

# RECHERCHE COOPÉRATIVE SUR PROGRAMME N° 25

SYLVIE ROUSSET

## Introduction à la microscopie tunnel

*Les rencontres physiciens-mathématiciens de Strasbourg - RCP25*, 1988, tome 39  
« Conférences de P. Degond, R. Gérard, C. Itzykson, F. Wegner et Mlle S. Rousset », ,  
exp. n° 3, p. 33-49

[http://www.numdam.org/item?id=RCP25\\_1988\\_\\_39\\_\\_33\\_0](http://www.numdam.org/item?id=RCP25_1988__39__33_0)

© Université Louis Pasteur (Strasbourg), 1988, tous droits réservés.

L'accès aux archives de la série « Recherche Coopérative sur Programme n° 25 » implique l'accord avec les conditions générales d'utilisation (<http://www.numdam.org/conditions>). Toute utilisation commerciale ou impression systématique est constitutive d'une infraction pénale. Toute copie ou impression de ce fichier doit contenir la présente mention de copyright.

NUMDAM

Article numérisé dans le cadre du programme  
Numérisation de documents anciens mathématiques  
<http://www.numdam.org/>

## INTRODUCTION A LA MICROSCOPIE TUNNEL

Sylvie ROUSSET

Groupe de Physique des Solides de l'Ecole Normale Supérieure  
Université Paris VII - 2, place Jussieu - 75251 PARIS Cédex 05

Le début des années quatre-vingt est marqué par la naissance d'un nouveau microscope, le microscope à effet tunnel, inventé par G. Binnig et H. Rohrer à I.B.M. Zürich. En 1986, les auteurs de cette découverte sont récompensés par l'attribution du prix Nobel de physique et déjà un nombre croissant de microscopes fonctionnent partout dans le monde. L'originalité de la Microscopie à Effet Tunnel (M.E.T.) explique un tel succès : c'est une nouvelle technique d'analyse des surfaces qui permet de dresser des cartes en relief d'une surface avec une *résolution atomique*. Contrairement aux techniques de diffraction, elle étudie la surface dans l'espace direct et celle-ci ne doit pas être nécessairement périodique. On dispose d'une véritable sonde *locale* qui nous renseigne à la fois sur la structure atomique et électronique de la surface avec une très haute résolution.

Cet exposé décrit d'abord le principe de fonctionnement du microscope ainsi que sa réalisation technique avant de préciser quelle est réellement l'information obtenue. Une dernière partie est consacrée à la possibilité de faire de la spectroscopie, c'est-à-dire une analyse en énergie, résolue spatialement.

\* \* \*

L'origine physique du microscope à effet tunnel est, comme son nom l'indique, l'*effet tunnel d'électrons* dans le vide. La M.E.T. est donc un produit de la mécanique quantique. En effet, en mécanique quantique, chaque électron est caractérisé par sa fonction d'onde et une probabilité de présence en chaque point. Dans un métal, sa fonction d'onde est périodique mais dans le vide elle décroît exponentiellement. Ainsi l'électron n'est pas confiné dans le métal, contrairement à la description classique, mais peut sortir un peu dans le vide. Lorsqu'on approche un deuxième métal suffisamment près pour que les fonctions d'onde des électrons aient un recouvrement non nul dans l'interstice, ceux-ci peuvent passer d'un métal à l'autre et lorsqu'on applique une différence de potentiel entre les deux métaux, un courant s'établit, par effet tunnel. L'espace à franchir entre les deux électrodes constitue la barrière tunnel.

Dans le microscope à effet tunnel, la première électrode est une *pointe métallique* qui sert de sonde tandis que la deuxième est la surface à analyser.

Une caractéristique essentielle de l'effet tunnel est que le facteur de transmission décroît exponentiellement avec la largeur de la barrière, d'un ordre de grandeur pour chaque Angström. L'idée du microscope est d'utiliser une électrode en forme de pointe; tout le courant passe alors pratiquement par les atomes du bout de la pointe. On sonde ainsi directement l'endroit de la surface qui est devant la pointe, avec une résolution latérale de l'ordre de la dimension atomique (voir figure 1).

Le principe du microscope est alors le suivant: une pointe, montée sur un trièdre trirectangle de trois céramiques piézoélectriques,  $x$  et  $y$  pour les déplacements parallèles à la surface et  $z$  pour la direction perpendiculaire, est balayée devant la surface à quelques Angströms de celle-ci. Une différence de potentiel  $V_0$  constante est appliquée entre les deux électrodes ce qui permet à un courant  $I$  de s'établir. Dans le mode dit de "courant constant", on enregistre les déplacements verticaux,  $z$ , de la pointe en fonction du point  $(x,y)$  sur la surface pour que le courant soit asservi à une valeur constante  $I_0$ . Le trajet de la pointe suit globalement la topographie de la surface (voir figure 2). Un autre mode de fonctionnement équivalent, à "hauteur constante" consiste à fixer la hauteur  $z$  de la pointe et à enregistrer les variations du courant  $I(x,y)$ . De la même façon,  $I$  reproduit le relief de la surface.

Si le principe du microscope est simple, et avait déjà été envisagé<sup>(1)</sup>, de nombreux problèmes restaient à résoudre pour obtenir une très haute résolution.

Pour stabiliser la distance pointe-surface à mieux que le dixième d'Angström, il faut découpler le système des vibrations extérieures. Les systèmes antivibrations sont réalisés soit par plusieurs étages de ressorts (généralement deux) en série mais ceci est assez encombrant, soit par un empilement de plaques en inox séparées par des joints en Viton (matériau absorbant, comme le caoutchouc, mais adapté à l'ultra-vide).

