



Experiment title: Etude par diffusion aux petits angles du processus d'auto-organisation de pavés N/Cu(100) et de la croissance d'agrégats d'or sur la surface pré-structurée
Study by small-angle scattering of the self-organized growth of N/Cu(100) and of the growth of gold clusters on the pre-patterned surface

Experiment number:
32.03.616

Beamline:	Date of experiment: from: 12/05/04 to: 17/05/04	Date of report: 28/07/04
Shifts:	Local contact(s): Gilles Renaud, Antoine Létoublon	<i>Received at ESRF:</i> 28/07/04

Names and affiliations of applicants (* indicates experimentalists):

Lazzari Rémi, Prévot Geoffroy, Croset Bernard

Adresse : Groupe de Physique des Solides, CNRS UMR 7588 – Universités Paris 6-7, Campus Boucicaut, 140 Rue de Lourmel, 75015 Paris

Renaud Gilles, Létoublon Antoine, Noblet Marion

Adresse : CEA-Grenoble, DFRMC/SP2M/NRS, 17 Rue de Martyrs, 38054 Grenoble, Cedex 09

Report:

Le comité de programme CRG avait alloué 27 shifts au total pour trois expériences 32.3.616 (Au/N/Cu(100)), 32.3.621 (Pt/W(111)) et 32.3.615 (Co/Ag/MgO(100)). L'objectif de l'expérience 32.03.616 était d'étudier par diffusion aux petits angles en incidence rasante les processus d'auto-organisation de la phase chimisorbée d'azote sur Cu(100) et la croissance d'agrégats d'or sur le gabarit ainsi obtenu.

Pour ce faire, un canon à ions à cathode chaude (de type RIBER) avait été monté sur la chambre ultra-vide SUV (ainsi qu'une bouteille d'azote ultra-pur sur la rampe à gaz) de façon à pouvoir dissocier l'azote moléculaire avant adsorption. Une première tentative d'expériences (15 shifts du 12/05 au 17/05/04) a été infructueuse. La préparation classique du substrat par bombardement ionique (800eV-5µA) suivie d'un recuit flash à 520°C a conduit à des surfaces d'excellente qualité cristalline (CTR intense en anti-Bragg dans le plan et de 0.1° de large en ω -scan). Cependant, il a été impossible de trouver les conditions adéquates pour adsorber correctement l'azote atomique et réaliser des pavés ordonnés malgré les points de repères déjà existants lors des expériences au GPS ou au LURE. Plusieurs conditions de pression stationnaire d'azote, de température et de polarisation de l'échantillon ont été essayées en vain. En diffraction, la reconstruction c(2x2), l'allure des tiges de troncature du substrat (111), (201) et (221) caractéristique de l'azote chimisorbé et des relaxations qu'il induit ainsi qu'une faible signature Auger de l'azote ont pu être observés. Cependant, les satellites caractéristiques de l'organisation des pavés étaient absents. Nous soupçonnons une pollution de la chambre ou de la rampe à gaz.

L'expérience a pu être retentée avec un meilleur succès du 13/07/04 au 19/07/04 (sur temps propre SUV) après une préparation plus soignée du système d'introduction de gaz et du vide de la chambre. G. Prévot a pu quelques jours avant l'expérience cerner les conditions idoines d'adsorption en RHEED (un dédoublement des tiges du substrat du à l'organisation des pavés d'azote étant visibles ainsi que la

reconstruction $c(2 \times 2)$) et en spectroscopie Auger. Après un réglage de l'optique de la ligne à 18keV et du montage GISAXS et un calibrage de la vitesse d'évaporation d'or, nous avons visé l'obtention du taux de couverture nominal de 0.8 monocouche d'azote qui correspond à l'optimum d'organisation à 2D des pavés c'est-à-dire à une période interligne de 5.6nm égale à la distance intra-ligne entre pavés. Des balayages radiaux dans le plan et légèrement hors du plan dans des conditions où les facteurs de structures des satellites et de la tige du substrat sont d'intensités comparables (cf B. Croset, Y. Girard, G. Prévot, M. Sotto, Y. Garreau, R. Pinchaux, M. Sauvage-Simkin, Phys. Rev. Lett. 88 (2002) 056103-1) ont été effectués autour de la raie (220). Lors des premiers essais, nous avons tenté des adsorptions à température ambiante mais à des pressions ou des temps d'exposition variables ($p(N_2) \sim 5 \cdot 10^{-5}$ mbar, quelques minutes) suivies par des recuits flash à des températures de l'ordre de 350°C. Cependant, la méthode semblait peu reproductible. Nous avons alors suivi au cours du temps par diffraction l'adsorption à chaud ($T=370^\circ\text{C}$) jusqu'à obtenir la période voulue avec lors de la seconde tentative la présence des satellites de diffraction d'ordre 3 (Fig. 1).

