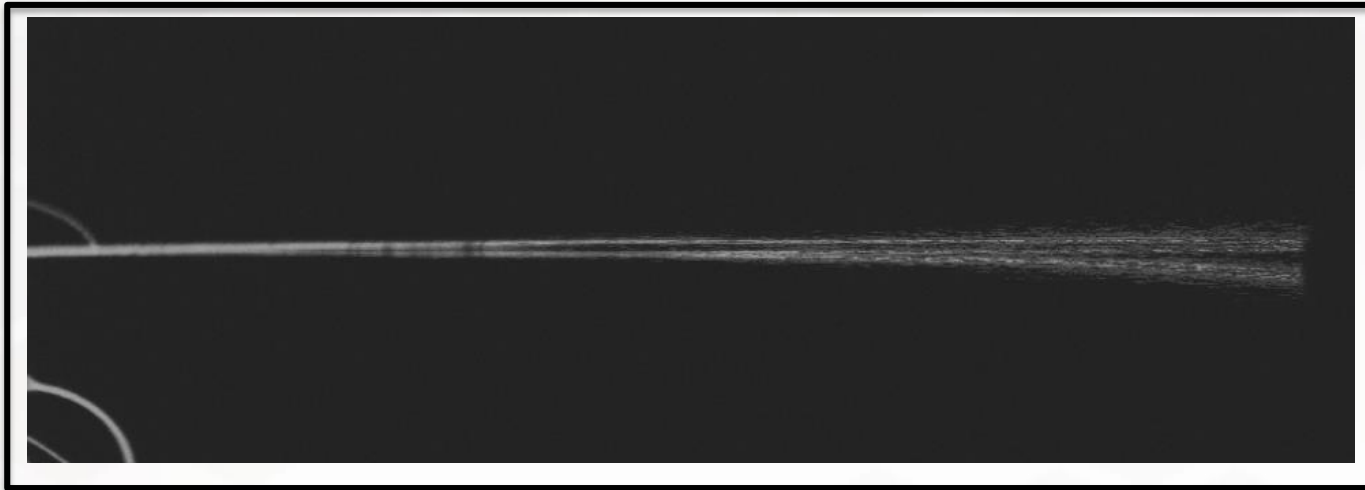


# Mesure de propriétés thermodynamiques de nanofils à l'aide d'un MEB



C. Chardin<sup>1</sup>, M. Hocevar<sup>2,3</sup>, J-P Poizat<sup>2,3</sup>, P. Verlot<sup>4</sup> et S. Pairis<sup>2,3</sup>

[Clement,chardin@nottingham.ac.uk](mailto:Clement,chardin@nottingham.ac.uk)

[sebastien.pairis@neel.cnrs.fr](mailto:sebastien.pairis@neel.cnrs.fr)

<sup>1</sup> School of Physics and Astronomy, University of Nottingham, Nottingham, NG7 2RD, UK

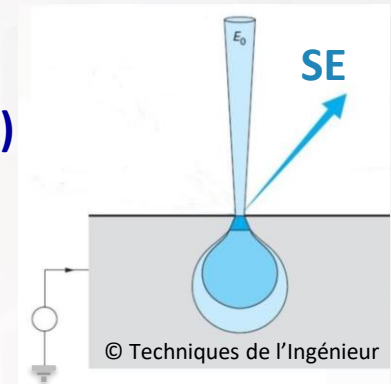
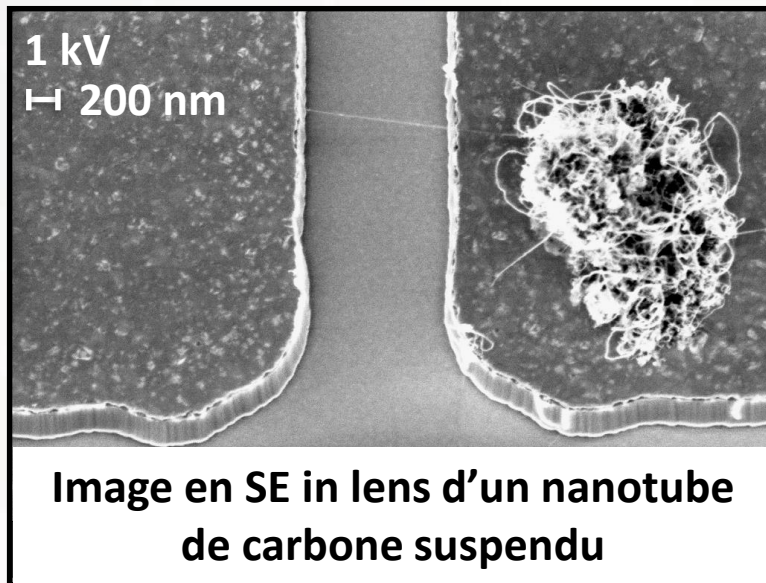
<sup>2</sup> Univ. Grenoble Alpes, CNRS, Grenoble INP, Institut Néel, F-38000 Grenoble, France

<sup>3</sup> CNRS, Inst. NEEL, "Nanophysique et semiconducteurs" group, 38000 Grenoble, France

<sup>4</sup> IUF, 1 rue Descartes, 75231 Paris Cedex 05

- MEB = Observation

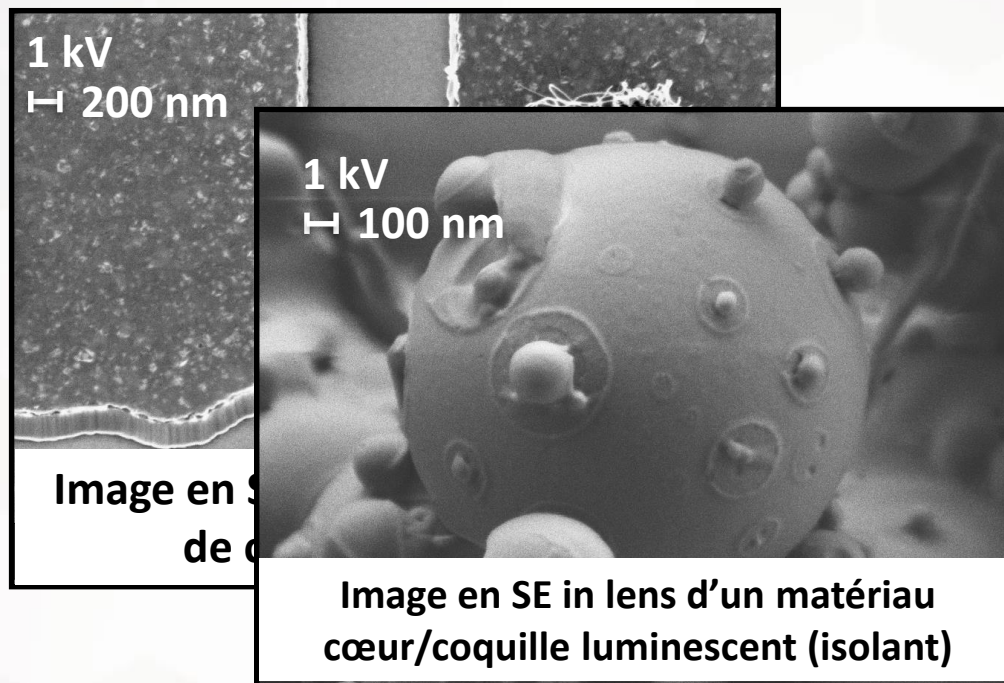
- ✓ SE : Détecteurs in-lens ou dans la chambre d'observation (ETD)
- ✓ (résolution spatiale # 1nm)



Echantillons conducteurs électriques

- MEB = Observation

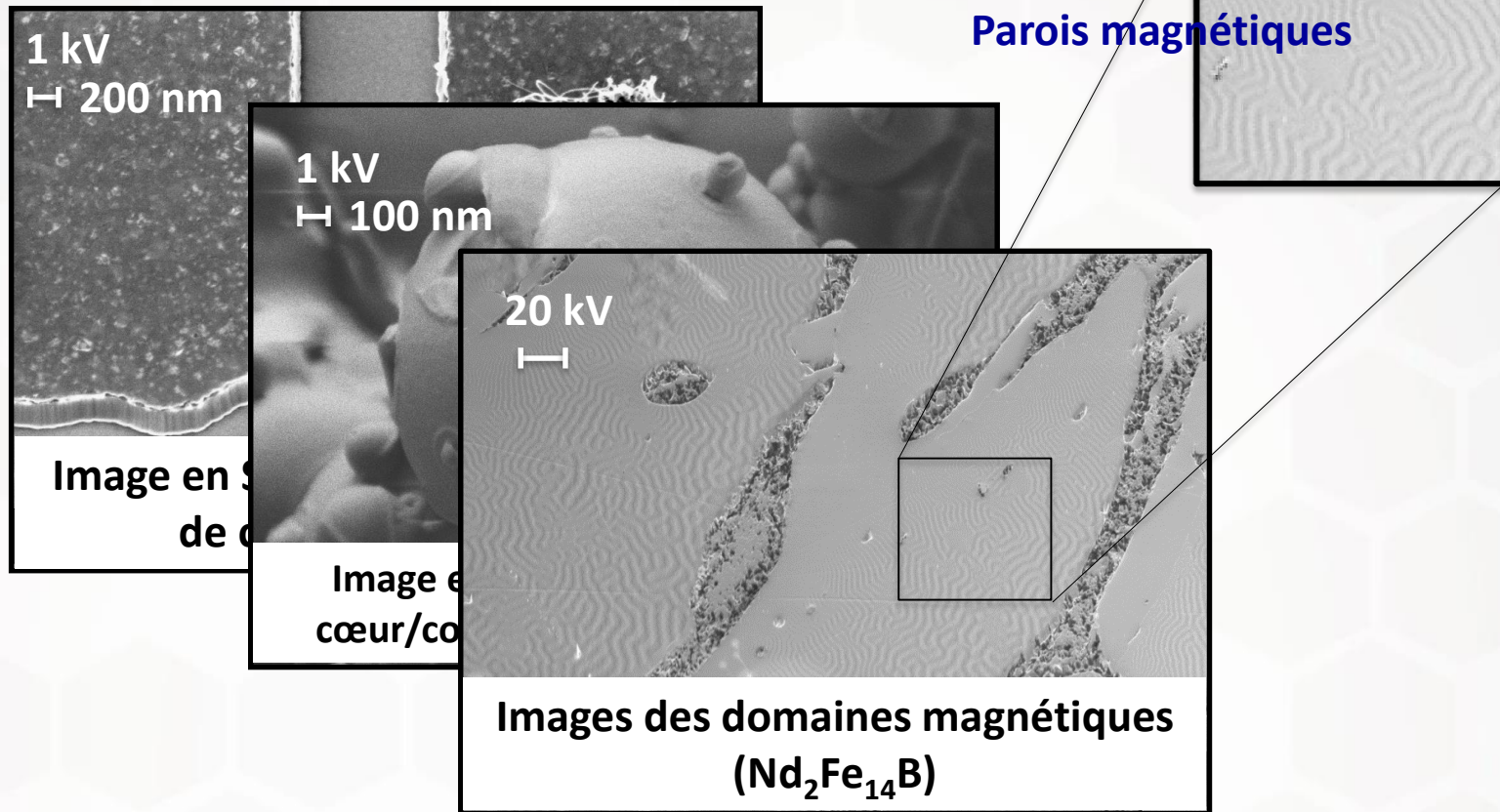
- ✓ SE : Détecteurs in-lens ou dans la chambre d'observation (ETD)
- ✓ (résolution spatiale # 1nm)



## Echantillons isolants

- MEB = Observation

- ✓ SE : Détecteurs in-lens ou dans la chambre d'observation (ETD)
- ✓ (résolution spatiale # 1nm)



- MEB = Observation et microanalyse chimiques EDS-X (ou WDS)

- ✓ BSE ; Détecteurs : in-lens (#1-2nm) ou dans la chambre d'observation (#3-5nm)

Contrastes de composition chimique :