Pour approcher la surface à quelques Angströms de la pointe sans qu'un contact ne vienne endommager celle-ci, plusieurs méthodes sont employées: des approches mécaniques où des systèmes de vis couplés à des leviers permettent de diviser les déplacements ou un moteur piézoélectrique appelé "louse" qui utilise la grande sensibilité des céramiques piézoélectriques (quelques Angströms par Volt). Ainsi on peut déplacer la surface de quelques microns à une dizaine d'Angströms. Une approche fine couplée au système d'asservissement permet de terminer le positionnement de la pointe par rapport à l'échantillon.

La pointe est fabriquée par attaque électrochimique dans de la soude, ou tout simplement par un fil de platine irridié coupé avec une pince. Les premières expériences de Binnig et Rohrer ont été réalisées avec des pointes meulées! En fait la résolution atomique de la pointe

dépend plus de recettes appliquées in-situ (bombardement électronique de la pointe, application d'une tension élevée) que de la préparation initiale.

Le schéma du "pocket-sized" microscope, qui est à peine plus grand qu'une grosse boîte d'allumettes est représenté figure 3 mais il existe de nombreux modèles différents de microscopes.

\* \* \*

On a vu et c'est ce que prévoient les modèles les plus simplifiés que le microscope à effet tunnel devrait mesurer la topographie de la surface. Mais en réalité les choses sont beaucoup plus compliquées lorsqu'on veut interpréter physiquement à l'échelle atomique les signaux de microscopie tunnel. Il faut reprendre la description en terme de fonctions d'onde d'électrons et en incluant la géométrie de la pointe. La théorie de Tersoff et Hamann (T&H)<sup>(2)</sup> prédit que, dans la limite des faibles tensions, la quantité mesurée est la **densité d'états électroniques du solide près du niveau de Fermi et au centre de courbure de la pointe** (le niveau de Fermi est défini dans un métal par le niveau occupé le plus élevé). Il ne s'agit que d'une approximation et la théorie de la M.E.T. est encore actuellement en cours de développement.

Si la répartition des électrons au niveau de Fermi est particulière, on obtient une image différente de la structure atomique de la surface. Dans le cas des métaux, la densité électronique est suffisamment uniforme pour qu'on observe bien les atomes mais dans le cas des semiconducteurs ou des semimétaux, il y a souvent des effets de structure électronique.

Deux exemples typiques ne peuvent être compris qu'en terme de densité électronique au niveau de Fermi.

Le graphite est un échantillon classique en microscopie à effet tunnel car sa surface plane à l'échelle atomique et très inerte permet d'obtenir des images résolues atomiquement après simple clivage à l'air. Il est donc très utilisé comme test et étalonnage des céramiques piézoélectriques. C'est un composé lamellaire semi-métallique dont on connaît bien la structure : la structure atomique est hexagonale de type nid d'abeille (i.e. juxtaposition d'hexagones) (cf. Fig. 4a). Or, les images tunnel (cf. Fig. 4b) présentent une symétrie qu'on pourrait appeler hexagonale centrée ou triangulaire qui ne reflète donc pas la topographie atomique de la surface. En fait, le graphite est constitué d'un empilement de plans et si on considère l'hexagone de surface par rapport au plan hexagonal du dessous, on s'aperçoit qu'un atome (A) sur deux a un voisin directement sous lui

tandis que l'autre (B) n'en a pas (cf. Fig. 4a). L'environnement électronique de ces atomes est donc différent. On peut montrer que les électrons au niveau de Fermi sont localisés au dessus des atomes (B). Ainsi, le microscope tunnel ne voit que ces atomes ce qui justifie la symétrie observée.

Un autre exemple, historique celui-ci, est celui qui permit à la microscopie tunnel de s'imposer car elle contribua de façon décisive à établir le modèle de la structure atomique de la surface que l'on appelle "silicium (111) 7x7". Silicium (111) représente l'orientation cristallographique de la surface. Lorsqu'on coupe un cristal pour créer une surface, on brise des liaisons entre les atomes. Ces liaisons non saturées sont appelées des liaisons pendantes, et les atomes se réarrangent pour minimiser le nombre de ces liaisons afin de minimiser l'énergie de surface. La surface est ainsi reconstruite. Ici "7x7" signifie que la maille de la surface reconstruite a des côtés sept fois plus grands que la maille initiale. Le motif de cette maille est très compliqué et se produit sur plusieurs couches<sup>(3)</sup>.

L'image tunnel fait apparaître douze atomes, appelés adatoms, dans la maille losange (voir Fig. 5). Il semble que les adatoms de la moitié du losange soient à une hauteur différente de ceux de l'autre moitié. En fait ils sont bien dans le même plan de surface mais cette dissymétrie est due à un arrangement différent des atomes des couches du dessous: une faute d'empilement existe dans une moitié de la maille. Cela modifie la structure électronique de cette moitié et donc l'image tunnel.

Lorsqu'on enregistre la même image mais à une tension tunnel opposée, les adatoms apparaissent à la même hauteur. Le paramètre, la tension appliquée entre la pointe et l'échantillon, est fondamental en microscopie tunnel et c'est grâce à lui que l'on peut étudier la structure électronique de la surface. Ceci mérite d'être précisé et illustré.

