

## Contribution à l'Étude de la Diffraction de Bragg par les Empilements Épitaxiaux de Couches Minces, Réalisés sur Substrat Amorphe

PAR P. CROCE ET L. NÉVOT

*Institut d'Optique Théorique et Appliquée, Laboratoire associé du CNRS, Université de Paris-Sud, Bât. 503, 91405-Orsay, France*

(Reçu le 14 mars 1975, accepté le 16 avril 1975)

Often a strong texture is found when metal thin films are evaporated in vacuum on amorphous substrates: the *hkl* dense planes have an average orientation parallel to the substrate. Then, in the *hkl* X-ray diffraction pattern, secondary fringes are observed on both sides of the Bragg central peak, although they do not appear on other Bragg lines. It is shown that such properties are consistent with lattice distortions and deformations peculiar to each crystal. When the sample consists of an epitaxial 'sandwich' stacking (*i.e.* two thin films with the same material and the same thickness separated by one or several foreign atomic layers) contrast and angular positions of the secondary fringes are modified. The geometrical interpretation suggested here explains the change in the diffraction pattern shape, and its evolution when foreign atoms are diffusing into the neighbouring films.

### Introduction

Récemment, Chauvineau & Pariset (1973) ont étudié, par des mesures de résistivité électrique, la croissance épitaxiale de couches très minces de cuivre ou d'argent sur des couches minces d'or présentant une texture (111) très prononcée. Rappelons également les études de Gueguen, Cahoreau & Gillet (1973) par microscopie et diffraction électronique, de la croissance épitaxiale du fer sur l'or (111). Dans ce dernier cas l'épitaxie est confirmée par l'absence de moirés dans les micrographies et par le fait que les diagrammes de diffraction électronique ne comportent que les points caractéristiques de l'or orienté (111).

En général, la croissance épitaxiale ne concerne que quelques couches atomiques, et il est difficile de trouver une méthode d'analyse directe qui permette la détermination des caractéristiques à la fois géométriques et structurales de couches superficielles aussi minces. Une méthode indirecte dite de 'empilement sandwich' a été proposée par Croce, Névoit & Pardo (1972) à la suite de simulations théoriques pour l'étude de la réflexion spéculaire rasante des rayons X. Cette méthode consiste, une fois le dépôt épitaxial réalisé, à évaporer une seconde couche de même épaisseur que celle du premier dépôt et dans des conditions telles que l'on conserve l'épitaxie.

De tels sandwiches Au-Cu-Au ont été réalisés par Chauvineau & Pariset (1974), puis examinés en diffraction de rayons X au voisinage de la raie de Bragg (111) de l'or. Alors que sur les diagrammes de diffraction relatifs à des couches minces d'or homogènes, le contraste des franges qui entourent le pic central 111 décroît de façon monotone lorsque s'éloigne de l'angle de Bragg, cette décroissance est modulée pour ce qui est des sandwiches: les auteurs observent des inversions de contraste d'une frange à l'autre et, d'autre part, le

déplacement de la position angulaire d'un minimum sur deux (voir Fig. 1). Tout ce passe comme si les systèmes de plans réticulaires (111) des couches d'or, respectivement supérieure et inférieure, étaient décalés d'une certaine épaisseur, épaisseur qui correspond assez bien avec celle que l'on peut calculer à l'aide d'un modèle d'empilement épitaxial de sphères dures pour les atomes de cuivre et d'or.

Avant de décrire les avantages et les inconvénients de cette méthode, il nous faut définir, de façon aussi précise que possible, son domaine de sensibilité. C'est pour cette raison qu'il nous paraît indispensable d'essayer de comprendre, en premier lieu, pourquoi la présence de distorsions dans les couches minces d'or n'empêche pas l'apparition de franges de diffraction autour du pic de Bragg 111 ou 222, et interdit ce phénomène pour les autres points du réseau réciproque, comme l'ont constaté expérimentalement Croce, Devant & Verhaeghe (1965). Nous examinerons ensuite le cas de la diffraction 111 par les empilements de type sandwich Au-Cu-Au. Précisons que nous ne chercherons pas à calculer explicitement l'amplitude diffractée, mais que nous nous proposons d'en donner une interprétation géométrique simple.

