

# THESE

présentée à

**L'Université des Sciences et Technologies de Lille**

pour l'obtention du grade de

**Docteur de L'Université**

Spécialité: Sciences des matériaux

par

**Stéphane TRUDEL**



**Etude par double et triple diffraction des rayons X  
et modélisation, de la relaxation des contraintes  
dans des hétérostructures semiconductrices  
GaInAs/GaAs et AlInAs/GaAs  
à rampe de composition graduelle linéaire**

**Soutenue le 04 Mars 1997 devant la Commission d'Examen**

Président:	<b>J.L. FARVACQUE</b>	Professeur, Université Lille I
Rapporteurs:	<b>R. BISARO</b>	Ingénieur, Thomson-C.S.F.
	<b>B. PICHAUD</b>	Professeur, Université d'Aix-Marseille III
Examineurs:	<b>Y. CORDIER</b>	C.R.-C.N.R.S., I.E.M.N., Univ. Lille I
	<b>Y. DRUELLE</b>	Professeur, I.E.M.N., Université Lille I
	<b>A. GEORGE</b>	D.R.-C.N.R.S., Ecole des Mines, Nancy
Directeur de Thèse:	<b>J. DI PERSIO</b>	Professeur, Université Lille I

A mes parents

Ce travail a été réalisé au Laboratoire de Structure et Propriétés de l'Etat Solide (C.N.R.S. U.R.A. 234) de l'Université des Sciences et Technologies de Lille, sous la direction de Monsieur J. Di Persio. J'ai pu bénéficier, grâce à sa bienveillante complicité, d'une grande liberté pour réaliser ce projet. C'est dans ce contexte qui me satisfaisait pleinement et c'est avec une profonde reconnaissance envers Monsieur Di Persio qui l'a permis, que j'ai voulu donner le meilleur de moi-même. Si je pouvais avoir réussi et si je pouvais avoir ainsi gagné sa confiance alors, je serais très heureux.

**Je remercie Monsieur J.L. Farvacque d'avoir accepté de présider le jury.**

La charge du rapport a été confiée à Messieurs R. Bisaro et B. Pichaud qui l'ont acceptée. Je les remercie ici sincèrement de l'intérêt qu'ils témoignent ainsi à mon travail.

**Je suis très heureux de recevoir Monsieur A. George parmi les membres du jury. Je le remercie de l'intérêt qu'il porte à ce travail.**

Je suis très content également que Messieurs Y. Druelle et Y. Cordier puissent être présents dans le jury, cela me donne l'occasion ici de leur dire ma profonde reconnaissance. La thèse n'aurait pas pu commencer à proprement parler sans le premier échantillon que réalisa Y. Cordier alors résident au L.C.R. de Thomson. Les autres échantillons ont été réalisés par Y. Druelle à l'I.E.M.N.. La croissance de ces échantillons aux structures si particulières n'est pas chose facile, et je suis d'autant plus reconnaissant des efforts fournis par Monsieur Y. Druelle qui, après un déménagement des installations et en dépit des nombreuses pannes du bâti d'épitaxie, a su réaliser une majeure partie des échantillons demandés. Merci à tous les deux.

Les images de microscopie électronique en transmission ont été prises par Messieurs A. Lefebvre et Y. Androussi. Je les remercie chaleureusement de leur précieuse collaboration et de leur grande disponibilité. Je remercie à nouveau Ydir pour m'avoir guidé dans la préparation des lames minces. Dans cet état d'esprit, je tiens à remercier aussi Damien Jacob pour son aide amicale aux tirages photographiques.

Les images en microscopie à champ proche (A.F.M.) ont été prises par Madame D. Ferré récemment spécialisée dans le maniement de cet appareil. Je la remercie d'autant plus que son concours a été sollicité précipitamment. L'étude sommaire présentée dans la thèse de deux des échantillons ne reflète pas la somme de travail fourni par Denise Ferré, en si peu de temps, sur l'ensemble des échantillons, mais elle marque plutôt le début, dans le groupe semiconducteur, d'une technique de caractérisation qui, nous le pensons, prendra beaucoup d'importance dans un proche avenir.

Des spectres de photoluminescence des échantillons ont été réalisés par Monsieur D. Vignaud. Les résultats ne seront pas présentés mais que Dominique voie en ces quelques lignes le signe de ma reconnaissance pour le travail qu'il a effectué.