\* \* \*

Dans la théorie de T&H, le niveau de Fermi n'intervient pas par hasard. Dans la limite des tensions faibles et en considérant que les deux électrodes ont le même niveau de Fermi, les seuls électrons qui participent au courant tunnel sont ceux dont l'énergie est juste au niveau de Fermi (l'effet tunnel étudié ici est élastique).

Lorsqu'on applique une tension plus élevée, les niveaux de Fermi des deux électrodes se décalent de l'énergie  $eV$  pour assurer l'égalité

des potentiels chimiques et les électrons qui contribuent au courant ont des énergies comprises entre  $E_f$  et  $E_f + eV$ . Pour étendre la théorie de T&H, il faut convoluer les densités d'états de la pointe et de la surface entre ces énergies. La densité d'états de la pointe n'apparaissait pas dans T&H car elle est prise comme constante mais la pointe et la surface jouent des rôles tout à fait symétriques. En général la structure de la surface étudiée varie plus que celle de la pointe et celle-ci peut donc être considérée comme constante.

On constate alors que la dérivée du courant  $I$  par rapport à la tension est proportionnelle à la densité d'états de la surface  $\rho_S$  à la tension considérée  $V$  (voir Fig. 6) :

$$\frac{dI}{dV}(V) \propto \rho_S(V)$$

On dispose d'une *méthode spectroscopique locale* puisque la caractéristique  $dI/dV(V)$  est enregistrée à l'endroit de la surface sondé par la pointe.

Lorsqu'on balaie la pointe devant la surface, comme pour faire une image tunnel, on obtient la *spectroscopie tunnel à balayage*. Avec une électronique suffisamment rapide, on peut enregistrer en chaque point de balayage un spectre qui contient par exemple  $N$  valeurs différentes. On reconstitue alors pour chaque valeur de  $V$  une image spectroscopique qui donne le courant ou la dérivée du courant suivant la quantité enregistrée. On dispose donc de  $N$  images spectroscopiques. L'intérêt est que si deux valeurs  $V_1$  et  $V_2$  entourent un pic dans la densité d'états, par exemple un état de surface (cf. Fig. 6), lorsqu'on fait la différence des deux images spectroscopiques, celle à  $V_1$  et celle à  $V_2$ , on doit obtenir une image qui indique où ce pic est localisé sur la surface. C'est donc une méthode très puissante qui permet effectivement d'avoir une résolution spatiale en énergie mais qu'il faut manier avec prudence.

En effet, les trois paramètres suivants : le courant, la tension, et la distance pointe-surface sont intimement liés par la transmission de la barrière. Or pour qu'un spectre ait un sens, il doit être enregistré à distance constante! On peut s'affranchir de cette difficulté en appliquant les différentes tensions  $V$  avec une rampe de fréquence plus élevée que la boucle d'asservissement, ainsi la pointe reste à une distance moyenne.

Lorsqu'on fait de la spectroscopie balayée, la pointe doit rester à la distance topographique. On réalise ceci grâce à deux circuits, l'un avec la boucle d'asservissement qui permet de fixer la distance topographique imposée par un couple  $(I_0, V_0)$ , l'autre où la boucle est coupée (la pointe ne bouge donc plus) mais où on enregistre très rapidement un spectre. En chaque point de balayage, un interrupteur

permet de passer successivement d'un circuit à l'autre pour refixer la hauteur de la pointe puis enregistrer un spectre. Cette méthode appelée "C.I.T.S." est due à Demuth<sup>(4)</sup>.

Une spectroscopie, non balayée, mais réalisée en chaque point caractéristique du motif de la maille losange de la surface du Si (111) 7x7 est présentée figure 7. En plus des douze adatoms, on distingue six "atomes restants" qui appartiennent à la première couche de dessous et ne sont pas liés à des adatoms. Le spectre donne I/V et les pics de densité correspondent donc à des marches sur cette courbe. Les résultats se comparent bien à ceux de photoémission directe et inverse. Notons que si la tension de l'échantillon est négative par rapport à la pointe, on sonde les états pleins de l'échantillon tandis que pour le signe opposé ce sont les états vides. On a donc à la fois les états pleins et les états vides alors qu'en photoémission, cela correspond à deux techniques différentes. Remarquons surtout les deux états de surface associés soit aux adatoms, -0,35 v, soit aux atomes restants, -0,8 v ; si on fait des différences de courant selon la méthode précisée ci-dessus en choisissant des valeurs  $V_1$  et  $V_2$  entourant ces deux valeurs respectivement -0.35 v et -0.8 v, on obtient les deux images spectroscopiques de la figure 8. L'image (a) montre bien les adatoms tandis que (b) met en évidence l'existence des atomes restants en accord avec le modèle schématisé sur la figure 7.

Le résultat est ici spectaculaire mais dans d'autres cas, cette spectroscopie est plus délicate, ce qui explique qu'elle ne se soit pas très répandue pour l'instant.

Une spectroscopie plus couramment utilisée consiste à faire des images en mode de courant constant (on enregistre alors les variations de hauteur  $z$  de la pointe et pas le courant comme dans le CITS) mais à des potentiels différents. En particulier, avec des images obtenues à des potentiels de signes opposés, on peut comparer la répartition des états pleins et des états vides. Dans le cas, de l'arsenure de gallium GaAs, il se trouve qu'un état vide est localisé sur l'atome de Ga alors qu'un état plein l'est sur l'atome de As, les deux images sont donc décalées d'autant. Notons qu'il faut enregistrer les deux images simultanément en commutant rapidement, un balayage sur deux, entre les deux potentiels pour être sûr d'imager la même zone exactement (voir figure 9).