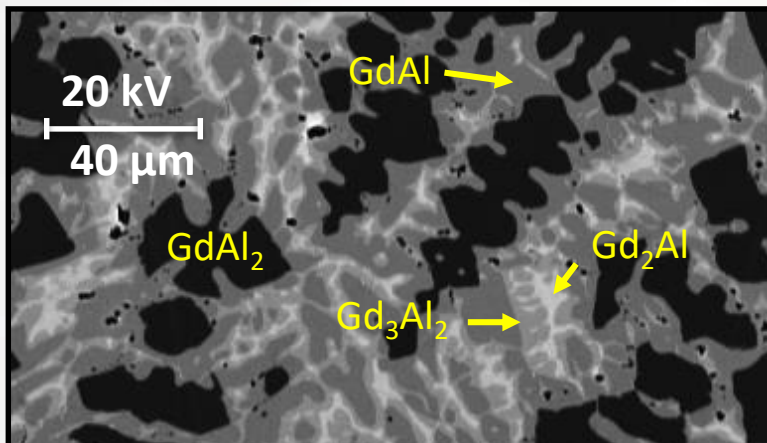
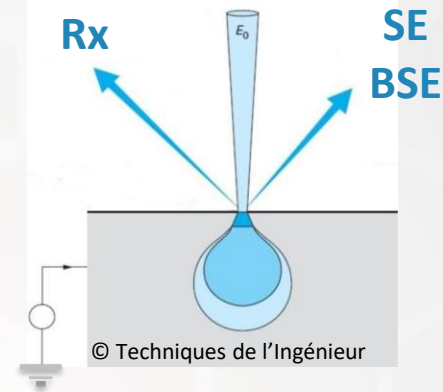
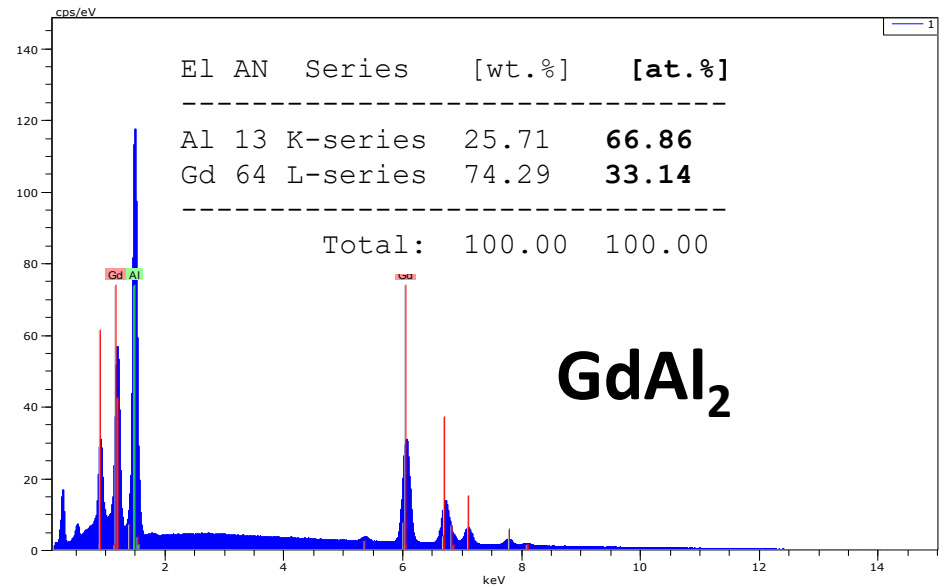


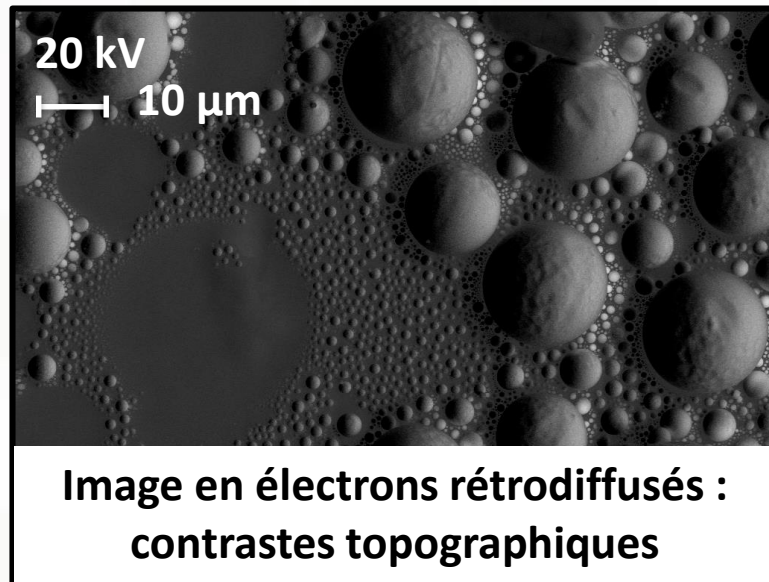
Image en électrons rétrodiffusés d'un alliage GdAl



- MEB = Observation

- ✓ BSE ; Détecteurs :  
in-lens (#1-2nm) ou dans la chambre d'observation (#3-5nm)

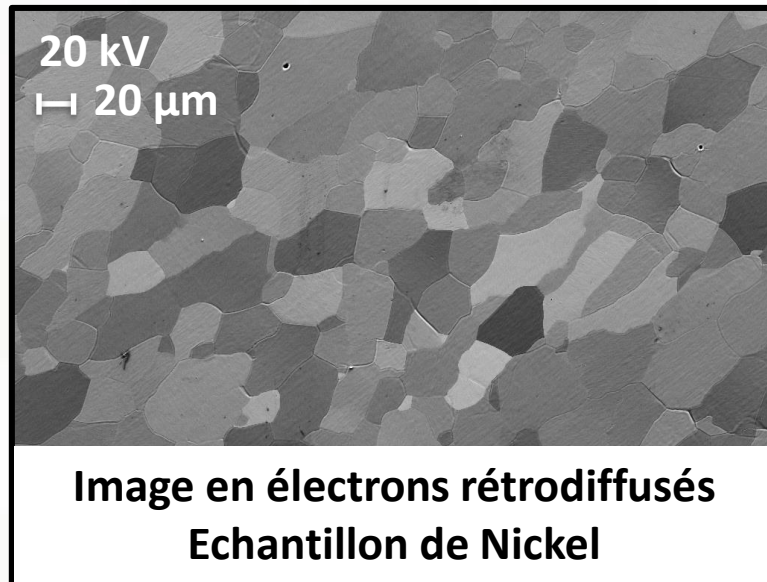
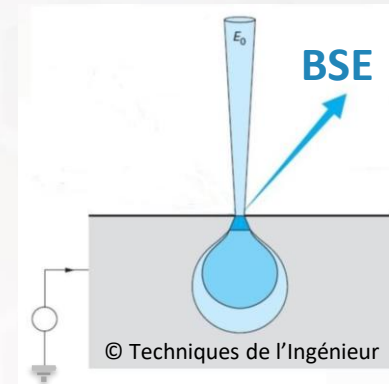
Contrastes topographiques :



- MEB = Observation

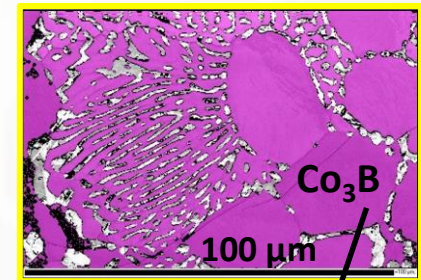
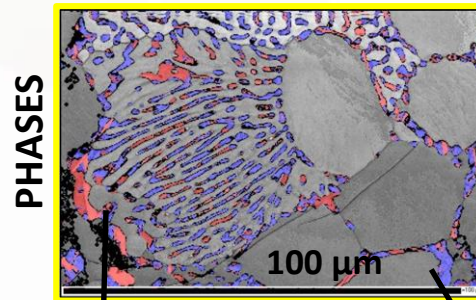
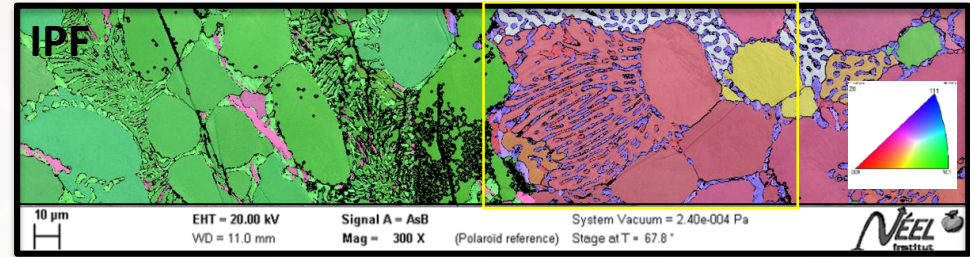
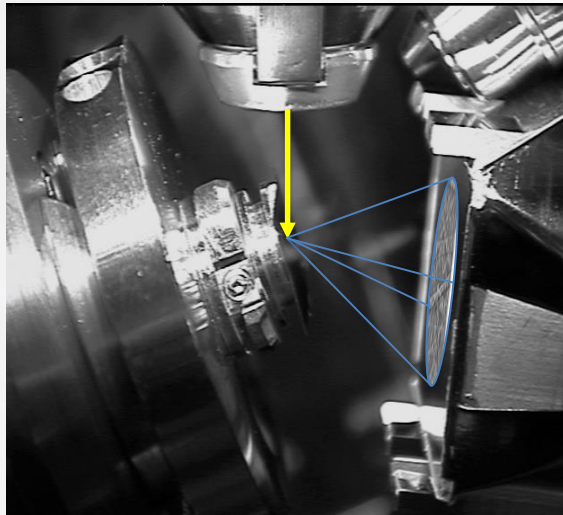
- ✓ BSE ; Détecteurs :  
in-lens (#1-2nm) ou dans la chambre d'observation (#3-5nm)

## Contrastes cristallographiques



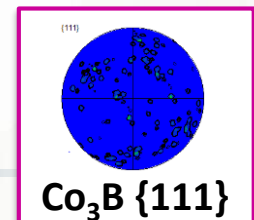
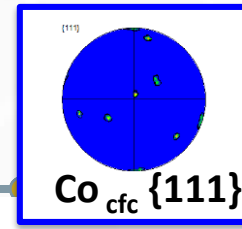
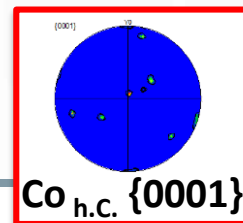
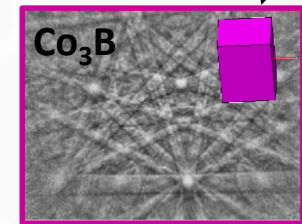
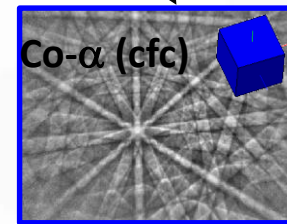
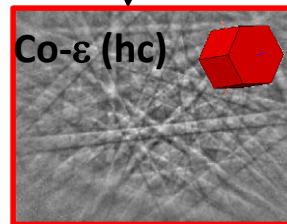
• MEB = Observation et Analyse d'orientations cristallines (EBSD)

✓ EBSD : réflexion

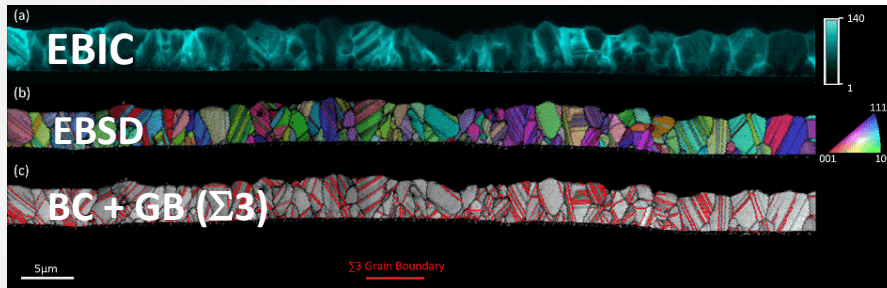


✓ TKD : transmission

- Cartographie des orientations cristallines
- Texture
- Polymorphes
- Mesurer des contraintes

