . Géologie: tectonique des plaques...
- . Météorologie...

Instabilité de Turing

A.M. Turing, *Phil. Trans. Roy. Soc. London B* **237** 37 (1952)

. Chimie: *systèmes réaction-diffusion* (mécanismes réaction^{els} à 2 espèces: activateur, inhibiteur de coefficients de diffusion différents, $D_{inh.} \gg D_{act.}$).

➤ Auto-organisation spatiale spontanée des concentrations des espèces chimiques.

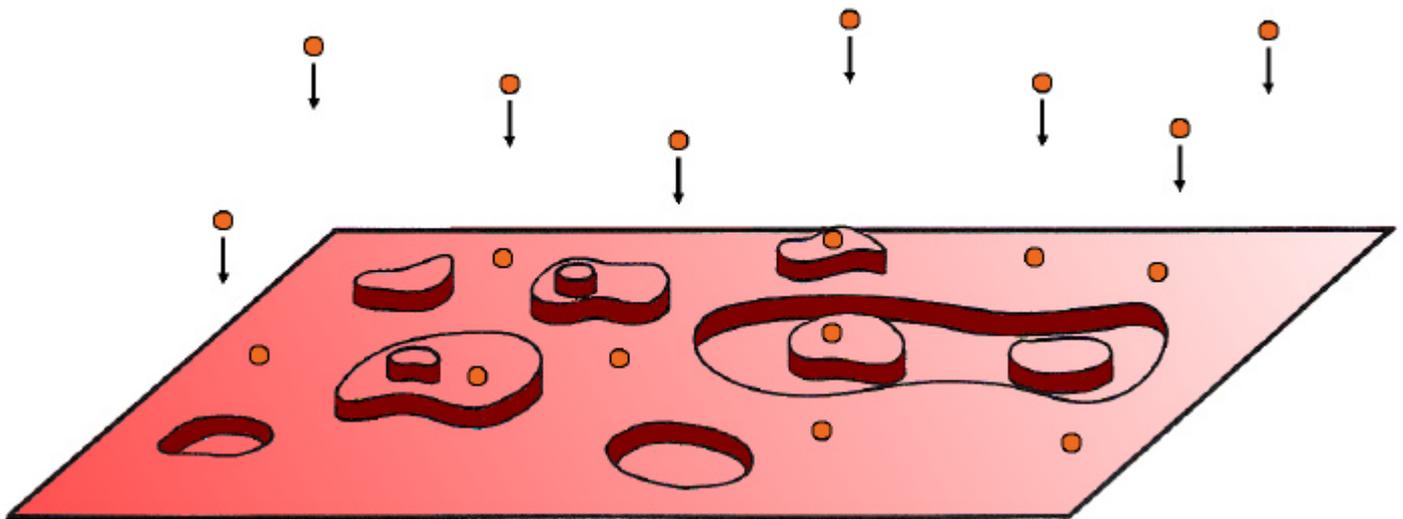
<http://www.crpp.u-bordeaux.fr/>

Instabilités morphologiques & Physique de l'état condensé

Processus dynamiques hors équilibre

& Physique de l'état condensé

➤ Croissance (resp. sublimation) d'un solide à partir de briques élémentaires: adatoms, molécules...



d'après *J. Phys. I* 1 (1991) 19

Milieu 1 = Solide,

Milieu 2 = Gaz 2D d'adatoms, de molécules, présents en surface,

Front de croissance entre la phase solide et le gaz 2D d'adatoms = Surface (îlots, marches...),
= Fronts de marche

➤ **Instabilités morphologiques** = Auto-organisation spatiale de la surface.

Perspectives

➤ **Instabilités morphologiques** = **Outil de nanostructuration 2D des surfaces.**

Instabilités morphologiques

Outil de nanostructuration des surfaces

Instabilités morphologiques = Outil de nanostructuration bidimensionnel des surfaces.

➤ Contrôler les processus cinétiques d'auto-organisation

I. Choix de la surface support - Morphologie de surface

Paramètres de contrôle

Surfaces à marches (vicinales)

Largeur de terrasse ℓ [L^2]
Orientation des marches $\langle hkl \rangle$

Surfaces planes

Indices de Miller (hkl)

II. Processus d'auto-organisation par ajout de matière

Paramètres de contrôle

Croissance par homoépitaxie

Température échantillon T [K],
Flux d'atomes F [atomes/ L^2/s]

III. Processus d'auto-organisation par retrait de matière

Paramètres de contrôle

Sublimation

Température échantillon T [K]

Abrasion (bombardement ionique)

Flux des ions F [ions/ L^2/s],
Énergie des ions E [eV],
Angle d'incidence des ions θ [°]
Température échantillon T [K]

III. Processus d'auto-organisation par déplacement de matière

Paramètres de contrôle

Diffusion + électromigration

Température échantillon T [K]
Courant échantillon I [A]
Orientatⁿ du courant I / marches

Instabilités morphologiques

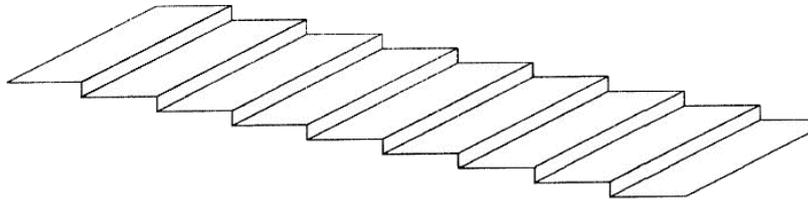
Outil de nanostructuration des surfaces

À quoi s'attendre ?

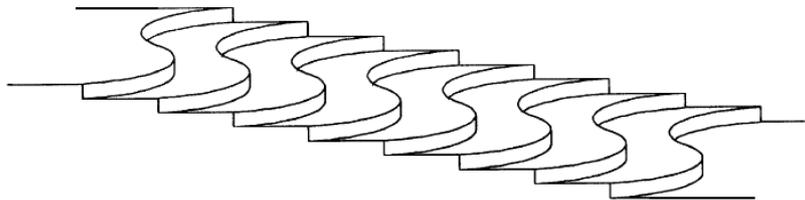
Exemple:

- Morphologie de départ = Surface à marches (vicinale),
- Croissance par homoépitaxie (MBE),
- Nanostructurations de surface possibles.

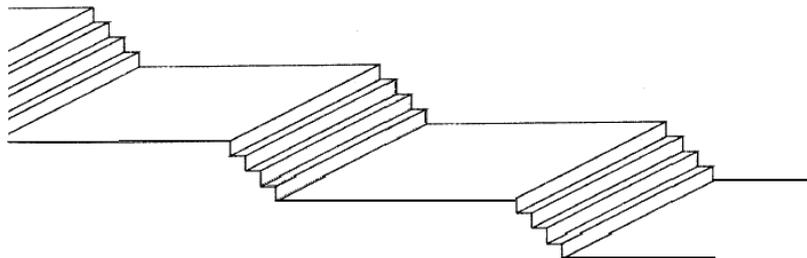
Ecoulement de marches



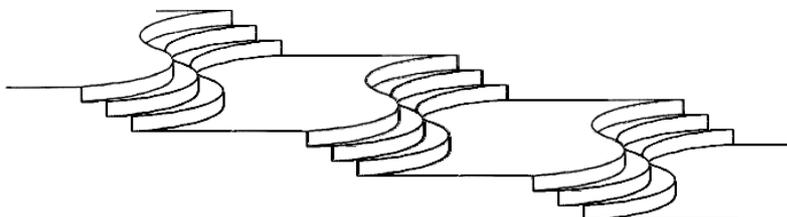
Instabilité de méandre



Instabilité de mise en paquets des marches



Instabilité de mise en paquets + méandre



Instabilités morphologiques

Moyens d'investigation expérimentaux

Techniques d'imagerie dans l'espace direct (100 μm – 10 nm).

➤ Réaliser un examen direct de la morphologie pendant, voire après le processus d'auto-organisation de la surface.

Microscopies électroniques.

.Microscope électronique à balayage MEB - *scanning electron microscope* SEM.

Imagerie par émission d'électrons secondaires (e^-).

.*Reflection electron microscope* REM.

Imagerie par analyse d' e^- rétrodiffusés élastiquement (haute énergie) sous incidence rasante.

.Microscope à électrons lents - *low energy electron microscope* LEEM.

Imagerie par analyse des e^- diffractés élastiquement (basse énergie).

Microscopies à champ proche.

.Microscope à effet tunnel - *scanning tunneling microscope* STM.

Imagerie par effet tunnel (pointe - échantillon).

.Microscope à force atomique - *atomic force microscope* AFM.

Imagerie par mesure de la force (pointe - échantillon).

Points forts:

- Sondes topographiques locales = marches atomiques...

Hautes résolutions spatiales \in [0.1 nm, 100 nm],

- Imageries temps réel (MEB, REM, LEEM).

Points faibles:

- Sondes topographiques locales, Faibles champ de vue \in [10 nm, 100 μm], Nombre de points de mesure important.

- Imageries post-mortem (STM, AFM).

Instabilités morphologiques

Moyens d'investigation expérimentaux

Techniques de diffraction (espace réciproque).

➤ Réaliser un examen indirect (espace réciproque) de la morphologie pendant, voire après le processus d'auto-organisation de la surface.

Diffraction d'électrons

Diffraction d'électrons rapides – *reflection high energy electron diffraction* RHEED.

Diffraction d'électrons lents - *low energy electron diffraction* LEED, *spot profile analysis* SPA-LEED...

Diffraction d'atomes

Diffraction d'hélium – *helium atom scattering* HAS

Diffraction de photons

Diffraction X - X-ray scattering XAS,
Diffraction de lumière – Light scattering...

Points forts:

Information moyenne à l'échelle du spot de la sonde,
Spectrométries temps réel.

Points faibles:

Faibles longueur de cohérence LEED, HAS ~ 10 - 15 nm

Instabilités morphologiques

Moyens d'investigation expérimentaux

➤ Méthodes expérimentales - Diffraction d'atomes He HAS.

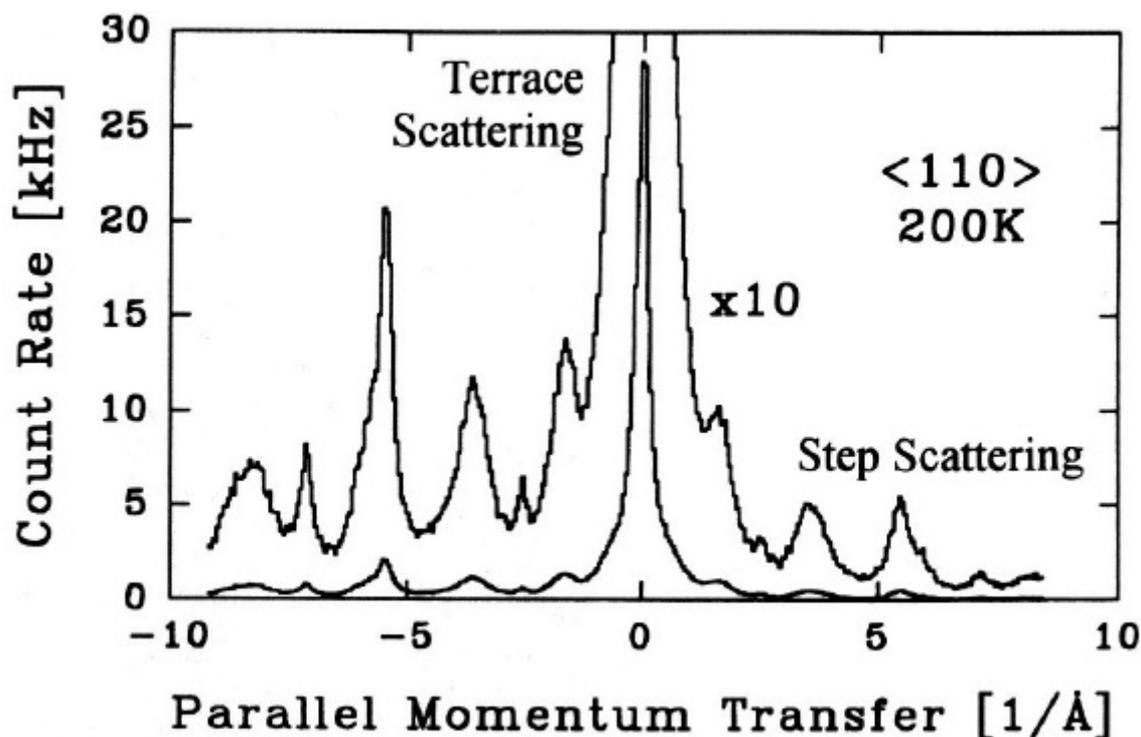
Diffraction d'un faisceau He atomique monocinétique par une surface.

Sensible au seul plan de surface,

Sonde électriquement neutre (pas de perturbation),

Grandes sections efficaces vis-à-vis des marches, des défauts...

Non destructive.



➤ Suivi *in situ* au cours du dépôt de la corrélation latérale des marches monoatomiques d'une surface.

Instabilités morphologiques

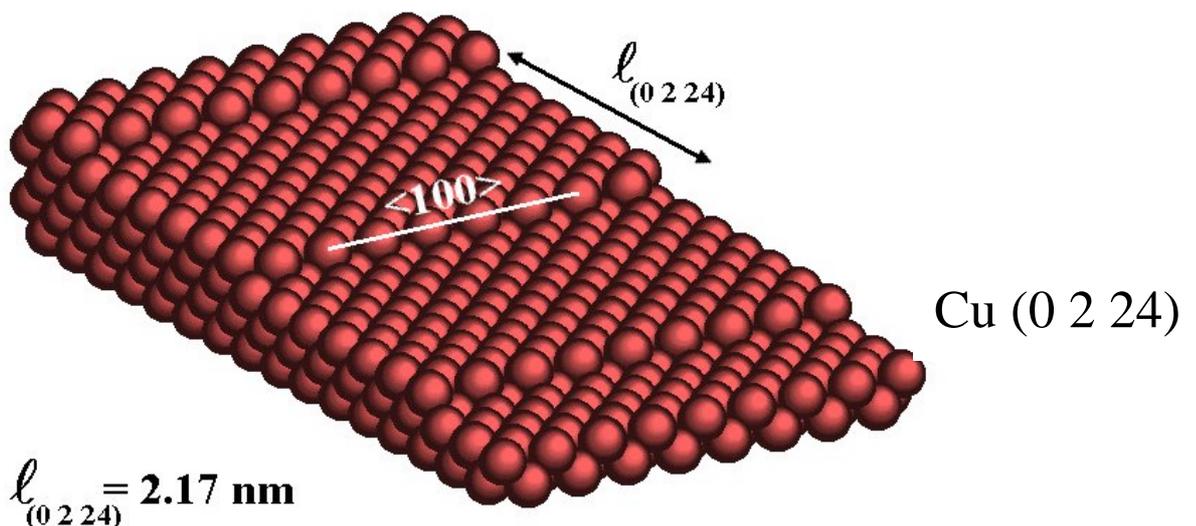
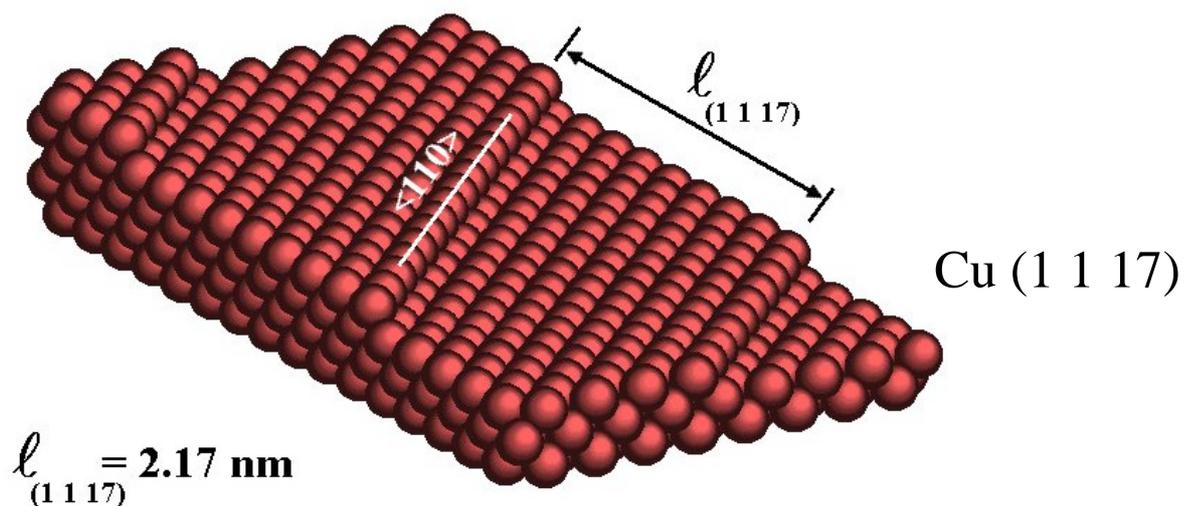
Surfaces vicinales modèles

Surfaces vicinales

➤ Surfaces à marches rectilignes périodiques obtenues par désorientation d'un angle θ / à un plan dense,
 $\tan \theta = \text{Hauteur marche } h / \text{Largeur terrasse } \ell$

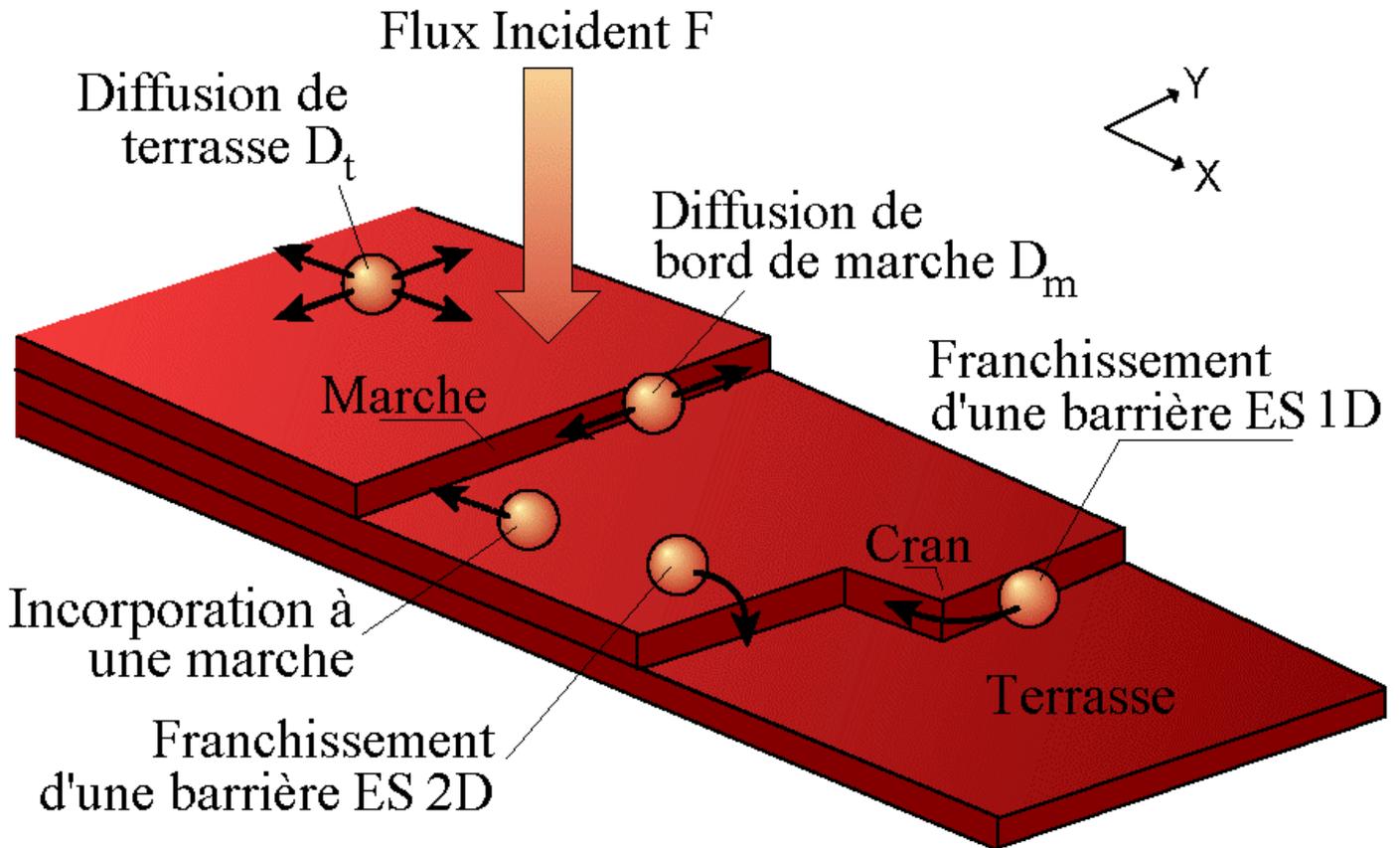
➤ Surfaces vicinales non reconstruites = Surfaces modèles
Diffusion isotrope

➤ Cu (1 1 17) & Cu (0 2 24) 1 Largeur de terrasse ℓ ,
Désorientation $\theta \sim 4.76^\circ$,
2 Orientations de marche (45°)



Surfaces vicinales idéales

Croissance par avancement de marches



Croissance d'une surface vicinale par homoépitaxie (MBE)

- Dépôt d'atomes à partir du flux incident F ,
- Diffusion D_t d'adatoms sur les terrasses,
- Pas de nucléation sur les terrasses,
- Incorporation des adatoms aux fronts de marche préexistants,

J.A. Venables, G.D.T. Spiller, M. Hanbücken, *Rep. Prog. Phys.* **47** (1984) 399

- **Asymétries** au niveau de l'incorporation des adatoms à un front de marche en raison de l'existence de **barrières de Ehrlich-Schwöbel (ES)**.

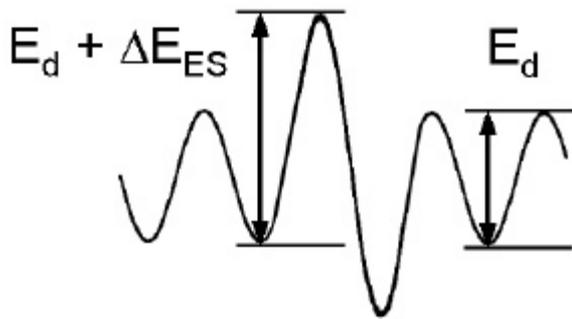
R.L. Schwöbel, E.D. Shipsey, *J. Appl. Phys.* **37** (1966) 3682

Surfaces vicinales

Barrières de Ehrlich-Schwöbel

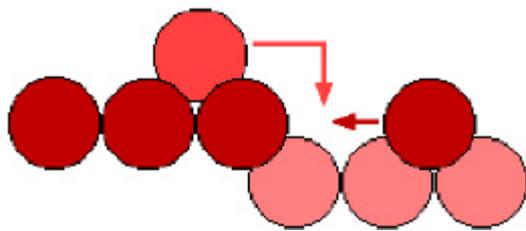
Barrières de Ehrlich-Schwöbel (ES)

➤ Barrière Ehrlich-Schwöbel associée à un front de marche (barrière ES 2D),



Surface vicinale - Vue de profil

E_d barrière de diffusion sur la terrasse,
 ΔE_{ES} barrière ES 2D

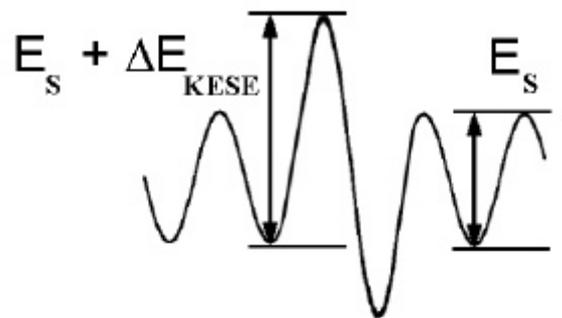


➤ Barrière au franchissement (haut → bas) d'une marche.