\* \* \*

Les exemples choisis dans cet exposé ont été principalement empruntés à la physique des surfaces des semiconducteurs car les résultats y sont les plus spectaculaires mais le domaine d'application de la microscopie à effet tunnel est aujourd'hui très vaste et ne cesse de s'étendre. Des microscopes fonctionnent actuellement dans l'air<sup>(12)</sup>, dans des liquides<sup>(13)</sup> ainsi qu'à très basse température<sup>(14)</sup>. Les biologistes<sup>(15)</sup> et les électrochimistes<sup>(16)</sup> s'ingénient à améliorer la résolution de cette technique sur leurs échantillons. Les possibilités de lithographie à l'échelle atomique progressent également. Un nouveau microscope, le microscope à force atomique, AFM, a permis d'imager des isolants avec une résolution atomique<sup>(17)</sup> alors qu'avec un MET on ne peut utiliser que des échantillons conducteurs.



## Références

- (1) Young R., Ward J. et Scire F. (1972) : Rev. Sci. Instr. **43**, 999
- (2) Tersoff J. et Hamann D.R. (1985) : Phys. Rev. **B31**, 2
- (3) Takayanagi K., Tanishiro Y., Takahashi M. et Takahashi S. (1985) : J. Vac. Sci. Technol. **A3**, 1502
- (4) Hamers R.J., Tromp R.H. & Demuth J.E. (1986) : Phys. Rev. Lett. **56**, 1972
- (5) Binnig G. et Rohrer H. (1987) : Rev. of Mod. Phys. **59**, 615
- (6) Mizes H.A., Park S.I. et Harrison W.A. (1987) : Phys. Rev. **B36**, 4491
- (7) Binnig G., Rohrer H., Gerber Ch. et Stoll E. (1984) : Surf. Sci. **144**, 321
- (8) Gerber C., Binnig G., Fuchs H., Marti O. et Rohrer H. (1986) : Rev. Sci. Instr. **57**, 221
- (9) Binnig G., Rohrer H., Salvan F., Gerber C. et Baro A.M. (1985) : Surf. Sci. **157**, L373
- (10) Humbert A. et Salvan F. (1986) : Images de la Physique, CNRS
- (11) Feenstra R.H., Stroscio J.A., Tersoff J. et Fein A.P. (1987) : Phys. Rev. Lett. **58**, 1192
- (12) Park S.I. et Quate C.F. (1986) : Appl. Phys. Lett. **48**, 112
- (13) Sonnenfeld R. et Hansma P.K. (1986) : Science **232**, 211
- (14) Smith D.P.E. et Binnig G. (1986) : Rev. sci. Instrum. **57** (10)
- (15) Amrein H., Stasiak A., Cross H., Stoll E., Travaglini G. (1988) : Science **240**, 514
- (16) Vasquez L., Gomez Rodriguez J.H., Gomez Herrero J., Baro A.M. et Garcia N. (1987) : Surf. Sci. **181**, 98
- (17) Binnig G., Quate C.F. et Gerber C. (1986) : Phys. Rev. Lett. **56**, 930  
Binnig G., Gerber C., Stoll E., Albrecht T.R. et Quate C.F. (1987) : Europhys. Lett. **3**, 1281

### Articles généraux sur la Microscopie à Effet Tunnel

- IBM Journal of Research and Development **30**, Nos 4 & 5 (1986)
- La Recherche, Octobre 1986
- Images de la Physique, CNRS (1986)
- Binnig G. et Rohrer H., (1987) : Rev. Mod. Phys. **59**, 615
- Hansma P.K. et Tersoff J. (1987) : J. Appl. Phys. **61**, R1
- Gauthier S., Rousset S., Sacks W. et Klein J. (1988) : J. Microsc. Spectrosc. Electron. **13**, 157-166

## Légende des figures

Figure 1 : Le principe de la M.E.T.

Le courant dépend exponentiellement de la distance tunnel. Dans une jonction métal-isolant-métal (a), l'essentiel du courant passe là où la distance entre les deux électrodes est la plus petite. Avec une électrode en forme de pointe (b), le courant est localisé à l'extrémité de la pointe. Le courant au bout de la deuxième pointe est environ un million de fois plus faible car celle-ci est plus loin d'à peu près deux atomes.

Figure extraite de (5).

Figure 2 : Le principe de l'imagerie.

(a) La pointe est montée sur un trièdre de trois céramiques piézoélectriques dont les tensions appliquées  $V_x$ ,  $V_y$ ,  $V_z$  sont proportionnelles aux déplacements de la pointe. La pointe est assujettie à rester en gros à égale distance  $d$  de la surface grâce à la boucle d'asservissement (Cu) qui fixe le courant tunnel  $I_T$ ;  $V_T$  est la différence de potentiel entre la pointe et la surface. Le balayage enregistré est dessiné en pointillés : il s'agit de  $V_z(V_y)$  à  $V_x$  constant.

(b) Image d'une surface d'or (1,0,0) par M.E.T. (extraite de (7)) montrant des terrasses plates séparées par des marches monoatomiques. Les divisions sur les axes sont séparées de 5 Å.

Figure 3 : Schéma d'un microscope de type "pocket". L'antivibration est réalisée par un empilement de cinq plaques en inox séparées par des joints Viton. L'approche est réalisée grâce à une "louse".

Figure 4 : Le graphite

(a) Structure atomique.

(b) Image obtenue par M.E.T., représentée en niveaux de gris (à chaque valeur de  $z$  du déplacement vertical de la pointe est affectée une couleur entre noir et blanc). Ici le blanc représente le maximum et le noir le minimum. Les points blancs sont séparés par 2.46 Å. Figure extraite de (6).