**Je remercie pour leurs aides techniques Messieurs B. Hue et C. Vanmansart.**

# SOMMAIRE

## INTRODUCTION

2

### CHAPITRE I

#### GENERALITES. CONTRAINTES ELASTIQUES ET NOTION D'EPAISSEUR CRITIQUE

<b>I.1</b>	CRISTALLOGRAPHIE DES COMPOSES III-V	6
<b>I.2</b>	LES DISLOCATIONS DANS LES COMPOSES III-V	7
<b>I.3</b>	PSEUDOMORPHISME ET METAMORPHISME	9
<b>I.4</b>	CONTRAINTES ELASTIQUES DANS LES HETEROSTRUCTURES	12
<b>I.4.1</b>	Cas général	
<b>I.4.2</b>	Cas pratiques	
<b>I.5</b>	LA NOTION D'EPAISSEUR CRITIQUE	18
<b>I.5.1</b>	Introduction	
<b>I.5.2</b>	Les modèles d'équilibre	
<b>a)</b>	Les critères d'équilibre	
<b>b)</b>	Les modèles d'épaisseur critique	
<b>I.5.3</b>	Cas d'une couche de composition constante	
<b>I.5.4</b>	Cas d'une couche de composition graduelle linéaire	
<b>I.5.5</b>	Epaisseurs critiques apparentes	
<b>I.5.6</b>	Les modèles dynamiques d'épaisseur critique	
<b>a)</b>	Le modèle dynamique de Matthews	
<b>b)</b>	Le modèle de Houghton	
<b>c)</b>	Le modèle de Dodson et Tsao	
<b>I.6</b>	CONCLUSION	37

### CHAPITRE II

#### MODELES ET MODELISATION DE LA RELAXATION PLASTIQUE DES CONTRAINTES DANS LES HETEROSTRUCTURES

<b>II.1</b>	MULTIPLIER LES INTERFACES: POURQUOI ?	39
<b>II.2</b>	RELAXATION D'UNE COUCHE SIMPLE DE COMPOSITION CONSTANTE	41
<b>II.2.1</b>	Sans interactions entre dislocations	
<b>II.2.2</b>	Avec interactions	
<b>a)</b>	Quelques données expérimentales	

	<ul style="list-style-type: none"> <li>b) Un modèle mécanique</li> <li>c) Un modèle énergétique</li> <li>d) Les densités de dislocations émergentes</li> <li>e) Conclusion</li> </ul>	
<b>II.3</b>	<b>LES HETEROSTRUCTURES DE COMPOSITIONS GRADUELLES PAR PAS</b>	54
<b>II.3.1</b>	Aspect de la qualité cristalline	
<b>II.3.2</b>	Aspect de la relaxation <ul style="list-style-type: none"> <li>a) Le modèle de Dunstan <i>et al.</i></li> <li>b) Ce que montre l'expérience</li> </ul>	
<b>II.3.3</b>	Conclusion	
<b>II.4</b>	<b>LES HETEROSTRUCTURES DE COMPOSITIONS GRADUELLES LINEAIRES</b>	66
<b>II.4.1</b>	Les dislocations émergentes	
<b>II.4.2</b>	Relaxation plastique d'une couche de composition graduelle: Le modèle de Tersoff <ul style="list-style-type: none"> <li>a) Cas général</li> <li>b) Cas de la "rampe" simple</li> </ul>	
<b>II.4.3</b>	La "rampe" simple comme couche tampon: le métamorphisme	
<b>II.5</b>	<b>CONCLUSION</b>	72

<p><b>CHAPITRE III</b></p> <p><b>APPLICATION DE LA DIFFRACTION DES RAYONS X A LA CARACTERISATION STRUCTURALE DES COUCHES EPITAXIEES</b></p>
---

<b>III.1</b>	<b>CHOIX DES STRUCTURES</b>	74
<b>III.2</b>	<b>DETERMINATION EXPERIMENTALE DU TAUX DE RELAXATION PLASTIQUE PAR DIFFRACTION DES RAYONS X</b>	78
<b>III.2.1</b>	La diffraction des rayons X	
<b>III.2.2</b>	Principe du calcul de détermination de x et de R	
<b>III.2.3</b>	Problèmes liés à l'élargissement des pics de diffraction <ul style="list-style-type: none"> <li>a) Origines</li> <li>b) Influence d'une fente fine verticale devant le détecteur</li> </ul>	
<b>III.2.4</b>	Conclusion	