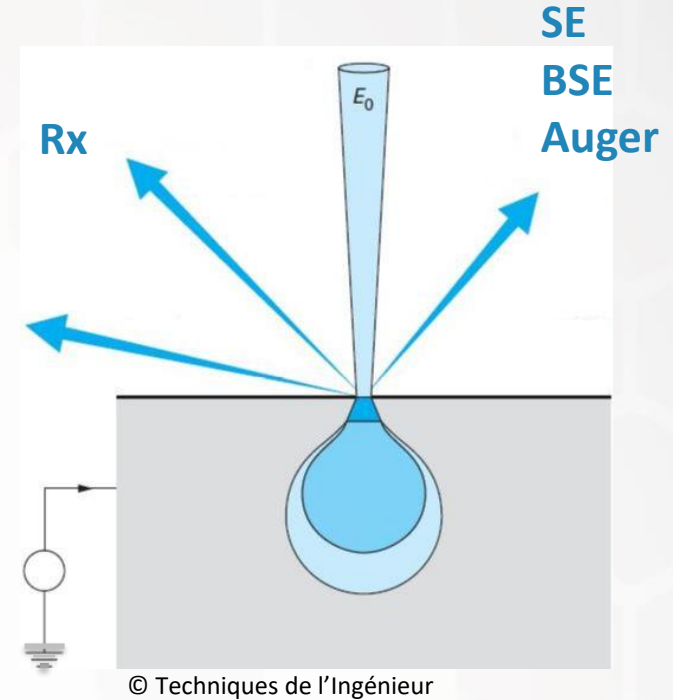


- MEB = cathodoluminescence (CL), EBIC



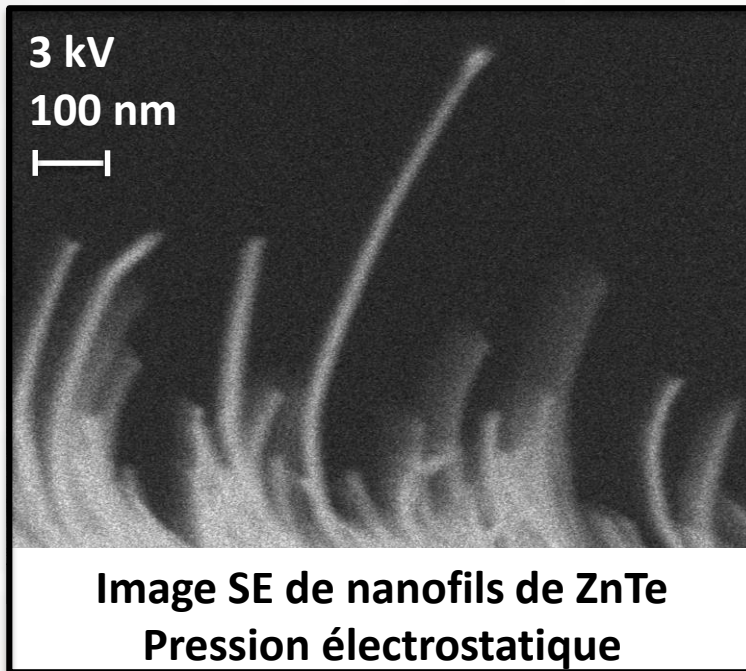
Dr. J. Poplawsky, Oak Ridge National Laboratory

UV, Visible, IR  
(e.m.)

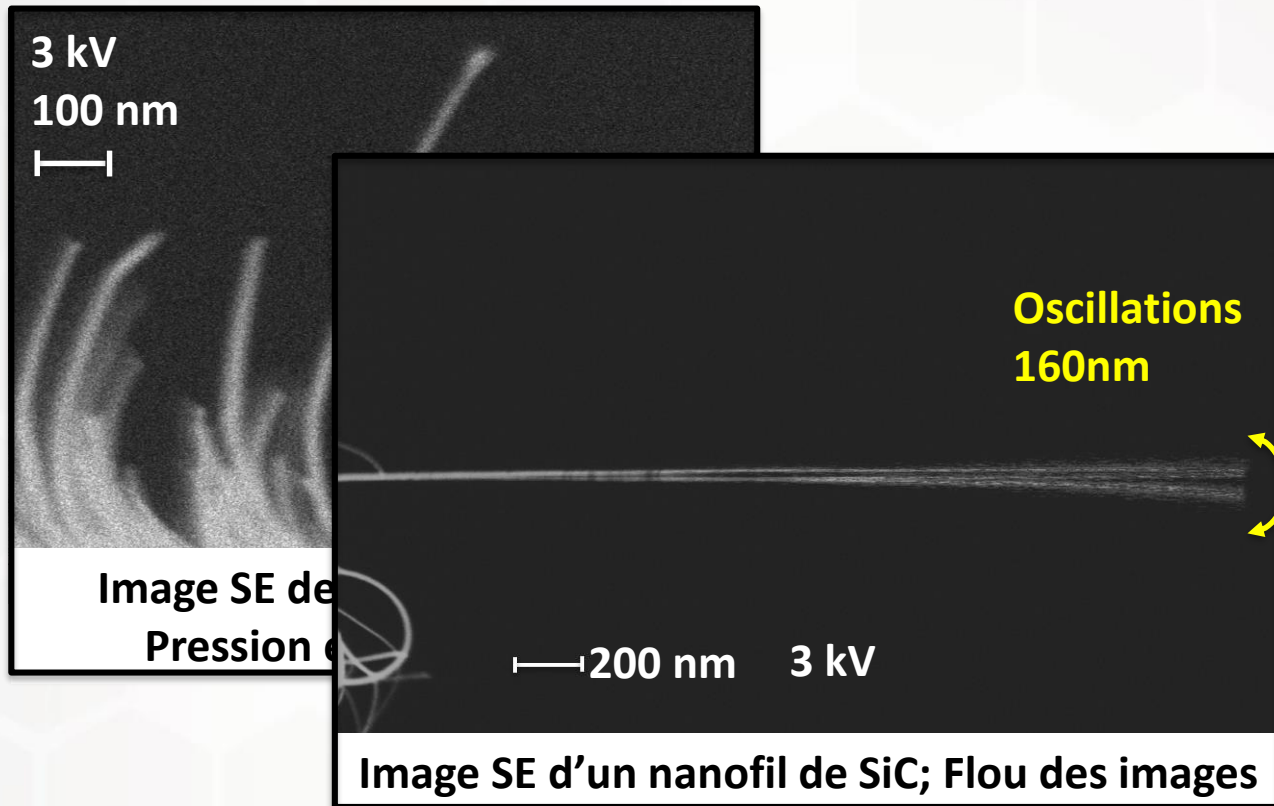


- MEB = un outil de préparation d'échantillons (FIB, Ultramicrotome, micromanipulateurs...)
- MEB = un laboratoire d'analyse (expériences in-situ : traction, compression, HT, AFM ...)

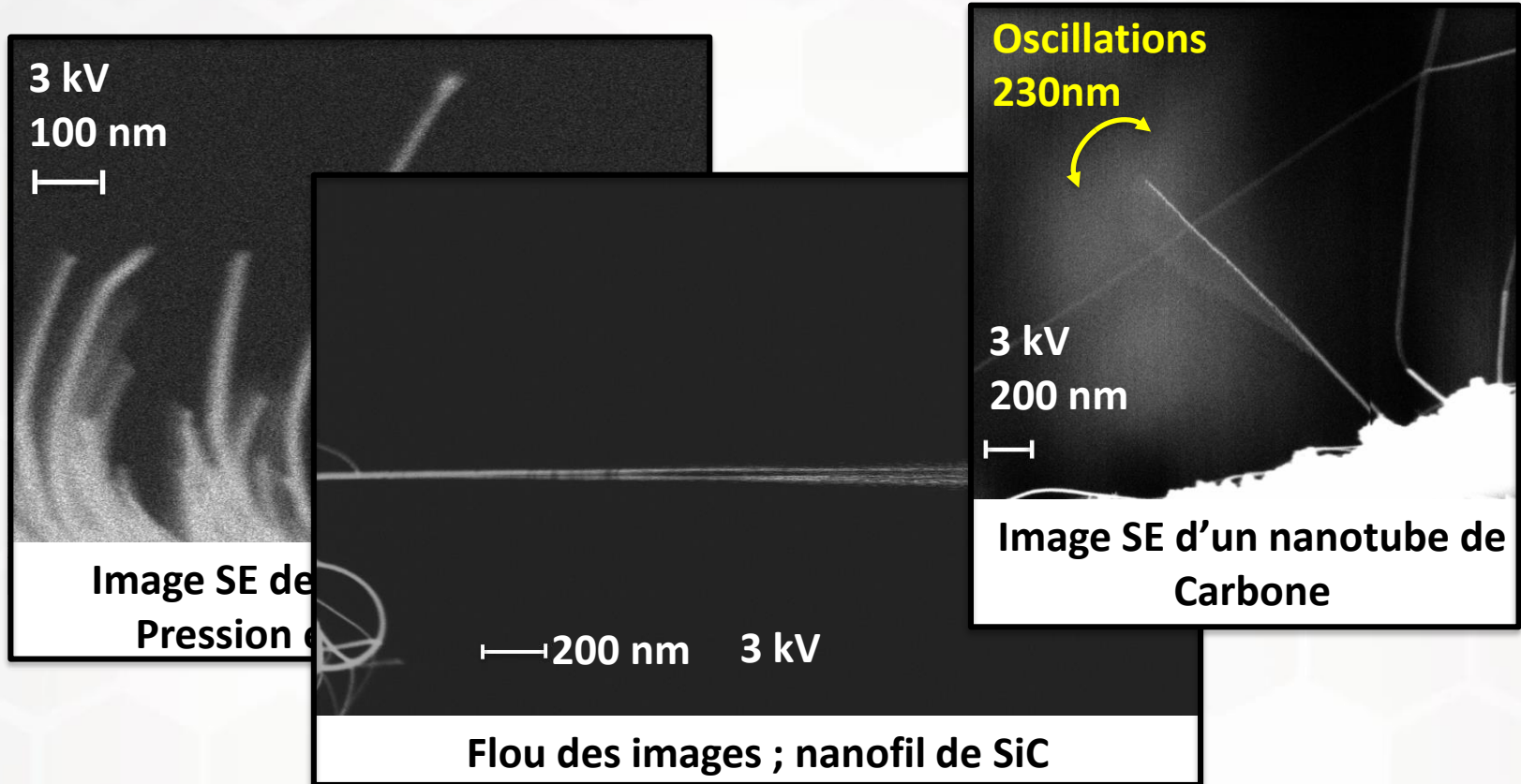
- **Observation de nano-objets :**
  - Bonne résolution spatiale : détecteur in-lens
  - Contraste fort des objets, utilisation de la basse tension
- **Défauts des images:**



- Défauts des images:



- Défauts des images:



**Peut-on exploiter les oscillations des nano objets soumis à un bombardement électronique pour déterminer certaines de leurs propriétés intrinsèques**

**Projet de recherche en nano-mécanique et nano-thermique.**

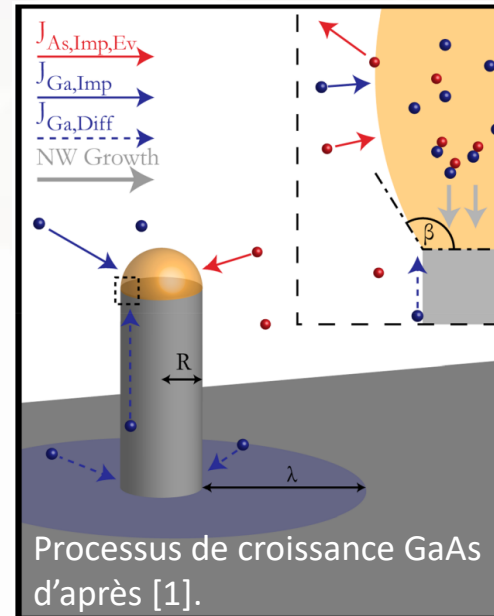
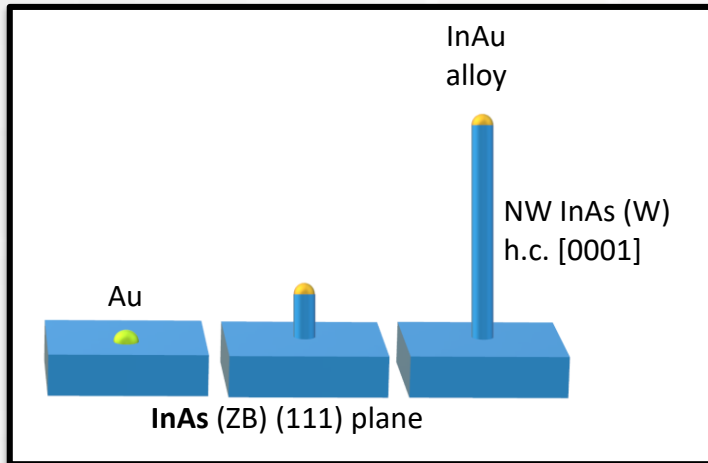
**Origine des oscillations mécaniques: couplage électromécanique entre le NW et le faisceau électronique focalisé**

- Mouvement Brownien
- Thermique (interaction électrons / matières)

**Nanofils étudiés : InAs (5-10 $\mu$ m ; diamètre 50-100nm)**

## Croissance par MBE – Moïra HOCEVAR (CNRS/Institut Néel)

Nanofils semi-conducteurs III-V d'arséniure d'indium InAs sur substrat d'InAs avec utilisation d'un catalyseur d'or (Au) – Bâti de dépôt sous vide; T # 420°C



### Mécanisme :

Absorption des atomes In et As via la goutte d'or ( $Au_7In_3$ )