Figure 5 : Image par M.E.T. du Si(111) 7x7 extraite de (9).

On distingue des "trous" noirs aux sommets des deux mailles en forme losange représentées ici. On peut dénombrer douze

minima en blanc par maille. Le contraste permet de mettre en évidence les différences de niveau entre les deux demi-mailles droite et gauche.

Figure 6 : Principe de la spectroscopie (extraite de (10)). On a superposé au diagramme énergétique  $\rho_S(E)$ , la densité des états électroniques de la surface et  $\Delta V$  la tension alternative superposée à  $V$  qui revient à enregistrer directement  $\frac{dI}{dV}$ . A droite de la figure, on voit comment la caractéristique  $\frac{dI}{dV}(V)$  reproduit le pic de la densité des états vides de la surface : ici, la tension de l'échantillon est positive par rapport à la pointe.

Figure 7 : Spectroscopie "fixe" de Si(111) 7x7 en différents points de la maille (extraite de (4)).

(a) La maille losange est schématisée en haut. Les carrés symbolisent les douze adatoms. Les points noirs sont les six atomes restants. Les spectres correspondants sont symbolisés de la même façon, ils représentent la conductance en fonction de la tension de l'échantillon. Les états vides de la surface sont à droite, les pleins à gauche.

(b) Résultats de photoémission (ligne continue) et de photoémission inverse (en pointillés).

Figure 8 : Images spectroscopiques en différence de courant de la surface de Si(111) 7x7.

(a) Localisation de l'état des adatoms à -0.35 V. On retrouve la dissymétrie de la maille et les douze adatoms.

(b) Localisation des atomes restants par le pic à -0.8 V. Il y en a six, avec une symétrie miroir dans la maille. Il y a en plus un état aux coins de la maille.

Figure 9 : Deux images de GaAs (110) obtenues simultanément à des tensions de +1.9 V (a) et de -1.9 V (b). Sur le schéma (c), les cercles pleins symbolisent les atomes de Gallium et les cercles vides les atomes d'Arsenic. La position du rectangle qui correspond à une maille unité est la même sur les trois figures. (a) Le microscope "image" les atomes de Ga tandis qu'en (b) il voit les atomes d'As (extraite de (11)).

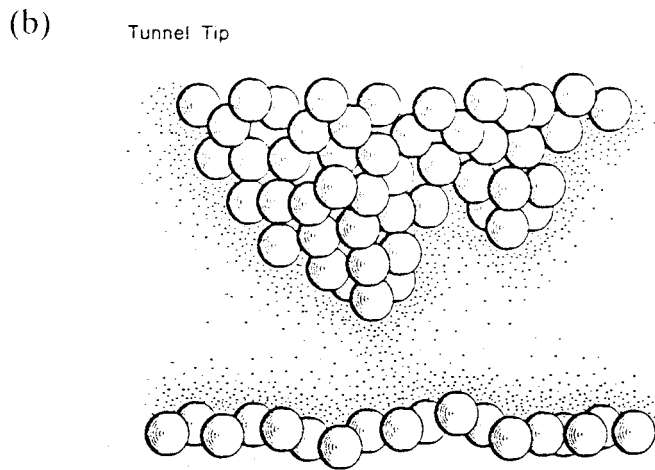
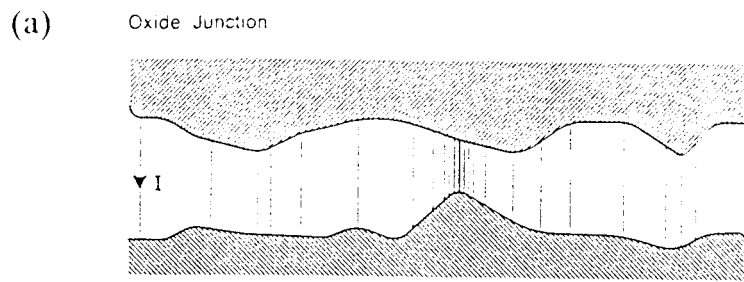
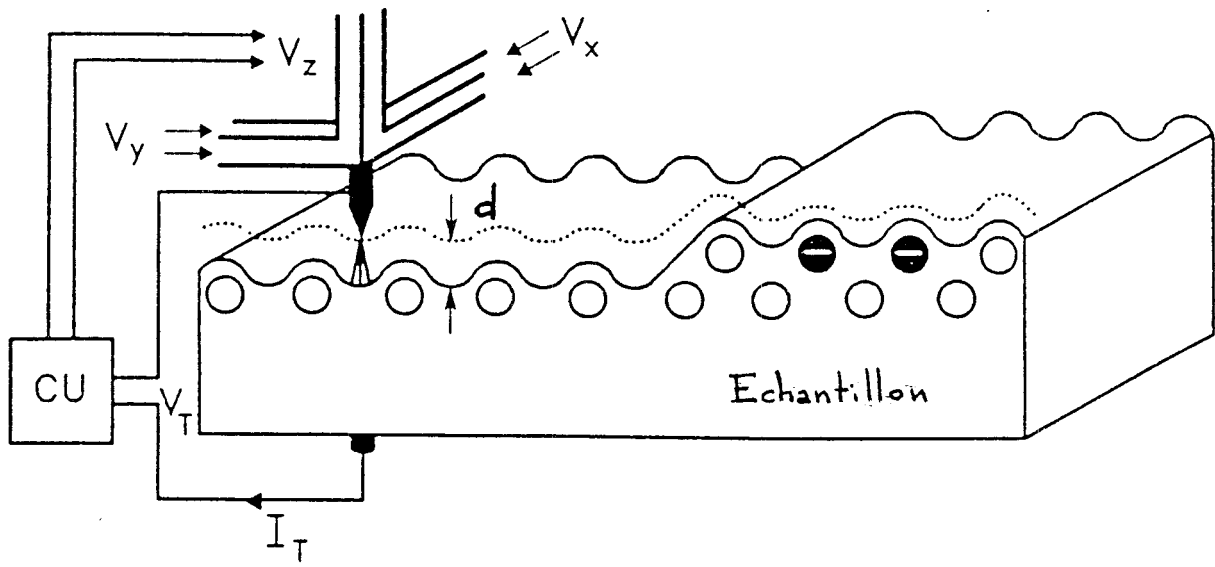