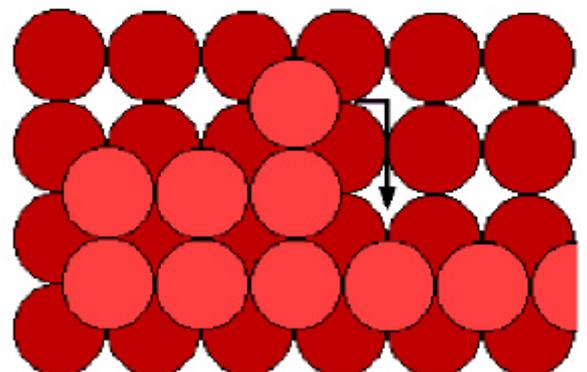
➤ Barrière Ehrlich-Schwöbel associée à une position cran d'un front de marche (barrière ES 1D).

Surface vicinale - Vue aérienne

E_s barrière de diffusion le long du front de marche,
 ΔE_{KESE} barrière ES 1D



➤ Barrière au franchissement d'une position cran.

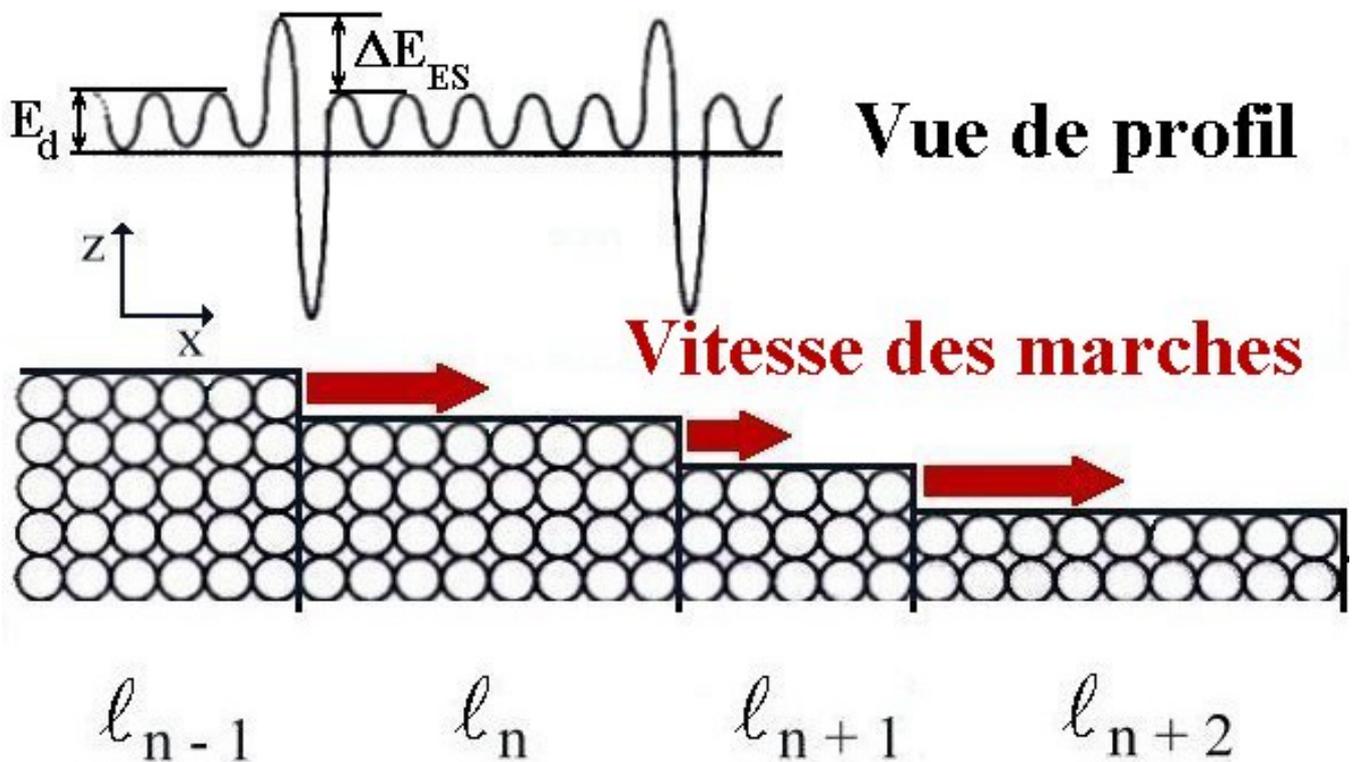


Surfaces vicinales idéales

Croissance par avancement de marches

Croissance d'une surface vicinale idéale dans la direction du train de marches X (modèle de croissance 1D)

- Fronts de marche rectilignes,
- Problème monodimensionnel de paramètre ℓ .



En présence d'une barrière de Schwöbel 2D:

- Attachement préférentiel aux marches ascendantes,
- Uniformisation des largeurs de terrasse ℓ ,

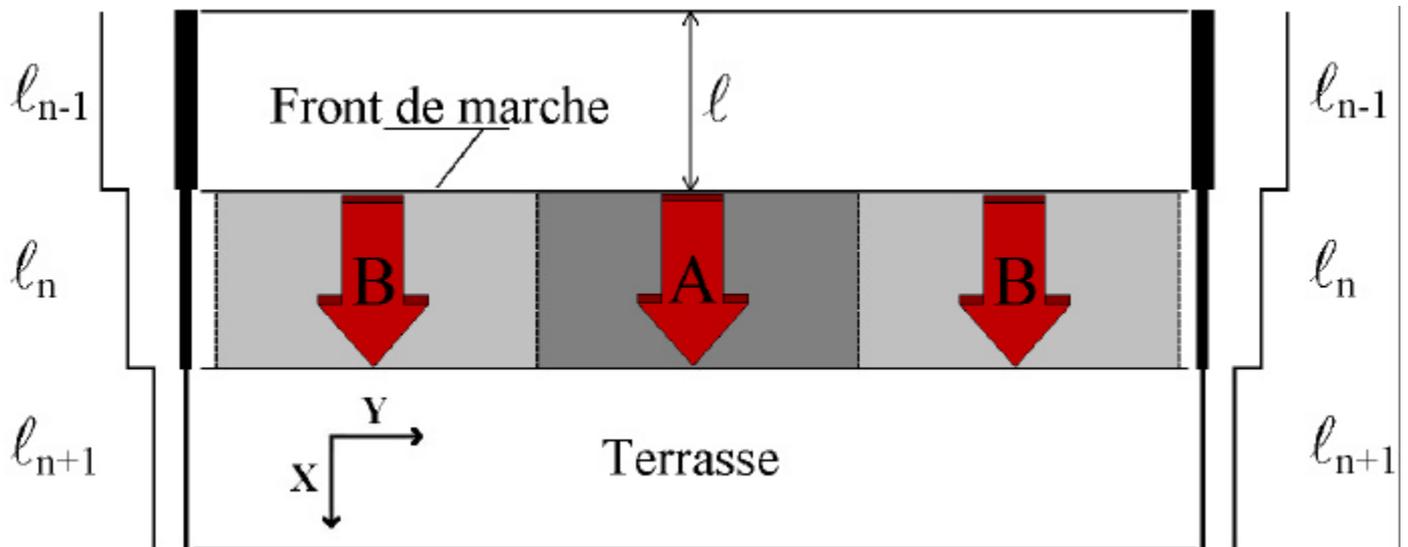
R.L. Schwöbel, E.D. Shipsey, *J. Appl. Phys.* **37** (1966) 3682

➤ Croissance stable par écoulement de marches suivant la direction du train de marches X (« *step flow growth* »).

Surfaces vicinales réelles - Instabilité de méandre

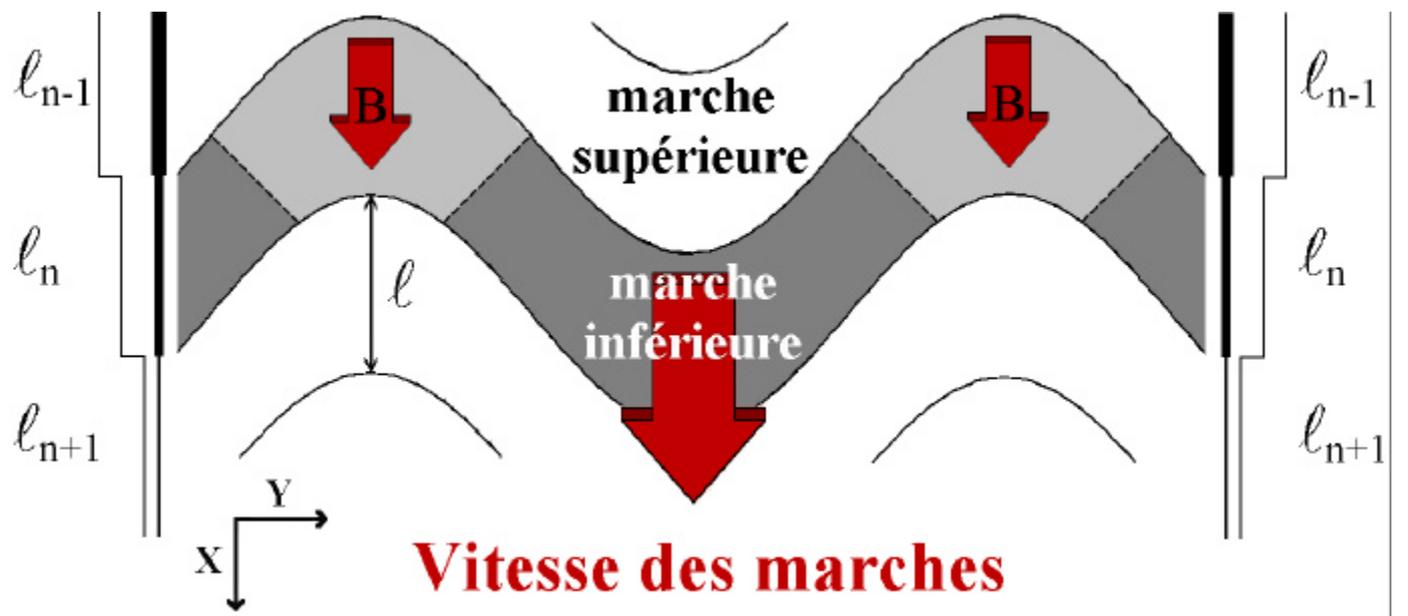
Surfaces vicinales idéales (modèle de croissance 2D)

- Fronts de marche rectilignes,
- Forte barrière Ehrlich Schwöbel 2D (de marche).



Surfaces vicinales réelles

- Fronts de marche non rectilignes,
- Problème bidimensionnel: ($l(X)$, front de marche(Y)).



En présence d'une barrière de Schwöbel DE_{ES} (de marche):

- Croissance préférentielle des protubérances du front de marche. - **Force motrice de l'instabilité de méandre.**

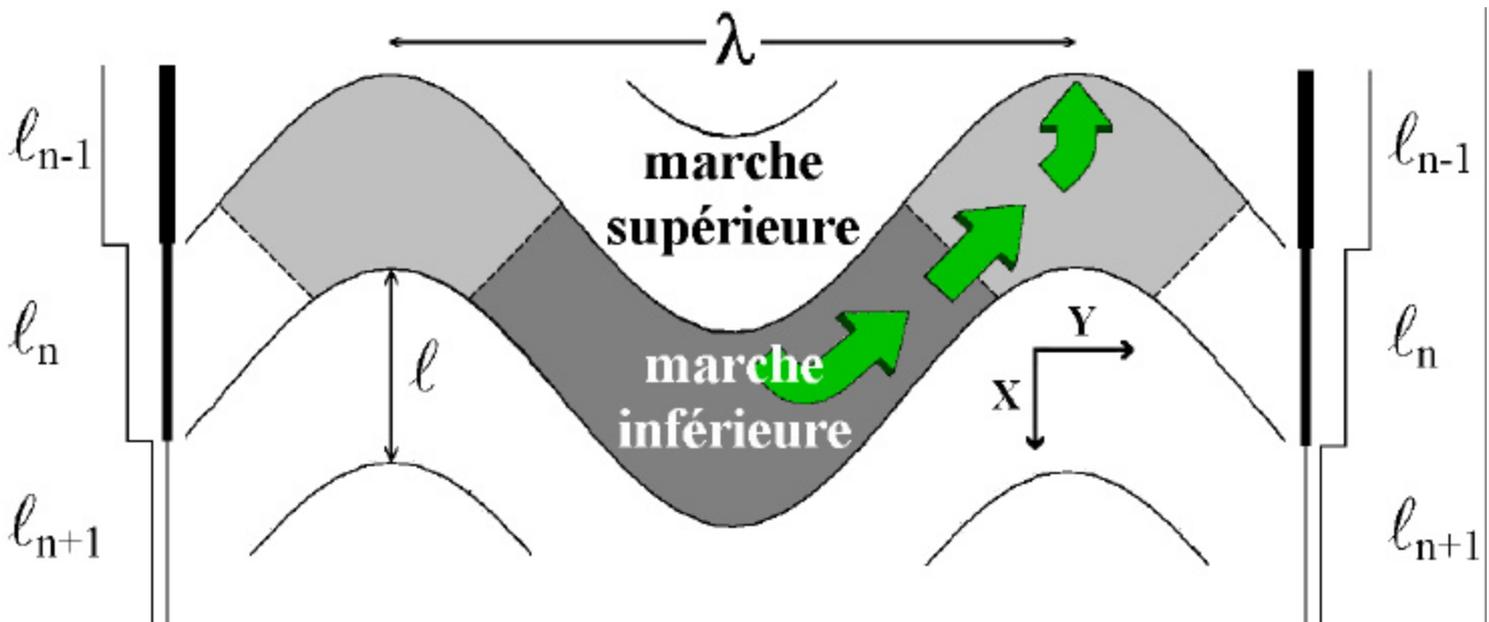
Surfaces vicinales réelles - Instabilité de méandre

Surfaces vicinales réelles.

➤ En présence d'une barrière de Schwöbel, croissance préférentielle des protubérances du front de marche. - **Force motrice de l'instabilité de méandre.**

➤ **Fronts de marche hors équilibre.**

➤ Activation de mécanismes de lissage des protubérances du front de marche. - **Force stabilisatrice de l'instabilité de méandre (diffusion de terrasse, diffusion de ligne...).**

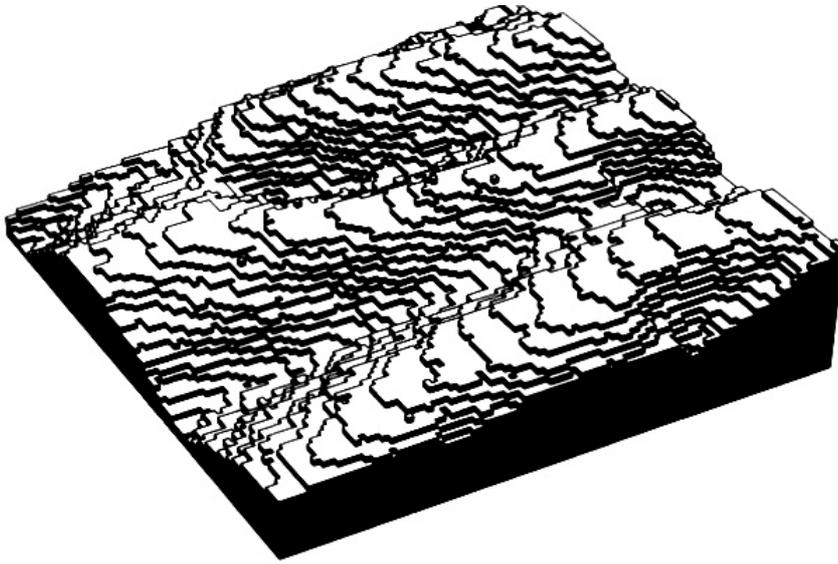


- 1) **Croissance des protubérances du front de marche,**
- 2) **Lissage des protubérances du front de marche.**

⊕ Apparition d'une longueur d'onde intrinsèque l .
⊕ Instabilité de méandre, de Bales-Zangwill.

Instabilité de méandre - Théorie non linéaire

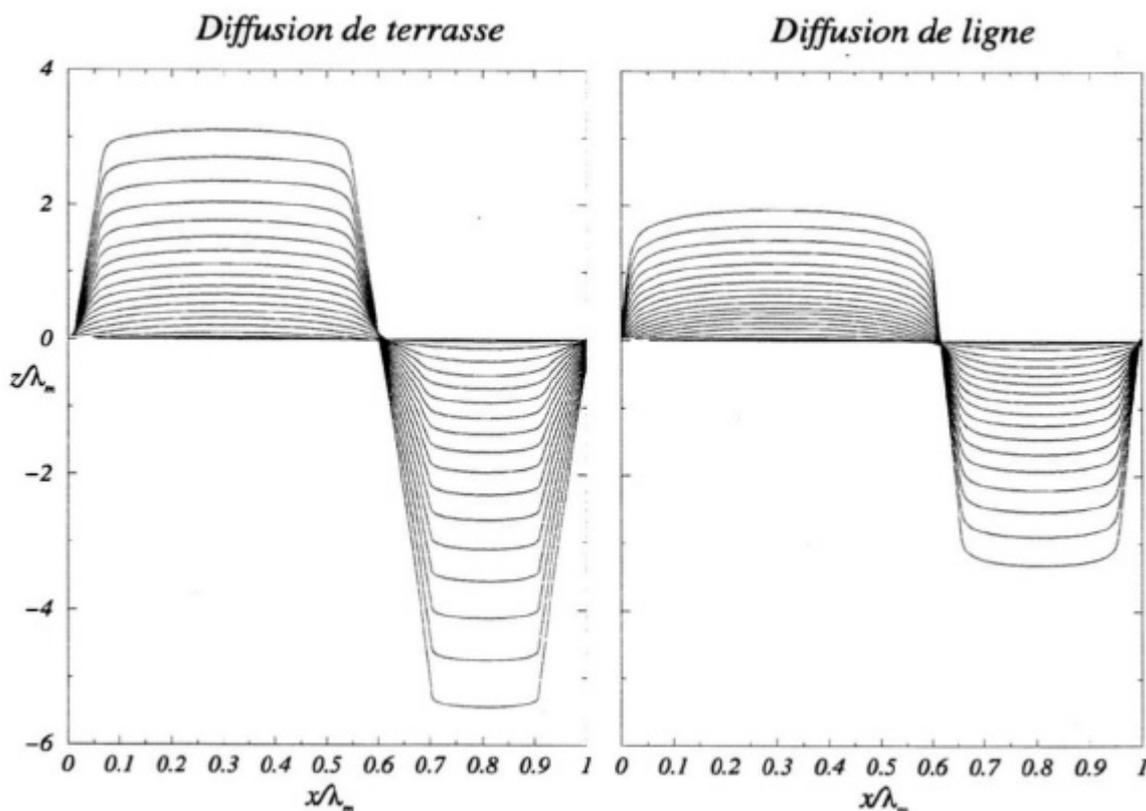
➤ Simulation Solid On Solid (Monte-Carlo)



Surface vicinale,
 $\theta = 80$ MC.

M. Rost, P. Smilauer,
J. Krug, *Surf. Sci.*
369 (1996) 393

➤ Dynamique non linéaire de surfaces vicinales hors de l'équilibre (description analytique non linéaire)



Morphologie d'une cellule d'un front de marche pendant la croissance.

F. Gillet, O. Pierre-Louis, C. Misbah, *Eur. Phys. J. B* **18** (2000) 519
Thèse F. Gillet, Université Joseph Fourier - Grenoble - Novembre 2000

Croissance de Cu(1 1 17) par avancement de marches Surface vicinale vierge

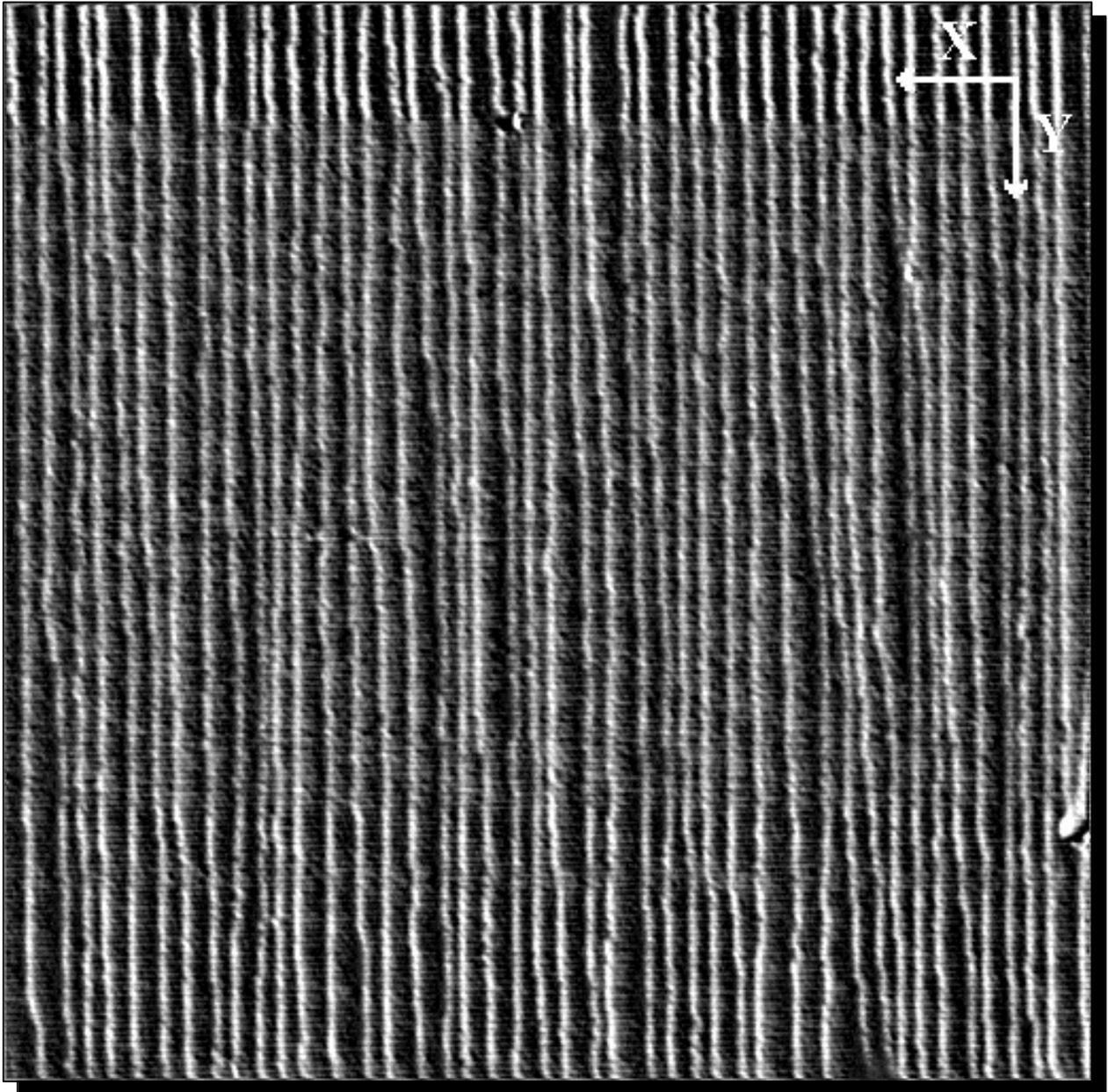


Image STM Cu(1117) (95 nm)², $I_{\text{tun.}} = 1$ nA, $\Delta V_{\text{tun.}} = -0.3$ V, Température d'enregistrement 276 K (temp. ambiante).