### I. Diffraction par une couche mince métallique déposée sur support amorphe

L'examen en diffraction X à l'aide du montage de Brentano, (Guinier, 1956), de couches minces d'or, réalisées par déposition sous ultra-vide sur support amorphe, puis recuites à 150°C pendant une heure environ, révèle l'existence de franges de part et d'autre du pic de Bragg 111 de l'or. Ceci indique que de telles couches sont monocristallines en épaisseur et que les plans (111) des cristaux sont parallèles au support, les dimensions latérales de ces cristaux étant grandes de-

vant l'épaisseur (Croce, Gandais & Marraud, 1961). Or l'étude par microscopie électronique de ces couches détachées de leur support, ou réalisées directement sur support transparent aux électrons, révèle que les plans cristallographiques sont déformés, bien que les surfaces limites soient très planes [Fig. 2(a)] sinon, il serait impossible d'observer des franges d'interférence en réflexion rasante de rayons X. Nous pensons que ces distorsions sont liées aux joints de grains, où elles doivent rendre possible une certaine cohérence. On peut calculer qu'avec des cristaux de quelques centaines d'angströms d'épaisseur, l'énergie élastique, pour des distorsions de l'ordre de cinq degrés, ne représente qu'une fraction ( $\frac{1}{10}$  environ) de l'énergie des joints de grains supposés totalement désorientés. L'énergie de joints cohérents étant en général faible, on voit que, pour des couches polycristallines, ces distorsions peuvent apparaître pendant la recristallisation. Ainsi, malgré de telles distorsions dans les couches minces d'or, on observe des franges secondaires autour des pics de diffraction de Bragg, 111, 222, ... lesquels correspondent aux 'plans' cristallographiques orientés en moyenne parallèlement au support. Cette orientation préférentielle se retrouve pour un grand nombre de métaux, de structure cubique, déposés sous la forme

d'une couche mince sur support amorphe. Dans le cas de couches minces d'étain blanc, de structure quadratique, réalisées par évaporation sous vide ( $10^{-6}$  mm Hg) sur des lamelles de verre pour microscope, Vook, Parker & Wright (1966) obtiennent une texture 200 très prononcée, et ne constatent la présence de franges secondaires en diffraction X qu'autour du pic de Bragg 200. Il nous semble donc intéressant d'examiner le rôle des distorsions ou déformations du réseau cristallin, quant à l'allure des taches de diffraction X fournies par les couches minces métalliques déposées sur support amorphe.

Si  $\mathbf{K}$  représente la différence entre les vecteurs d'onde incident et diffracté,  $\mathbf{r}_i$  le vecteur position du centre du  $i$ ème atome, et  $f_i(\mathbf{K}, r)$  le facteur de structure supposé non perturbé par la présence de distorsions, l'amplitude diffractée est proportionnelle à

$$A(\mathbf{K}) = \sum_i f_i(\mathbf{K}, r) \exp 2\pi i \mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_i,$$

cette somme étant étendue à tous les atomes d'un cristal. Les différents cristaux de la couche diffractant d'une façon incohérente, on fera ensuite la somme des intensités diffractées par chaque cristal.