Le signal de diffusion aux petits angles sur la surface recouverte de pavés présente les tiges de diffusion d'ordre 1 sur lesquelles apparaissent deux « griffures » à q_z non nul. Pour une incidence au-delà de l'angle critique du substrat, la fluorescence du cuivre se superpose au signal GISAXS. Les tiges d'intensité assez faible (100 coups en 5 minutes) à la période des pavés disparaissent lors du bombardement de la surface et sont très étendues en q_z et larges de 0.5° en ω . Il est probable qu'elles soient dues aux pavés d'azote eux-mêmes. Par contre, les « griffures » dont l'orientation reste difficile à comprendre qualitativement sont beaucoup mieux définies en ω (0.1°). Leur origine semble être liée aux contraintes en volume. Nous avons pu remesurer avec précision en GIXS les deux tiges intégrées (111) et (201) avec leurs satellites par des balayages en hk afin de déterminer la force qu'exercent les pavés sur le substrat. Le dépôt de 0.08 monocouche d'or s'est traduit par une intensité fortement exacerbée sur les tiges GISAXS d'organisation des pavés avec apparition des ordres (10) (20) et (11). Nous avons pu partiellement intégrer ces tiges aux petits angles en rotation ω . Malheureusement, au moment de mesurer les tiges en diffraction pour déterminer l'évolution de la force, un arrêt malencontreux du pompage primaire de la chambre a entraîné une forte remontée de pression. Heureusement, le piège froid a limité la remontée de pression. Etant prêt de la fin de l'expérience, nous avons réalisé un étuvage sommaire et aboutit à un vide limite de $3 \cdot 10^{-9}$ mbar. Après bombardement, nous avons réadsorbé de l'azote et obtenu une surface extrêmement bien organisée avec des satellites bien définis. Lors de la dernière journée, nous avons déposé séquentiellement de l'or 0.08, 0.16, 0.24, 0.48, 0.72 et 2 monocouches tout en suivant en GISAXS l'évolution des tiges et qualitativement en diffraction aux grands angles l'évolution des satellites dus aux pavés d'azote et l'apparition du signal de diffraction des agrégats d'or. Les tiges GISAXS dans la direction [100] dues à la croissance organisée des particules d'or se renforcent tout au cours de la croissance avec l'apparition du satellite GISAXS (21). Nous avons effectuées des mesures précises en rotation ω afin de reconstituer la forme des tiges. Par contre, vers 0.24MC (Fig. 2), un halo de diffusion due à la coalescence commence à apparaître sous la tige GISAXS (10) et de manière plus visible dans l'azimut [110].

Les résultats obtenus sont extrêmement encourageants et vont nous permettre d'avoir une meilleure image du phénomène de croissance-coalescence des îlots d'or. Malheureusement, par manque de temps, nous n'avons pas pu mesurer l'évolution de la force lors du dépôt d'or et aller jusqu'à la relaxation complète de l'or à son paramètre de maille de volume.