Surface vierge Cu(1 1 17) avant croissance

- Largeur moyenne des terrasses $\ell = 2.17$ nm,
- Fronts de marche rectilignes et compacts $\langle 110 \rangle$.

Croissance de Cu(1 1 17) par avancement de marches Instabilité de méandre

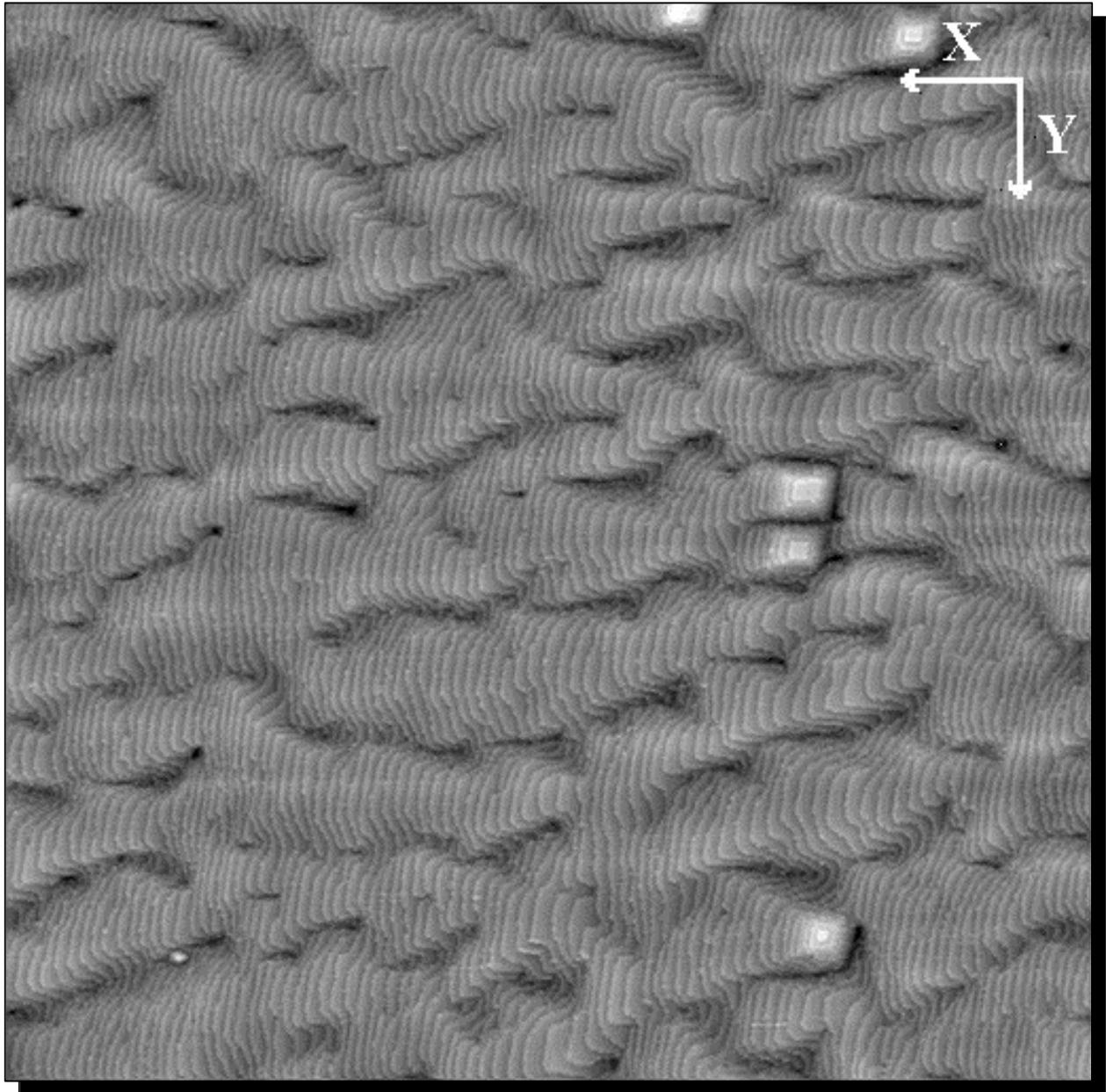


Image STM Cu(1117) (200 nm)², $I_{\text{tun.}} = 1 \text{ nA}$, $\Delta V_{\text{tun.}} = -1 \text{ V}$, Température d'enregistrement 150 K (morphologie trempée).

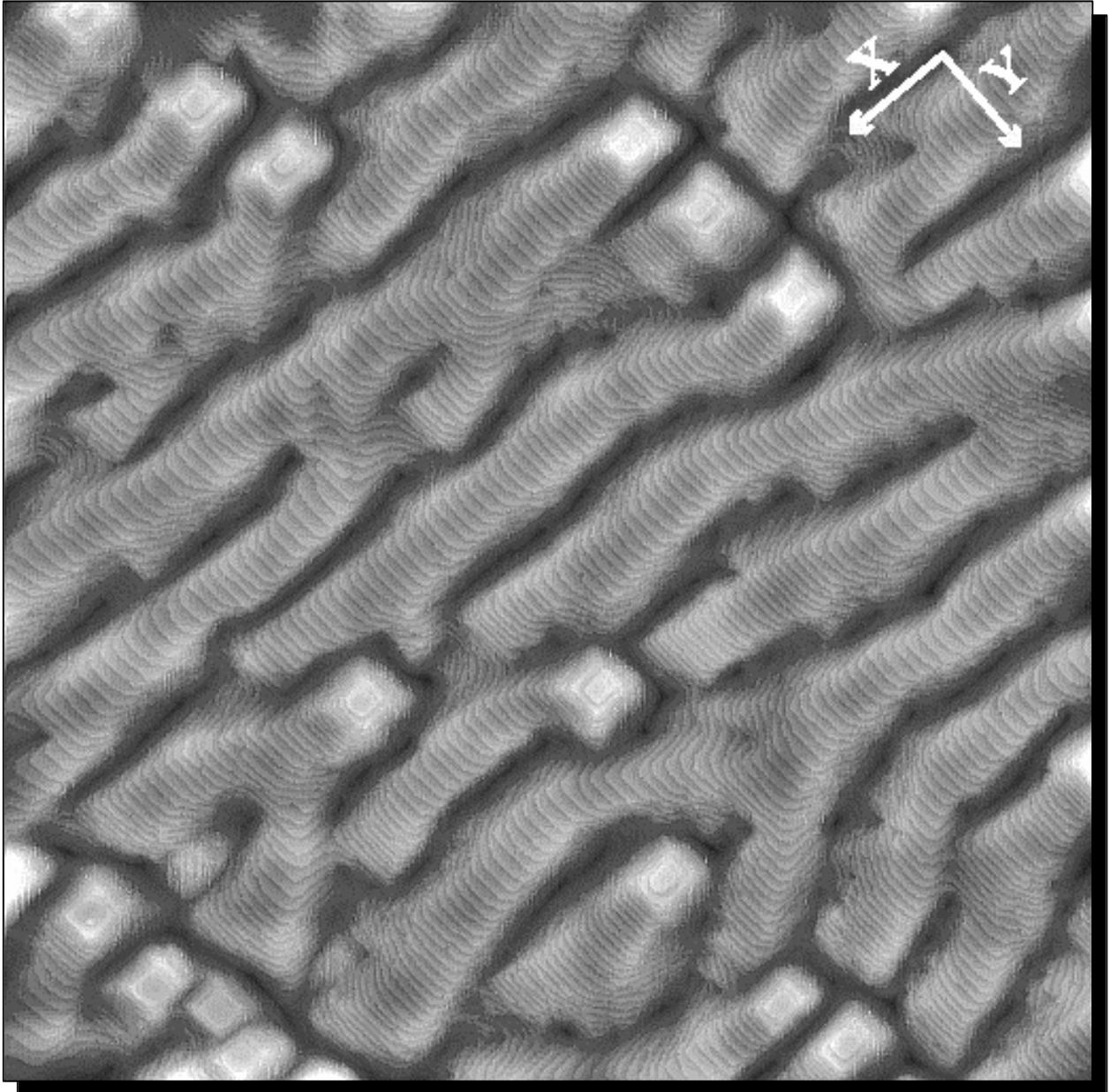
Surface Cu(1 1 17) après croissance MBE

➤ $\theta = 18 \text{ MC}$, Flux $F = 0.018 \text{ MC/s}$, Temp. du substrat $T = 286 \text{ K}$.

➤ Instabilité de méandre

- .Largeur moyenne des terrasses inchangée $\ell = 2.17 \text{ nm}$,
- .Marches méandrées en phase (créneaux),
- .Fronts de marche compacts $\langle 110 \rangle$.

Croissance de Cu(1 1 17) par avancement de marches Instabilité de méandre – Taux de couverture q



**Image STM Cu(1117) (200 nm^2), $I_{\text{tun.}} = 0.5 \text{ nA}$, $\Delta V_{\text{tun.}} = -0.5 \text{ V}$,
Température d'enregistrement 150 K (morphologie trempée).**

Surface Cu(1 1 17) après croissance MBE

- $\theta = 80 \text{ MC}$, Flux $F = 0.018 \text{ MC/s}$, Temp. du substrat $T = 293 \text{ K}$,
- Instabilité de méandre.

Amélioration de la définition spatiale de l'instabilité BZ:

- // aux fronts de marche, i.e. corrélation latérale,
- \perp aux fronts de marche, i.e. corrélation de phase.

Croissance de Cu(1 1 17) par avancement de marches Instabilité de méandre

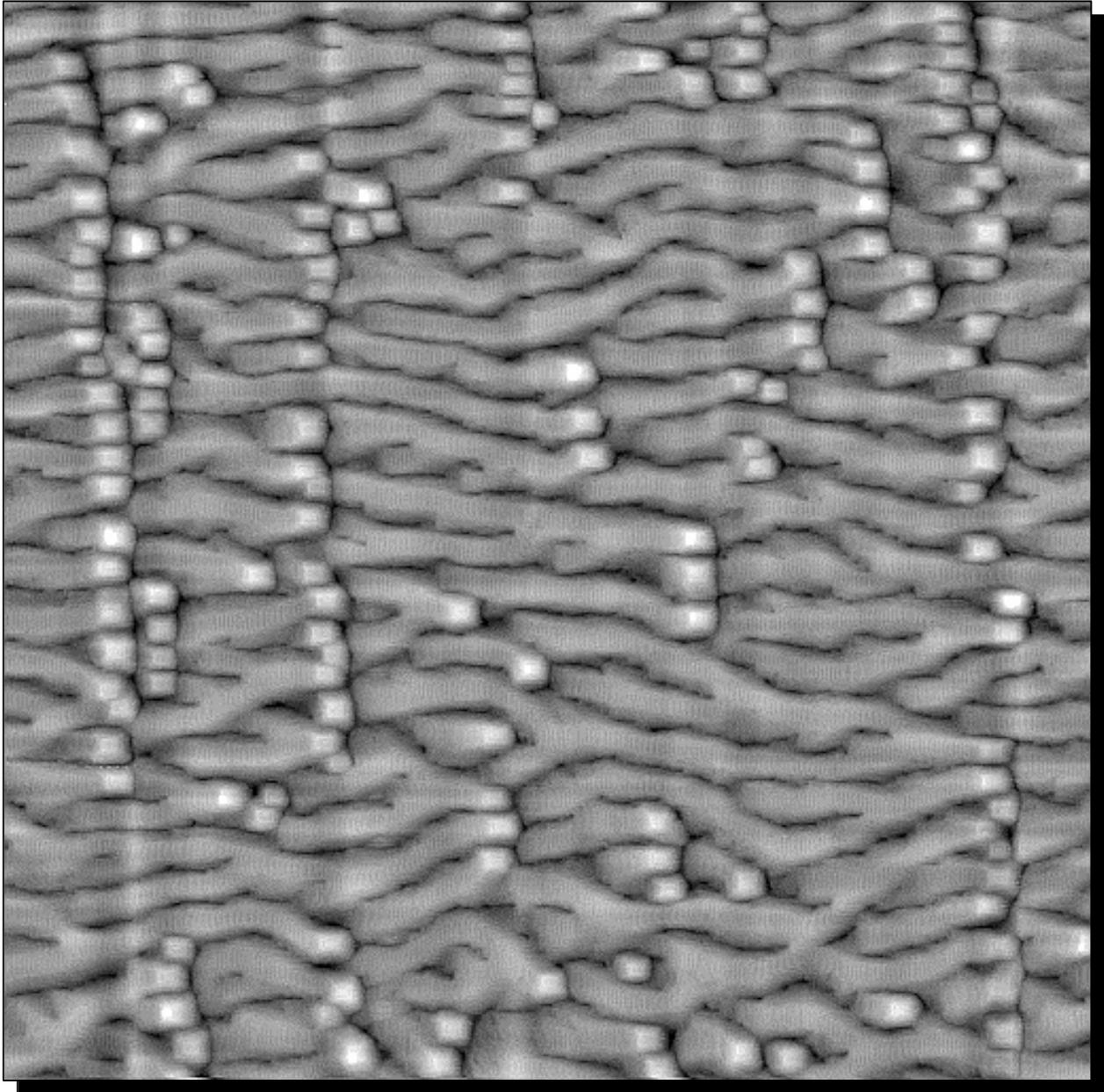


Image STM Cu(1117) (500 nm^2), soit $(0.5 \text{ }\mu\text{m})^2$, $I_{\text{tun.}} = 0.5 \text{ nA}$, $\Delta V_{\text{tun.}} = -0.5 \text{ V}$,
Température d'enregistrement 150 K (morphologie trempée).

Surface Cu(1 1 17) après croissance MBE

- $\theta = 80 \text{ MC}$, Flux $F = 0.018 \text{ MC/s}$, Temp. du substrat $T = 293 \text{ K}$,
- Instabilité de méandre.

Croissance de Cu(0 2 24) par avancement de marches Instabilité de méandre

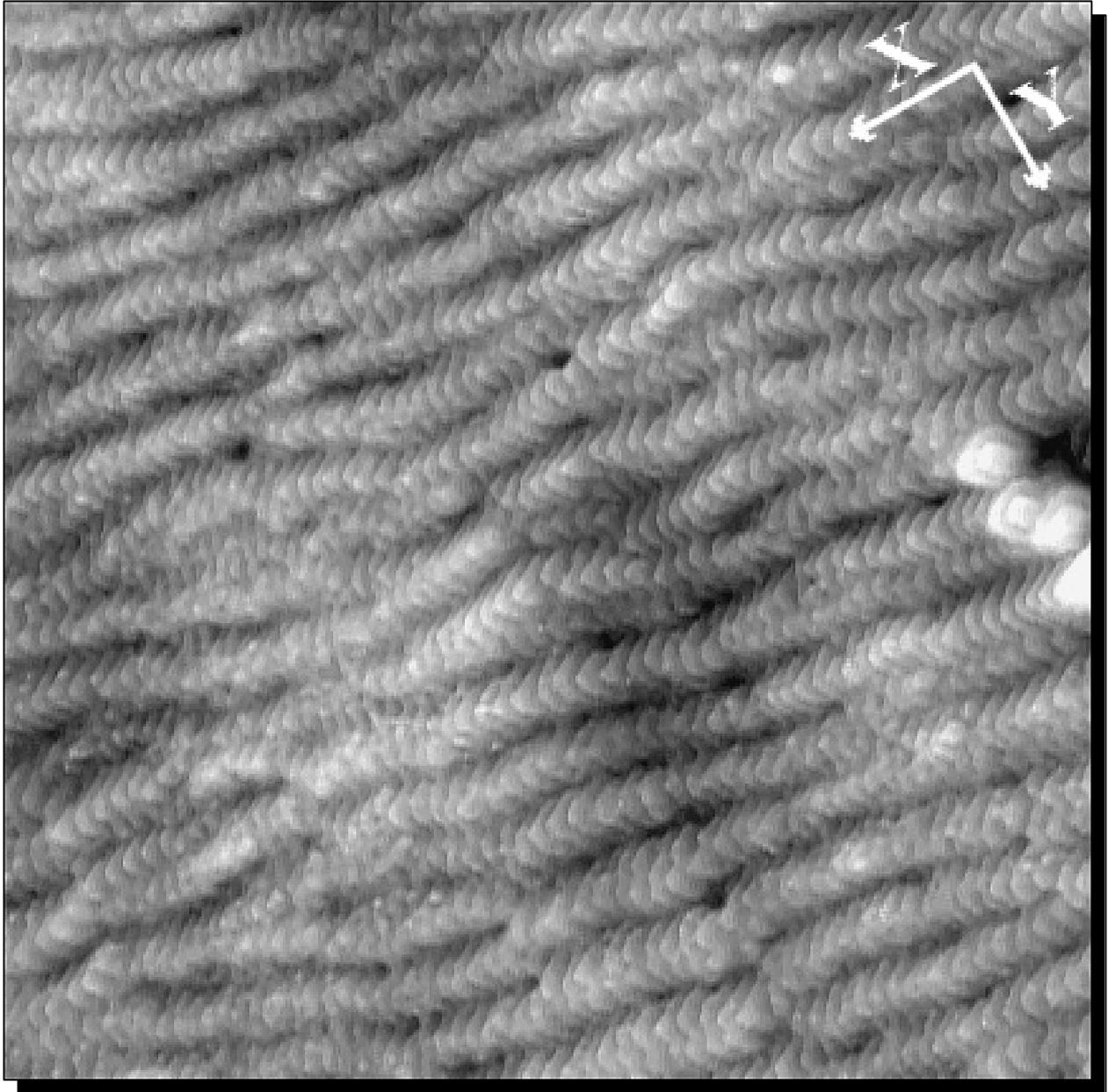


Image STM Cu(0224) (130 nm)², $I_{\text{tun.}} = 0.5$ nA, $\Delta V_{\text{tun.}} = -0.5$ V,
Température d'enregistrement 150 K (morphologie trempée).

Surface Cu(0 2 24) après croissance (MBE)

- $\theta = 20$ MC, Flux $F = 0.003$ MC/s, Temp. du substrat $T = 250$ K.
- Instabilité de méandre
 - .Largeur moyenne des terrasses inchangée $\ell = 2.17$ nm,
 - .Marches méandrées en phase (triangles),
 - .Fronts de marche compacts $\langle 110 \rangle$.

Instabilités morphologiques – Mesures quantitatives

Paramètres physiques pertinents (croissance).

- Morphologie de la surface (orientation, symétrie, angle de désorientation): indices de Miller (hkl),
- Température du substrat T [K],
- Flux d'atomes incident F [atomes/L²/s],
- Taux de couverture θ [MC],
- Présence d'adsorbats.

Mesures morphologiques (Imagerie AFM, STM)

Grandeurs physiques mesurables: rugosité verticale W, dimensions latérales, l'orientation des objets remarquables (**méandre**, facette, monticule)...

- Analyse statistique des images de surface $h(r)$: écart-type des hauteurs, corrélations hauteur-hauteur C(R)...
- Comparaison avec modèles de croissance.

Mesures cinétiques (Diffraction HAS, SPA-LEED)

Grandeurs physiques mesurables: rugosité verticale W, dimensions latérales, l'orientation des objets remarquables (**méandre**, facette, monticule)...

- Analyse des profils de spot de diffraction SPA-LEED, des symétries de diagrammes de diffraction...
- Comparaison avec modèles de croissance.

- **Détermination des processus cinétiques pertinents.**

Instabilité de méandre

Mesures morphologiques: période, amplitude...

Caractérisation quantitative de l'instabilité de méandre

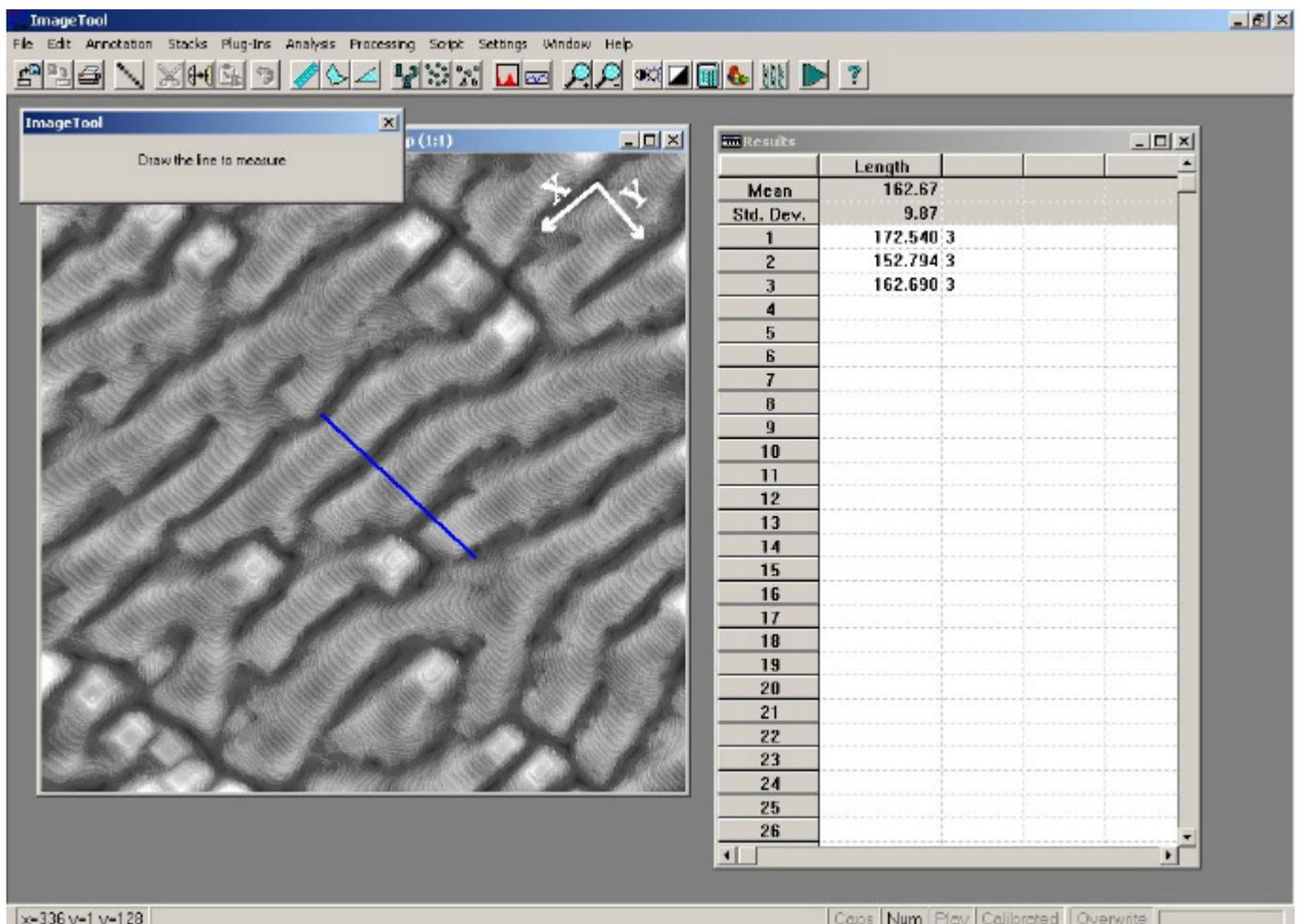
- Grandeurs physiques mesurables: période du méandre λ , amplitude du méandre A , rugosité verticale W ...
- **Mesures manuelles** via l'utilisation d'algorithmes gratuits (domaine public) ou commerciaux.