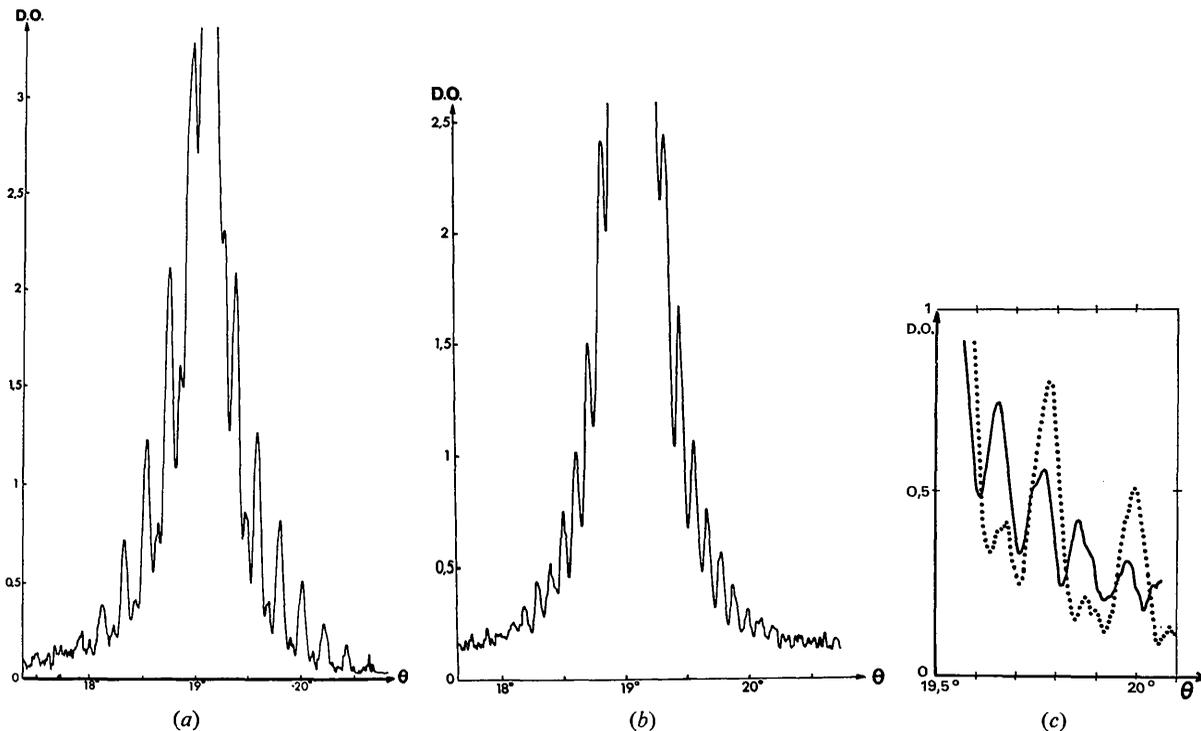


Fig. 1. Nous devons à l'obligeance de J. P. Chauvineau et C. Pariset (qui voudront bien trouver ici l'expression de nos remerciements) de reproduire leurs diagrammes de diffraction. Ces diagrammes, publiés comme Fig. 5(a) et 5(b) de Chauvineau et Pariset (1974) représentent la variation de l'intensité diffractée (exprimée en unité arbitraire de densité optique) en fonction de l'angle d'incidence  $\theta$ , dans le cas d'un empilement sandwich Au-Cu-Au d'une part (a) et dans celui d'une couche homogène (obtenue, par exemple, après diffusion complète des atomes de cuivre dans les couches d'or environnantes) d'autre part (b). L'agrandissement, donné sur (c), permet de mieux saisir les différences essentielles quant aux modifications de contraste et de position angulaire des franges, entre les deux diagrammes.

Lorsqu'il n'y a qu'un seul type d'atome,  $A(K)$  peut s'écrire sous la forme  $f(K) \sum_i \exp(2\pi i \mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_i)$ . Notons que cette somme ne peut être transformée immédiatement en intégrale, car l'exponentielle peut effectuer une ou plusieurs oscillations lorsqu'on passe d'un atome à son voisin. Nous utilisons le fait que pour le centre de la tache de diffraction, correspondant au cristal non déformé,  $\mathbf{K}$  prenant la valeur  $\mathbf{K}_0$  et les atomes ayant alors leurs centres en  $\mathbf{r}_{0i}$ , nous avons  $\exp(2\pi i \mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{r}_{0i}) = 1$ . On peut donc poser:

$$A(K) = f(K) \sum \exp \{2\pi i [(\mathbf{K} - \mathbf{K}_0) \cdot \mathbf{r}_i + \mathbf{K}_0 \cdot \Delta \mathbf{r}_i]\}$$

avec  $\Delta \mathbf{r}_i = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_{0i}$  ou encore:

$$A(K) = f(K) \sum \exp [2\pi i S(r)].$$

Or, lorsqu'on étudie la forme de la tache de diffraction,  $\mathbf{K}$  diffère peu de  $\mathbf{K}_0$ , et l'exposant varie lentement lorsqu'on se déplace d'une maille atomique dans le cristal. (On a supposé implicitement, qu'il n'y a pas ou peu de dislocations dans nos cristaux.) Par suite nous écrirons:

$$A(K) = f(K) \iiint \exp \{2\pi i [(\mathbf{K} - \mathbf{K}_0) \cdot \mathbf{r} + \mathbf{K}_0 \cdot \Delta \mathbf{r}]\} dv/v(r)$$

en introduisant le volume  $v(r)$  de la maille, lequel varie d'ailleurs très peu. Cette intégrale n'étant pas convergente, on procède comme Darwin (1914), en effectuant d'abord l'intégration sur une surface (telle que  $z = c^{ste}$ ) parallèle à la surface limite du cristal et au support. Nous sommes justifiés en cela, par le fait que les dimensions latérales des cristaux sont grandes devant leur épaisseur et que leurs contours dans un tel plan sont irréguliers; ainsi, les courbes de Fresnel  $S(r) = n$  (avec  $n$  entier) seront nombreuses à rencontrer ces contours et d'une façon très variable d'un cristal à l'autre, si bien qu'à la fin du calcul il y aura destruction par interférence.

