

## DÉVELOPPEMENTS INSTRUMENTAUX

# HAXPES ou la photoémission facile

La station HAXPES (HARd X-ray PhotoElectron Spectroscopy) de la ligne GALAXIES permet de réaliser des expériences de photoémission à haute énergie cinétique sur des échantillons en phase solide, gaz ou liquide (réf. 1). La possibilité d'analyser des énergies cinétiques allant de quelques dizaines d'eV à plus de 10 keV fait de cet équipement une station expérimentale unique à SOLEIL.

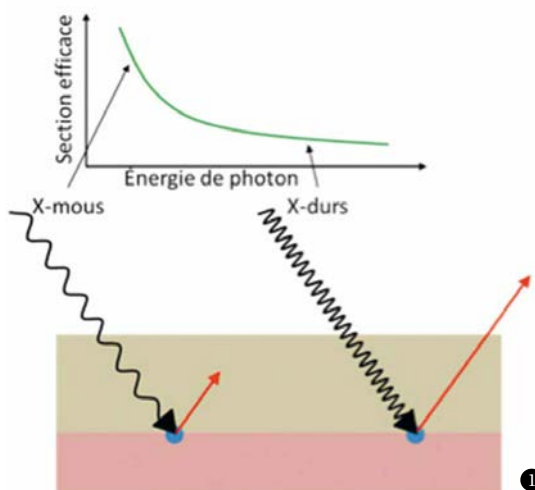
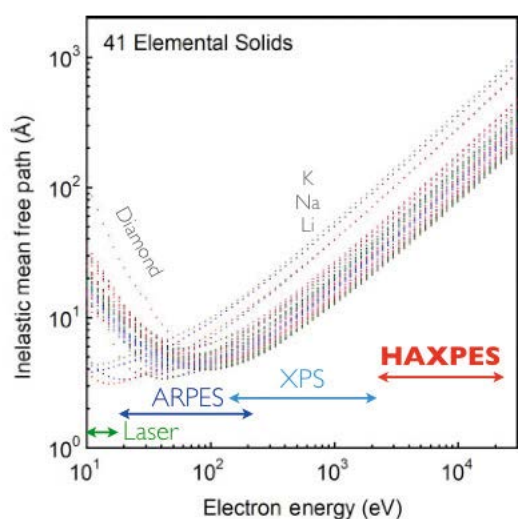


Figure 1 : à gauche, libre parcours moyen d'un électron en fonction de son énergie cinétique. La grande sensibilité en profondeur de l'HAXPES est illustrée sur la partie droite pour une interface enterrée (en rouge). Avec des rayons X-mous, l'électron arraché à l'interface (flèche rouge) ne pourra s'extraire du matériau en raison de sa trop faible énergie cinétique. À l'inverse, à haute énergie de photon, l'électron aura une grande énergie et pourra s'extraire du matériau pour être analysé. La contrepartie est la baisse de la section efficace d'ionisation (courbe verte).

L'utilisation de la haute énergie présente plusieurs avantages. D'une part, l'analyse en énergie des électrons émis donne une information spécifique sur l'élément ionisé et son environnement chimique. À haute énergie, il est possible d'atteindre des couches électroniques très profondes dont la relaxation est très rapide ( $t < 10^{-15}$  s). D'autre part, grâce à l'énergie cinétique élevée des électrons, il est possible de sonder les matériaux sur des profondeurs environ 10 fois plus grandes qu'en photoémission standard (en VUV ou X mous), ce qui ouvre la voie à l'étude d'interfaces, de couches enterrées ou de la mobilité des ions dans un liquide. De manière générale, l'HAXPES est bien moins sensible à l'état de surface des matériaux que dans le cas de la photoémission classique et ne requiert pas de traitements spécifiques de surface. Elle est particulièrement bien adaptée aux matériaux appli-

qués (multicouches, couches enterrées, matériaux fonctionnels)

## Voir le déplacement des atomes

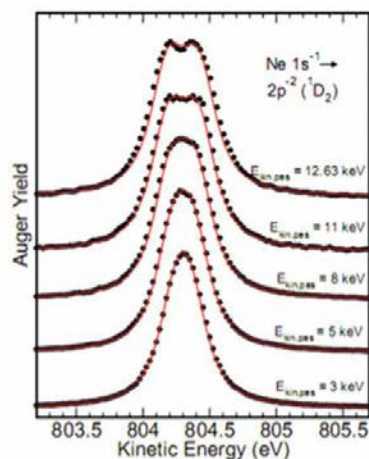
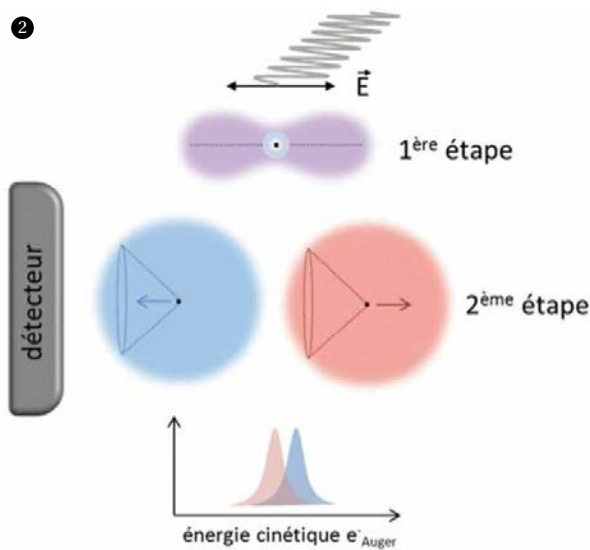
Dans le cas d'un atome isolé, arracher un électron en lui procurant une énergie cinétique élevée a pour effet de faire déplacer le noyau : c'est l'effet de recul. Ce phénomène est difficile à mettre en évidence en raison de la grande différence de masse entre l'électron et le noyau. Pour induire un effet fort, le photoélectron doit posséder une grande énergie cinétique lors de son éjection. À haute énergie cependant, la résolution à l'analyse diminue ainsi que les sections efficaces d'ionisation, rendant la mesure difficile. Une alternative est de mesurer l'effet de recul non pas directement sur le spectre de photoélectron, mais sur le spectre Auger dont la résolution ne dépend pas de la bande passante à l'excitation. Sur la ligne GALAXIES, le haut