Diffusion de l'indium du substrat vers l'interface

Sursaturation de la goutte et nucléation à l'interface  
=

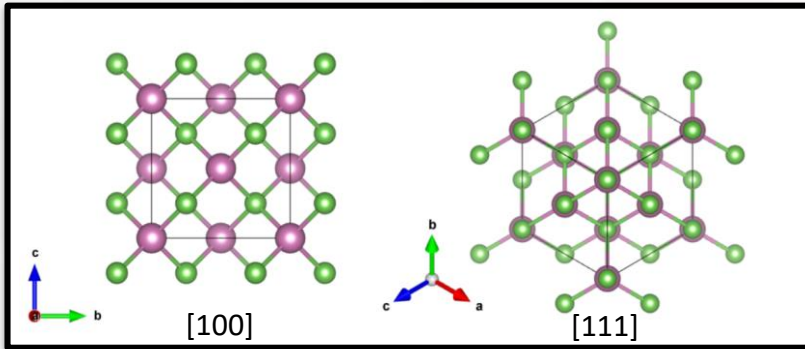
Croissance à l'interface goutte sursaturée / InAs

- Morphologie du nanofil: dépend des conditions de croissance (températures, pression, vitesse de dépôt et du rapport V/III (typiquement 10 à 100))
- Expérimental : la structure dépend du diamètre du nanofil et de l'angle  $\beta$  (... et donc du diamètre de la goutte d'Or) et de la sursaturation

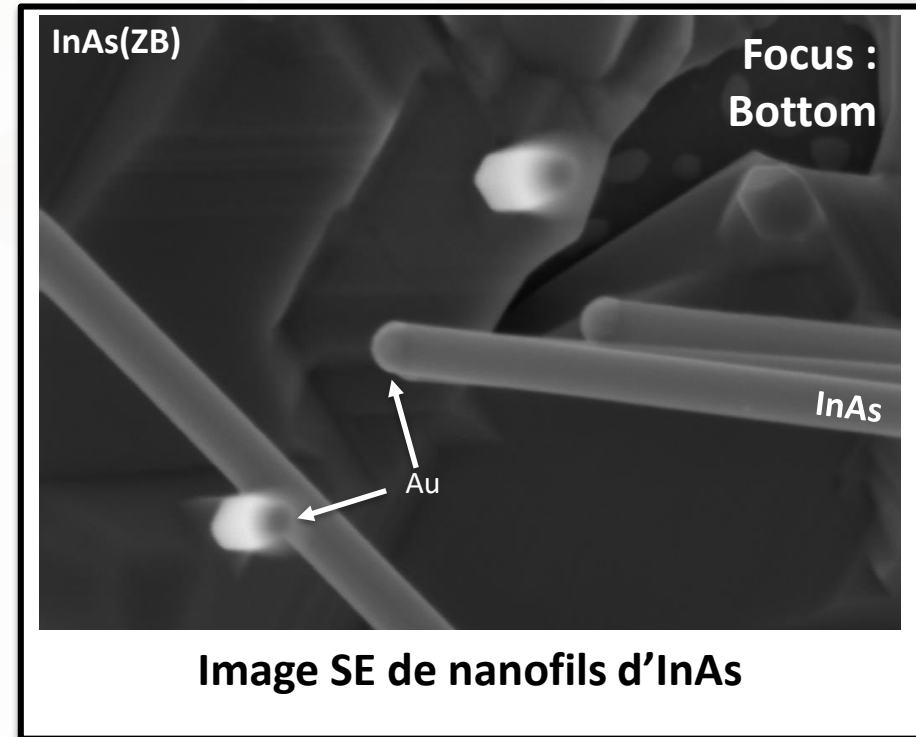
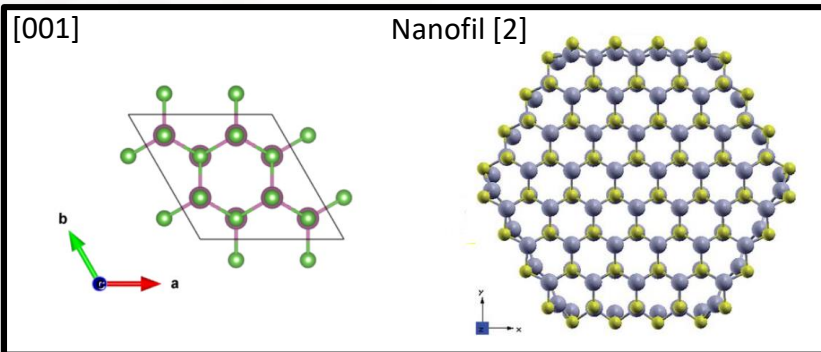
[1] : Effect of Radius on Crystal Structure Selection in III–V Nanowire Growth, Erik K. Mårtensson, Sebastian Lehmann, Kimberly A. Dick, and Jonas Johansson, *Crystal Growth & Design* 2020 20 (8), 5373-5379

- **Substrat** : InAs de structure Zinc-Blende plan (111) ;  
Structure stable des SC-III-V non nitrurés;

F -4 3 m (S.G.216);  
a = b = c= 6,058 Å;  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$

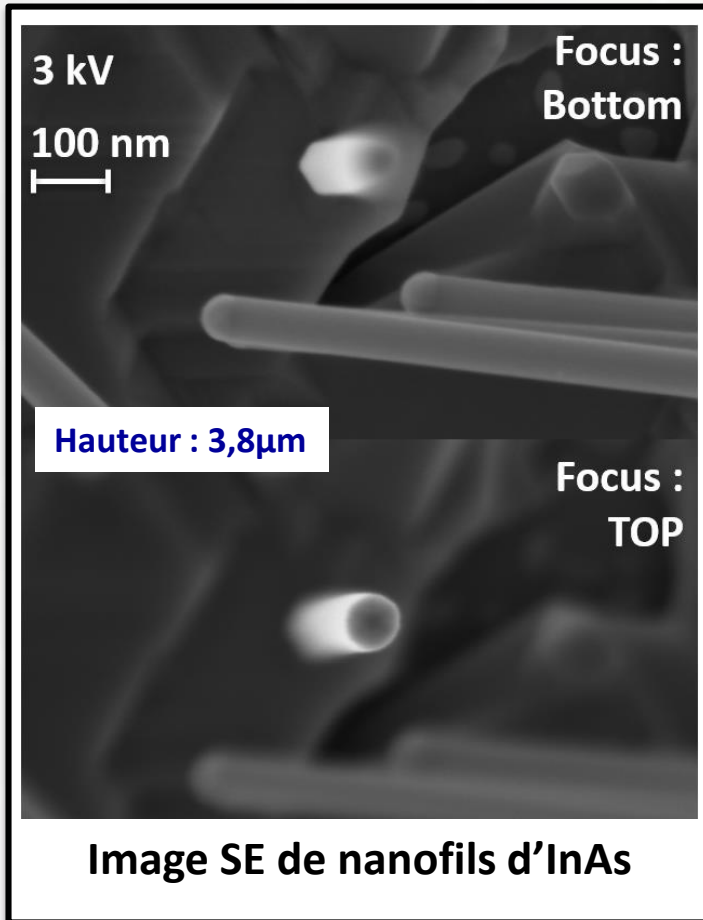


- **Nanofils** : Structure de type Wurtzite [0001]; le type Wurtzite n'existe pas à l'échelle macroscopique;  
P 63 m c (S.G.186);  
a = b = 3,284 Å; c= 6,996 Å ;  $\alpha = \beta = 90^\circ$ ;  $\gamma = 120^\circ$



[2] : Ab initio study of strained wurtzite InAs nanowires: engineering an indirect – direct band gap transition through size and uniaxial strain, Shweta D. Dabhi and Prafulla K. Jha, RSC Advances 2015, Issue 109

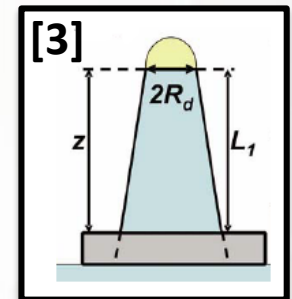
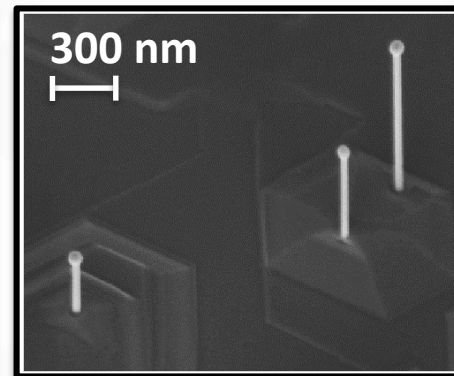
## Estimation des dimensions (Top view)



Estimation de la hauteur par différence de distance de focalisation : 3,8µm (précision moyenne)

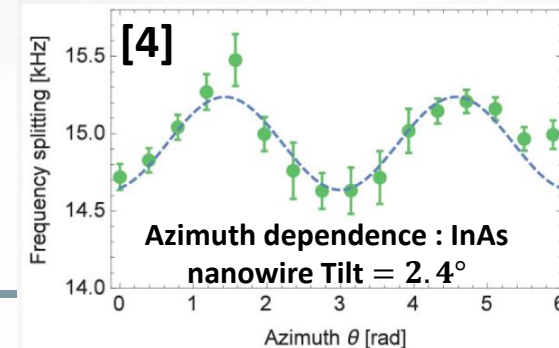
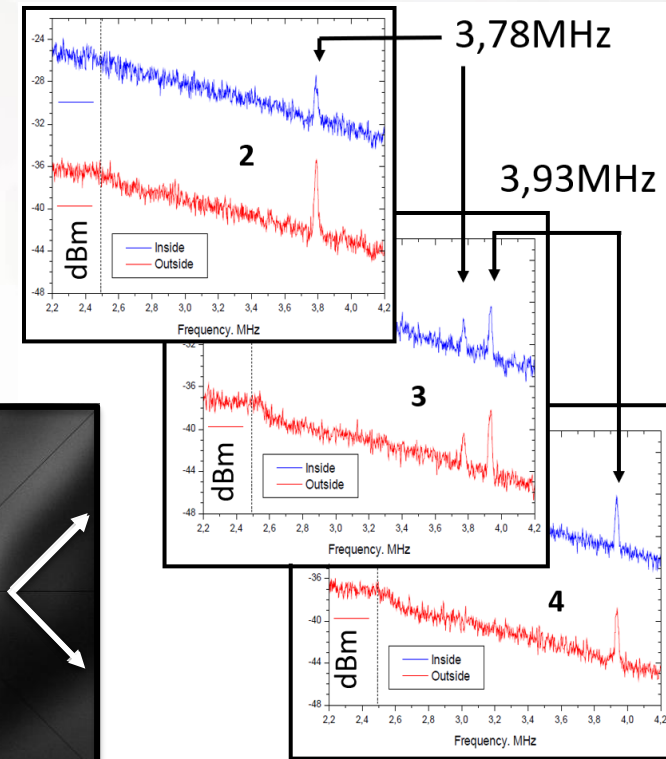
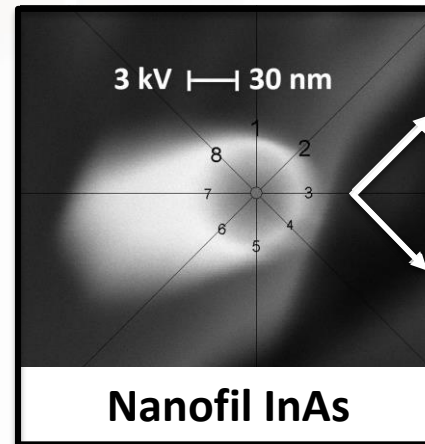
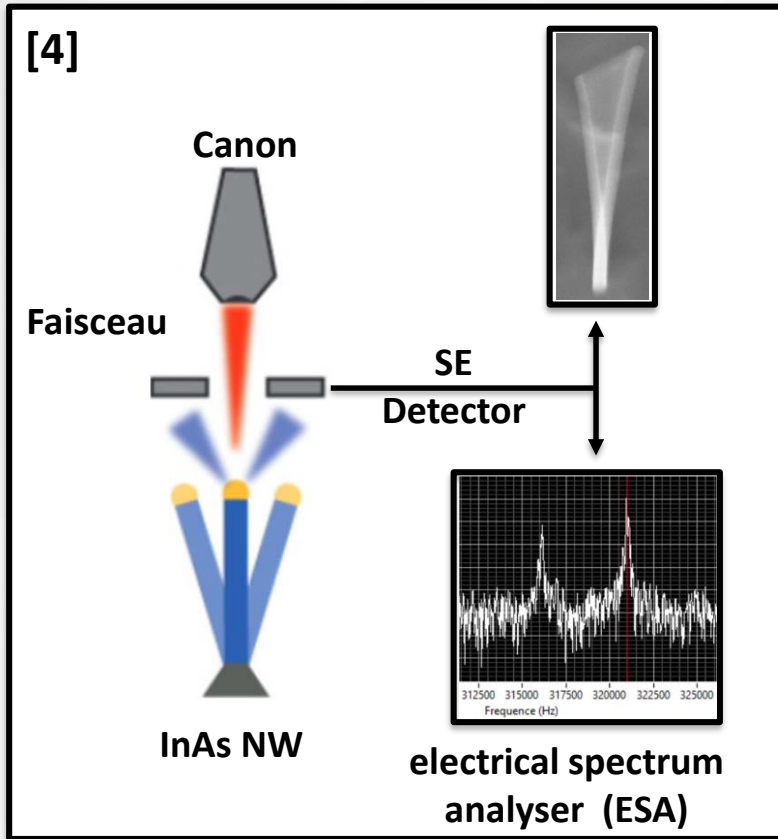
Diamètre à la base ou sur la goutte d'or ;