Pour qu'un cristal diffracte de façon non négligeable, il est nécessaire que, sur la surface  $z = c^{ste}$ , il y ait un point  $C(z)$  tel que l'on ait

$$\frac{\partial S}{\partial x} = \frac{\partial S}{\partial y} = 0.$$

Nous écrirons donc  $S$  sous la forme:

$$S = a + b(x - x_0)^2 + c(y - y_0)^2 + \dots$$

L'intégration dans le plan conduira au calcul de:

$$\int \exp(2\pi i S) \frac{\partial \Sigma}{\partial S} \frac{dS}{v(r)}$$

où  $\Sigma$  représente l'aire comprise à l'intérieur de la courbe  $S = c^{ste}$ , la contribution des zones extérieures du cristal étant négligée pour les raisons évoquées précédemment. Cette intégration donne:

$$\frac{\exp(2\pi i a)}{v} \frac{\pi}{i\sqrt{bc}}.$$

Le facteur  $1/iv\sqrt{bc}$  varie peu avec l'épaisseur; nous sommes donc ramenés à un problème proche de celui de la diffraction à l'infini par une fente. L'intensité diffractée par le cristal sera donc proportionnelle à:

$$\frac{1}{v^2 bc} \sin^2 \left\{ \frac{S_{(h/2)} - S_{(-h/2)}}{2} \right\} \cdot \frac{4}{\left( \frac{\partial S}{\partial z} \right)^2}.$$

Pour conserver le système de franges, lorsqu'on intègre sur les différents cristaux en position de diffraction, il faut que la variation de la différence de phase  $\{S(h/2) - S(-h/2)\}$  soit bien inférieure à  $\pi$  d'un cristal à l'autre.

Considérons le cas le plus simple d'un cristal plan soumis à des couples uniformes de déformation, dont les axes sont dans le plan de la lame. Par un choix convenable des axes  $Ox$  et  $Oy$  (Love, 1959), les dé-

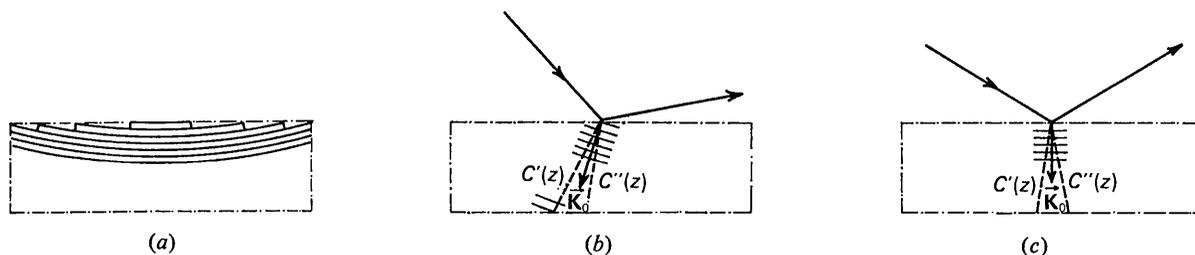


Fig. 2. L'analyse des contours d'extinction des images, obtenues par microscopie électronique à partir de couches minces détachées de leur support, permet de connaître la courbure des cristaux (a). Nos calculs montrent (du moins, dans le cas d'une déformation simple) que seules, diffractent dans la direction considérée, de faibles zones de 'plans' autour de  $C(z)$ ,  $C(z)$  étant parallèle à la direction de  $\mathbf{K}_0$ . Mais les déformations réelles dans les différents cristaux sont beaucoup plus complexes et la direction de  $C(z)$  peut varier d'un cristal à l'autre. Sur (b) et (c)  $C'(z)$  et  $C''(z)$  représentent de façon très schématique les positions extrêmes de  $C(z)$  pour un ensemble de 'plans' diffractants soit autres que (111) (b), soit identiques à (111) (c). Dans le premier cas, on peut constater que la projection de  $C(z)$  sur  $\mathbf{K}_0$  ne reste pas constante d'un cristal à l'autre, ce qui entraîne la disparition des franges dans les ailes du pic de diffraction considéré; alors que dans le second, elle reste la même (et équivaut à l'épaisseur de la couche mince).