<p><b>CHAPITRE IV</b></p> <p><b>PRINCIPE ET APPLICATIONS DE LA CARTOGRAPHIE DE RESEAU RECIPROQUE</b></p>
--

<b>IV.1</b>	<b>LA TRIPLE DIFFRACTION DES RAYONS X</b>	99
<b>IV.1.1</b>	Principe de la triple diffraction <ul style="list-style-type: none"> <li>a) Dispositif expérimental</li> </ul>	

- b) Apport du "troisième axe"
- c) Enregistrement d'une cartographie

**IV.1.2** Calcul de  $x$  et de  $R$  à partir de cartographies de l'espace réciproque

- a) Cartographies en réflexion symétrique 001 (ex: 004)
- b) Cartographies en réflexion asymétrique (hhl) (ex: 224)

**IV.1.3** Exemple d'application: cartographies autour du nœud (004) d'un substrat

GaAs

- a) Mode opératoire
- b) Analyse d'un substrat GaAs
- c) La pseudo-triple diffraction

**IV.2** APPLICATION A L'ETUDE PAR CARTOGRAPHIES X DE LA RELAXATION DES CONTRAINTES DANS UNE STRUCTURE A RAMPE DE COMPOSITION LINEAIRE

114

**IV.2.1** Introduction

**IV.2.2** Analyse qualitative des cartographies X

- a) Les cartes en réflexion (004)
- b) Les cartes en réflexion (224)

**IV.2.3** Analyse quantitative des cartographies X

**IV.2.4** Conclusion

**CHAPITRE V**  
**RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION**

**V.1** RESULTATS EXPERIMENTAUX

128

**V.1.1** Caractérisation par diffraction des rayons X

- a) Les rotations cristallographiques
- b) Compositions  $x$  et taux de relaxation  $R$

**V.1.2** Caractérisation par microscopie électronique en transmission

**V.2** DISCUSSION

145

**V.2.1** Discussion sur les processus de relaxation des couches épitaxiées avec "rampe" de composition

- a) Détermination du nombre de dislocations responsables des rotations cristallographiques
- b) Processus de relaxation

**V.2.2** Relaxation à l'équilibre d'une "rampe" simple (prise en compte des interactions entre dislocations)

**V.2.3** Mécanismes de glissement ou de nucléation d'une dislocation dans l'épaisseur d'une "rampe" simple

- a) Glissement: Cas d'une dislocation de croissance
- b) Nucléation et expansion dans le cas d'une demi-boucle de dislocation
- d) Conclusion

## CONCLUSION GENERALE

173

## ANNEXES

177

- Annexe 1** Calcul des intégrales  $I_n$  ( $n = 0, 1, 2$ ) et  $J_m$  ( $m = 0, 1$ ) intervenant dans le calcul des contraintes élastiques internes d'hétérostructures épitaxiées.
- Annexe 2** Equations de passage entre  $(\Delta\omega, \Delta\theta)$  et  $(q_y, q_z)$ .
- Annexe 3** Systèmes de glissement pour une dislocation de caractère  $60^\circ$  dans une couche épitaxiée en compression.

---

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

185

---

# **INTRODUCTION**

Ce travail porte sur l'étude, la caractérisation par double et triple diffraction X, et la modélisation, de la relaxation des contraintes dans des hétérostructures semiconductrices III-V fortement désadaptées à caractère métamorphique. La notion de métamorphisme définit dans ces structures la superposition par épitaxie d'une couche active "idéalement" non contrainte et d'un substrat avec lequel elle serait, compte-tenu de sa composition, très désadaptée naturellement, c'est-à-dire fortement contrainte, s'il n'existait pas une structure tampon intermédiaire capable de compenser l'important écart de paramètre (généralement supérieur au %) et par suite capable de relâcher tout ou partie des énormes contraintes qui y seraient générées.

L'intérêt scientifique de ce travail est focalisé sur la structure tampon elle-même. L'idée force y est de comprendre, et de modéliser, le comportement spécifique d'une structure tampon idéale répondant à ce critère de métamorphisme. Les questions adressées à travers ce travail sont les suivantes:

- Quel type d'empilement multimatériau peut t'on envisager pour atteindre le but visé d'une croissance réellement métamorphique ?
- Peut-on obtenir une relaxation totale des contraintes par l'introduction contrôlée de dislocations permettant d'ajuster les paramètres de réseau ?