Suivant la nature du matériau et les conditions de synthèses la morphologie peut changer:



[3] : Shape modification of III-V nanowires: The role of nucleation on sidewalls, Dubrovskii, V & Sibirev, Nikolay & Cirlin, G. & Tchernycheva, Maria & Harmand, J & Ustinov, V. Physical review. E, Statistical, nonlinear, and soft matter physics. 77. 031606. (2008)

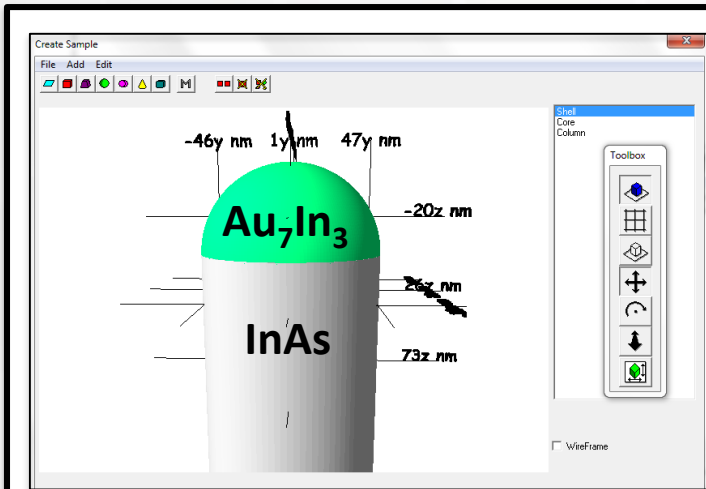
## Principe : NW alternativement sous et hors faisceau



[4] : Shot-Noise-Limited Nanomechanical Detection and Radiation Pressure Backaction from an Electron Beam. Paris, Sébastien & Donatini, Fabrice & Hocevar, Moira & Tumanov, Dmitri & Vaish, Nitika & Claudon, Julien & Poizat, Jean-Philippe & Verlot, Pierre. Physical Review Letters. 122 (2018).

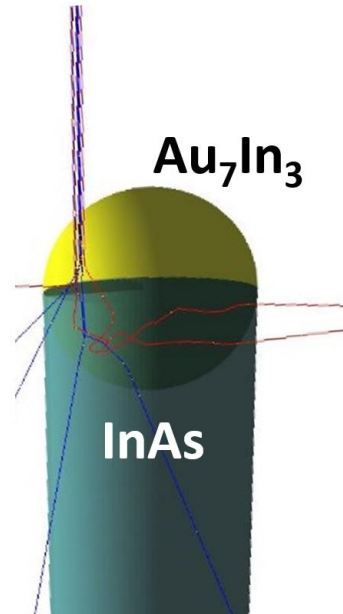
## Optimisation des paramètres d'acquisition :

- Courants : quelques picoAmpère / nanoAmpère
- Choix de la tension : simulation des trajectoires électronique par la méthode de Monte-Carlo – Casino v3.3 [5]

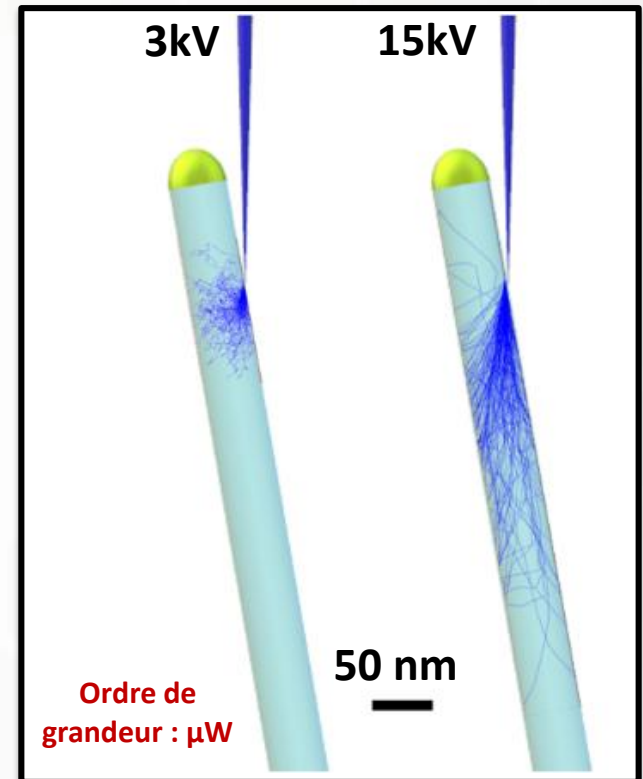


### Description de l'échantillon

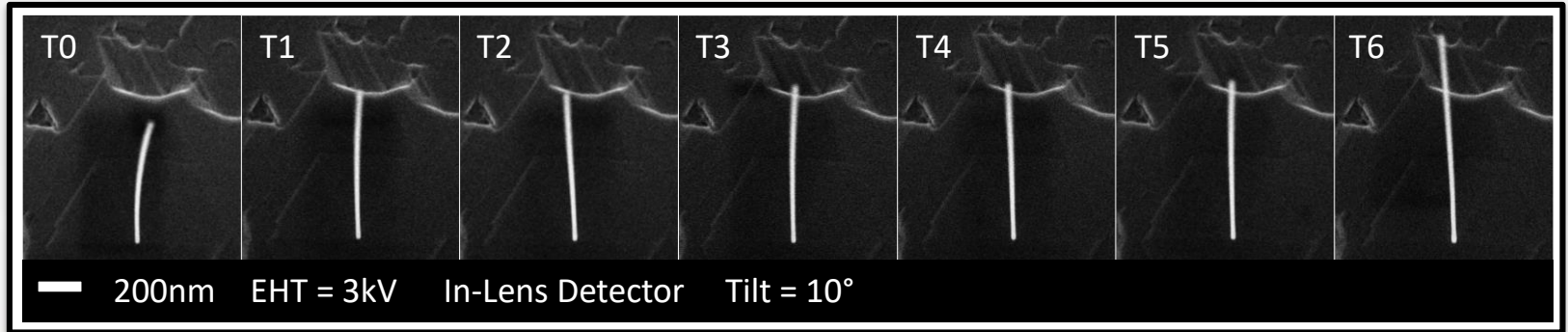
[5] Three-dimensional electron microscopy simulation with the CASINO Monte Carlo software, H. Demers, N. Poirier-Demers, A. Réal Couture, D. Joly, M. Guilmain, N. de Jonge, and D. Drouin. (2011).. Scanning 33(3): 135-146.



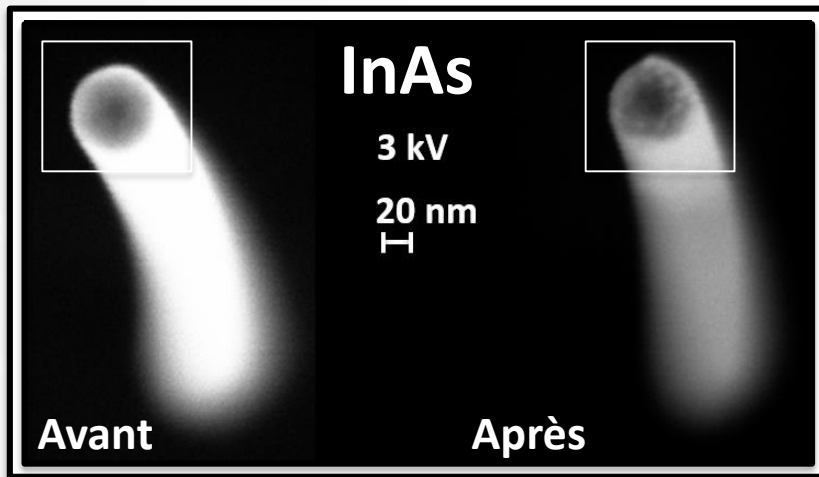
### Simulation des trajectoires électroniques



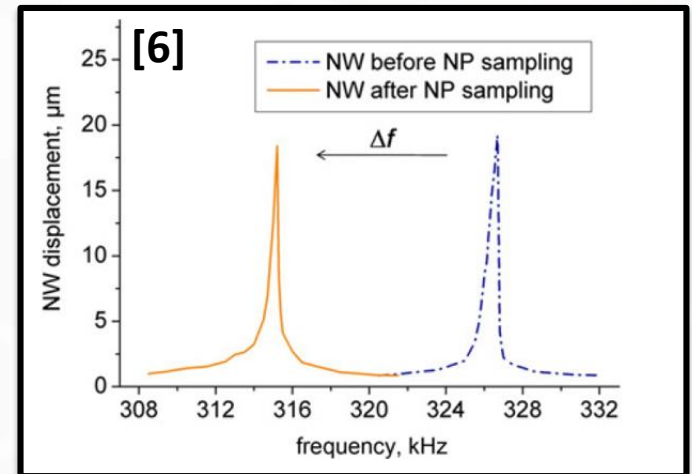
## Artefacts : modification de l'inclinaison du fil



## Contamination : masse ↗ Fréquences ↘

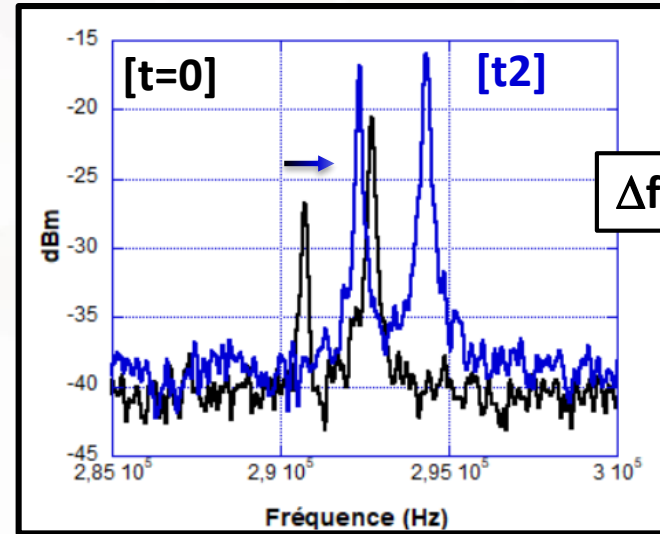
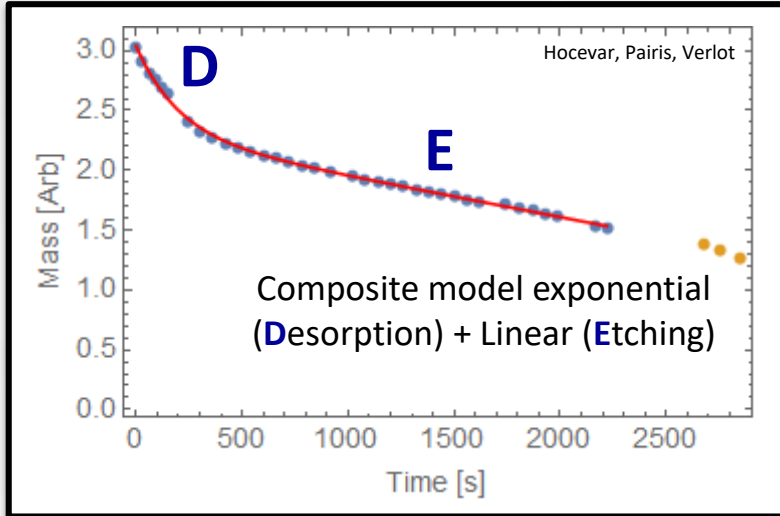


$$f = \frac{1}{2\pi} \times \sqrt{\frac{k}{m}} \quad \text{Gruber et al.}$$



[6] Femtogram aerosol nanoparticle mass sensing utilising vertical silicon nanowire resonators, Wasisto, Hutomo & Merzsch, Stephan & Stranz, Andrej & Waag, Andreas & Uhde, Erik & Salthammer, Tunga & Peiner, Erwin. Micro & Nano Letters, (2013).