placements correspondants entre le cristal non déformé et le cristal déformé, exprimés en fonction des coordonnées dans le cristal déformé, seront donnés par les relations :

$$\begin{aligned} u &= (\alpha - \sigma\beta)xz \\ v &= (\beta - \sigma\alpha)yz \\ w &= -\frac{1}{2}(\alpha - \sigma\beta)x^2 - \frac{1}{2}(\beta - \sigma\alpha)y^2 - \frac{1}{2}\sigma(\alpha + \beta)z^2 \end{aligned}$$

où  $\sigma$  désigne le module de Poisson,  $\alpha$  et  $\beta$  deux paramètres représentant les couples. L'ensemble des points  $C(z)$  obéit donc aux équations suivantes :

$$\begin{aligned} K_x - K_{0x} + K_{0x}(\alpha - \sigma\beta)z - K_{0z}(\alpha - \sigma\beta)x &= 0 \\ K_y - K_{0y} + K_{0y}(\beta - \sigma\alpha)z - K_{0z}(\beta - \sigma\alpha)y &= 0. \end{aligned}$$

Nous obtenons donc une droite parallèle à la droite d'équation,

$$\frac{x}{K_{0x}} = \frac{y}{K_{0y}} = \frac{z}{K_{0z}}.$$

En outre, la différence de phase entre les points extrêmes de  $C(z)$ , c'est à dire tels que  $z = \pm h/2$ , est donnée par l'expression :

$$\pi h \left[ (K_x - K_{0x}) \frac{K_{0x}}{K_{0z}} + (K_y - K_{0y}) \frac{K_{0y}}{K_{0z}} + (K_z - K_{0z}) \right]$$

expression indépendante de  $\alpha$  et  $\beta$ . Nous avons donc la même différence de phase que si le cristal était parfait. Nous supposons que la contribution des zones des cristaux, où la droite  $C(z)$  est interrompue par un joint de grain, est négligeable. (Remarquons toutefois que cette contribution est d'autant plus importante lorsque la composante tangentielle de  $\mathbf{K}$  n'est pas très petite, puisque les joints de grains sont normaux au support).

Notons que les limites de l'intégrale le long de la ligne  $C(z)$  ne peuvent pas être prises sur les limites théoriques du cristal, car on n'y connaît pas, de façon simple, la phase qui correspondrait au cristal non déformé. Toutefois, la condition de stabilité de la phase

$$\frac{\partial S}{\partial x} = \frac{\partial S}{\partial y} = 0$$

permet d'arrêter la ligne  $C(z)$  aux centres d'atomes situés au voisinage immédiat des surfaces limites du cristal (on raisonnera alors sur les phases existant réellement aux centres des atomes) et de considérer cette ligne comme fixe lorsqu'on fera varier  $\mathbf{K}$  pour explorer la tache de diffraction. Ainsi l'« épaisseur » de la lame que l'on doit considérer est la longueur de la projection de la ligne  $C(z)$ , ainsi limitée, sur la direction du vecteur  $\mathbf{K}_0$ . Il semblerait, d'après ce qui a été vu plus haut, qu'elle devrait être constante, et qu'on devrait voir des franges sur toutes les taches de diffraction malgré la distorsion considérée. Mais les distorsions sont localement beaucoup plus complexes que

la déformation adoptée, laquelle est d'ailleurs approchée. En considérant d'autres distorsions, on constate que la ligne  $C(z)$  peut varier considérablement [voir Fig. 2(b) et 2(c)]. Mais dans le cas précis de la tache de diffraction 111 (ou 222), pour les couches minces d'or par exemple,  $\mathbf{K}_0$  étant normal à la couche, la projection de  $C(z)$  sur  $\mathbf{K}_0$  restera constante (c'est l'épaisseur) et si les différents cristaux diffractants ont la même épaisseur, leurs taches de diffraction (dont les intensités devront être ajoutées) seront les mêmes. On a peut-être là, l'explication de la disparition des franges sur les taches autres que 111 ou 222.