Figure 1

(a)



(b)

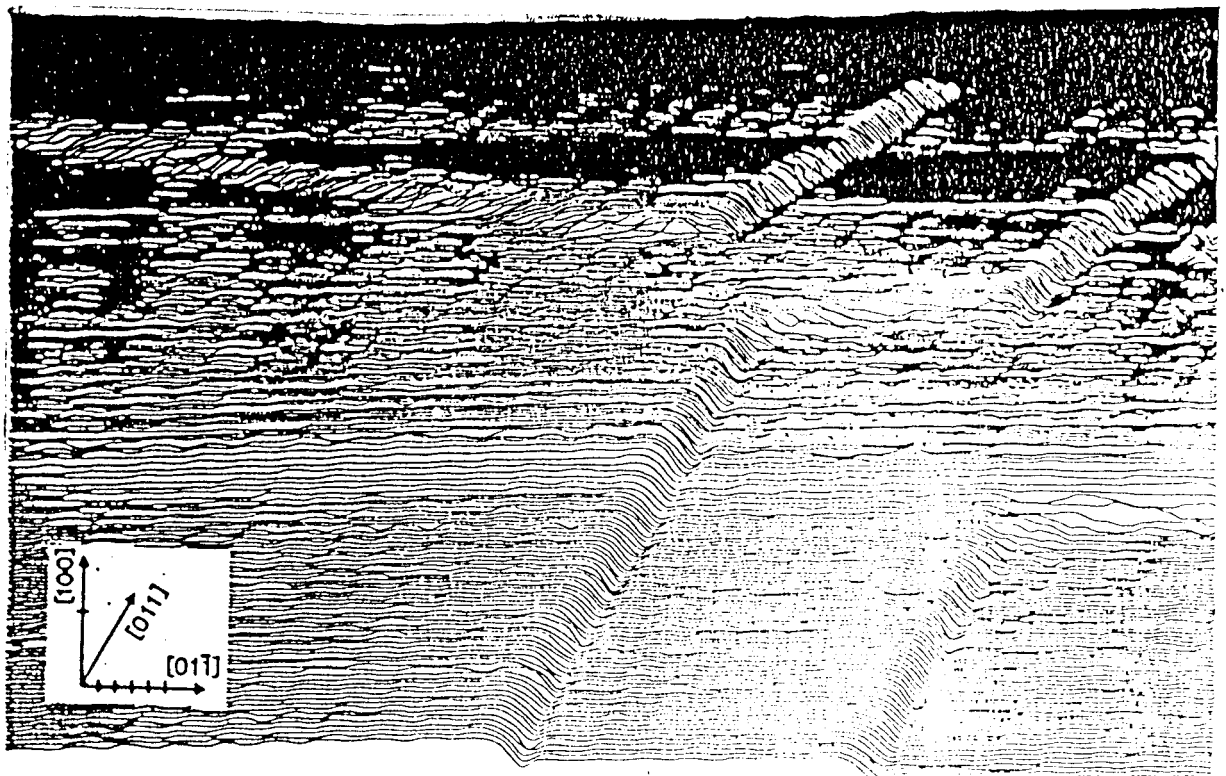


Figure 2

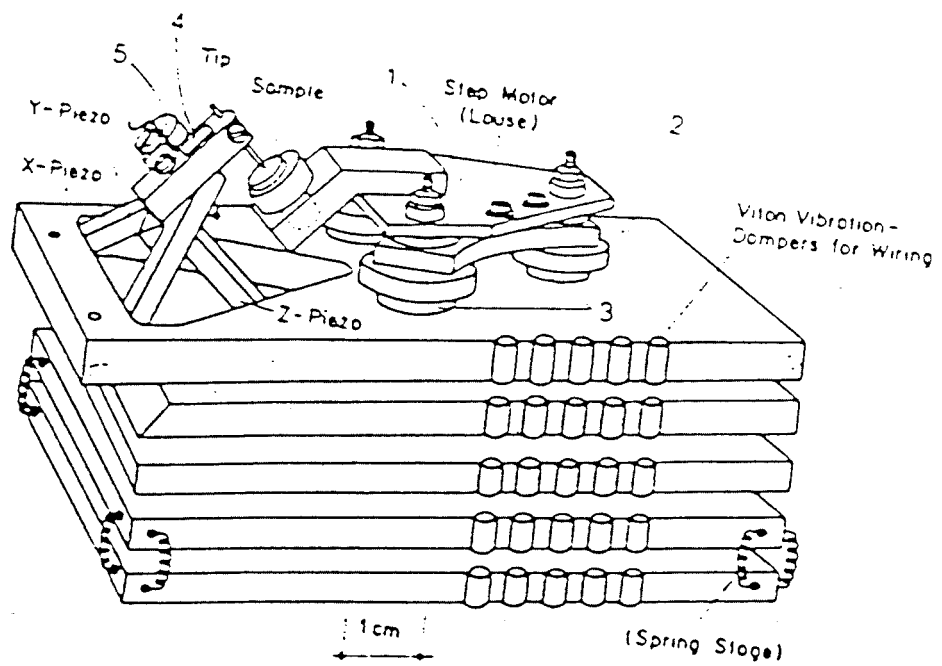
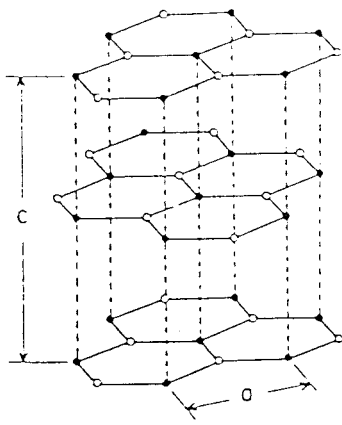