Dégâts : perte de masse (désorption, gravure) : masse  $\searrow$  Fréquences  $\nearrow$

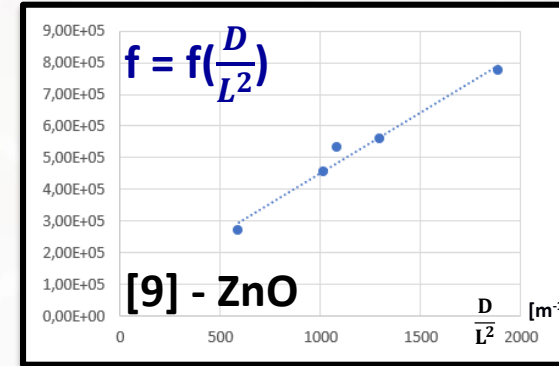


**Problématique : mesure de  $E_{(InAs)}^{Wurtzite}$  impossible par une méthode classique car la phase n'existe pas à l'état macroscopique.**

$$E = f(L, D, f) = \frac{64 \pi^2}{\beta_j^4} L^4 \frac{1}{D^2} \rho f^2 \quad [7]$$

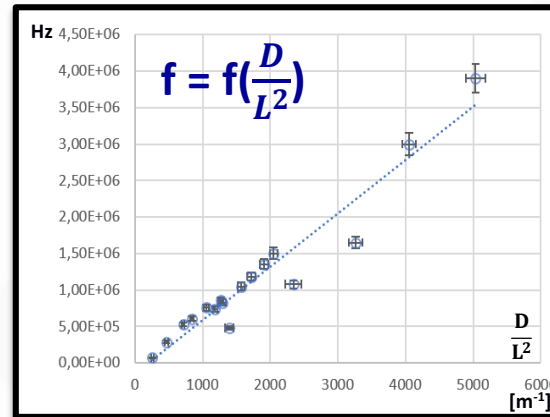
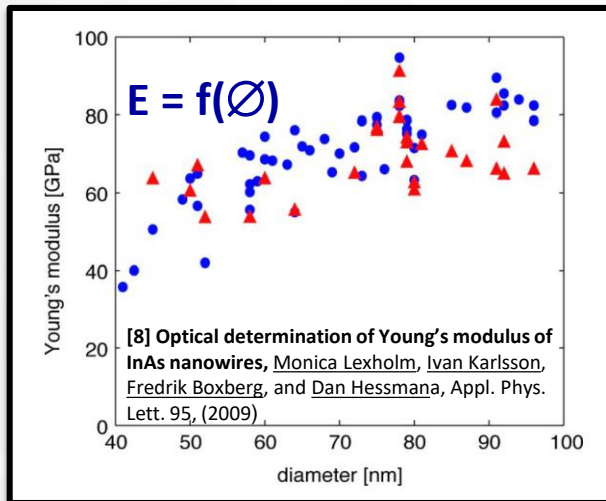
Avec :

- L : la longueur
  - D : le diamètre
  - $\rho$  : la masse volumique
  - f : la fréquence
  - $\beta$  : Constante
  - $\rho$  : masse volumique
- [7] **Electrostatic Deflections and Electromechanical Resonances of Carbon Nanotubes**, Poncharal, P., Wang Z. L., Daniel Ugarte, Walt A. de Heer. Science (American Association for the Advancement of Science), vol. 283, no. 5407, American Society for the Advancement of Science, 1999



[9] E (GPa)
59,7
57,2
69,8
48,9
54

[9] In situ mechanical properties of individual ZnO NW and the mass measurement of nanoparticles, Y Huang et al, J Phys Condens Matter 18-2006



$E \in [20 - 74] \text{ GPa}$

$E \in [3 - 5] \text{ GPa (II)}$

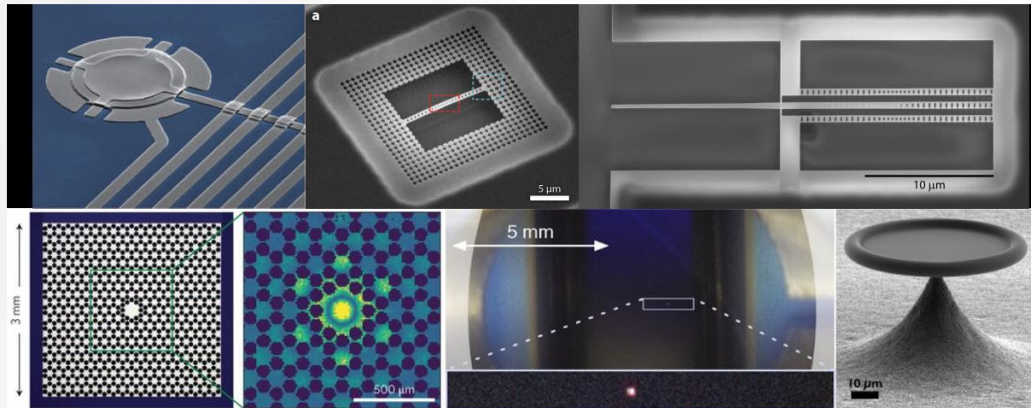
$E \in [120 - 160] \text{ GPa (I)}$

- Effet de la température
- Effet de la bille d'or
- Oxydation de surface

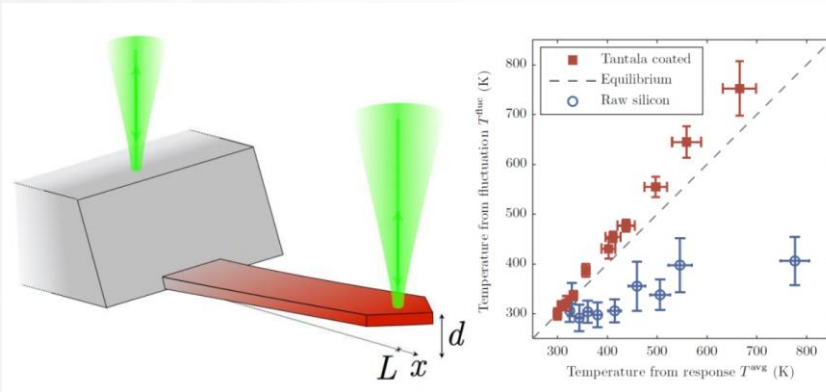
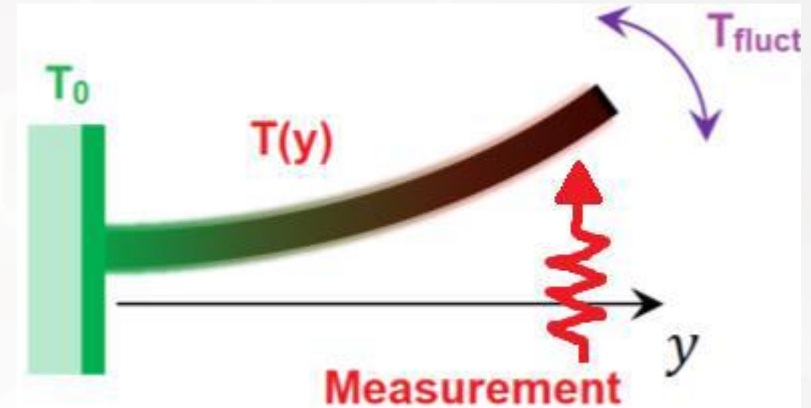
- Optomécanique : étude du couplage entre un faisceau cohérent de lumière et les déplacements d'un résonateur mécanique.
- Origine : années 70, développement des instruments de mesure des ondes gravitationnelles. Leurs effets sont si petits qu'ils sont cachés par les bruits quantiques.
- Objectifs : Comportement quantiques de grands ensembles atomiques, ingénierie quantique de l'information, etc.



- 1999 : Premier refroidissement optique d'un miroir micrométrique.
- 2011 : Ground State ou Etat Fondamental.
- Pour cela : miniaturisation des résonateurs et environnement ultra-contrôlé (ultra vide, cryogénie...).
- Énorme sensibilité aux fluctuations de la mesure, et aux effets thermiques

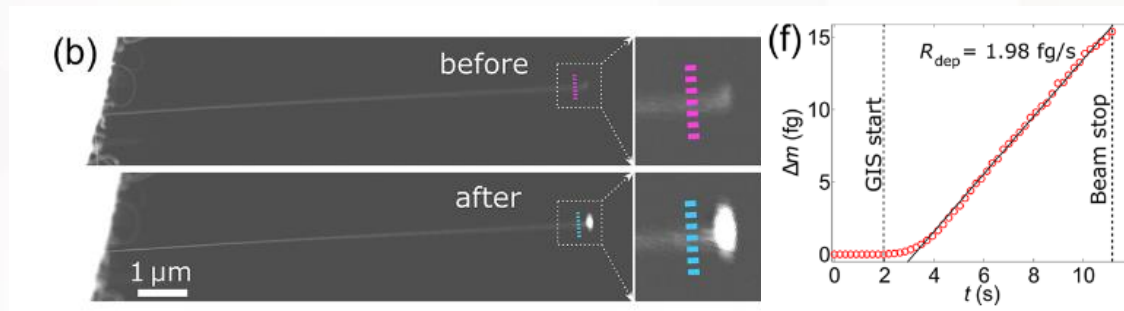


- Miniaturisation  $\Rightarrow$  réduction de la conductivité thermique  $\Rightarrow$  augmentation du chauffage
- Gradients de température énormes !
- Plusieurs températures sont à prendre en compte
- Question : nature de l'état thermodynamique ?



- « état thermique permanent hors équilibre »
- Etude sur des pointes d'AFM ( $L \approx 500 \mu\text{m}$ )  
Geitner et al, PHYSICAL REVIEW E 95 , 032138 (2017)
- Ici  $T_{\text{fluctuations}} \neq T_{\text{moyenne}}$

- Mesures précédentes : interaction entre un degré de liberté mécanique et une résonance électromagnétique (transitions atomiques, cavité Fabry-Pérot, système à deux niveau...)
- Le MEB amène un confinement 100 fois meilleur du faisceau et donc une meilleure résolution spatiale de la mesure  $\Rightarrow$  Plus de limite de diffraction.
  - Nanotubes comme détecteurs AFM [A. Siria and A. Niguès, Sci. Rep. 7, 11595 (2017).]
  - « Nano-imprimantes » 3D [Pablo-Navarro et al, J. Phys. D 50, 18LT01 (2017).]
  - Déposition de nanoparticules avec une précision atomique [Gruber et al, Nano Lett. 2019, 19, 10, 6987–6992]



- Exploration des dimensions du résonateur : ne plus le considérer comme une masse ponctuelle soumise à des forces.