## II. Diffraction par les empilements 'sandwich'

Envisageons maintenant le cas des empilements 'sandwich' Au-Cu-Au. Si l'on continue à observer des franges dans les ailes du pic de diffraction c'est que l'épitaxie est effectivement réalisée, car il faut que l'on puisse faire correspondre à chaque atome du cristal composite réel (Au-Cu-Au) un atome du cristal parfait, ce cristal parfait comportant au total le même nombre d'atomes mais d'un seul élément (or). Dans l'expression :

$$\sum_i f_i(K) \exp \{2\pi i[(\mathbf{K} - \mathbf{K}_0) \cdot \mathbf{r}_i + \mathbf{K}_0 \cdot \Delta \mathbf{r}_i]\}$$

nous devons faire intervenir deux types d'atomes, donc deux valeurs distinctes des  $f_i(K)$ . Si l'on se restreint au cas des franges 111, les seules régions du cristal qui vont diffracter ont leurs 'plans' (111) parallèles au support. Ces plans existent encore au niveau des atomes de cuivre; on peut donc prendre pour  $f(K)$ , dans ce plan, une valeur moyenne soit

$$f(K, z) = \frac{N_{\text{Cu}} f_{\text{Cu}} + N_{\text{Au}} f_{\text{Au}}}{N_{\text{Cu}} + N_{\text{Au}}}$$

où  $N$  représente le nombre total d'atomes de l'une ou l'autre espèce. Notons que, du fait de la taille différente des atomes de cuivre et d'or, certaines distorsions peuvent être engendrées dans ces plans. Nous pourrions en tenir compte par une sorte d'effet Debye-Waller statique, qui diminue  $f(K, z)$ . Puisque nous ne devons considérer que le déplacement moyen selon  $z$  (c'est à dire perpendiculairement au support), nous sommes ramenés au calcul de l'intégrale :

$$A = \int_{-h/2}^{+h/2} f(z) \exp \{2\pi i[z \Delta K_z + g(z)]\} dz$$

avec:  $\Delta K_z = K_z - K_{0z}$ .

Ce faisant, nous avons supposé que  $f(z)$  varie progressivement dans une zone étendue sur plusieurs plans (111); ce qui serait le cas si, par exemple, un processus de diffusion se produisait entre les différentes couches déposées. Dans le cas de variations rapides de  $f(z)$  et  $g(z)$ , nous pourrions toutefois utiliser la même expres-

sion si la couche intermédiaire est monoatomique, la variation rapide se limitant alors au voisinage du plan de cette monocouche.

Comme  $f(z)$  et  $g(z)$  varient peu dans les couches d'or environnantes, nous allons intégrer  $A$  par parties, soit :

$$A = \left| f(z) \frac{\exp \{2\pi i [z\Delta K_z + g(z)]\}}{2\pi i \Delta K_z} \right|_{-h/2}^{+h/2} - \int_{-h/2}^{+h/2} f(z) \frac{\exp \{2\pi i [z\Delta K_z + g(z)]\}}{2\pi i \Delta K_z} \times \left[ \frac{f'(z)}{f(z)} + 2\pi i g'(z) \right] dz .$$

L'amplitude diffractée apparaît donc comme la somme de trois amplitudes élémentaires cohérentes et qui vont interférer. Nous allons essayer d'en donner une interprétation géométrique. Les deux premiers termes proviennent des surfaces limites de l'empilement global. On remarquera que l'expression :

$$\frac{f(z)}{2\pi i \Delta K_z} \exp \{2\pi i [z\Delta K_z + g(z)]\}$$

peut se mettre sous la forme :

$$\varrho(K) \exp [i\varphi(z)], \text{ avec } \varrho(K) = \frac{f(z)}{2\pi \Delta K_z} \text{ et } \varphi(z) = 2\pi [z\Delta K_z + g(z) - \frac{1}{2}] .$$

Si nous considérons alors les vecteurs de Fresnel associés aux ondes diffractées par chaque plan atomique (111) dans chaque couche d'or nous voyons qu'ils décrivent deux cercles de rayon  $\varrho(K)$  [Fig. 3(a)]. La distance  $O_1O_2$  entre leurs centres est représentée par l'intégrale  $I$  qui termine le second membre de  $A$ .