Nos résultats ne prétendent pas avoir répondu d'emblée à ces deux questions car le sujet est vaste et difficile mais nous pensons qu'ils y ont apporté une contribution intéressante.

Les hétérostructures auxquelles nous nous sommes intéressés sont de type AlInAs/GaInAs/GaAs. Elles constituent les matériaux de base de composants discrets pour des applications en microélectronique et en optoélectronique, transistors et photodiodes, dont les propriétés attendues sont optimales, voire exceptionnelles compte-tenu des teneurs en indium de la couche active GaInAs (30 % à 40 %). Les désadaptations correspondantes y sont de l'ordre de 2 % et plus. Les structures tampons classiquement utilisées pour "rattraper" les écarts de paramètres sont constituées soit par des "rampes" graduelles linéaires ou abruptes, simples ou en escalier, soit par des superréseaux contraints à modulation de composition, soit par une combinaison des deux. De telles structures tampons ont été proposées dans la littérature et sont mises en oeuvre dans des programmes de croissance épitaxiale. Nous avons, quant à nous, choisi d'étudier le système rampe linéaire épaisse et plateau, avec ou sans décrochement de composition. Un modèle original de relaxation des contraintes dans une "rampe" épaisse, proposé par J. Tersoff en 1993, a servi à la fois de point de départ pour la présente étude et pour guide de discussion. Ceci explique pourquoi nous ferons fréquemment référence

à ce modèle dans le déroulement de l'exposé des résultats.

Les couches étudiées ont été obtenues par épitaxie par jets moléculaires (E.J.M.), pour une très large part à l'Institut d'Electronique et de Microélectronique du Nord (I.E.M.N.) avec lequel nous collaborons sur ce sujet du métamorphisme, très en pointe actuellement, et en partie au Laboratoire Central de Recherches de Thomson-CSF (L.C.R.-Corbeville, Orsay), où le sujet a d'abord été initié et où les premières couches ont été élaborées.

L'analyse quantitative de la relaxation des contraintes dans ces structures par la technique de double diffraction des rayons X a montré les limitations de cette méthode pour mesurer les paramètres relevant susceptibles de décrire la façon dont une structure tampon relâche effectivement les contraintes. Ceci résulte simplement de la présence des dislocations de désadaptation de réseau (ddr) qui introduisent dans le signal du faisceau diffracté des composantes de rotation qui s'ajoutent aux composantes de translation dues à la stricte désadaptation. On peut séparer ces composantes par la technique de la triple diffraction des rayons X qui consiste à ajouter un analyseur sur le faisceau diffracté, ce qui permet de cartographier de fait le champ de déformation de la couche induit par les dislocations. Cette technique relativement nouvelle est à peine installée sur les diffractographes modernes. Elle commence à être appliquée aux hétérostructures fortement contraintes. C'est une originalité de ce travail de l'introduire et de la développer plus avant dans le cas des structures métamorphiques.

Au chapitre I, nous rappelons l'importance des contraintes générées par la croissance d'une hétérostructure désadaptée en paramètre de maille par rapport au substrat sur lequel elle est déposée, et aussi celle de la notion d'épaisseur critique qui en découle tout naturellement et qui est propre aux structures contraintes. Nous abordons dans le chapitre II l'importante question de la relaxation plastique des contraintes dans ces hétérocouches. Nous nous sommes notamment attachés à mettre en évidence le rôle particulièrement néfaste que jouent les interactions entre dislocations dans la limitation du degré de relaxation des couches et à montrer l'avantage de multiplier les interfaces dans les structures. Nous proposons ensuite différentes stratégies pour atteindre le caractère métamorphique de la couche superficielle. La mesure de l'état de contrainte d'une couche a utilisé la technique de diffraction des rayons X. Les chapitres III et IV y sont consacrés. Le chapitre IV en particulier est consacré à la technique de cartographie X de réseau réciproque que nous avons appliquée dans un premier temps, et à titre d'illustration de la méthode, à l'étude de la relaxation des contraintes dans une couche de composition graduelle linéaire simple. Les impondérables liés à la complexité de la technologie et au fonctionnement des bâtis d'E.J.M., en terme de "pannes", ne nous ont pas permis de disposer de l'ensemble des échantillons souhaités. L'objectif initial de la réalisation d'une