Gratuits disponibles (« freeware » PC, Mac, Unix...).

UTHSCSA Image Tools for Windows, ddsdx.uthscsa.edu/,
Scion Image for Windows, www.scioncorp.com/ (NIH Image),
NIH Image (MacIntosh) rsb.info.nih.gov/

...

Exemple: Mesure de la période d'un méandre via ImageTool



Instabilité de méandre

Mesures morphologiques: période, amplitude

Caractérisation quantitative de l'instabilité de méandre

- Grandeurs physiques mesurables: période du méandre λ , amplitude du méandre A ...
- **Mesures automatiques** via un algorithme de traitement d'images

Fonction de Corrélation Hauteur-Hauteur $C(R)$

Considérons une surface de profil $h(\vec{r})$, et de hauteur moyenne \bar{h} :

$$C(R) = \left\langle \left\langle (h(\vec{r}) - \bar{h})(h(\vec{r} + \vec{R}) - \bar{h}) \right\rangle_{|\vec{R}|=R} \right\rangle_{\vec{r}}$$

Dans le cas de mesures STM/AFM, le calcul de la fonction de corrélation hauteur-hauteur est réalisé suivant la direction de balayage rapide, de sorte à éliminer les problèmes de dérive de l'instrument (thermique...):

$$C(R) = \frac{1}{N_y} \frac{1}{N_x - R} \sum_{y=1}^{N_y} \sum_{x=1}^{N_x - R} (h(x, y) - \bar{h}) \cdot (h(x + R, y) - \bar{h})$$

R : Pas distance de corrélation [L],

N_x nombre de colonnes de l'image (direction de balayage rapide) [\emptyset],

N_y nombre de lignes de l'image [\emptyset].

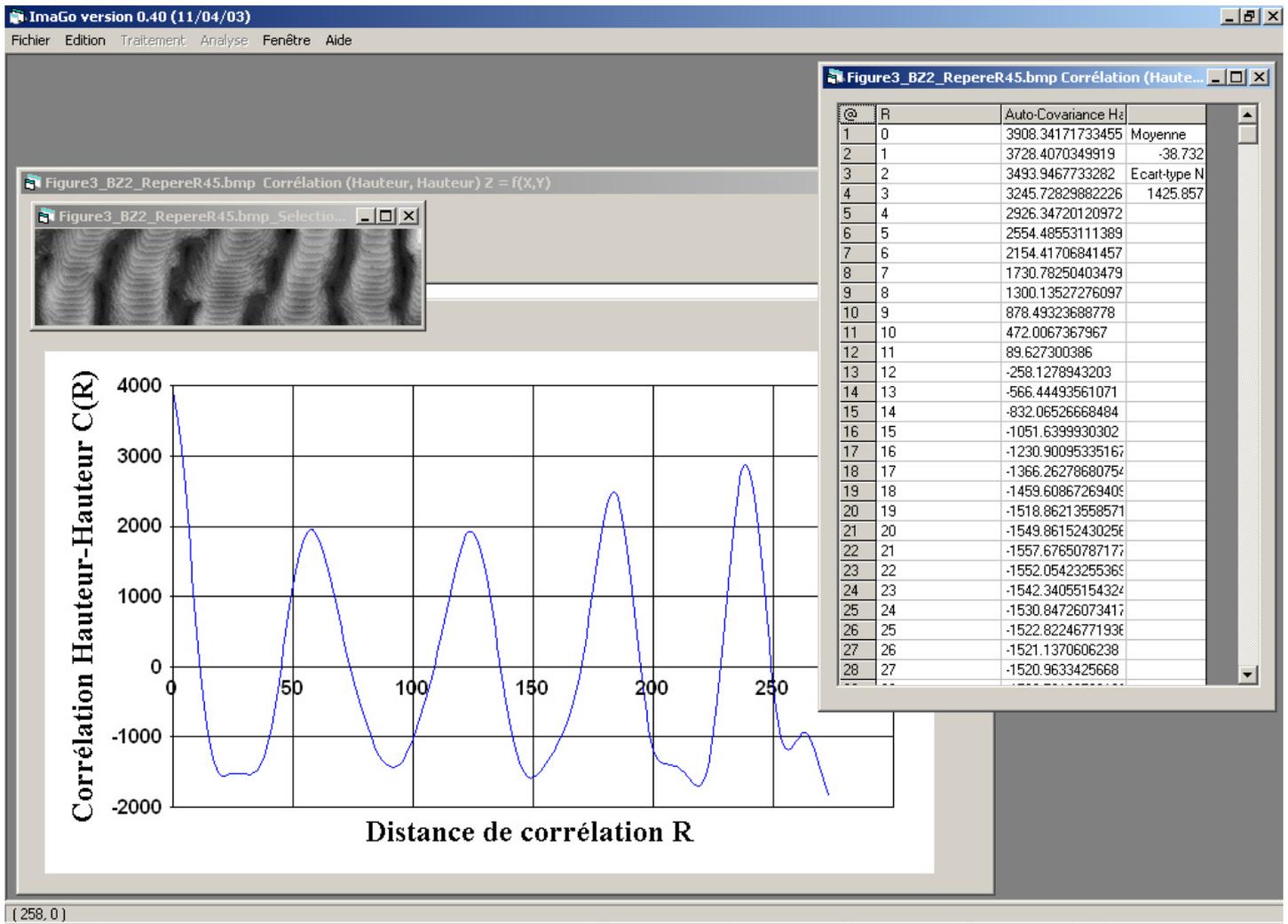
- Accès aux distances de corrélation présentes au niveau de l'image (maximum).

Instabilité de méandre

Mesures morphologiques: période, amplitude

Fonction de Corrélation Hauteur-Hauteur $C(R)$

Exemple: Mesure de la période d'un méandre λ par détermination de la fonction de corrélation hauteur-hauteur $C(R)$ de la surface $h(\vec{r})$.



- Multiples de la période du méandre = Maximum de la fonction de corrélation hauteur-hauteur $C(R)$

Instabilité de méandre

Mesures morphologiques: période, amplitude

Caractérisation quantitative de l'instabilité de méandre

- Grandeurs physiques mesurables: période du méandre λ , amplitude du méandre A ...
- **Mesures automatiques** via un algorithme de traitement d'images

Densité spectrale de la fonction de corrélation hauteur-hauteur $C(\mathbf{R})$ (espace réciproque \mathbf{k}).

La densité spectrale d'une surface de profil $h(\vec{r})$ est définie par la transformée de Fourier de la fonction de corrélation hauteur-hauteur (fonction d'auto-covariance) $C(\mathbf{R})$.

$$P(\vec{k}_{//}) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} C(\mathbf{R}) e^{i\vec{k}_{//}\mathbf{R}} d\mathbf{R}$$

- Décomposition harmonique de la fonction de corrélation Hauteur-Hauteur,
- Toute composante périodique de $C(\mathbf{R})$ se traduit par une impulsion sur $P(\mathbf{k})$ (domaine des fréquences).

En pratique,

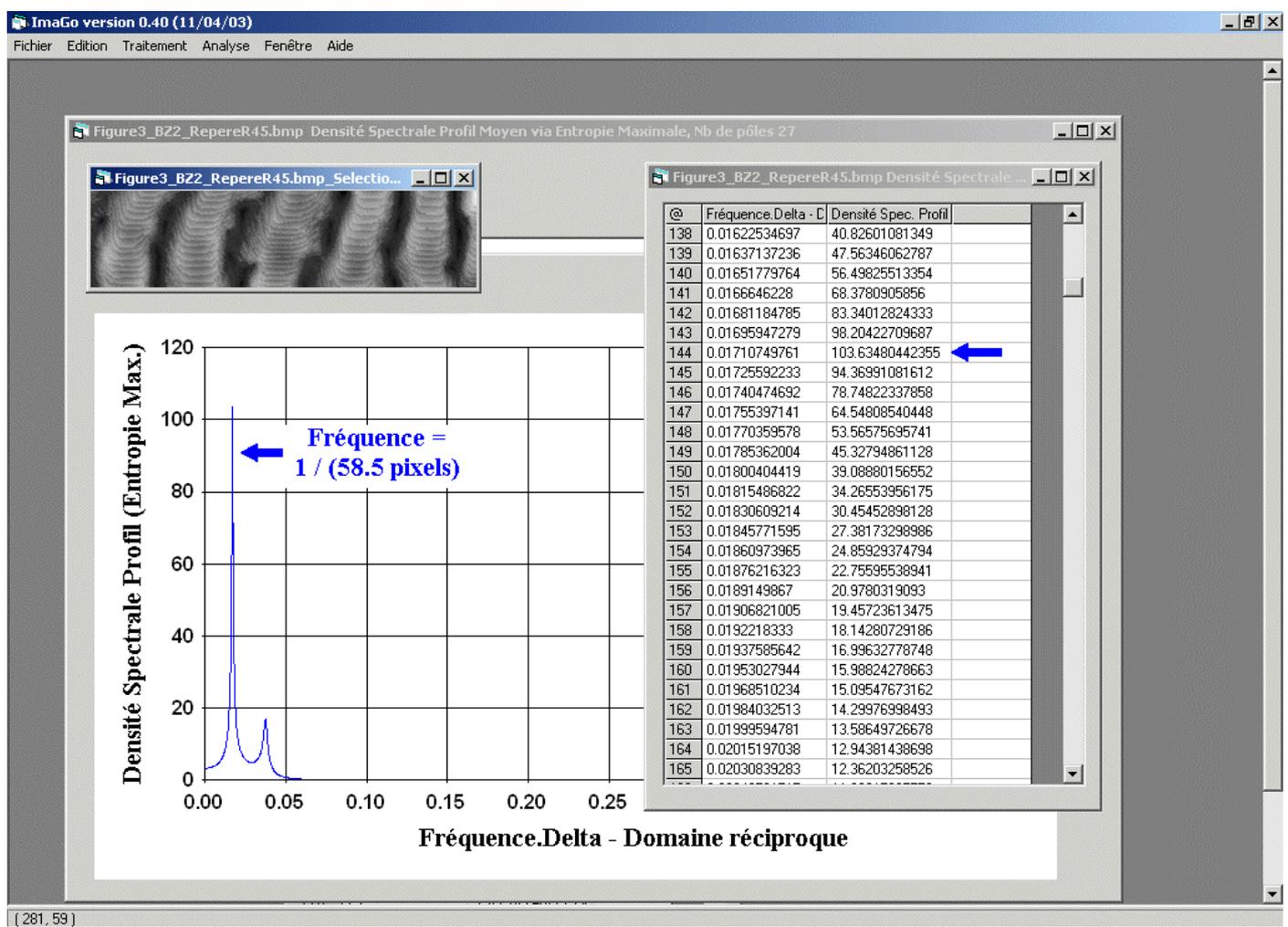
- .Image = grandeur à support borné (dimensions finies),
- .Image = grandeur échantillonnée (pixel),
- .TF = FFT (Fast Fourier Transform),
- ...

Instabilité de méandre

Mesures morphologiques: période, amplitude

Densité spectrale de la fonction de corrélation hauteur-hauteur $C(R)$ (espace réciproque k).

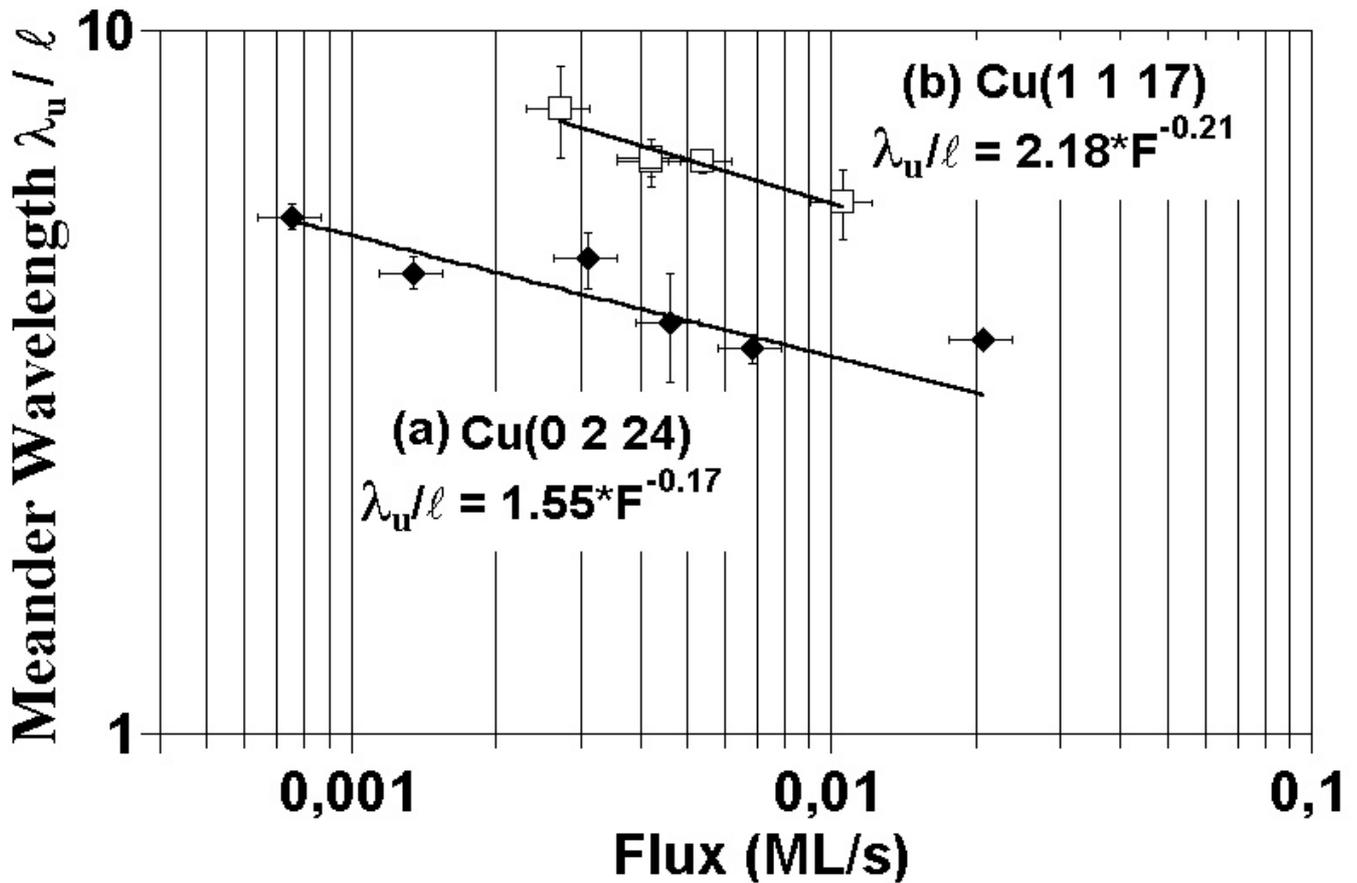
Exemple: Mesure de la période d'un méandre par détermination de la fonction densité spectrale de la surface $h(\vec{r})$.



➤ Période du méandre = $1 / \text{Fréquence principale}$

Instabilité de méandre

Période du méandre λ – Paramètre Flux F



➤ Points • - Surface Cu(1 1 17)
 $\theta = 18$ MC, $T = 280$ K,
 $2.7 \cdot 10^{-3}$ MC/s $< F < 0.011$ MC/s

➤ Points ◻ - Surface Cu(0 2 24)
 $\theta = 5$ MC, $T = 294$ K,
 $7.5 \cdot 10^{-4}$ MC/s $< F < 0.02$ MC/s

Force motrice de l'instabilité de méandre = Flux à la marche,
 Période du méandre $\lambda = F$ ct décroissante du flux à la marche F.

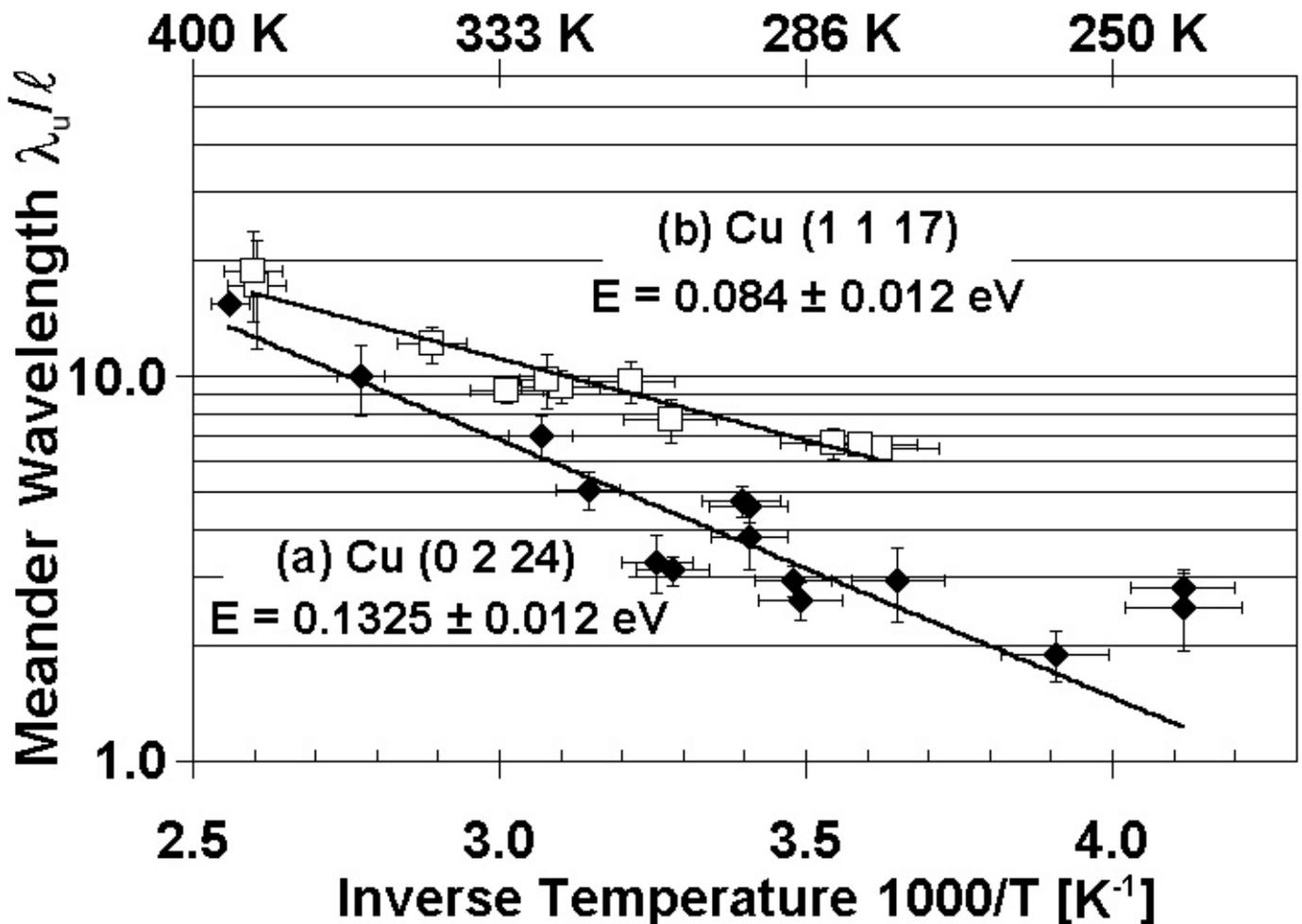
Expérience Cu (1 1 n) & Cu (0 2 24)

➤ Période du méandre $\lambda \propto 1 / F^n$, $n \approx 1/5 - 1/4$

Morphological instability of Cu vicinal during step-flow growth,
 Th. Maroutian et al., *Phys. Rev. B* **64** (2001) 165401

Instabilité de méandre

Période du méandre λ – Paramètre Température T



➤ Points • - Surface Cu(1 1 17)
 $\theta = 18$ MC, $F = 0.003$ MC/s,
 $245 \text{ K} < T < 385 \text{ K}$

➤ Points ◻ - Surface Cu(0 2 24)
 $\theta = 5$ MC, $F = 0.003$ MC/s,
 $245 \text{ K} < T < 385 \text{ K}$

Force stabilisatrice de l'instabilité de méandre = Mécanismes de diffusion,

Période du méandre λ = Fonction d'Arrhenius en température.

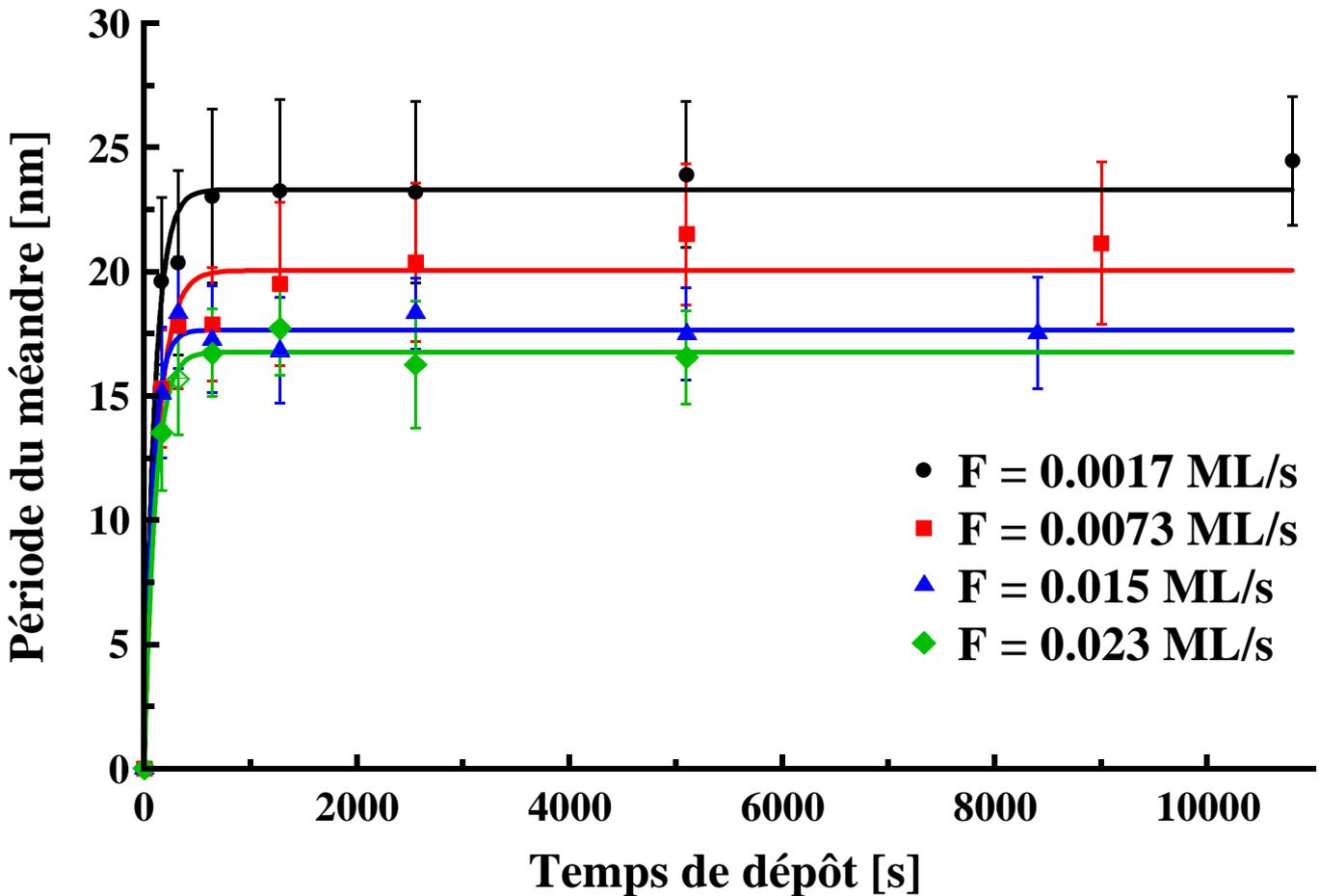
Expérience Cu (1 1 n) & Cu (0 2 24)

➤ Période du méandre λ possède *une dépendance en température de type Arrhenius*,

➤ Énergies d'activation Cu(1 1 17) $E_{110} = 0.084 \pm 0.012$ eV,
 Cu(0 2 24) $E_{100} = 0.1325 \pm 0.012$ eV

Instabilité de méandre

Période du méandre – Paramètre Taux de couverture q



Évolution de la période du méandre λ avec le taux de couverture θ pour différents flux incidents, $1.7 \cdot 10^{-3} \text{ MC/s} \leq F \leq 2.3 \cdot 10^{-2} \text{ MC/s}$, $\theta \leq 250 \text{ MC}$.