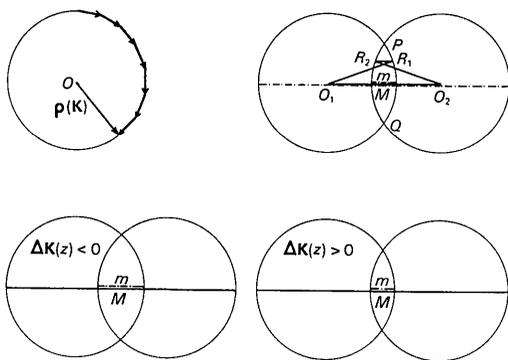


Fig. 3. (a) Les vecteurs de Fresnel associés aux ondes diffractées dans le cas d'une seule couche. (b) Position des rayons limites de la construction de Fresnel pour les deux couches de l'empilement sandwich. (c) Influence d'une diffusion dans le sandwich sur la modulation du contraste des franges selon le côté considéré du pic de diffraction.

L'amplitude de  $A$  est donc équivalente au module du vecteur  $\vec{R_1R_2}$  qui joint les extrémités des rayons limites dans chacun des cercles [Fig. 3(b)].

Dans  $I$  on retrouve le facteur  $\varrho(K)$ , le terme de phase fonction de  $[z\Delta K_z + g(z)]$  et le facteur

$$\left[ \frac{f'(z)}{f(z)} + 2\pi i g'(z) \right],$$

lequel, n'est pratiquement différent de zéro que dans la zone où se situe le cuivre. En général,  $f'(z)/f(z)$  y est négligeable (puisque de moyenne nulle) devant  $2\pi i g'(z)$ , terme qui ne change pas de signe. On notera, que dans le cas d'une monocouche de cuivre, la variation de  $g(z)$  peut représenter une fraction importante de tour. Examinons plus particulièrement le cas d'un empilement sandwich symétrique. En prenant l'origine des phases dans le plan moyen de l'empilement, on obtiendra une figure géométrique symétrique. Ainsi, dans la mesure où les deux cercles se rencontrent (ceci requiert l'inégalité  $|I| < 2\varrho(K)$ , ce qui est toujours vérifié dans le cas d'une monocouche car  $\Delta g(z)$  est inférieur à 1 tour) lorsque l'extrémité d'un rayon passera par  $P$  ou  $Q$  [voir Fig. 3(b)] l'autre s'y trouvera également. On voit donc apparaître le phénomène de battement décrit par Chauvineau & Pariset (1974). Remarquons, que lorsqu'on s'éloigne du centre de la tache de diffraction, le rayon des cercles diminue, ainsi que la distance  $O_1O_2$  mais dans une mesure moindre, de telle sorte que les maximums secondaires de type  $m$  sont atténués plus fortement que ceux de type  $M$  [Fig. 1(a)].

L'effet d'une diffusion de la monocouche de cuivre dans une certaine épaisseur d'or, sera de diminuer  $|I|$  (à cause du facteur  $\exp [i\varphi(z)]$ ), donc de rapprocher les deux cercles. Par suite, la variation d'intensité dans les battements diminuera. Toutefois l'importance de cet effet sera différente suivant le signe de  $\Delta K(z)$ : lorsqu'on a  $\Delta K(z) > 0$ , la maille de l'alliage cuivre-or étant plus petite, il y a compensation partielle pour la variation de  $\varphi(z)$ . Donc pour  $\Delta K(z) > 0$  la valeur de  $|I|$  est plus grande que pour  $\Delta K(z) < 0$  [Fig. 3(c)]. Ainsi, dans la tache de diffraction 111 on peut s'attendre à ce que les franges soient plus modulées du côté des angles  $\theta$  élevés alors que de l'autre côté elles doivent rappeler celles que l'on aurait avec une couche unique. C'est ce qui a été trouvé dans les expériences complémentaires de Chauvineau & Pariset.

Soulignons que l'effet décrit précédemment, ne joue pas si la monocouche n'a pas diffusé et dans ce cas l'aspect de la tache de diffraction doit être symétrique ce qui est effectivement observé sur le diagramme de la Fig. 1(a).

Si la répartition des atomes, par rapport au plan médian de l'empilement, n'est pas symétrique il peut en résulter des variations de phase entre  $I$  et la somme des deux autres termes: l'annulation de  $A$  ne se produit plus. Ceci semble avoir été constaté expérimentalement, mais une étude plus systématique et portant sur de nombreux empilements 'sandwich' s'avère nécessaire.