flux de photons et la grande acceptance angulaire du spectromètre d'électrons permettent de compenser la baisse de section efficace d'ionisation. Ces paramètres ont permis de réaliser des mesures de spectres Auger du Néon ionisé en couche 1s, et montrent que le mouvement de recul peut être tellement large qu'une séparation des raies Auger est possible. Le processus observé, équivalent à un effet Doppler, démontre qu'une dépendance de l'effet Auger en fonction de l'énergie de photon est possible en raison du mouvement nucléaire (réf. 2).

## HARPES ou la structure de bande dans l'état massif

Les propriétés des matériaux reposent en grande partie sur leur structure électronique. La méthode communément utilisée pour visualiser cette structure est la photoémission résolue en angle ARPES

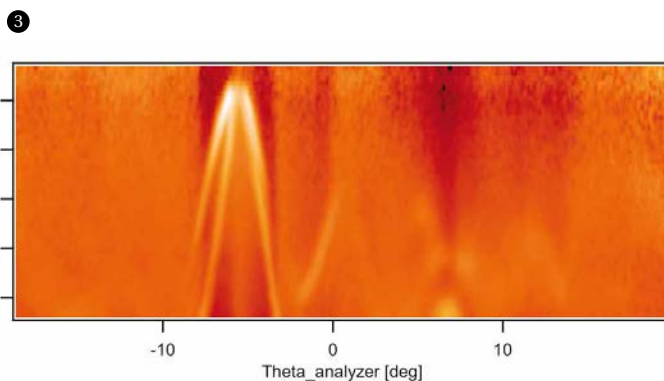
**Figure 2 :** Dans une première étape, un électron de la couche 1s du Néon est éjecté avec une distribution angulaire en  $\cos^2$  par rapport au vecteur polarisation (distribution en violet). L'ion  $\text{Ne}^+$  recule dans la direction opposée. La relaxation Auger se produit dans une deuxième étape à partir de cet ion en mouvement. Les électrons Auger sont émis (1) de façon isotrope (nuages bleu et rouge) et (2) collectés nécessairement vers le détecteur (cône sur la figure). Ceux émis à partir de l'ion dont l'impulsion est dirigée vers le détecteur (flèche bleue) sont mesurés plus rapidement que les électrons émis dans la direction opposée (flèche rouge). Les résultats expérimentaux (points) et les simulations numériques (en rouge) sont présentés à droite pour différentes énergies cinétiques du photoélectron  $\text{Ne}1s$  (réf. 2).



(angular resolved photoelectron spectroscopy). Cette méthode combine détection en énergie cinétique des électrons photoémis et mesure de la direction d'émission (moment de l'électron). Ces deux informations permettent de reconstruire la structure électronique.

Le développement de l'ARPES a été primordial pour l'étude des phénomènes fondamentaux en physique comme les corrélations électroniques, la supraconductivité ou le caractère isolant topologique. Les mesures sont réalisées traditionnellement avec des photons de basse énergie afin de bénéficier de la plus haute résolution en énergie et en moment et d'une section efficace importante. Cela impose cependant d'avoir des surfaces parfaitement propres, ce qui limite la méthode aux échantillons plutôt bidimensionnels. De plus, même dans le cas idéal, l'ARPES ne fournit *in fine* qu'une image des propriétés électroniques de surface en raison du très faible parcours moyen et non de l'état massif.

De récents travaux ont montré qu'il était possible de réaliser ces mesures à haute énergie cinétique, ouvrant la voie à la caractérisation de la structure électronique de l'état massif des matériaux, par la méthode HARPES (hard x-ray angular resolved photoelectron spectroscopy) en référence à la technique classique. Les premières mesures sur GALAXIES (Figure 3) démontrent la faisabilité de la méthode et ouvrent la voie à de nouvelles applications, comme



l'étude de la structure électronique de couches enterrées ou d'interface.

### Conclusion

La station HARPES de GALAXIES permet d'étendre le domaine de la photoémission vers la haute énergie cinétique. Cette méthode permet de sonder les matériaux en profondeur, offrant des possibilités jusqu'à présent inexplorées dans le domaine de la photoémission pour l'étude des matériaux et des phases diluées (gaz, liquide). L'insensibilité à la surface rend les mesures HARPES peu contraignantes.

#### → Contacts :

denis.ceolin@synchrotron-soleil.fr ;  
jean-pascal.rueff@synchrotron-soleil.fr ;  
marc.simon@upmc.fr

#### Références :

- [1] D. Céolin et al. J. Electr. Spectr. and Relat. Phenom. (accepté)
- [2] M. Simon et al. Phys. Rev. Lett. (soumis)
- [3] C. Fadley et al., en préparation

**Figure 3 :** structure de bande à haute énergie cinétique ou HARPES dans le diamant dopé, obtenue sur la ligne GALAXIES. Mesures réalisées à 15 K avec des photons incidents de 2,5 keV (réf.3)