Expérience Cu (1 1 n)

➤ Pas de mûrissement de la période du méandre λ avec le taux de couverture $\theta = F \cdot t$ (t temps de dépôt), $\theta \leq 250 \text{ MC}$.

Période du méandre $\lambda \not\propto f(Ft)$

Instabilité de méandre

Comparaison Théorie - Expérience

Instabilité de méandre - Théorie Bales–Zangwill linéaire.

➤ Période du méandre $l_{\text{Théorie}}$

$$\lambda_{\text{Théorie}} \propto \left(\frac{D_m}{F\ell^2} \right)^{1/2}$$

D_m Diffusion de ligne le long d'une marche crantée [L²/s],
 F Flux d'adatoms [atomes/L²/s]

Barrière d'activation E_m , préfacteur de diffusion D_m^0 non physiques.

Instabilité de méandre – Expérience

➤ Période du méandre $l_{\text{Exp.}}$

La période du méandre est interprétable sur la base d'une longueur de nucléation d'îlots 1D le long du bord de marche.

$$\lambda_{\text{Exp.}} \approx L_n^{1D} \propto \left(\frac{D_{110}}{F\ell} \right)^{1/4}$$

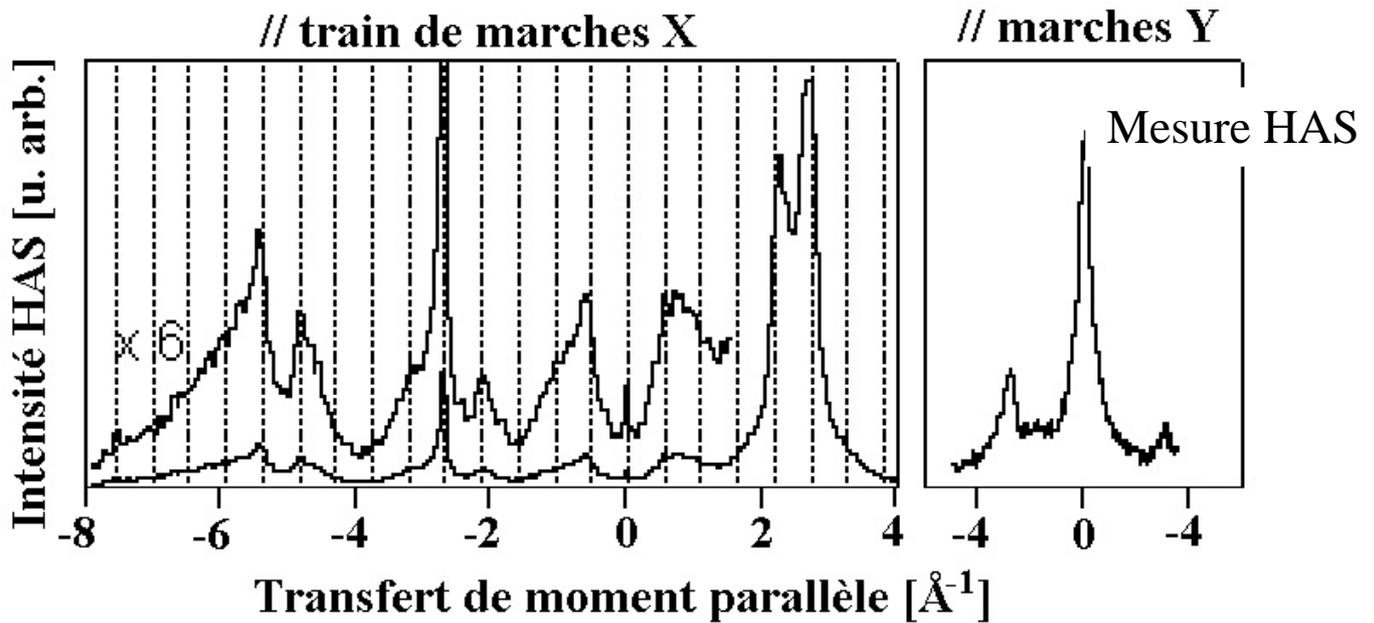
D_{110} Diffusion de ligne le long d'une marche droite <110> [L²/s],
 F Flux d'adatoms [atomes/L²/s]

Barrières d'activation E_m , préfacteur de diffusion D_m^0 physiques.

Cu(1 1 17): $E_{110} = 0.34 \pm 0.05$ eV (dir^{tn} compacte),

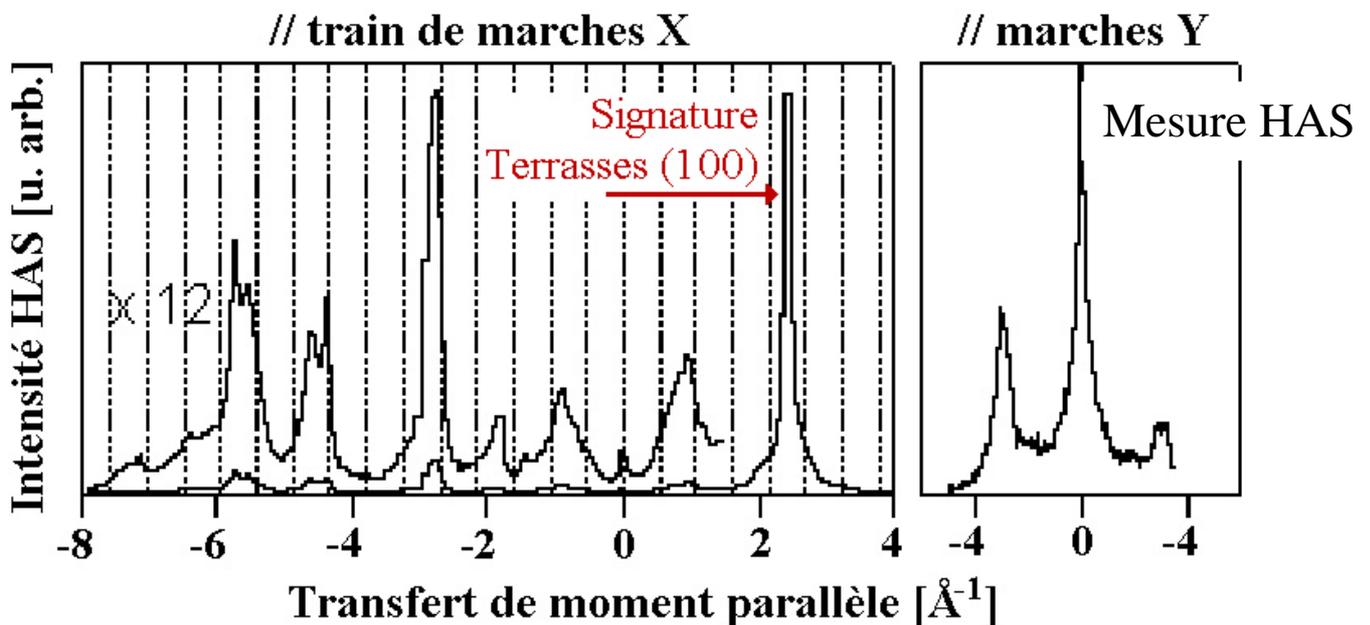
Cu(0 2 24): $E_{100} = 0.53 \pm 0.05$ eV (dir^{tn} non compacte).

Croissance de Cu(1 1 9) par avancement de marches Instabilité de mise en paquets – Direction X



Croissance à Basse Température T \approx 375 K

- Pas de modification dans la direction du train de marches X,
- Facettes latérales suivant la direction des marches Y,
- Instabilité de méandre



Croissance à Haute Température T \approx 375 K

- Apparition de terrasses (100) ds la direction du train de marches X,
- Facettes latérales suivant la direction des marches Y,
- Instabilité de Mise en Paquets des bords de marche,
- Morphologie en écailles.

Croissance de Cu(1 1 9) par avancement de marches Basse Température - Instabilité de méandre

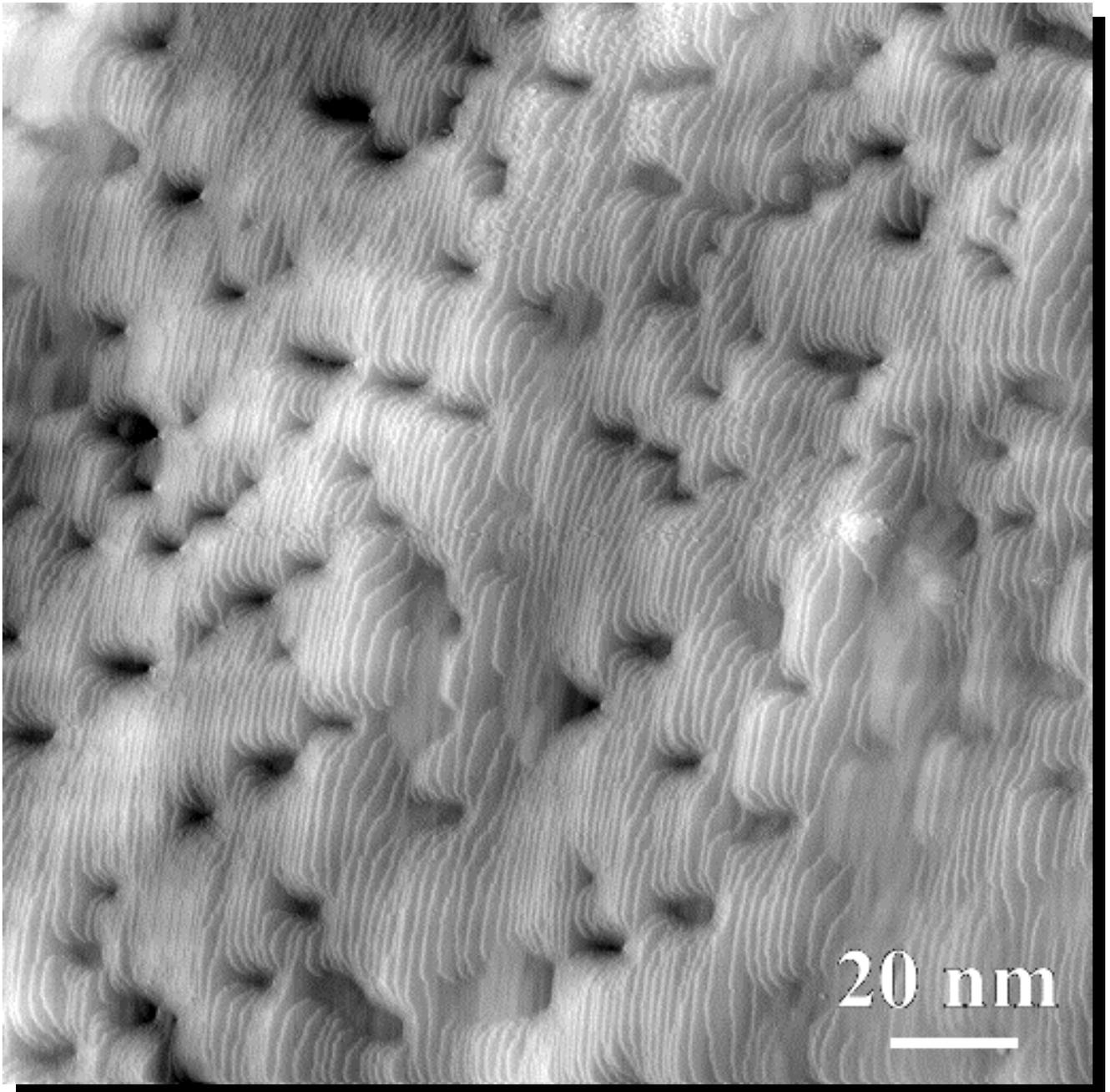


Image STM Cu(119) (170 nm)², $I_{\text{tun.}} = 1.0$ nA, $\Delta V_{\text{tun.}} = -0.4$ V, Température d'enregistrement 150 K (morphologie trempée).

Surface Cu(1 1 9) après croissance à basse température.

- $\theta = 15$ MC, Flux $F = 0.01$ MC/s, Temp. du substrat $T = 230$ K.
- Instabilité de méandre
 - .Largeur moyenne des terrasses inchangée $\ell = 1,15$ nm,
 - .Marches méandrées en phase (créneaux),
 - .Fronts de marche compacts $\langle 110 \rangle$.

Croissance de Cu(1 1 9) par avancement de marches Haute Température - Instabilité de mise en paquets

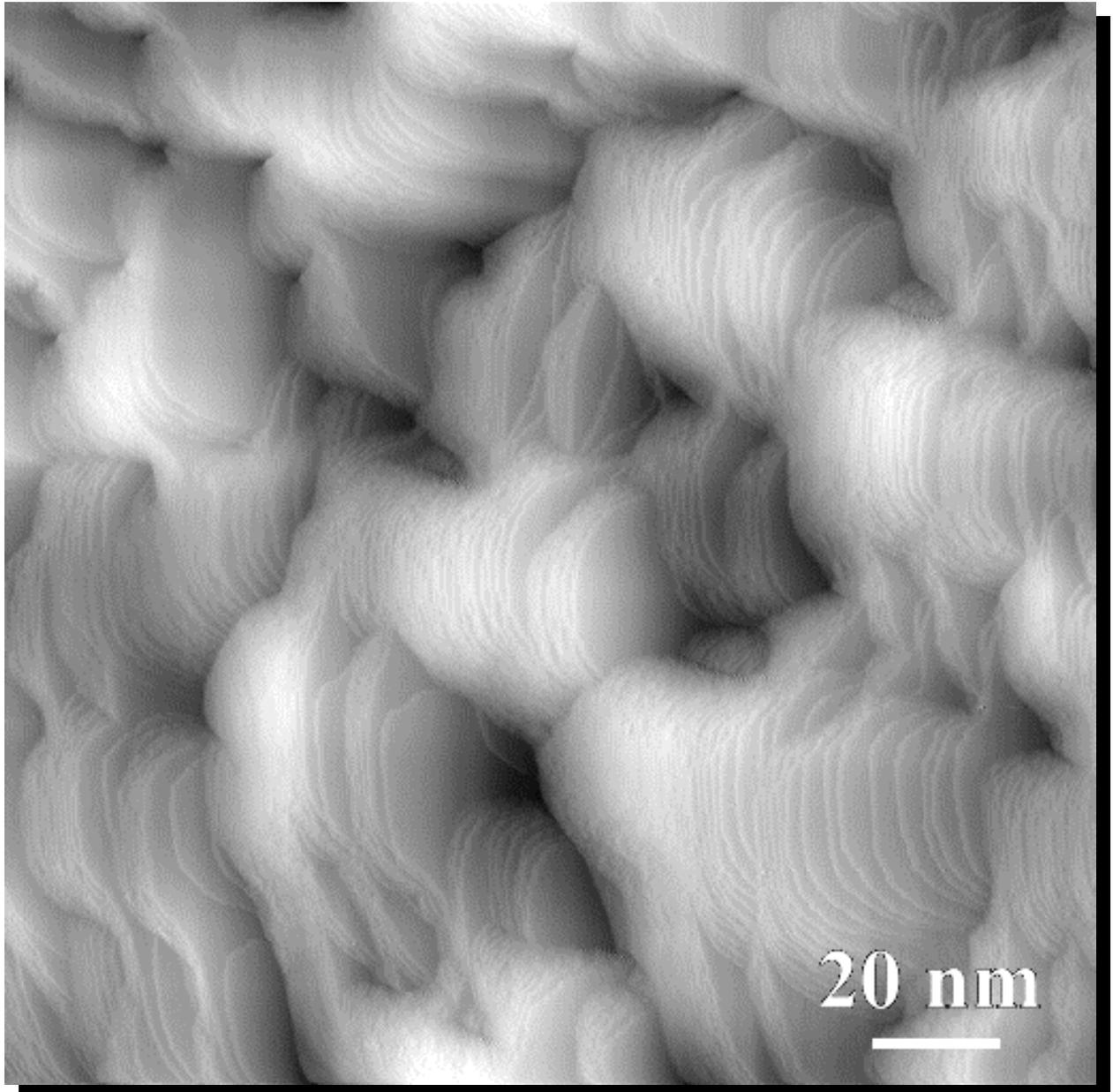


Image STM Cu(119) (170 nm)², $I_{\text{tun.}} = 1.0$ nA, $\Delta V_{\text{tun.}} = -0.4$ V, Température d'enregistrement 150 K (morphologie trempée).

Surface Cu(1 1 9) après croissance à haute température.

- $\theta = 30$ MC, Flux $F = 0.01$ MC/s, Temp. du substrat $T = 400$ K.
- Instabilité de mise en paquets
 - .Apparition de larges terrasses (100),
 - .Mise en paquets des marches,
 - .Morphologie en écailles de poisson (créneaux arrondis).

N. Néel et al., soumis à *Phys. Rev. Lett.* (2003)

Surfaces vicinales - Instabilité de mise en paquets

Mesures quantitatives

Paramètres physiques pertinents (croissance).

- Morphologie de la surface (orientation, symétrie): indices de Miller (hkl),
- Température du substrat T [K],
- Flux d'atomes incident F [atomes/L²/s],
- Taux de couverture θ [MC],
- Présence d'adsorbats.

Mesures morphologiques de surface (AFM, STM)

Grandeurs physiques mesurables: rugosité verticale W, dimensions latérales, l'orientation des objets remarquables (méandre, **facette**, monticule)...

- Analyse statistique des images de surface h(r): écart-type des hauteurs, corrélations hauteur-hauteur C(R)...
- Comparaison avec modèles de croissance.

Mesures cinétiques (Diffraction HAS, SPA-LEED)

Grandeurs physiques mesurables: rugosité verticale W, dimensions latérales, l'orientation des objets remarquables (méandre, **facette**, monticule)...

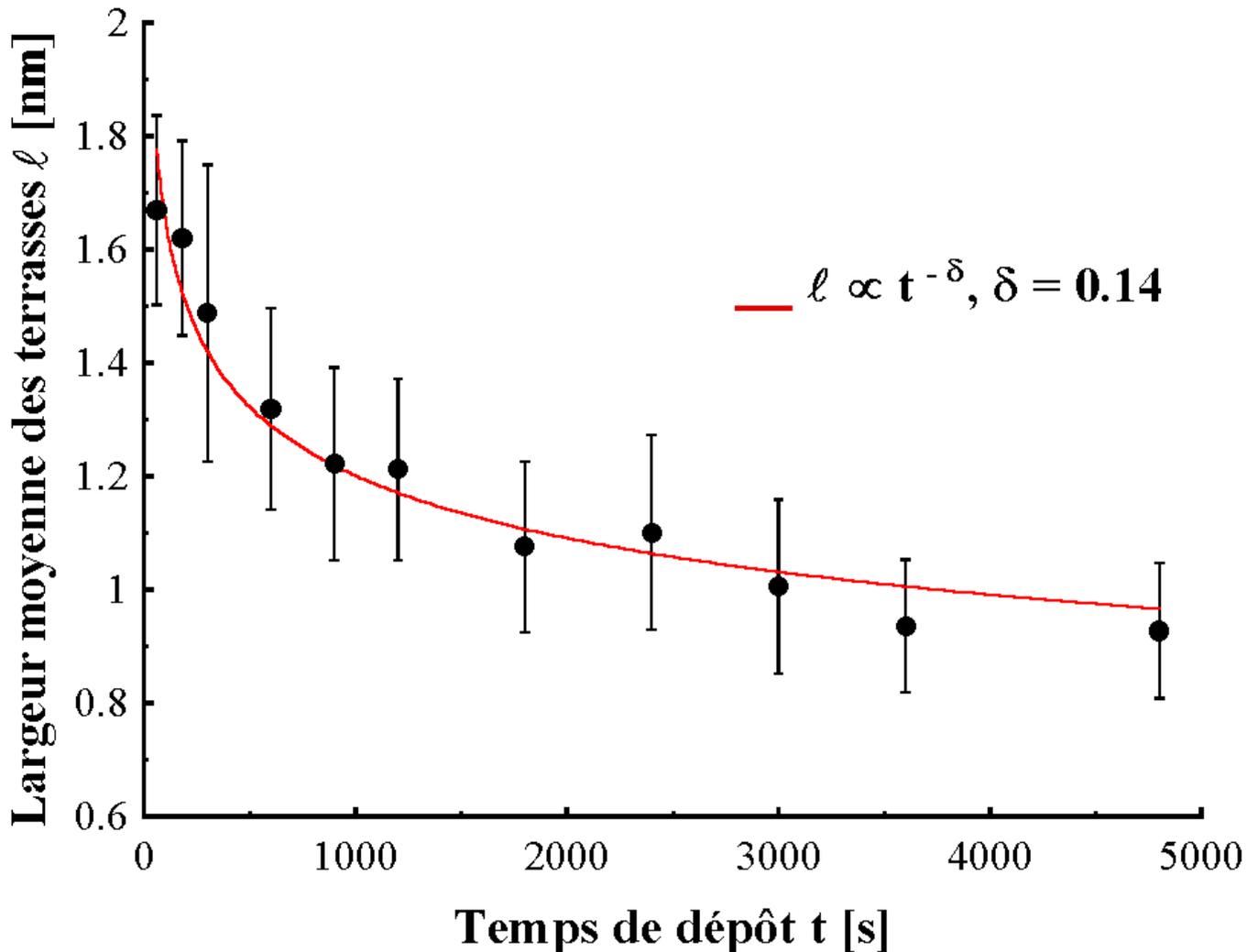
Détermination de la température de transition T_c entre instabilité de méandre \leftrightarrow instabilité de mise en paquets...