### Conclusion

Il est bien connu que, lorsqu'on étudie par diffraction X, à l'aide d'un montage de type Brentano, une couche mince métallique, bien texturée et d'épaisseur égale à quelques centaines d'angströms tout au plus, on observe la présence de franges secondaires de part et d'autre du pic central de Bragg sur les taches de diffraction qui ne concernent que les plans compacts de la couche.

Dans la première partie de cet article nous avons essayé de montrer que, du fait de l'existence de distorsions ou déformations de réseau, diffractent, dans la direction considérée, que de faibles zones de 'plans' cristallographiques centrées autour d'une certaine ligne  $C(z)$ , dont la position varie d'un cristal à l'autre suivant le type de distorsions dont il est le siège. Il n'y a que dans le cas de la diffraction par les plans compacts ( $hkl$  par exemple), lesquels sont orientés en moyenne parallèlement au substrat, que la projection de  $C(z)$  sur la direction de composantes  $hkl$  reste la même, ce qui explique que l'on puisse observer dans les ailes de ces pics de Bragg, des franges secondaires. Par suite, la mesure des positions angulaires de ces franges, permet de calculer l'épaisseur de la couche, puisque la projection de  $C(z)$  équivaut alors à l'épaisseur géométrique.

Lorsque l'échantillon à analyser se présente sous la forme d'un empilement sandwich, le contraste des franges subit une certaine modulation. Nous en donnons, dans la seconde partie de l'article, une interprétation géométrique simple, et envisageons qualitativement l'effet d'une diffusion des atomes étrangers dans les couches minces environnantes sur l'aspect des diagrammes de diffraction. Une telle méthode peut donc fournir un excellent moyen de contrôle dans la réalisation de dépôts épitaxiaux en couches minces. On pourrait envisager aussi son utilisation pour l'étude quantitative de certains processus de diffusion intragranulaire, Malheureusement ceci exigerait, pour que l'on puisse effectuer le calcul complet de l'intensité diffractée, que l'on connaisse les distorsions réelles qui

règnent dans chaque cristal. Rappelons enfin, que le décalage introduit par le strate étranger, ne doit pas être trop proche de la distance interréticulaire (ou d'un multiple de cette distance) des plans compacts des couches minces du sandwich. C'est ainsi par exemple, qu'on ne constate aucune modification du contraste des franges secondaires sur les diagrammes de diffraction des sandwiches Au-Ag-Au, les atomes d'argent et d'or ayant des 'diamètres' trop voisins. De tels empilements, pourrions toutefois être examinés par réflexion rasante, spéculaire ou diffuse, de rayons X. Comme nous l'avons montré récemment (Nénot & Croce, 1975) cette méthode qui ne fait intervenir que la densité électronique moyenne des corps en présence, permet de chiffrer la dispersion de cote des atomes étrangers dans l'empilement. En ce sens, les analyses par diffraction et par réflexion rasante de rayons X apparaissent comme complémentaires.

### Références

- CHAUVINEAU, J. P. & PARISET, C. (1973). *Le Vide, les Couches Minces*, 163-165, 12-14.
- CHAUVINEAU, J. P. & PARISET, C. (1974). *Acta Cryst.* A 30, 246-250.
- CROCE, P., DEVANT, G. & VERHAEGHE, M. F. (1965). *Proc. Int. Symp. on Basic Problems in Thin Film Physics, Göttingen*, pp. 194-197.
- CROCE, P., GANDAIS, M. & MARRAUD, A. (1961). *Rev. Opt.* 40, 555-562.
- CROCE, P., NÉVOT, L. & PARDO, B. (1972). *Nouv. Rev. Opt. Appl.* 3, 37-50.
- DARWIN, C. G. (1914). *Phil. Mag.* 27, 315-333.
- GUEGUEN, P., CAHOREAU, M. & GILLET, M. (1973). *Thin Solid Films*, 16, 27-36.
- GUINIER, A. (1956). *Théorie et Technique de la Radiocristallographie*, p. 180. Paris: Dunod.
- LOVE, A. E. H. (1959). *A Treatise on the Mathematical Theory of Elasticity*, ch. 5, p. 132. Cambridge Univ. Press.
- NÉVOT, L. & CROCE, P. (1975). *J. Appl. Cryst.* 8, 304-314.
- VOOK, R. W., PARKER, T. & WRIGHT, D. (1966). *Proc. Sagamore Conf.* pp. 347-355. New York: Syracuse Univ. Press.