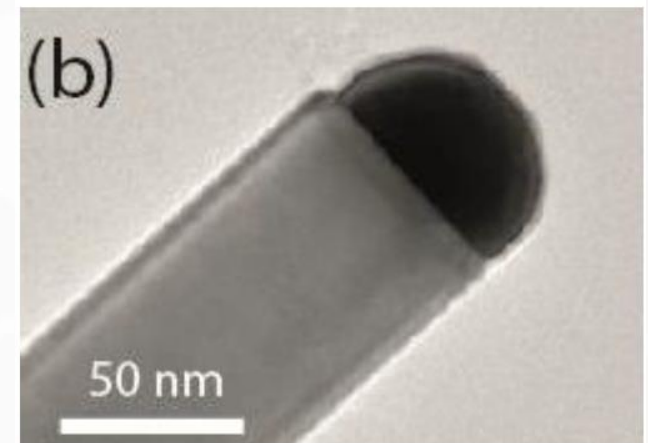
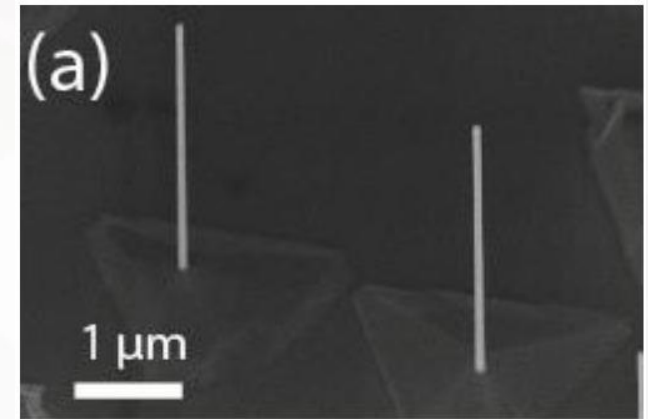
- Etape intermédiaire entre objet microscopique (pointe d'AFM) et nanotube de carbone

Cahier des charges :

- Nano-objet mesurable de façon reproductible
- Important gradients de température
- Résolu spatialement

Nanofils d'InAs

- Longueur  $\approx 7 - 10 \mu\text{m}$
- Rayon  $\approx 30 - 60 \text{ nm}$

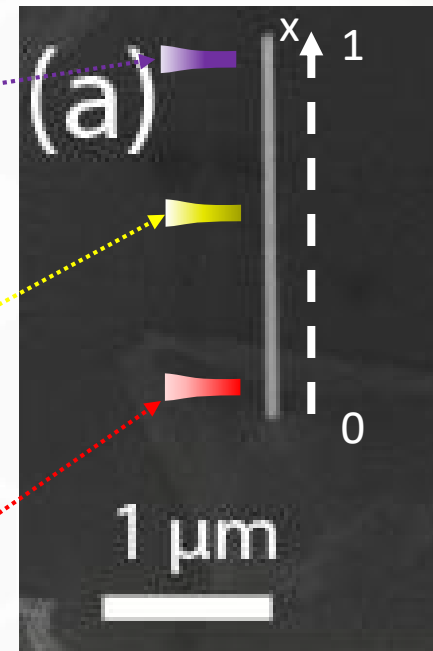
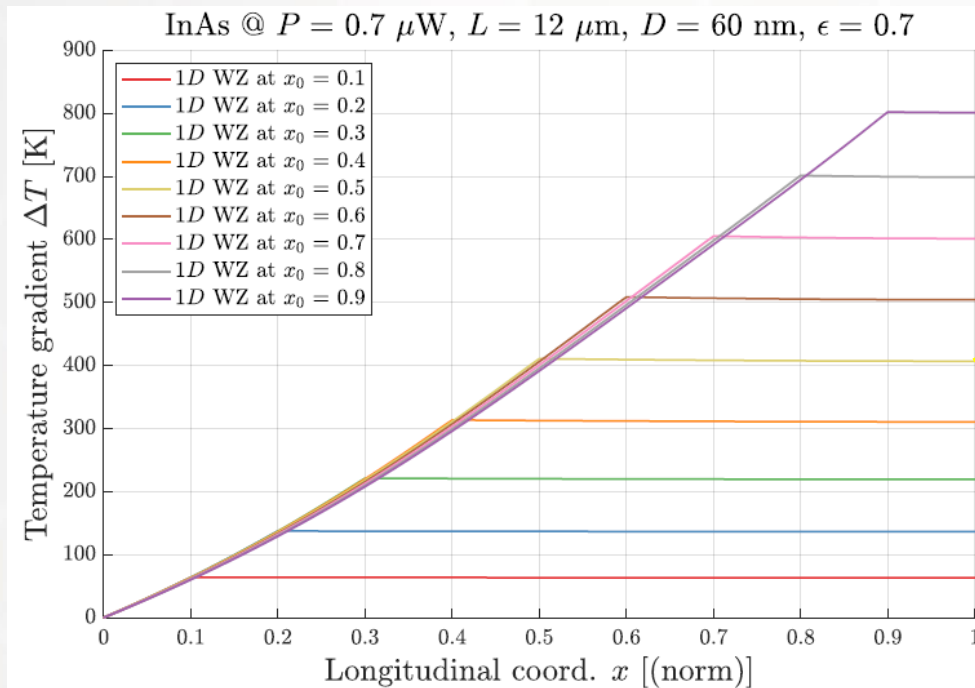
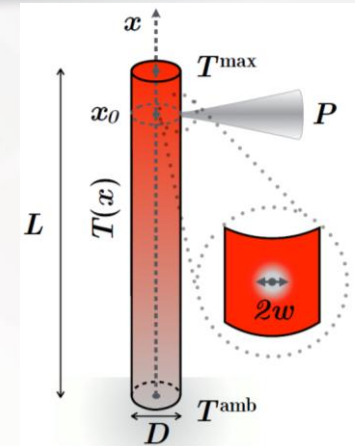


- Le faisceau d'électrons amène de l'énergie  $\Rightarrow$  il chauffe le nanofil

- Courant  $\approx 300$  pA
- Accélération  $\approx 3$  kV
- Puissance  $\approx 1$   $\mu$ W
- Spot size  $\approx 1$  nm

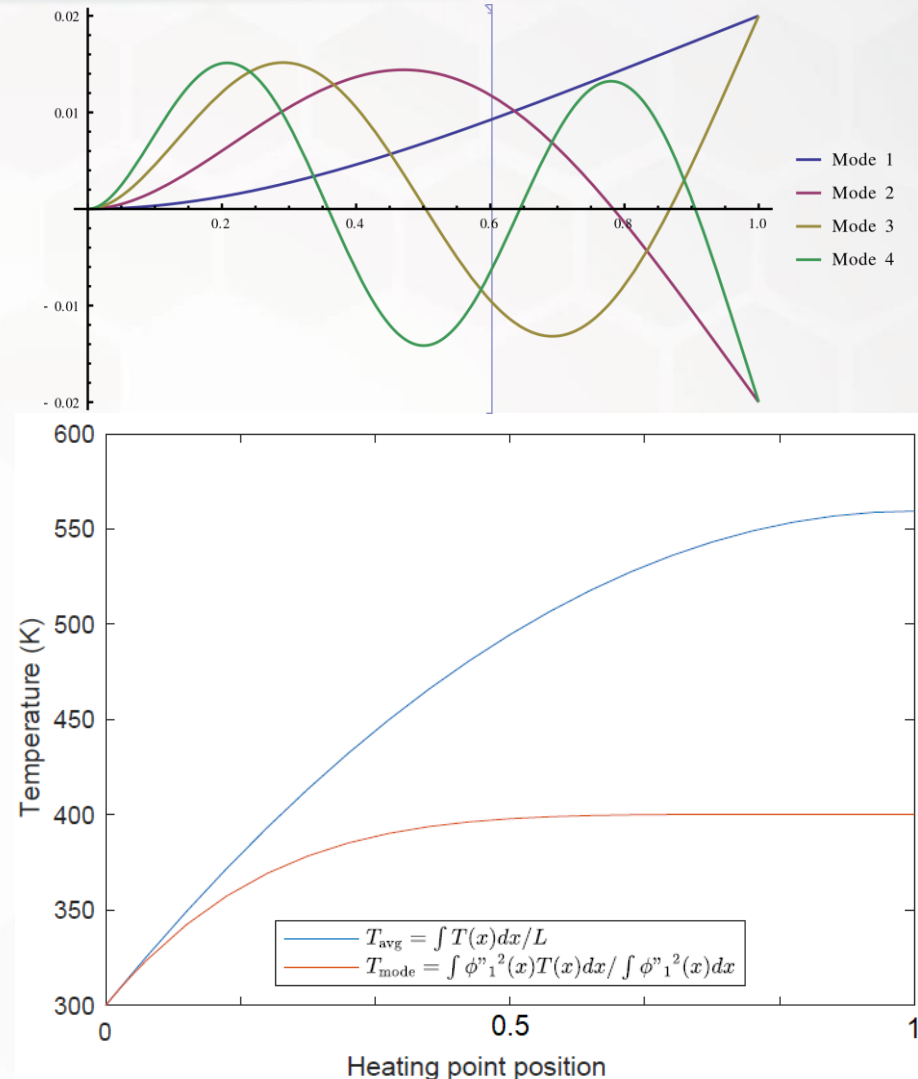
- Gradient estimé :  $\Delta T \approx 800$  K

[Pottier et al, JAP **129**, 184503 (2021)]

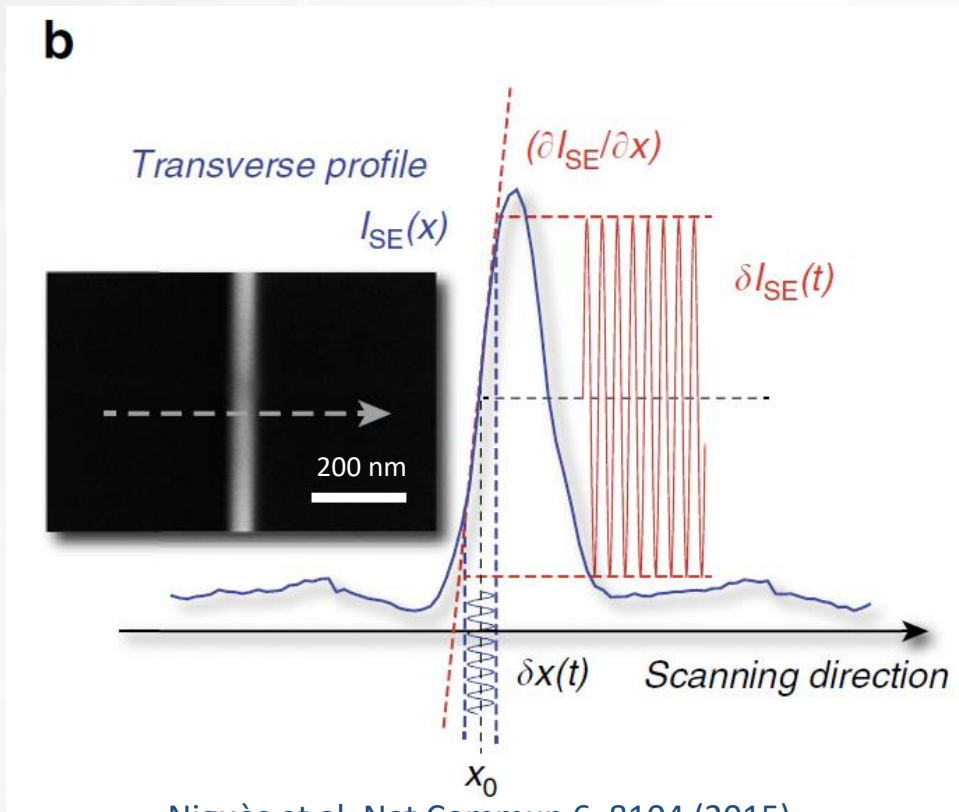


- Le module d'Young dépend de la température
- Chauffage  $\Rightarrow$  Changement de fréquence de résonance  
[Tepsic et al, Phys. Rev. Lett. 126, 175502 (2021)]
- Cette relation n'est pas triviale ! Elle dépend de la distribution des déformations de chaque mode mécanique  
[Geitner et al, PRE **95**, 032138 (2017)]

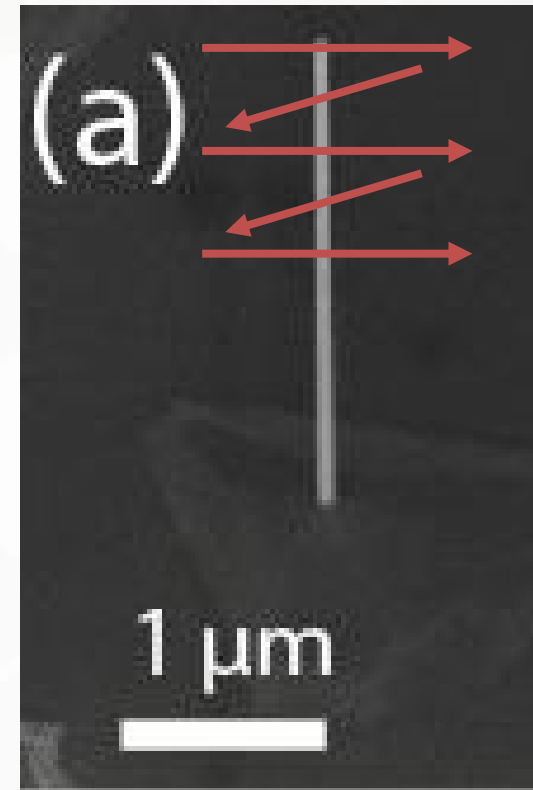
$$\frac{\Delta\Omega_n}{\Omega_n} = \frac{1}{2} \left( \frac{1}{E} \frac{\partial E}{\partial T} \right) \frac{\int_0^1 dx \Delta T(x) (\phi_n''(x))^2}{\int_0^1 dx (\phi_n''(x))^2} = \frac{1}{2} \alpha_E \Delta T_{mode}$$