couche plateau non contrainte a de ce fait été partiellement atteint. Des stratégies proposées visant à l'obtention de cet état n'ont pas pu être aussi explorées expérimentalement. Toutefois, la caractérisation des couches à notre disposition par diffraction des rayons X et aussi par microscopie électronique en transmission ont apporté un lot d'informations très intéressantes. Ceci nous a amené à discuter en détail des problèmes et des processus de relaxation des contraintes dans les hétérostructures épitaxiées à "rampe" de composition: Quels sont les systèmes de glissement actifs dans les structures à "rampe" de composition ? Quelle est l'influence des interactions entre les dislocations sur la relaxation d'une "rampe" simple (c'est-à-dire sans marche abrupte à l'interface) ? Quelles sont les conditions pour l'apparition des dislocations dans une "rampe" simple selon le type de mécanisme par lequel elles peuvent apparaître ? Cette discussion est regroupée, avec les résultats expérimentaux, au chapitre V.

# CHAPITRE I

## GENERALITES. CONTRAINTES ELASTIQUES ET NOTION D'ÉPAISSEUR CRITIQUE

- I.1 CRISTALLOGRAPHIE DES COMPOSES III-V
- I.2 LES DISLOCATIONS DANS LES COMPOSES III-V
- I.3 PSEUDOMORPHISME ET METAMORPHISME
- I.4 CONTRAINTES ELASTIQUES DANS LES HETEROSTRUCTURES
  - I.4.1 Cas général
  - I.4.2 Cas pratiques
- I.5 LA NOTION D'ÉPAISSEUR CRITIQUE
  - I.5.1 Introduction
  - I.5.2 Les modèles d'équilibre
    - a) Les critères d'équilibre
    - b) Les modèles d'épaisseur critique
  - I.5.3 Cas d'une couche de composition constante
  - I.5.4 Cas d'une couche de composition graduelle linéaire
  - I.5.5 Épaisseurs critiques apparentes
  - I.5.6 Les modèles dynamiques d'épaisseur critique
    - a) Le modèle dynamique de Matthews
    - b) Le modèle de Houghton
    - c) Le modèle de Dodson et Tsao
- I.6 CONCLUSION

Dans ce premier chapitre nous faisons un bref rappel sur la structure cristalline des composés semiconducteurs III-V et des différents types de dislocations que l'on peut y rencontrer. L'élaboration d'hétérostructures semiconductrices par épitaxie de composés III-V conduit de façon quasi inhérente à une maille cristalline de couche épitaxiée différente de celle du matériau massif servant de support. Nous définissons l'état pseudomorphique et l'état métamorphique d'une couche dans une hétérostructure. Nous montrons que ces états sont étroitement liés aux niveaux de contraintes élastiques présentes dans la couche épitaxiée. A l'aide d'un modèle simplifié, nous calculons les contraintes élastiques maximales dans des couches de composition graduelle linéaire. Enfin nous abordons la notion d'épaisseur(s) critique(s) et déterminons l'épaisseur critique à l'équilibre d'une couche de composition graduelle linéaire par un mécanisme de glissement d'une dislocation de croissance (mécanisme de type Matthews).

## I.1 CRISTALLOGRAPHIE DES COMPOSES III-V

Les composés III-V sont constitués d'éléments de la colonne III (ex: Al, Ga, In) et de la colonne V (ex: P, As, Sb) de la classification périodique de Mendeleïev. Ils cristallisent en général dans la structure sphalérite; Les plus importants sont GaAs et InP. D'autres cristallisent dans la structure wurtzite (ex: AlN, GaN et InN). La figure I.1 ci-dessous montre une vue schématique de la structure sphalérite, qui est aussi celle de la zinc-blende.

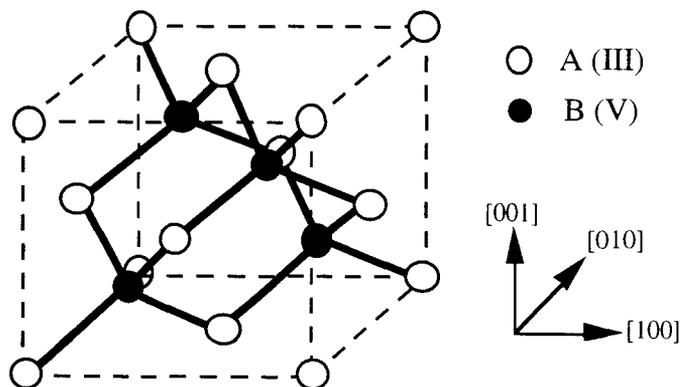


FIGURE I.1: Maille élémentaire de la structure sphalérite.