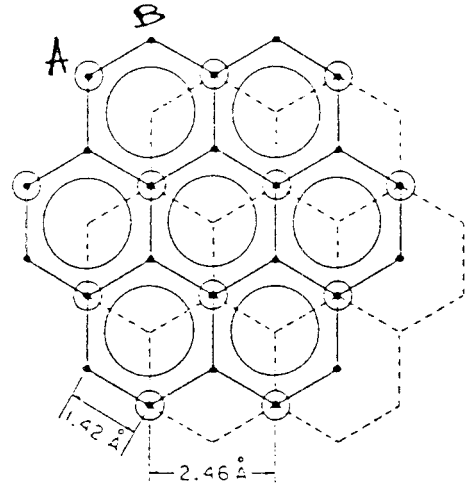
Figure 3

(a)



a: 2.456 Å  
c: 6.696 Å

● A CARBONS  
○ B CARBONS



(b)

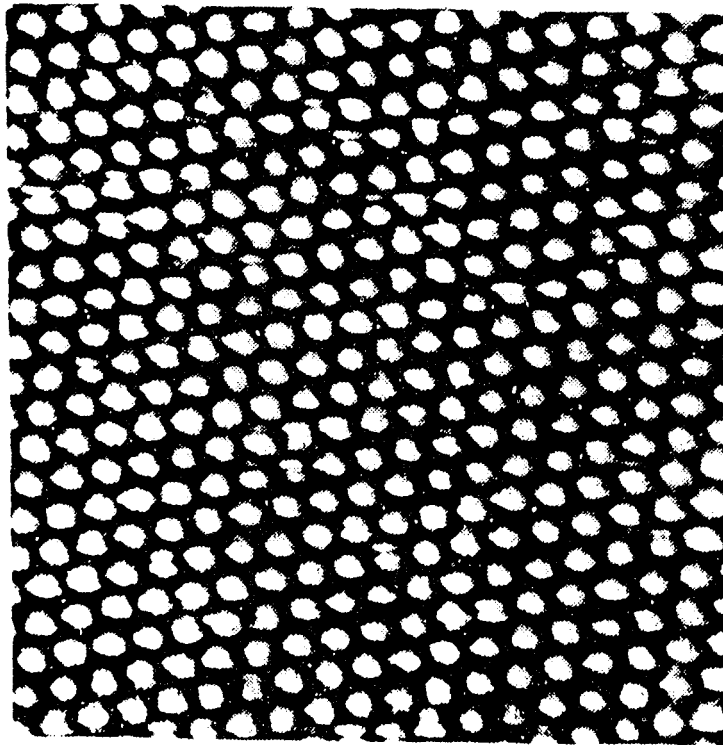


Figure 4



Figure 5