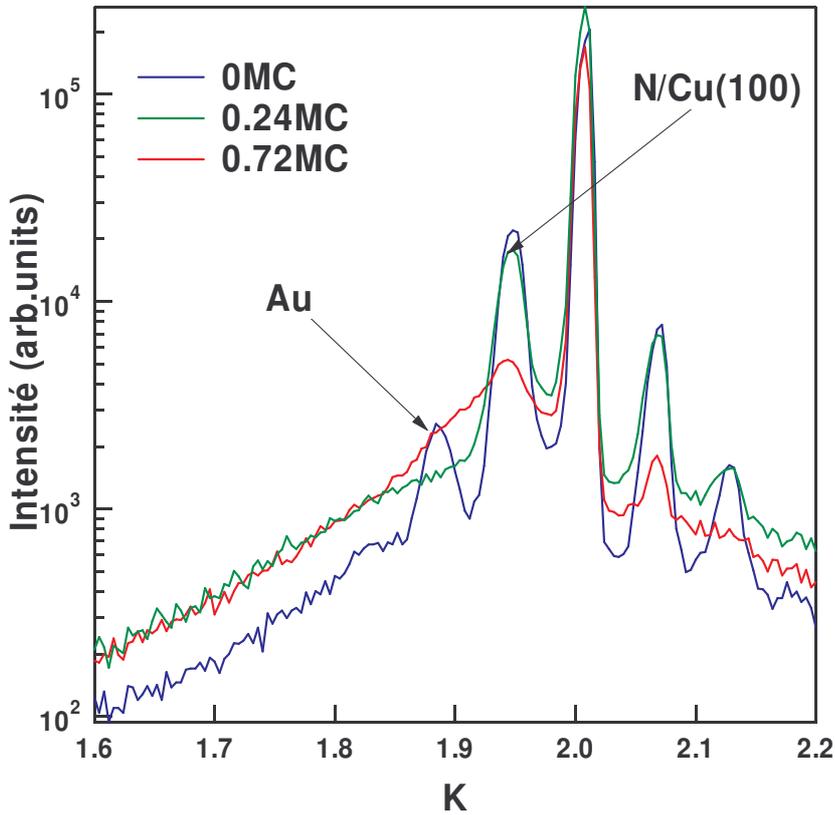


Figure 1 : Balayage radial $h=k$ autour de la raie $(2\ 2\ 0.2)$. Les satellites dus aux pavés d'azote ne disparaissent qu'à partir de la coalescence des îlots d'or. Commence alors à émerger un épaulement dû à la diffraction par les agrégats.

Images GISAXS sur un dépôt de 0.48MC d'or sur

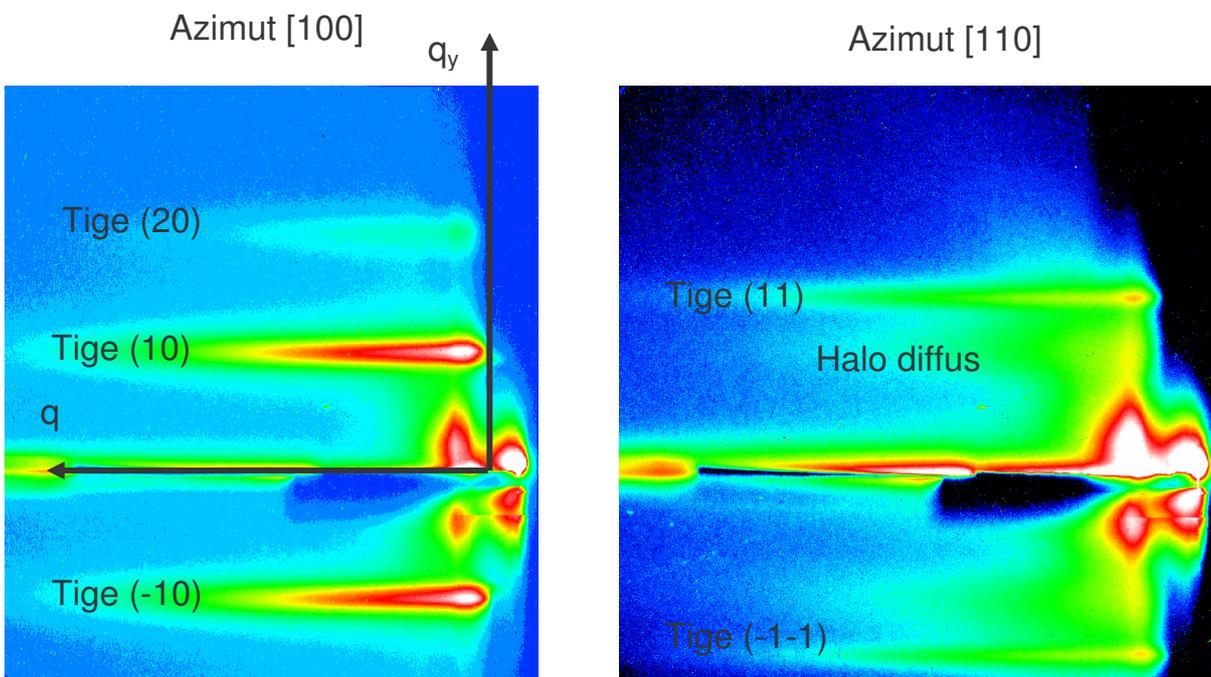


Figure 2 : Images GISAXS obtenues sur les agrégats d'or auto-organisés sur la gabarit N/Cu(100). Début de la coalescence.