- Analyse des profils de spot de diffraction HAS, SPA-LEED, des symétries de diagrammes de diffraction...
- Comparaison avec modèles de croissance.

- **Détermination des processus cinétiques pertinents.**

Surfaces vicinales - Instabilité de mise en paquets

Mesures morphologiques (STM)



Évolution de la largeur moyenne des terrasses dans un paquet avec le taux de couverture θ , $F = 0.018$ MC/s, $T = 445$ K.

Expérience Cu(1 1 9) & Cu (1 1 17) – Mise en Paquets

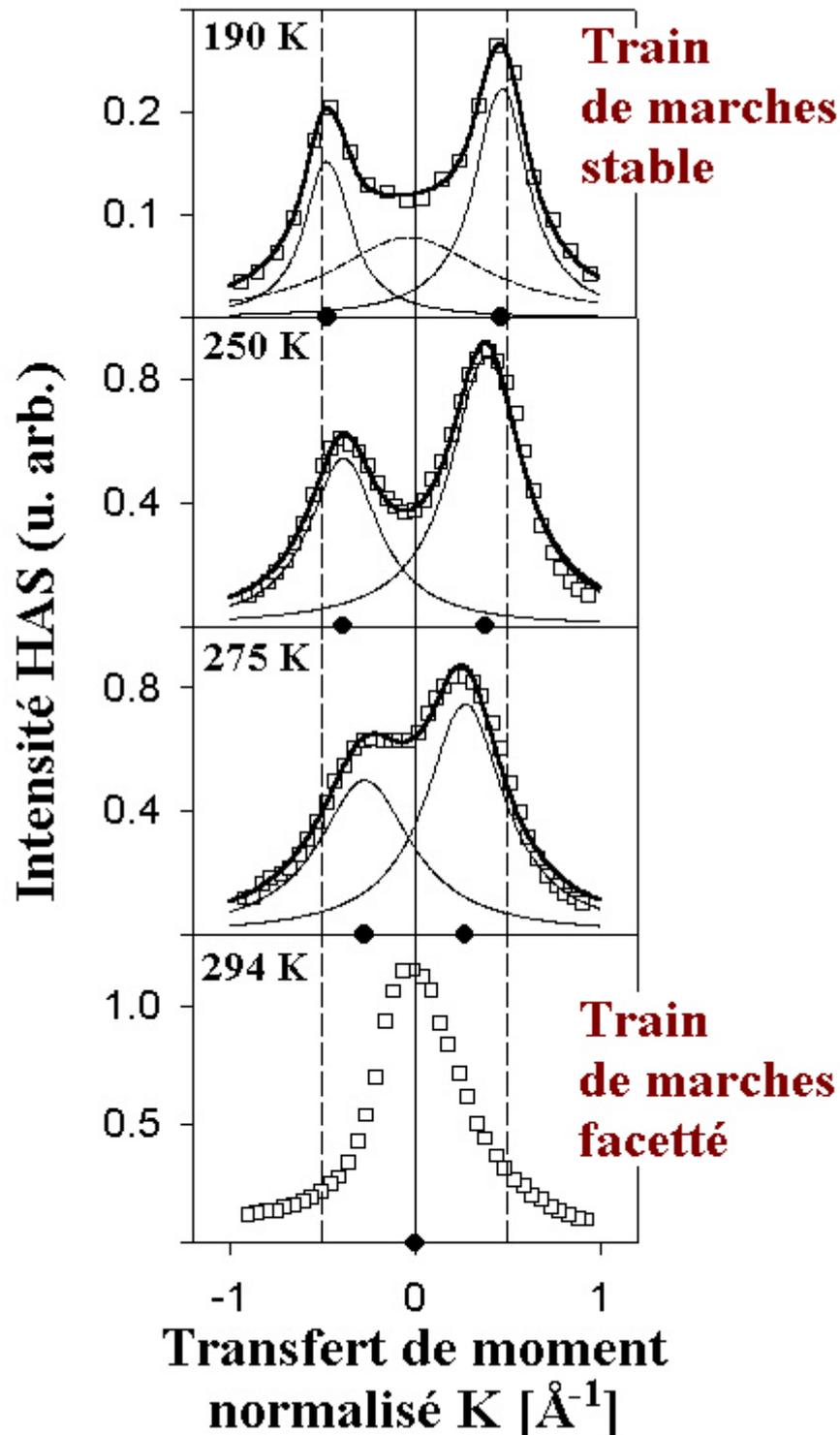
➤ Décroissance de la largeur de terrasse avec le taux de couverture θ (temps de dépôt t),

Largeur de terrasse $\ell \propto t^{-\delta}$, $\delta \approx 1/7$

From meandering to faceting, is step flow growth ever stable?
N. Néel et al., soumis à *Phys. Rev. Lett.* (2003)

Surfaces vicinales - Instabilité de mise en paquets

Mesures cinétiques – Température de transition



➤ **Mesures cinétiques par diffraction HAS** (doublet arc-en-ciel)

Température de transition T_c entre instabilité de méandre
 \leftrightarrow instabilité de mise en paquets: $T_c \text{ Cu } (1\ 1\ 9) \approx 275 \text{ K}$

Instabilité de mise en paquets Comparaison Expérience - Théorie

En présence d'une barrière de Schwöbel 2D (de marche):

➤ Croissance stable par écoulement de marches suivant la direction du train de marches X.

Instabilité de mise en paquets – Mécanismes possibles.

➤ Barrière de Schwöbel inverse, Loi de compensation (Neldel-Meyer = grand préfacteur de diffusion D_0) -----,

M. Sato, M. Uwaha, *Surf. Sci.* **493** (2001) 494

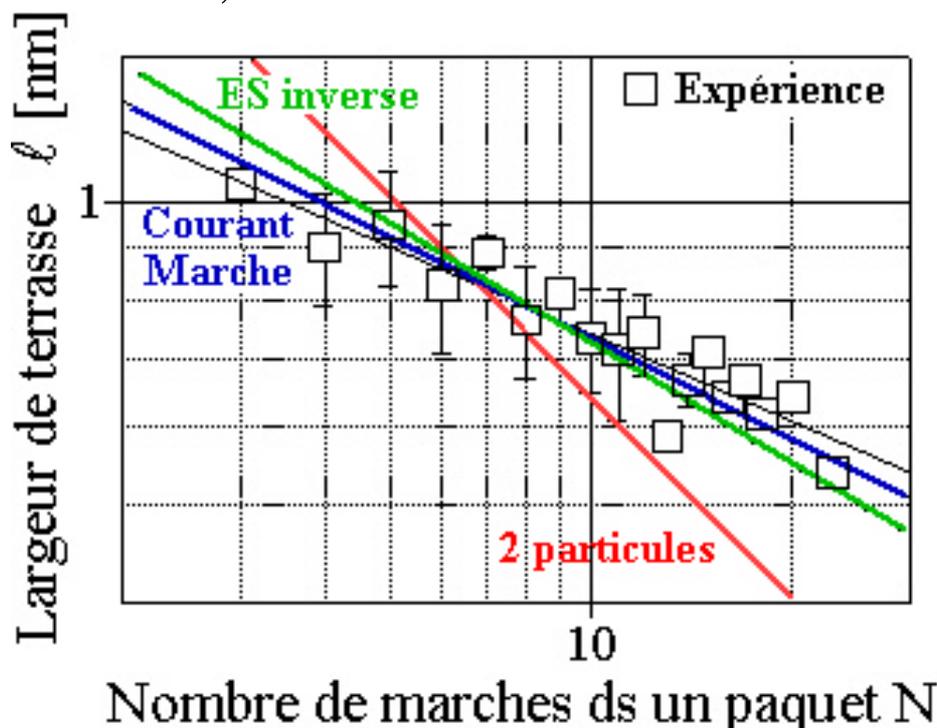
➤ Mécanisme de croissance à deux particules (dimères + adatoms...) -----, M. Vladimirova, et al., *Phys. Rev. B* **64** (2001) 245420

➤ Courant de marche (barrière de Schwöbel 1D) -----.

P. Politi, J. Krug, *Surf. Sci.* **446** (2000) 89

Expérience Cu(1 1 9)

➤ Loi d'échelle, mesures STM – Prédictions théoriques



Scaling and universality of self-organized patterns on unstable vicinal surfaces,
 A. Pimpinelli, V. Tonchev, A. Videcoq, and M. Vladimirova, *Phys. Rev. Lett.* **88**
 (2002) 206103

Surfaces vicinales reconstruites Instabilité de méandre – Cas du Si(111)

Surfaces vicinales reconstruites Si(111)

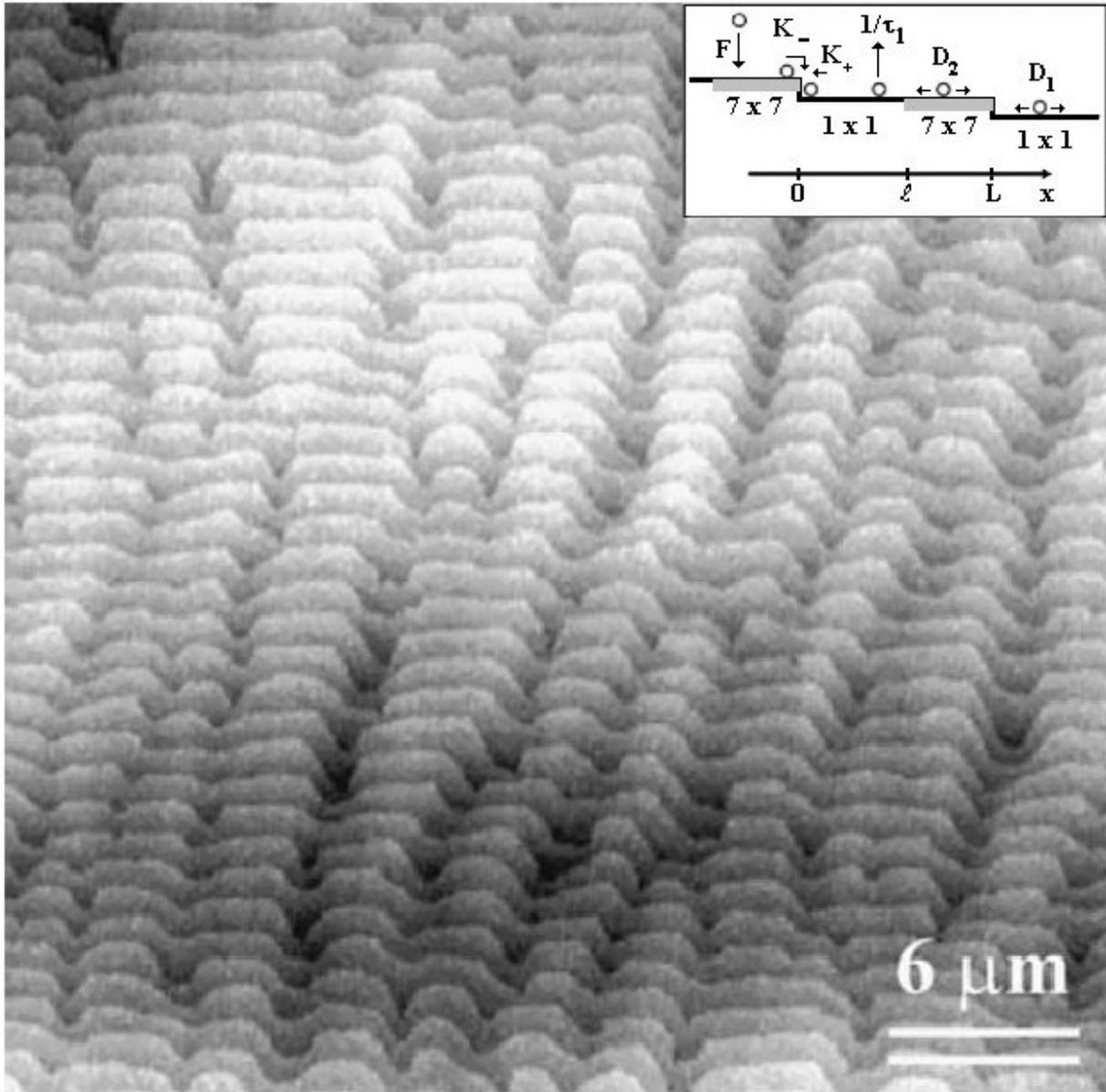


Image AFM Si(111) après dépôt de 20 nm à une température T proche de $T_c \sim 1125$ K, température de transition $(1 \times 1) \Leftrightarrow (7 \times 7)$ de Si(111) (Trempe)

Instabilité de méandre

➤ Moteur de l'instabilité (Facteur d'asymétrie) = Coexistence de deux phases de coefficients de diffusion différents $(1 \times 1) \Leftrightarrow (7 \times 7)$.

Step wandering induced by homoepitaxy on Si(111) during «1x1» - 7x7 phase transition, H. Hibino, Y. Homma, M. Uwaha, T. Ogino, Surf. Sci. 527 (2003)

Surfaces vicinales

Instabilité de mise en paquets – Cas de Si

Surfaces vicinales Si(111) à haute température



Image STM Si(111) (5000 nm)², soit (5 μm)² (morphologie post-mortem)

Surface Si(111) après un chauffage résistif à T = 1533 K

- Courant de chauffage dans la direction du train de marches descendant, $I \sim 6$ A, $\Delta V \sim 8$ V, temps de chauffage $\Delta t = 2.5$ min.
- Largeur des terrasses avant chauffage $\ell = 110$ nm, après chauffage $\ell = 1970$ nm; Paquets de 20 marches.

Instabilité de mise en paquets des marches

Moteur de l'instabilité (Facteur d'asymétrie) = Force d'électromigration à l'origine d'une anisotropie de diffusion (chauffage résistif par courant continu I).

Surfaces vicinales

Instabilité de mise en paquets – Cas de Si(111)

Surfaces vicinales Si(111) à haute température

Domaines de Température	Direction du courant I	Mode Croissance	Mode Sublimation
BT ~ 1208 K	Descendante	Mise en paquets	Mise en paquets
	Montante	Pas de mise en paquets	Pas de mise en paquets
TI ~ 1463 K	Descendante	Mise en paquets	Pas de mise en paquets
	Montante	Pas de mise en paquets	Mise en paquets
HT ~ 1548 K	Descendante	Mise en paquets	Mise en paquets
	Montante	Pas de mise en paquets	Pas de mise en paquets

Paramètre de contrôle = Température T

BT: domaine des basses températures, TI: domaine des températures intermédiaires, HT: domaine des hautes températures.

Paramètre de contrôle = Courant de chauffage résistif I

Direction du courant de chauffage par rapport à la direction du train de marches.

Paramètre de contrôle = Flux F

Fort Flux F, $F > F_{\text{sublimation}}$ = Croissance (avance des marches),

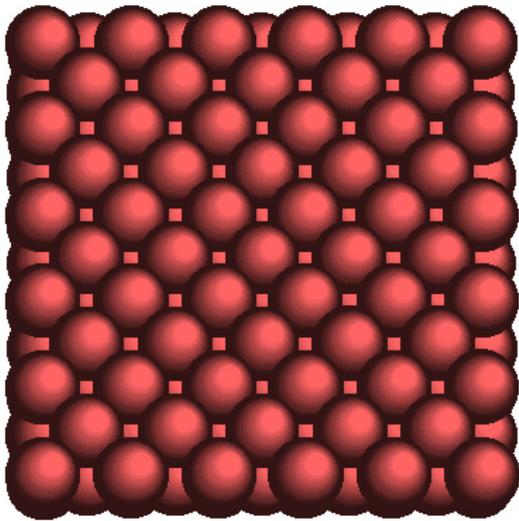
Faible Flux F, $F < F_{\text{sublimation}}$ = Sublimation (recul des marches).

➤ Système physique d'une grande richesse.

Impact of the growth on the stability-instability transition at Si(111) during step bunching induced by electromigration, J.J. Métois, S. Stoyanov, Surf. Sci. 440 (1999) 407

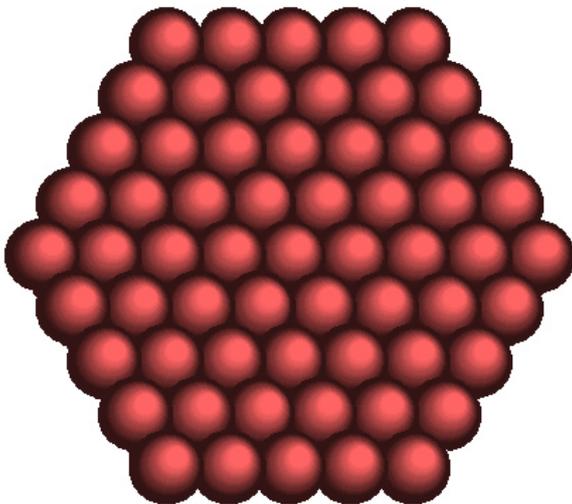
Instabilités morphologiques

Surfaces planes de haute symétrie



➤ CFC (0 0 1) Face de la maille CFC de symétrie carrée.

➤ Cuivre (Cu, $Z = 29$)
Paramètre de maille $a_0 = 3.61 \text{ \AA}$
Distance (Cu – Cu) = 2.55 \AA



➤ CFC (1 1 1) – Plan dense (plan perpendiculaire à la diagonale de la maille CFC) de symétrie hexagonale.

➤ Cuivre (Cu, $Z = 29$)
Paramètre de maille $a_0 = 3.61 \text{ \AA}$
Distance (Cu – Cu) = 2.55 \AA

➤ Surfaces non reconstruites = Surfaces modèles (**diffusion isotrope**)

Ag(001) K.J. Caspersen et al., *Phys. Rev. B* **65** (2002) 193407,

Fe(100) J.E. Stroscio, et al., *Phys. Rev. Lett.* **75** (1995) 4246,

Ag(111) W.C. Elliot et al., *Phys. Rev. B*, **54** (1996) 17938,

Pt(111) M. Kalff et al., *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998) 1255,

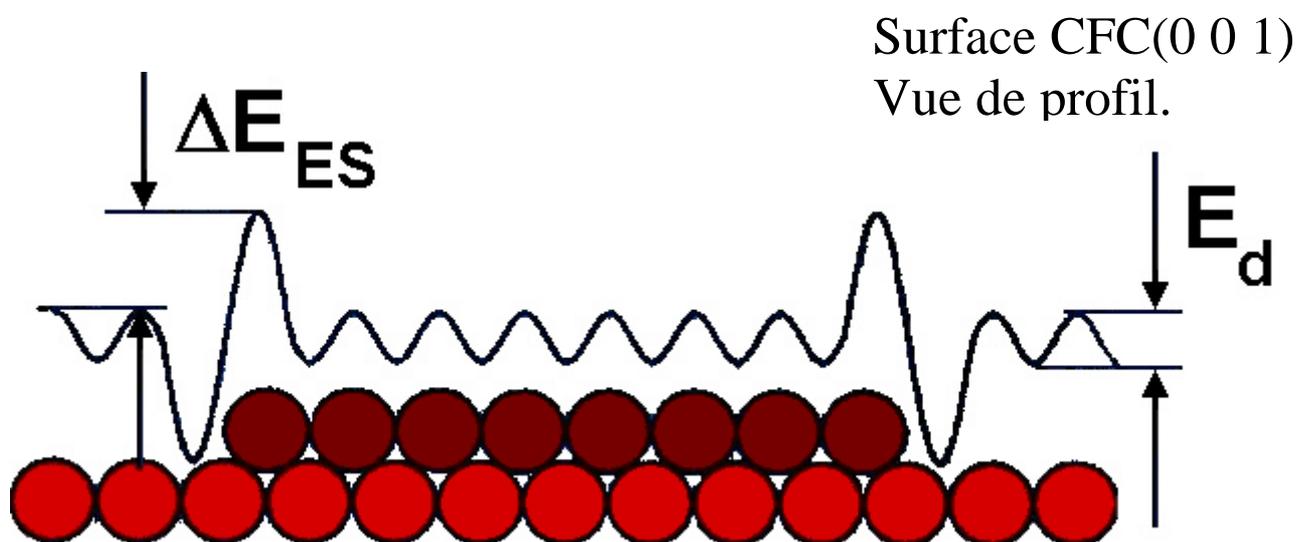
...

Surfaces planes non reconstruites

Croissance par homoépitaxie

Croissance d'une surface plane par homoépitaxie (MBE)

- Dépôt d'atomes à partir du flux incident F ,
- Diffusion D_t d'adatoms sur la surface plane,
- Nucléation d'îlots sur la surface plane,
- Croissance des îlots par agrégation d'adatoms,
- Coalescence des îlots.



En présence d'une barrière de Ehrlich-Schwöbel (de marche):

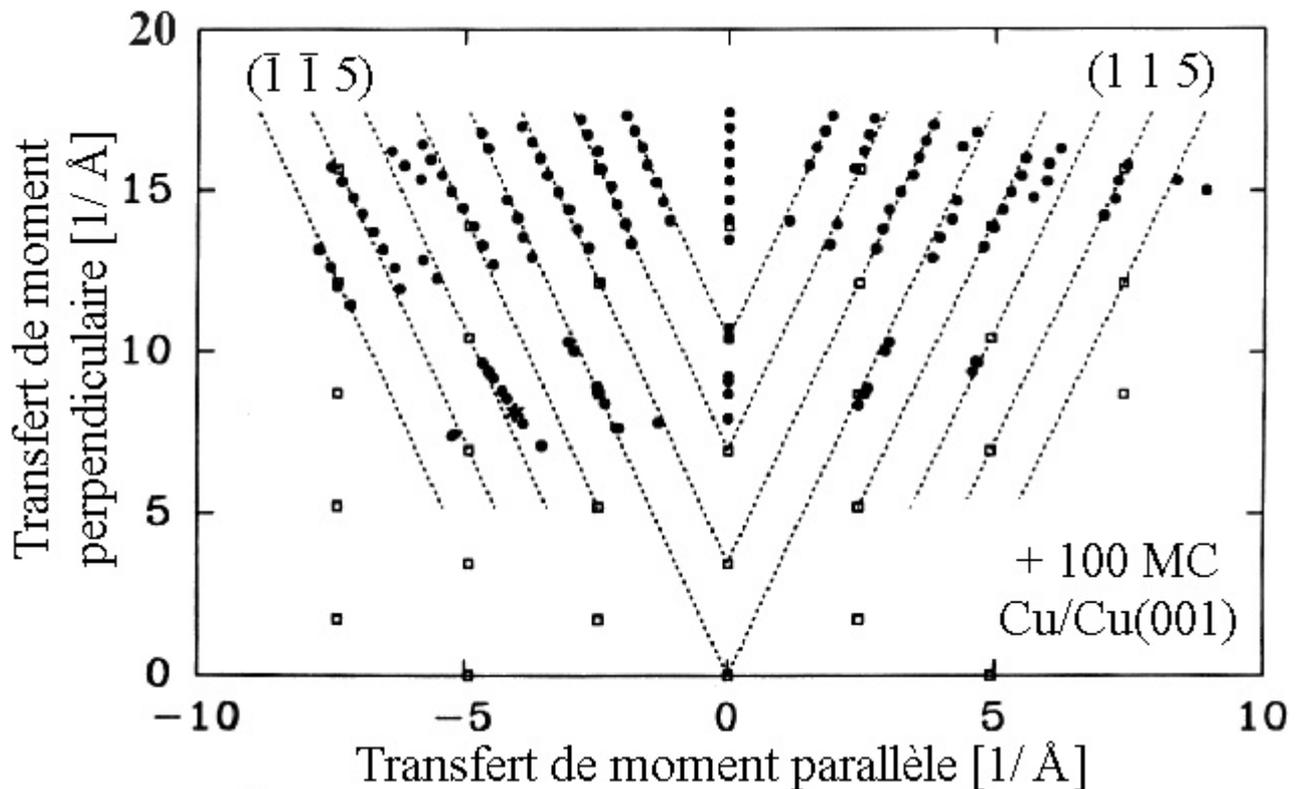
R.L. Schwöbel, E.D. Shipsey, *J. Appl. Phys.* **37** (1966) 3682

- Confinement des adatoms sur les îlots,
- Formation de monticules (pyramides),
- **En présence d'une barrière 2D ES, une surface plane de haute symétrie est instable lors de la croissance,**
 - **Instabilité de monticules (de pyramides, de Ehrlich-Schwöbel) « mounding instability ».**

J. Villain, *J. Phys.* **11** (1991) 19

Surface plane de haute symétrie Cu(0 0 1)

Croissance par homoépitaxie - Instabilité de monticules



HAS Cu/Cu(001), coupe de l'espace réciproque

➤ Taux de couverture $\theta = 100$ MC, Flux $F = 0.0083$ MC/s, Température du substrat $T = 200$ K.