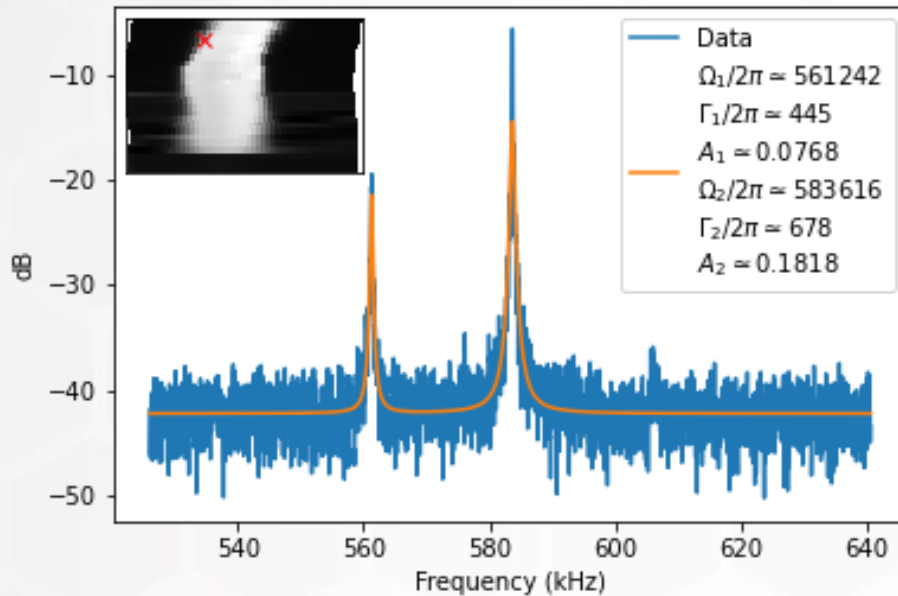
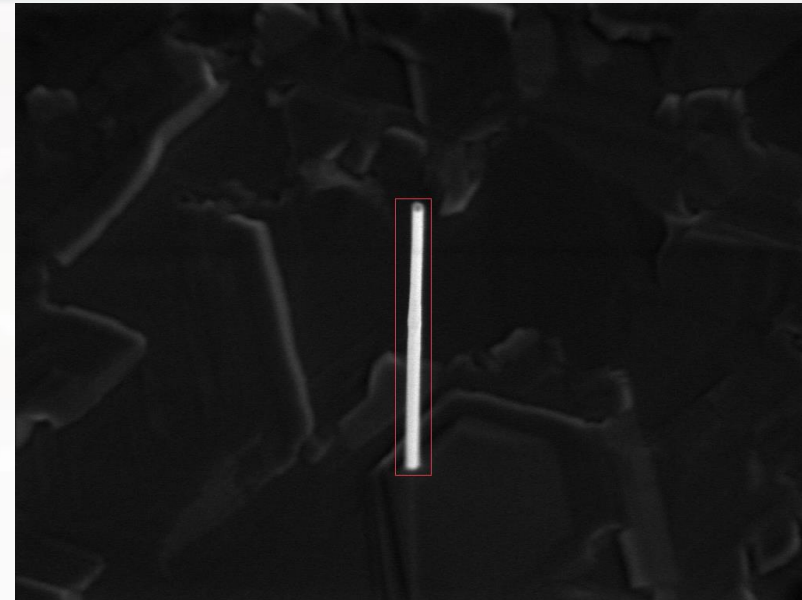
- La sensibilité de la mesure dépend de la position transverse dans le nanofil
- Pour la maximiser, on réalise un image complète



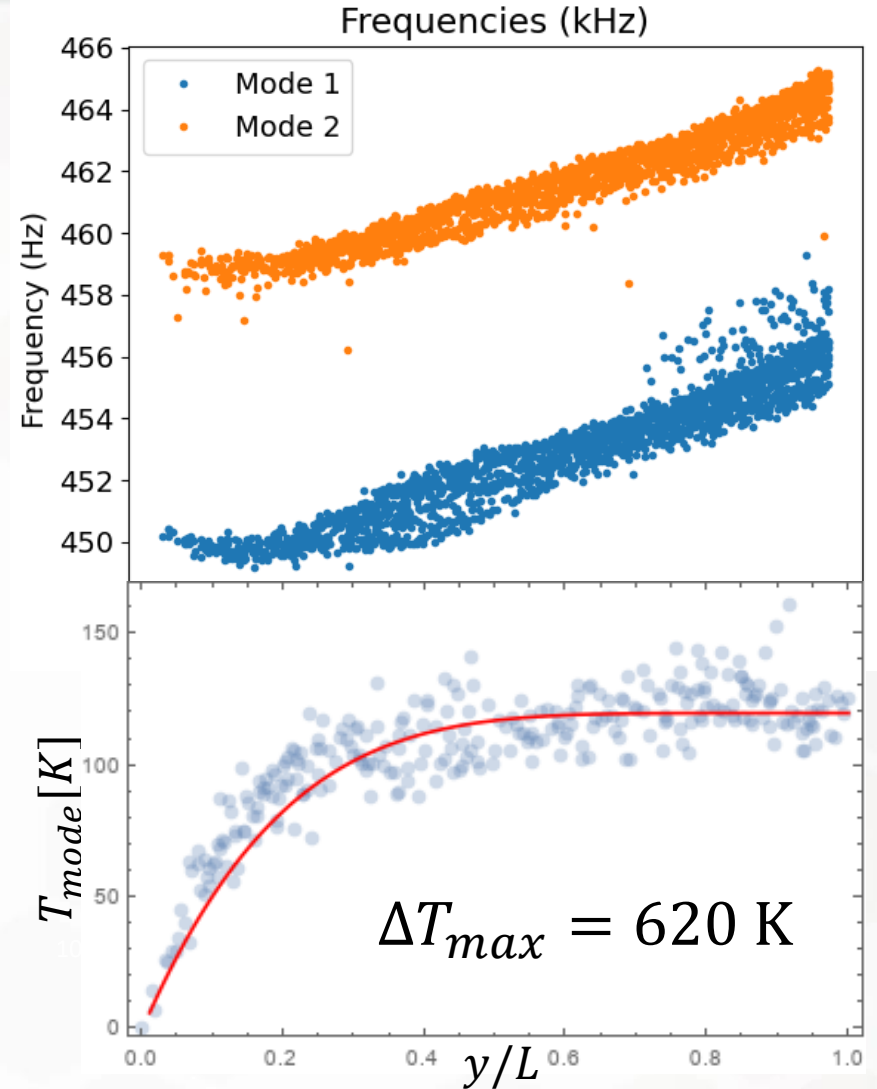
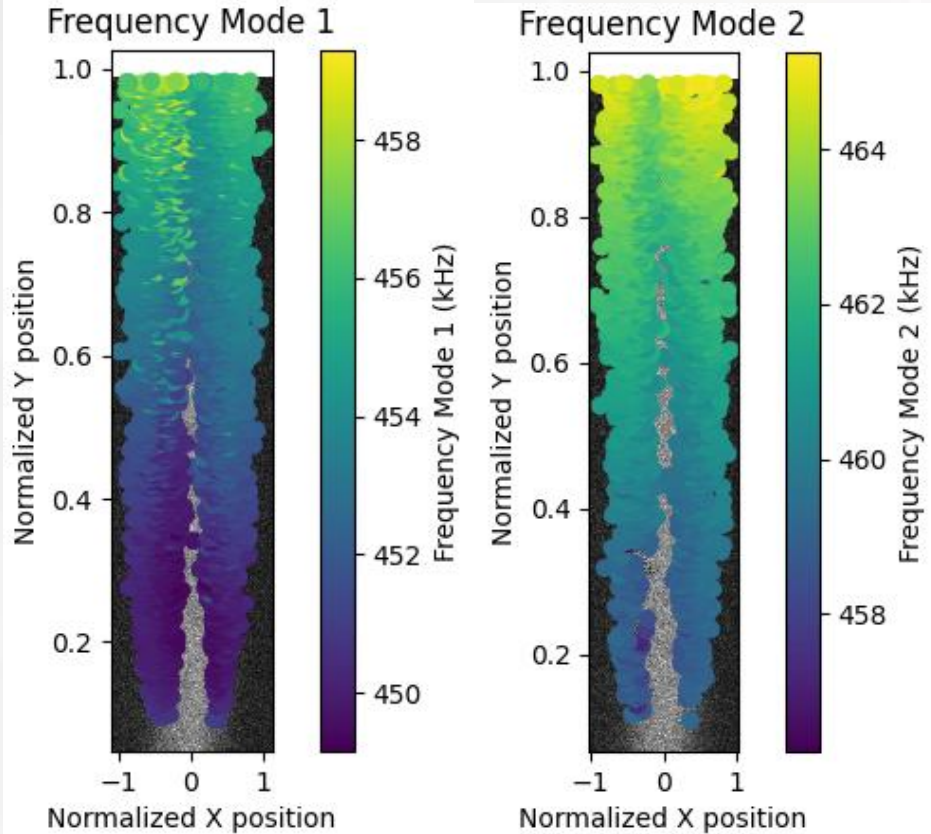
Niguès et al, Nat Commun 6, 8104 (2015)



1. Réalisation d'une image préliminaire du nanofil
2. Sélection d'une zone de mesure
  - Choix de la résolution
3. Sur chaque pixel, on acquiert un spectre
  - Choix des paramètres de l'analyseur de spectres : RBW, frequency range, nombre de points, moyennage...
  - Durée de mesure : de  $\approx 10$  minutes à  $\approx 1$  h

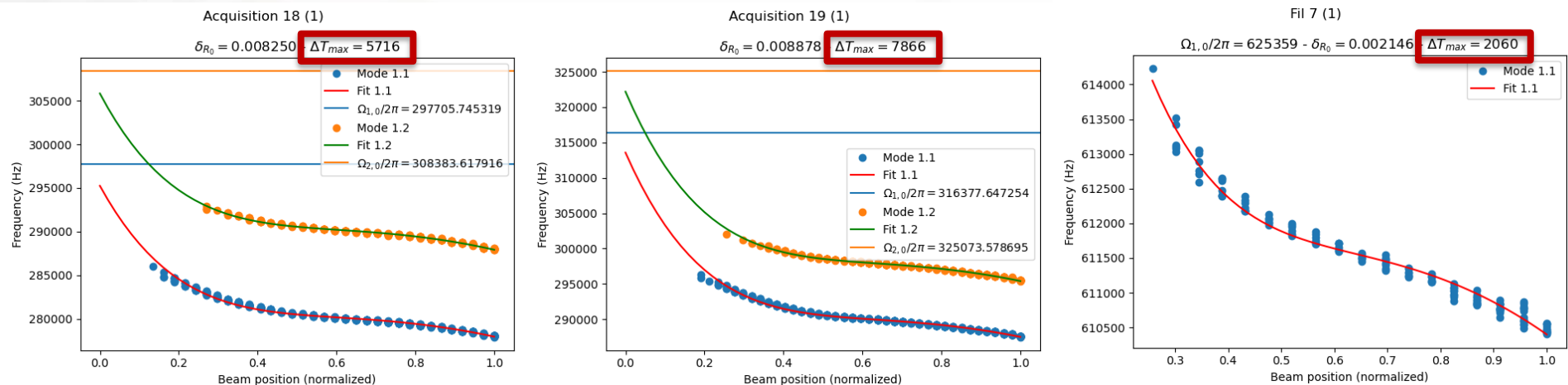


4. Post-traitement : fit des spectres avec des pics lorentziens
5. Extraction des valeurs de la fréquence
6. Conversion en température



- Ce modèle de gravure est trop simpliste !
- Réduction de la puissance incidente & du temps d'exposition  $\Rightarrow$  Meilleure reproductibilité de la mesure
- Nouveau modèle de gravure dépendant du sens de mesure ; trois paramètres libres

$$2 \frac{\Delta\Omega_n}{\Omega_n} = \underbrace{\frac{\int_0^L dy \delta_E \phi_n''(y)^2}{\int_0^L dy \phi_n''(y)^2}}_{\text{Température}} + \underbrace{4 \frac{\int_0^L dy \delta_R \phi_n''(y)^2}{\int_0^L dy \phi_n''(y)^2} - 2 \frac{\int_0^L dy \delta_R \phi_n(y)^2}{\int_0^L dy \phi_n(y)^2}}_{\text{Gravure}}$$



- Le MEB est un outil puissant pour mesurer les fluctuations des déplacements de nano-résonateurs mécaniques.
- L'interaction électromécanique permet de quantifier certaines grandeurs intrinsèque du matériau.
- Cette mesure permet d'identifier les variations des fréquences des résonances à l'intérieur des nanofils.
- Quelques effets restent à quantifier, mais la mesure locale de la température est un objectif réaliste.

- ANR QDOT, ERC Q-ROOT
- Collaborateurs :
  - CNRS Néel : S. Douillet, M. Hocevar, J-P. Poizat
  - University of Nottingham : P. Verlot
  - Etudiants de l'Université Grenoble-Alpes : T. Gilibert, M. Contat, C. Poulain, R. Vicomte
  - ENS Lyon : L. Bellon, A. Fontana