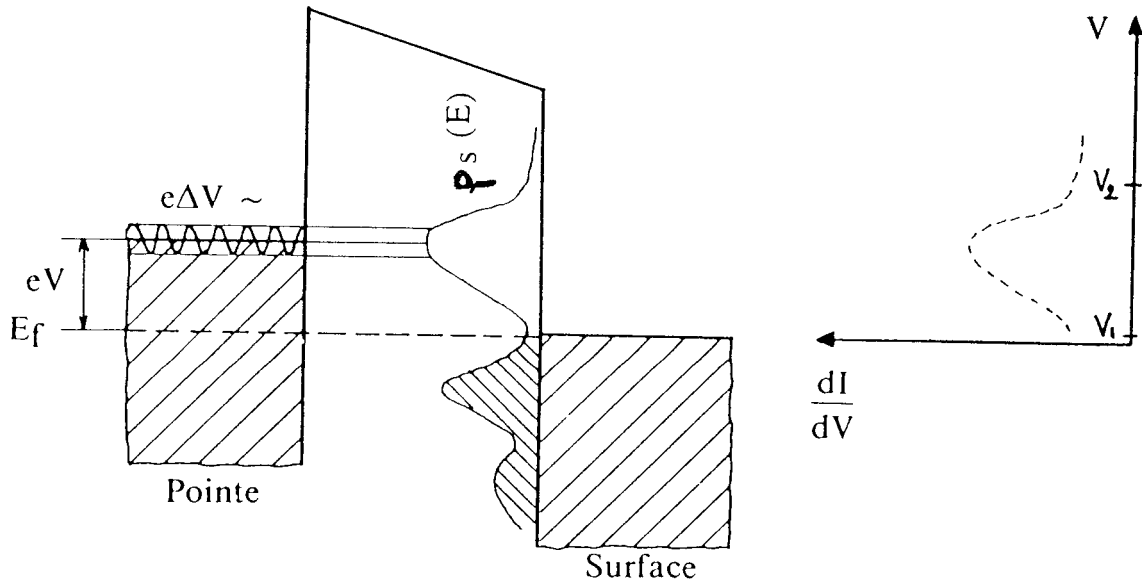


Figure 6



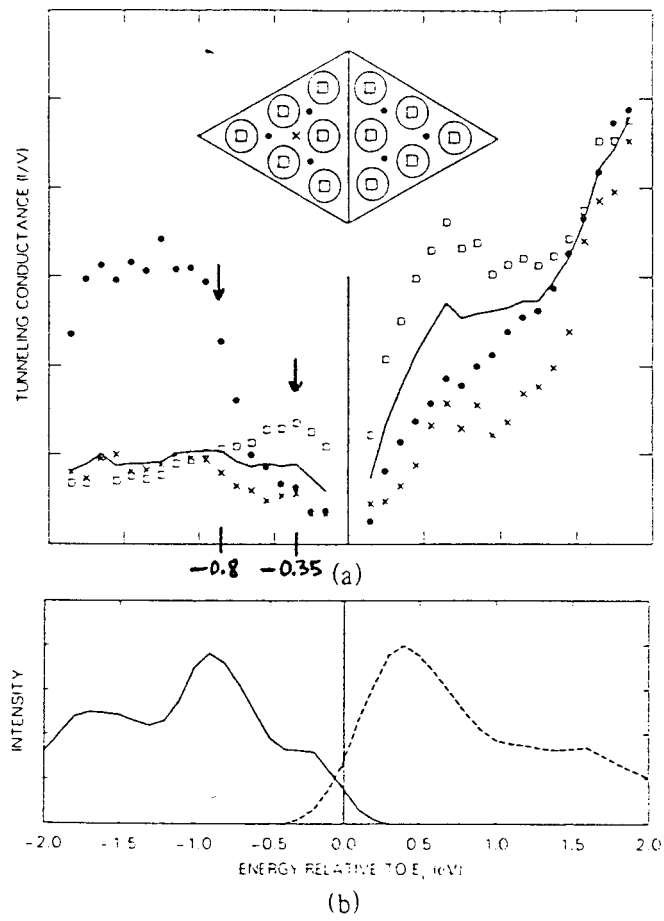


Figure 7

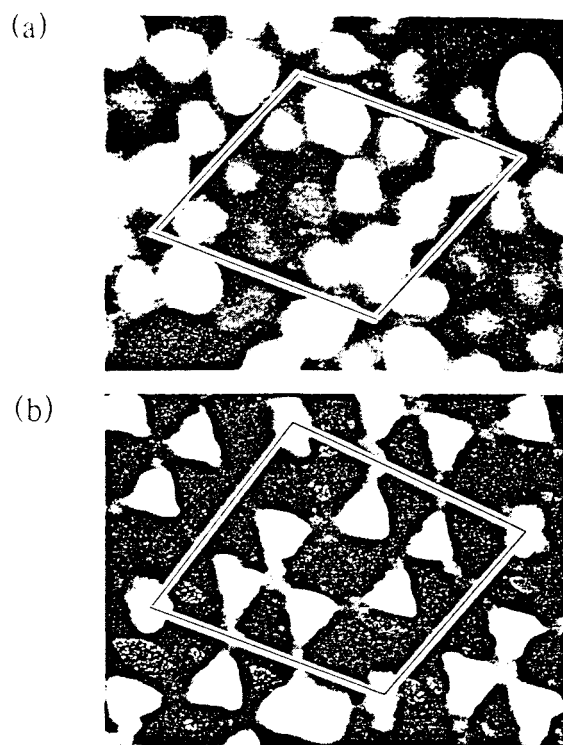


Figure 8

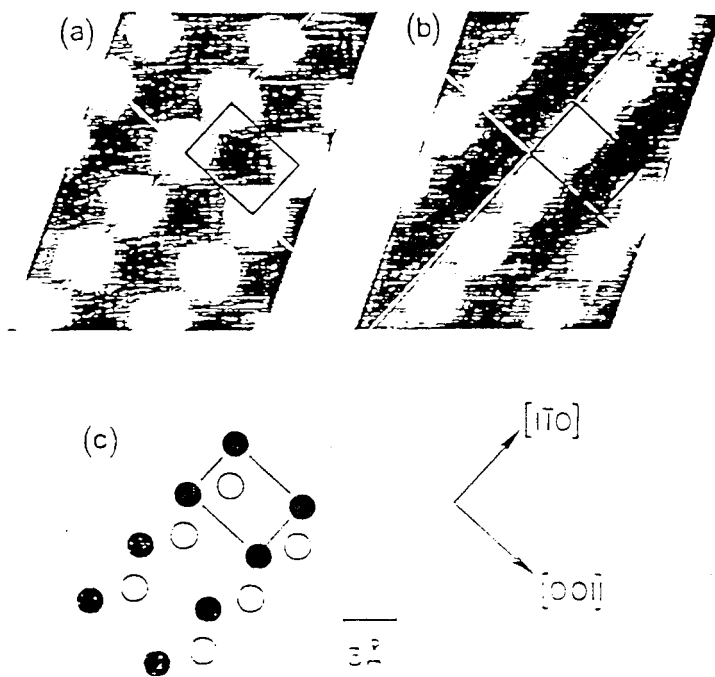


Figure 9