Croissance à basse température $T \approx 200$ K – Mesures HAS

➤ Apparition de spectres de diffraction HAS caractéristiques de surfaces vicinales,

➤ Apparition de **motifs pyramidaux**, dont les faces correspondent à des surfaces vicinales spécifiques.

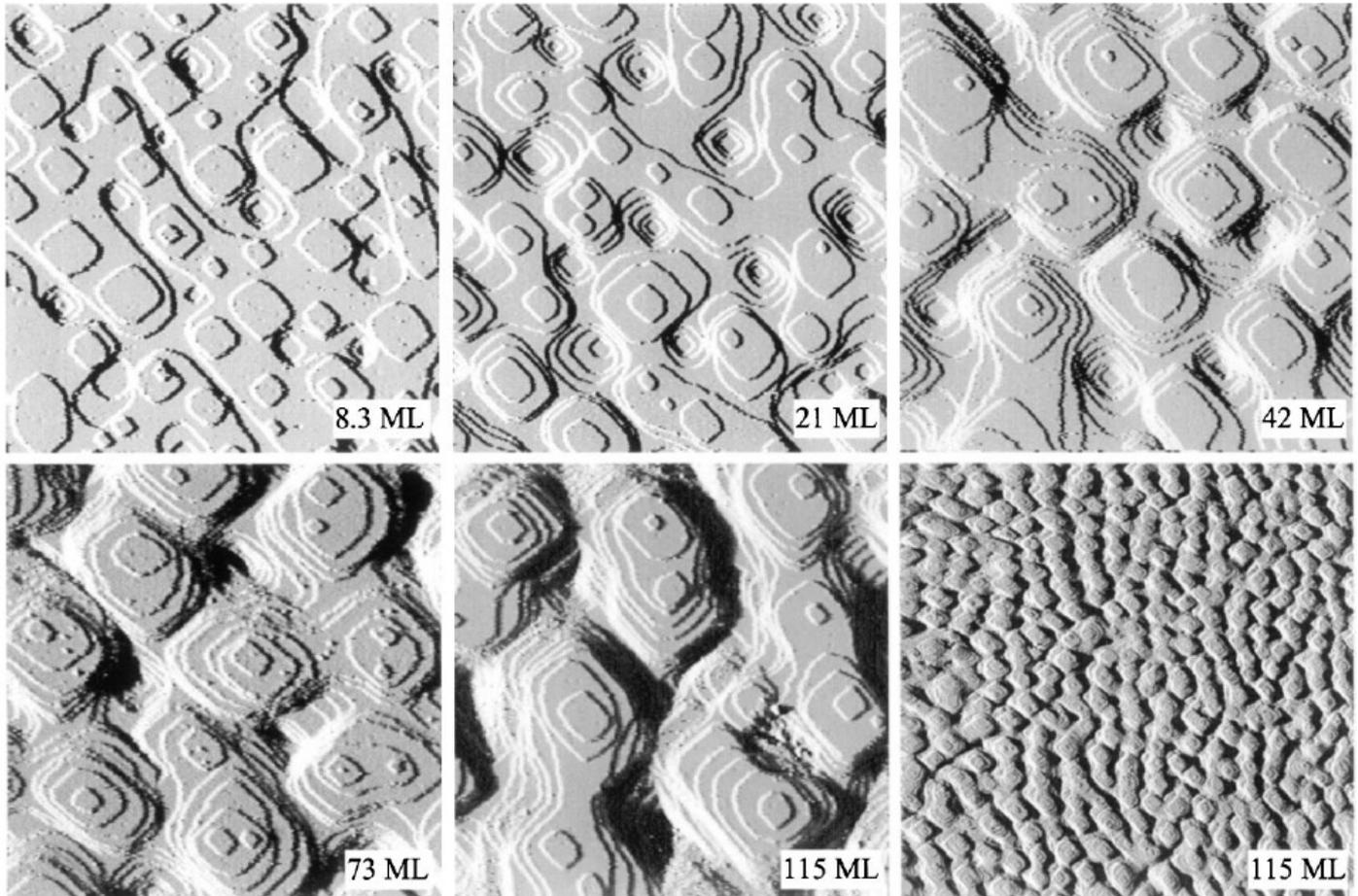
➤ **Instabilité de monticules** (de pyramides)

Observation of a growth instability during low temperature molecular beam epitaxy, H.-J. Ernst, F. Fabre, R. Folkerts, J. Lapujoulade, Phys. Rev. Lett. 72 (1994) 112

Surface plane de haute symétrie Cu(0 0 1) Croissance par homoépitaxie - Instabilité de monticules

Croissance à température ambiante

➤ Morphologie de surface – Mesures STM



Images STM Cu(001): (1) – (5) $(100 \text{ nm})^2$, (6) $(500 \text{ nm})^2$

Surface Cu(0 0 1) après croissance (MBE)

- $8.3 \text{ MC} \leq \theta \leq 115 \text{ MC}$, Flux $F = 0.021 \text{ MC/s}$,
Température du substrat $T = 299 \text{ K}$,
- Présence de monticules d'arêtes compactes $\langle 110 \rangle$,
- Organisation progressive des monticules en échiquier.

Evolution of Mound Morphology in Reversible Homoepitaxy on Cu(100), J.-K. Zuo, J.F. Wendelken, Phys. Rev. Lett. 78 (1997) 2791

Surfaces planes de haute symétrie

Instabilité de monticules - Paramètres physiques

Paramètres physiques pertinents.

- Morphologie de la surface (orientation, symétrie): indices de Miller (hkl),
- Température du substrat T [K],
- Flux d'atomes incident F [atomes/L²/s],
- Taux de couverture θ [MC],
- Présence d'adsorbats.

Mesures morphologiques de surface (AFM, STM)

Suivi de la rugosité verticale W , des dimensions latérales L , de la pente et de l'orientation des motifs pyramidaux...

- Analyse statistique des images de surface $h(r)$: écart-type des hauteurs, corrélations hauteur-hauteur $C(R)$...
- Comparaison avec modèles de croissance.

Mesures cinétiques (Diffraction HAS, SPA-LEED)

Suivi de la rugosité verticale W , des dimensions latérales L , de la pente et de l'orientation des motifs pyramidaux...

- Analyse des profils de spot de diffraction SPA-LEED, des symétries de diagrammes de diffraction...
- Comparaison avec modèles de croissance.

- **Détermination des processus cinétiques pertinents.**

Surface plane de haute symétrie Cu(0 0 1) Instabilité de monticules – Paramètres F, T

Régime d'agrégation (croissance d'îlots, $q \leq 0.1$ MC)

➤ La distance initiale entre monticules L est imposée par le **processus de nucléation 2D**,

➤ La distance initiale entre monticules L correspond à $L_n(2D)$, la distance de nucléation 2D.

$$L = L_n(2D) = \text{fct}(T, F, i)$$

$$N = 1/L^2 = 1/(L_n^{2D})^2 \propto \left(\frac{F}{D_t} \right)^\gamma \exp(E_{\text{eff}} / k_B T)$$

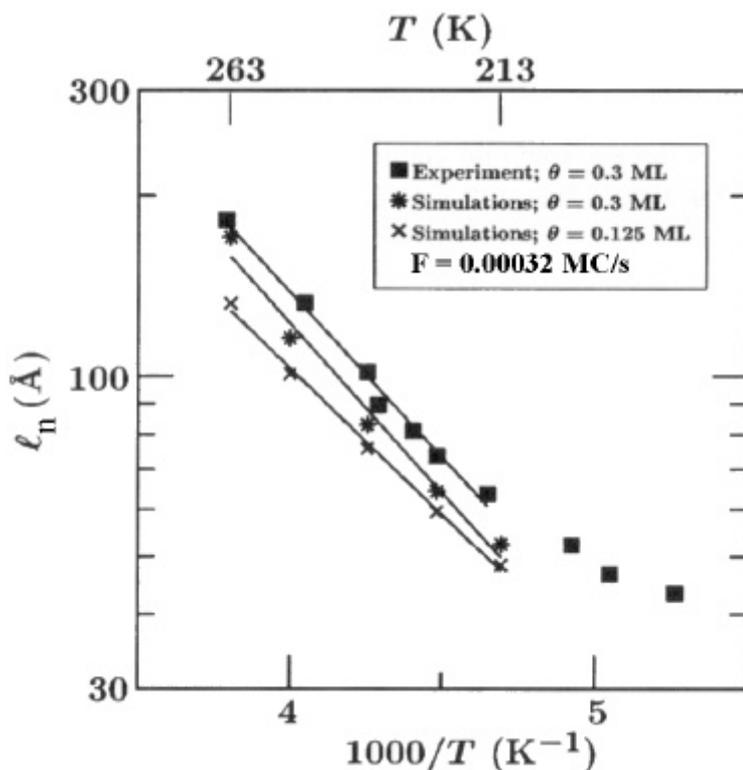
N Densité d'îlots en régime stationnaire (agrégation) [îlots/ L^2],

E_{eff} Barrière d'activation du processus cinétique pertinent [eV],

D_t Coefficient de diffusion des espèces du processus cinétique pertinent [L^2/s],

γ Exposant lié au processus de nucléation (i taille critique des îlots) [\emptyset].

➤ Expérience Cu(0 0 1), SPA-LEED, STM, $\theta \leq 0.3$ MC



$213 \text{ K} \leq T \leq 263 \text{ K}$,
 $F = 3.2 \cdot 10^{-4} \text{ MC/s}$

$E_{\text{eff}} = 95 \text{ meV}$,

$\gamma(213 \text{ K}) = 1/3$,
adatoms

$\gamma(263 \text{ K}) = 2/5$,
adatoms + dimères

Epitaxial growth of Cu on Cu(001): Experiments and simulations, I. Furman, O. Biham, J.-K. Zuo, A.K. Swan, J.F. Wendelken, *Phys. Rev. B* **62** (2000) R10649

Surface plane de haute symétrie Cu(0 0 1)

Paramètre Taux de couverture q - Mûrissement

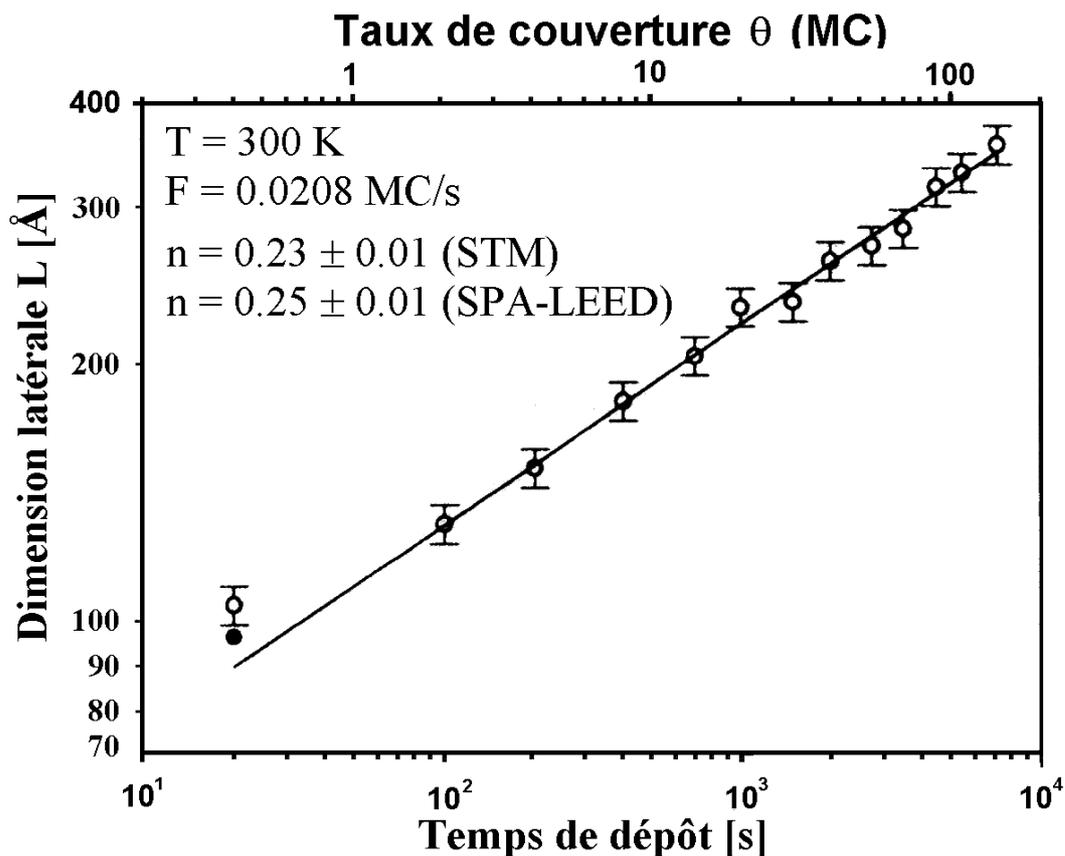
Régime de mûrissement (coalescence des îlots, $q \approx 0.1$ MC)

➤ Aux temps longs, la distance entre monticules L est imposée par un **processus de mûrissement**: les grandes pyramides consomment celles de plus faibles tailles.

$$L(t) \propto t^n, \quad n \text{ exposant de mûrissement}$$

Cu(001) $n \approx 1/4$, $T = 300$ K, $F = 0.0208$ MC/s, croissance réversible

Fe(001) $n \approx 0.16$, $T = 293$ K, $F = 0.025$ MC/s, croissance irréversible



Cu(001) - J.-K. Zuo, J.F. Wendelken, *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997) 2791

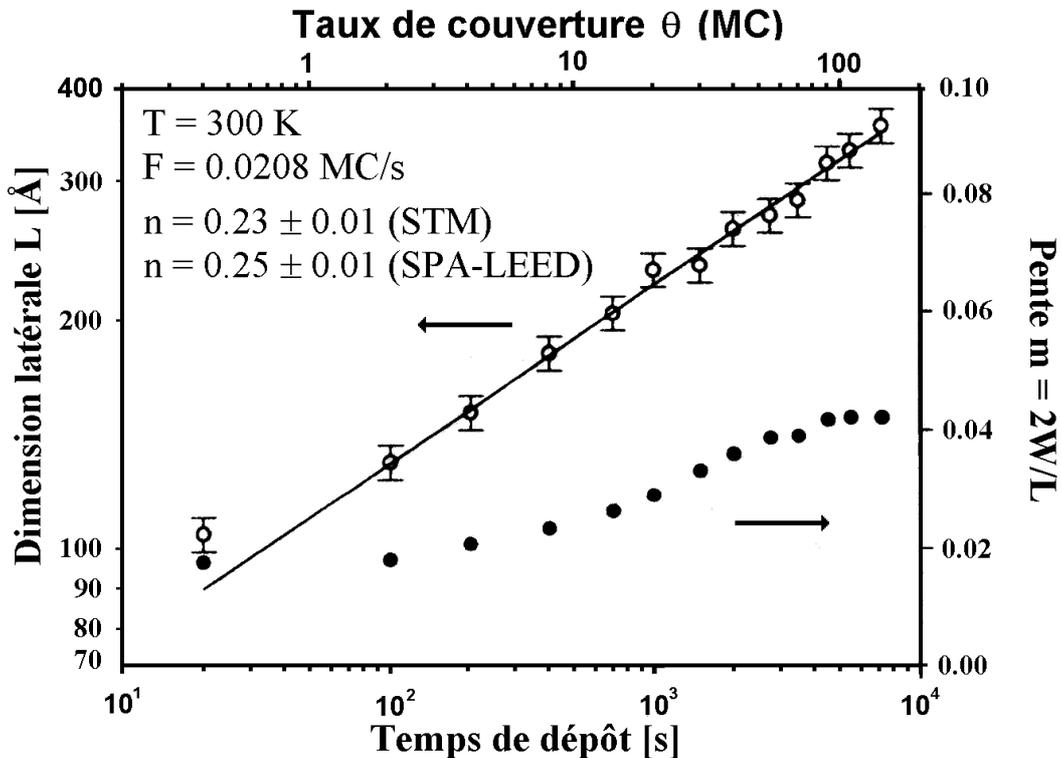
Fe(001) - J.A. Stroscio, et al., *Phys. Rev. Lett.* **75** (1995) 4246

Surface plane de haute symétrie Cu(0 0 1)

Paramètre Taux de couverture q – Mûrissement

Régime de mûrissement (coalescence des îlots, $q \approx 0.1$ MC)

➤ Dynamique de sélection de pente – STM.



Mûrissement de la pente m des monticules.

➤ Sélection de pente m_0 - HAS.

Au temps longs, sélection d'une pente spécifique fonction de la température de croissance T .

$T \leq 180$ K, $\theta \approx 90$ MC

Faces de type Cu(1 1 3), angle de désorientation $25,3^\circ$,

180 K $\leq T \leq 280$ K, $\theta \approx 90$ MC

Faces de type Cu(1 1 5), angle de désorientation = $15,8^\circ$,

180 K $\leq T \leq 300$ K, $\theta \approx 90$ MC

Faces de type Cu(1 1 7), angle de désorientation = $11,4^\circ$.

Growth anisotropy and pattern formation in metal epitaxy, L.C. Jorritsma, M. Bijnagte, G. Rosenfeld, B. Polsema, *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997) 911

Surfaces planes non reconstruites Instabilité de monticules – Sélection de pente

➤ Sélection de la pente m_0 des pyramides

Conservation de la matière

$$\frac{\partial z(x, t)}{\partial t} = - \frac{\partial}{\partial x} (J_{ES}(m) + J_{des.}(m))$$

$$0 = J_{ES}(m_0) + J_{des.}(m_0) \quad \text{Solution stationnaire}$$

M.C. Bartelt, J.W. Evans, *Surf. Sci.* **423** (1999) 189

➤ Force motrice de l'instabilité de monticules =

.Courant net ascendant d'adatoms J_{ES} dû à la barrière de Ehrlich-Schwöbel (sur marches compactes)

$$J_{ES}(m) = \alpha.m, \quad \alpha = f(F, L_n, L_{ES}) > 0$$

P. Politi, J. Villain, *Phys. Rev. B* **54** (1996) 5114

.Présences éventuelles de zéros au niveau du courant ascendant J_{ES} par suite de la prise en compte des symétries de réseau (pentes m_0).

$$J_{ES}(m) \propto \alpha.m.f(m^2), \quad f(m_0^2) = 0$$

M. Siegert, M. Plischke, *Phys. Rev. Lett.* **73** (1994) 1517

L_n Longueur de nucléation [L], L_{ES} Longueur de Schwöbel [L], F Flux d'adatoms [at./L²/s], m pente [Ø].

$$L_{ES} = a. \left(\frac{D_-}{D_+} - 1 \right) = a. (e^{+\Delta E_{ES}/k_B T} - 1)$$

Surfaces planes non reconstruites

Instabilité de monticules – Sélection de pente

➤ **Force stabilisatrice de l'instabilité de monticules** = Courant net descendant d'adatoms $J_{des.} = J_M + J_{DF}$

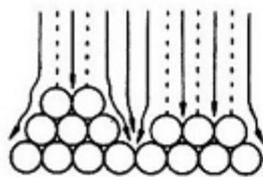
(i) Courant de lissage par diffusion de surface J_M (Mullins – détachements thermiques d'atomes des positions cran),

$$J_M = K \nabla^2 m \quad \text{W.W. Mullins, } J. \text{ of Appl. Phys. } \mathbf{30} \text{ (1959) } 77$$

(ii) Courants descendants, d'origine non thermique, liés à *des processus dynamiques* de la physique du dépôt.

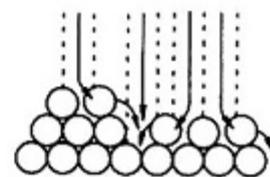
$$J_{DF} = -\beta.m, \quad \beta > 0 \quad \text{M.C. Bartelt, J.W. Evans, } Surf. \text{ Sci. } \mathbf{423} \text{ (1999) } 189$$

Cascade de déplacements des adatoms vers *un site quaternaire stable de la surface* (canalisation, dissipation de l'énergie de condensation...).



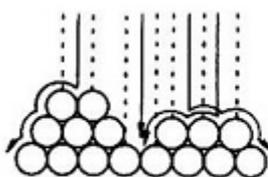
FUNNEL (DF)

Effet de canalisation

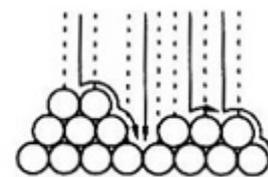


KNOCKOUT (KM)

Ejection d'atomes



2 HOP (2H)



1 HOP (1H)

Mobilité transitoire "transient mobility"
avec franchissement de barrière.

➤ Pertinence des mécanismes à démontrer expérimentalement.

➤ **Sélection de pente** = Question ouverte quant au mécanisme.

Surfaces planes non reconstruites

Instabilités de monticules de lacunes

Abrasion ionique d'une surface

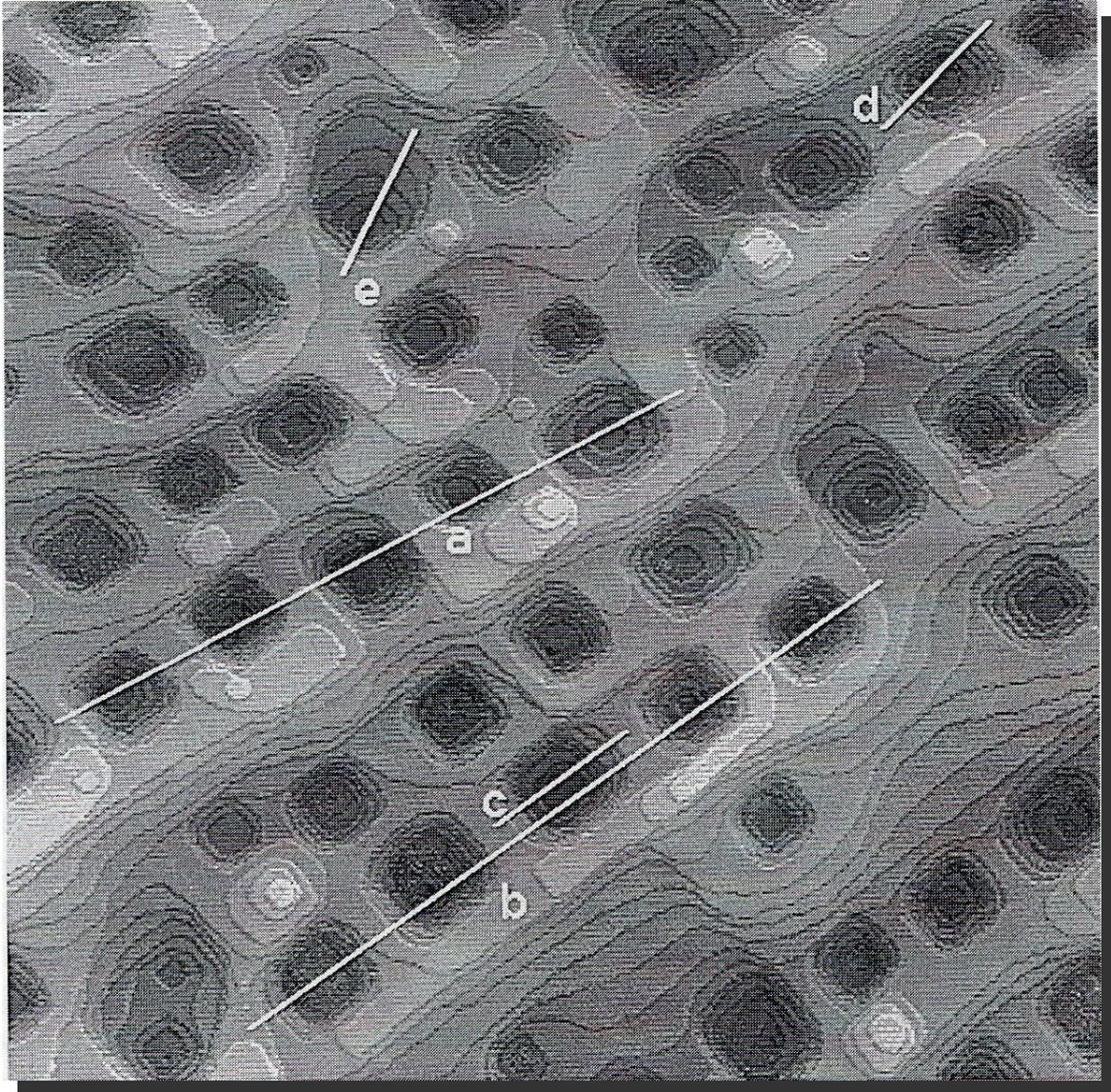


Image STM Cu(001) (200 nm)², $I_{\text{tun.}} \leq 2$ nA, $\Delta V_{\text{tun.}} \leq 2$ V.

Surface Cu(0 0 1) après bombardement par Ar⁺ 400 eV

- Arête des monticules: directions compactes $\langle 110 \rangle$,
- Angle d'incidence des ions 45° ,
- Fluence $5.4 \cdot 10^{15}$ ions/cm² ($F_{\text{ions}} = 6.0 \cdot 10^{12}$ ions/cm².s),
- Température du substrat $T = 310$ K.

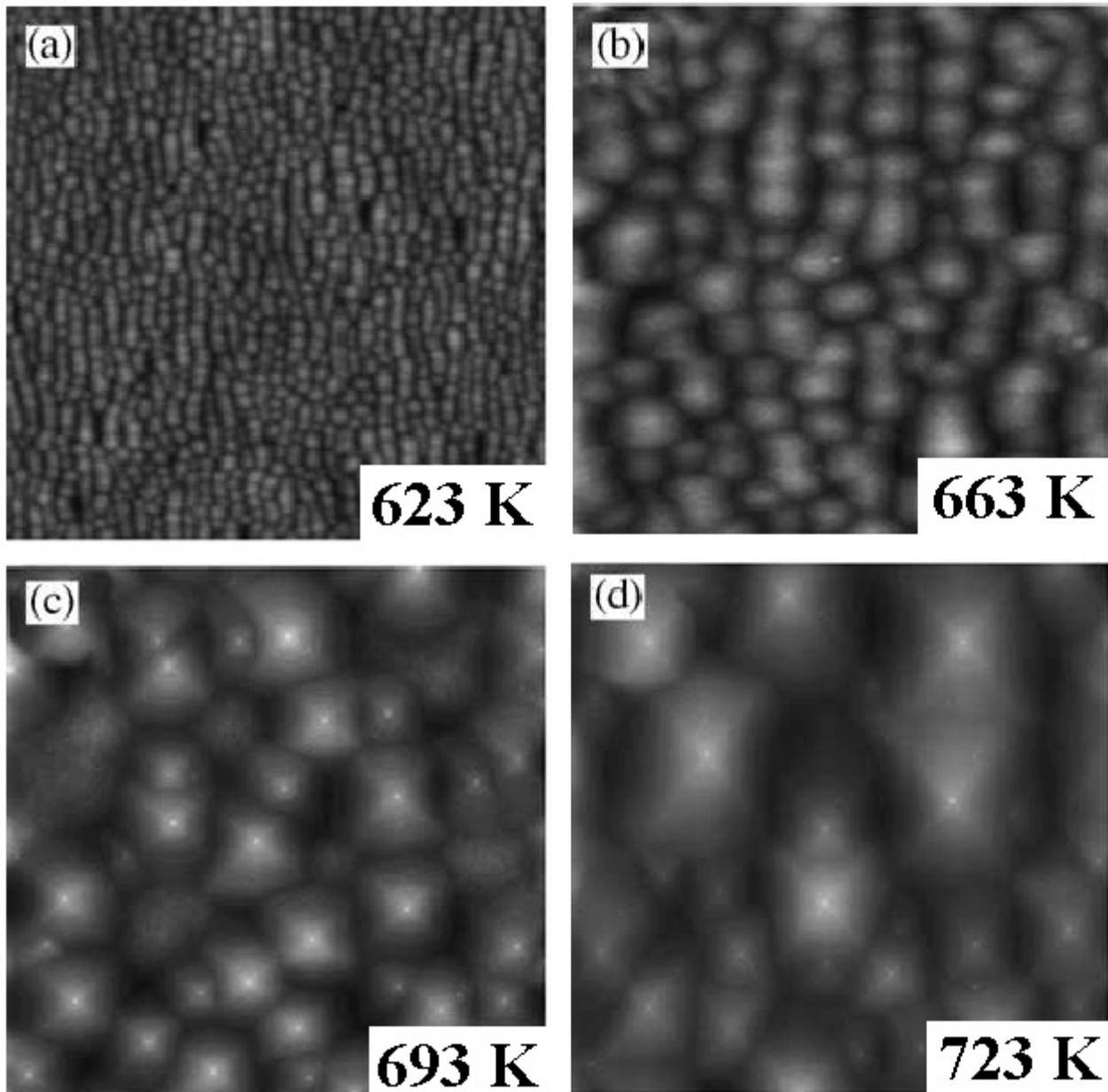
Cu(001) Ar⁺ 400 eV M. Ritter et al. *Surf. Sci.* **348** (1996) 243

Cu(001) Ar⁺ 350 eV H.-J. Ernst, *Surf. Sci.* **383** (1997) L755

Pt(111) Xe⁺ 1000 eV T. Michely et al., *Phys. Rev. Lett.* **86** (2001) 2589

Surfaces planes reconstruites

Instabilité de monticules – Cas des semiconducteurs



Images AFM GaSb(001) ($5\mu\text{m}$)² - échantillons trempés.

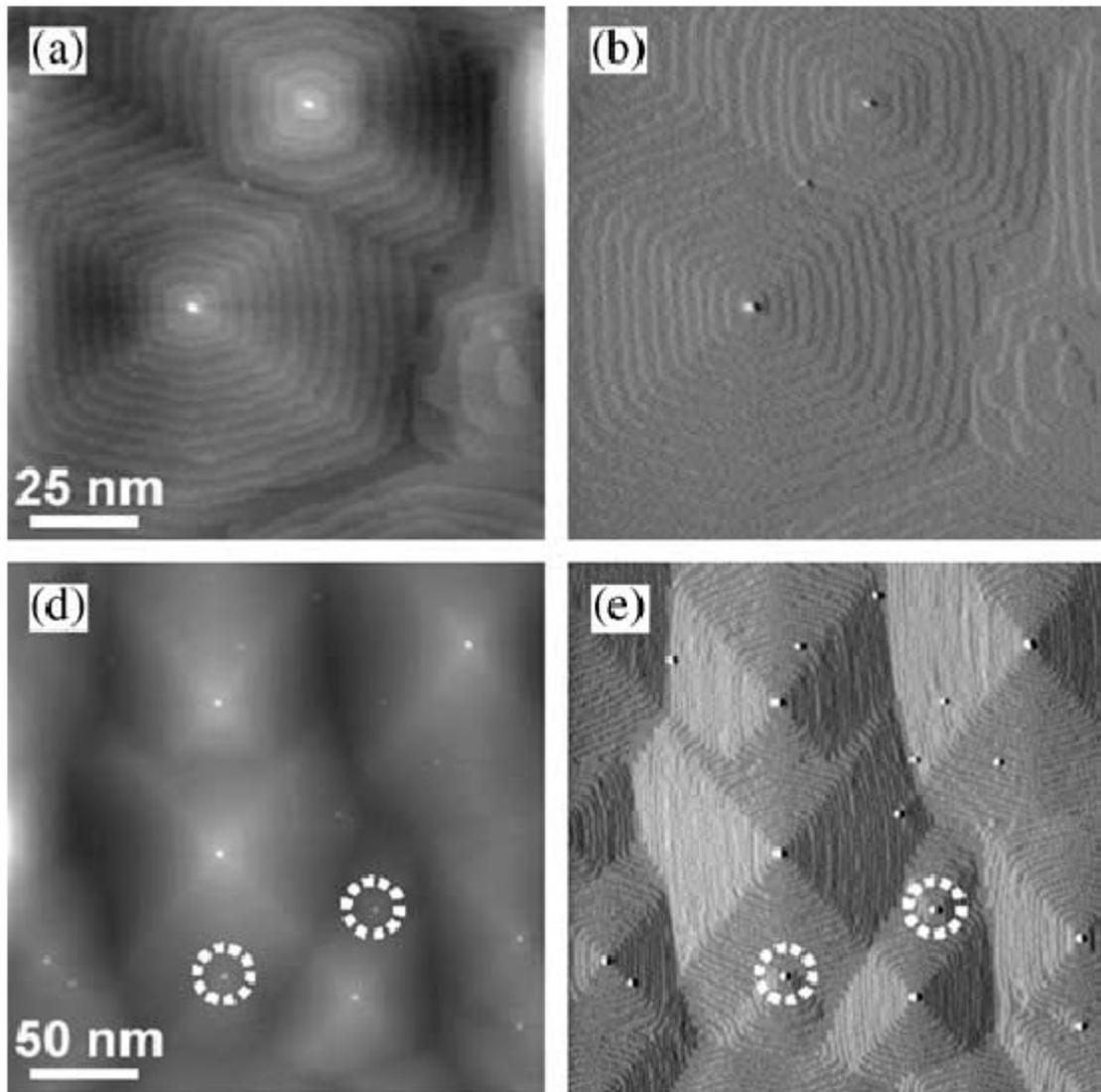
Surface GaSb(0 0 1) après croissance MBE

- $\theta = 0.5 \mu\text{m}$ GaSb, Flux $F = 0.5 \text{ MC/s}$ 2:1 Sb:Ga, Température du substrat $623 \text{ K} \leq T \leq 723 \text{ K}$,
- Présence de monticules (régime de mûrissement).

- Barrières ES 2D faibles, voire controversées,
- Régimes de mûrissement des monticules: taille et pente

Surfaces planes reconstruites

Instabilité de monticules – Cas des semiconducteurs



Images AFM GaSb(001) ($5\mu\text{m}$)² - échantillons trempés.

Surface GaSb(0 0 1) après croissance MBE (AFM)

- $\theta = 0.5 \mu\text{m}$ GaSb, Flux $F = 0.5 \text{ MC/s}$ 2:1 Sb:Ga, Température du substrat $T = 693 \text{ K}$,
- Présence de monticules (régime de mûrissement).

Si(001) N.-E. Lee et al., *Phys. Rev. B* **53** (1996) 7876

Ge(001) J.E. Van Nostrand et al., *Phys. Rev. B* **57** (1998) 12536

GaAs(001) G. Apostolopoulos et al., *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000) 3358

GaSb(001) B.Z. Noshov et al., *J. of Crystal Growth* **236** (2002) 155

InAs(001) M.F. Gyure et al., *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998) 4931

InP(100) J.R.R. Bortoleto et al., *Surf. Sci.* **515** (2002) 117

Instabilités morphologiques, aspects expérimentaux

Conclusion & Remerciements

➤ Exemples de phénomènes physiques d'auto-organisation spatiale spontanée dans le domaine de la physique de l'état condensé: en croissance, en sublimation, par abrasion...

➤ Instabilités morphologiques \Leftrightarrow **Un outil pour la compréhension de la physique** de croissance, de sublimation... de monocristaux,

➤ Instabilités morphologiques \Leftrightarrow **Un outil pour la nanostructuration 2D des surfaces.**

➤ Surfaces auto-organisées = Supports préstructurés pour la croissance d'autres matériaux (magnétiques...).

CEA Saclay DSM / DRECAM / SPCSI Bât. 462
Groupe Nanostructures auto-organisées

L. Douillard
H.J. Ernst
P. Lavie
T. Maroutian
F. Merlet
N. Néel

Phénomènes d'auto-organisation

Instabilités morphologiques – Références biblio.

Instabilités morphologiques de surface – Revues récentes.

Steps on surfaces: experiment and theory, H.-C. Jeong, E.D. Williams, *Surf. Sci. Rep.* **34** (1999) 171

Instabilities in crystal growth by atomic or molecular beams, P. Politi, G. Grenet, A. Marty, A. Ponchet, J. Villain, *Physics Reports* **324** (2000) 271

Step bunching, step wandering and faceting: self-organization at Si surfaces, K. Yagi, H. Minoda, M. Degawa, *Surf. Sci. Rep.* **43** (2001) 45

➤ Instabilité de méandre - Aspects théoriques

Morphological instability of a terrace edge during step-flow growth, G.S. Bales et A. Zangwill, *Phys. Rev. B* **41** (1990) 5500

Fluctuation and instability of steps in a diffusion field, Y. Saito, M. Uwaha, *Phys. Rev. B* **49** (1994) 10 677

New Nonlinear Evolution Equation for Steps during Molecular Beam Epitaxy on Vicinal Surfaces, O. Pierre-Louis, C. Misbah, Y. Saito, J. Krug, P. Politi, *Phys. Rev. Lett.* **80** (1998) 4221

Edge Diffusion during growth: The Kink Ehrlich-Schwoebel Effect and Resulting Instabilities, O. Pierre-Louis, M.R. D'Orsogna, T.L. Einstein, *Phys. Rev. Lett.* **82** 3661 (1999)

Instability in Molecular Beam Epitaxy due to Fast Edge Diffusion and Corner Diffusion Barriers, M.V. Ramana Murty, B.H. Cooper, *Phys. Rev. Lett.* **83** (1999) 352

Instabilities in Crystal Growth by Atomic or Molecular Beams, P. Politi, G. Grenet, A. Marty, A. Ponchet, J. Villain, *Phys. Rep.* **324** (2000) 271

Non-linear evolution of step meander during growth of a vicinal surface with no desorption, F. Gillet, O. Pierre-Louis, C. Misbah, *Eur. Phys. J. B* **18** (2000) 519

Instability and Wavelength Selection during Step Flow Growth of Metal Surfaces Vicinal to fcc(001), M. Rusanen, I.T. Koponen, J. Heinonen, T. Ala-Nissila, *Phys. Rev. Lett.* **86** (2001) 5317

Instabilités, dynamique non linéaire et fluctuations des surfaces vicinales hors de l'équilibre, Thèse de doctorat O. Pierre-Louis, Université Joseph Fourier - Grenoble (1997)

Dynamique non linéaire de surfaces vicinales hors de l'équilibre, Thèse de doctorat F. Gillet, Université Joseph Fourier - Grenoble (2000)

➤ **Instabilité de méandre - Aspects expérimentaux**

Wavelength selection in unstable homoepitaxial step flow growth, T. Maroutian, L. Douillard, H.-J. Ernst, *Phys. Rev. Lett.* **83** (1999) 4353

Morphological instability of Cu vicinal surfaces during step-flow growth, T. Maroutian, L. Douillard, H.-J. Ernst, *Phys. Rev. B* **64** (2001) 165401

Stability-instability transition in silicon crystal growth, P. Finnie, Y. Homma, *Phys. Rev. Lett.* **85** (2000) 3237

Morphological instability of atomic steps observed on Si(111) Surfaces, Y. Homma, P. Finnie, M. Uwaha, *Surf. Sci.* **492** (2001) 125

Step wandering induced by homoepitaxy on Si(111) during «1x1» - 7x7 phase transition, H. Hibino, Y. Homma, M. Uwaha, T. Ogino, *Surf. Sci.* **527** (2003) L222

➤ **Instabilité de mise en paquets – Aspects théoriques**

Simultaneous bunching and debunching of surface steps: Theory and relation to experiments, D. Kandel, J.D. Weeks, *Phys. Rev. Lett.* **74** (1995) 3632

Surface diffusion mechanism for step bunching, M.I. Larsson, *Phys. Rev. B* **56** (1997) 15157

Crystal symmetry, step-edge diffusion, and unstable growth, P. Politi, J. Krug, *Surf. Sci.* **446** (2000) 89

Growth law of step bunches induced by the Ehrlich-Schwoebel effect in growth, M. Sato, M. Uwaha, *Surf. Sci.* **493** (2001) 494

Dimer diffusion as a driving mechanism of the step bunching instability during homoepitaxial growth, M. Vladimirova, A. De Vita, A. Pimpinelli, *Phys. Rev. B* **64** (2001) 245420

Scaling and universality of self-organized patterns on unstable vicinal surfaces, A. Pimpinelli, V. Tonchev, A. Videcoq, and M. Vladimirova, *Phys. Rev. Lett.* **88** (2002) 206103

Step bunching with general step kinetics: stability analysis and macroscopic models, O. Pierre-Louis, *Surf. Sci.* **529** (2003) 114

➤ **Instabilité de mise en paquets – Aspects expérimentaux**

Transformation on clean Si(111) stepped surface during sublimation, A.V. Latyshev, A.L. Aseev, A.B. Krasilnikov, S.I. Stenin, *Surf. Sci.* **213** (1989) 157, **227** (1990) 24

The effective charge in surface electromigration, E.S. Fu, D.-J. Liu, M.D. Johnson, J.D. Weeks, E.D. Williams, *Surf. Sci.* **385** (1997) 259

Impact of the growth on the stability-instability transition at Si(111) during step bunching induced by electromigration, J.J. Métois, S. Stoyanov, *Surf. Sci.* **440** (1999) 407

Step bunching, step wandering and faceting: self-organization at Si surfaces, K. Yagi, H. Minoda, M. Degawa, *Surf. Sci. Rep.* **43** (2001) 45

From meandering to faceting, is step flow growth ever stable ?, N. Néel, T. Maroutian, L. Douillard, H.-J. Ernst, *Phys. Rev. Lett.* submitted (2003)

➤ **Instabilité de monticules – Aspects théoriques**

Continuum models of crystal growth from atomic beams with and without desorption, J. Villain, *J. Phys. I* **1** (1991) 19

Growth roughness and instabilities due to the Schwoebel effect: a one dimensional model, I. Elkinani, J. Villain, *J. Phys. I France* **4** (1994) 949

Slope selection and coarsening in molecular beam epitaxy, M. Siegert, M. Plischke, *Phys. Rev. Lett.* **73** (1994) 1517

Ehrlich-Schwoebel instability in molecular-beam epitaxy: a minimal model, P. Politi, J. Villain, *Phys. Rev. B* **54** (1996) 5114

Origins of scale invariance in growth processes, J. Krug, *Adv. Phys.* **46** (1997) 139

Coarsening dynamics of crystalline thin films, M. Siegert, *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998) 5481

Temperature dependence of kinetic roughening during metal(100) homoepitaxy: transition between ‘mounding’ and smooth growth, M.C. Bartelt, J.W. Evans, *Surf. Sci.* **423** (1999) 189

Four lectures on the physics of crystal growth, J. Krug, *Physica A* **313** (2002) 47

➤ Instabilité de monticules d'adatomes – Aspects expérimentaux

Observation of a growth instability during low temperature molecular beam epitaxy, H.-J. Ernst, F. Fabre, R. Folkerts, J. Lapujoulade, *Phys. Rev. Lett.* **72** (1994) 112

Kinetics of growth of Cu on Cu(100), H.-J. Ernst, F. Fabre, R. Folkerts, J. Lapujoulade, *J. Vac. Sci. Technol. A* **12** (1994) 1809

Evolution of Mound Morphology in Reversible Homoepitaxy on Cu(100), J.-K Zuo, J.F. Wendelken, *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997) 2791

Growth anisotropy and pattern formation in metal epitaxy, L.C. Jorritsma, M. Bijmagne, G. Rosenfeld, B. Polsema, *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997) 911

Coarsening of unstable surface features during Fe(001) homoepitaxy, J.A. Strosio, D.T. Pierce, M.D. Stiles, A. Zangwill, L.M. Sander, *Phys. Rev. Lett.* **75** (1995) 4246 – Fe(001)

Development and ordering of mounds during metal(100) homoepitaxy, K.J. Caspersen, A.R. Layson, C.R. Stoldt, V. Fournee, P.A. Thiel, J.W. Evans, *Phys. Rev. B* **65** (2002) 193407 – Ag(001)

Surface morphology of homoepitaxial GaSb films grown on flat and vicinal substrates, B.Z. Nosh, B.R. Bennet, E.H. Aifer, M. Goldenberg, *J. of Crystal Growth* **236** (2002) 155 - GaSb

Unstable growth on rough surfaces, M.F. Gyure, J.J. Zinck, C. Ratsch, D.D. Vvendsky, *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998) 4931 – InAs

Anisotropic unstable and stable growth of homoepitaxial (100) InP films, J.R.R. Bortoleto, M.A. Cotta, M.M.G. de Carvalho, *Surf. Sci.* **515** (2002) 117 – InP

Surface roughening during low-temperature Si epitaxial growth on singular vs vicinal Si(001) substrates, N.-E. Lee, D.G. Cahill, J.E. Greene, *Phys. Rev. B* **53** (1996) 7876 – Si

Low-temperature growth morphology of singular and vicinal Ge(001), J.E. Van Nostrand, S.J. Chey, D.G. Cahill, *Phys. Rev. B* **57** (1998) 12536 – Ge

Reentrant mound formation in GaAs(001) homoepitaxy observed by ex situ atomic force microscopy, G. Apostolopoulos, J. Herfort, L. Däwerotz, K.H. Ploog, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000) 3358 - GaAs

➤ Instabilité de monticules de lacunes – Aspects expérimentaux

Nanostructuring of the Cu(001) surface by ion bombardment: a STM study, M. Ritter, M. Stindtmann, M. Farle, K. Baberschke, *Surf. Sci.* **348** (1996) 243

The pattern formation during ion bombardment of Cu(001) investigated with helium atom beam scattering, H.-J. Ernst, *Surf. Sci. Lett.* **383** (1997) L755

Step edge diffusion and step atom detachment in surface evolution: ion erosion of Pt(111), T. Michely, M. Kalff, G. Comsa, M. Strobel, K.-H. Heinig, *Phys. Rev. Lett.* **86** (2001) 2589