Les liaisons entre deux atomes A et B sont covalentes (dans le cas de la structure sphalérite) et sont construites sur des orbitales atomiques hybridées  $sp^3$ . Il faut noter que la différence d'affinité entre les atomes de type III et ceux de type V ajoute aux liaisons un caractère ionique comme l'indique le tableau I.1 où sont regroupées quelques grandeurs physiques essentielles des composés binaires III-V les plus courants.

**TABLEAU I.1:** Quelques caractéristiques physiques de composés semiconducteurs III-V connus et de deux éléments IV de référence.

crystal	structure	a (Å) (à 300K)	ionicité	bande interdite (eV)	t° fusion (°C)
GaAs	S	5,6533	0,310	1,43 (d)	1238
AlAs	S	5,6605	0,274	2,16 (i)	1740
InP	S	5,8688	0,421	1,35 (d)	1070
InAs	S	6,0585	0,357	0,36 (d)	943
Si	D	5,4309	0	1,12 (i)	1410
Ge	D	5,6575	0	0,66 (i)	937

S : sphalérite                      D : diamant  
a : paramètre de maille  
(d) : gap direct                      (i) : gap indirect

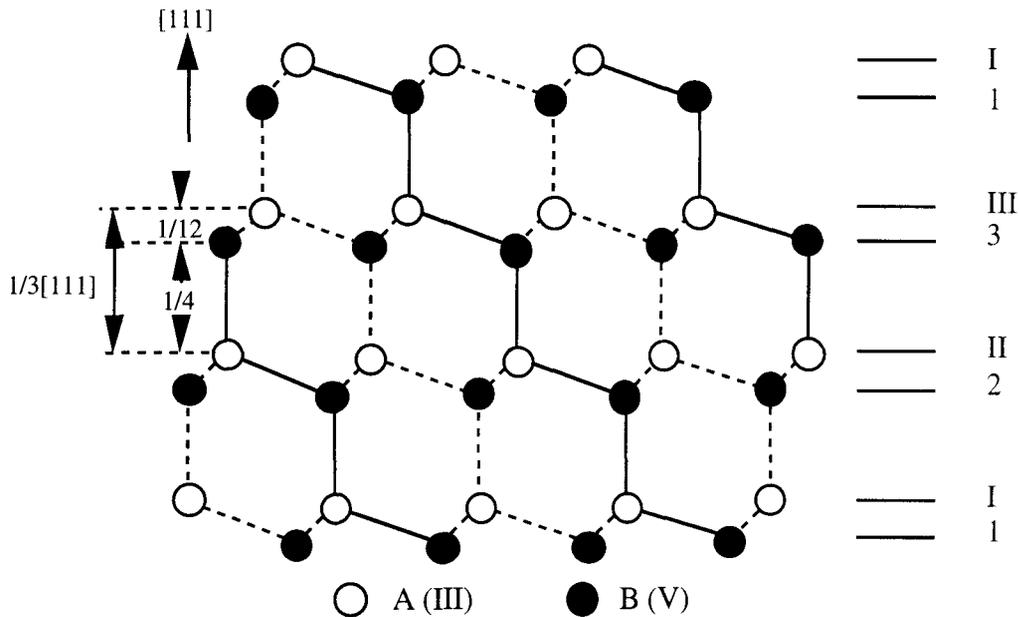
Dans les composés dits ternaires, de type  $A'_x A_{1-x} B$  (exemple:  $In_x Ga_{1-x} As$ ), les éléments A et A' se partagent les sites de type III. En règle générale, les propriétés physiques de ces alliages sont déterminées à partir d'une combinaison linéaire de celles des composés binaires qui les forment (loi de Végard), soit:  $P(A'_x A_{1-x} B) = x P(A'B) + (1-x) P(AB)$  où P représente une propriété de l'alliage, par exemple un paramètre de maille ou un module élastique.

La structure des composés III-V appartient au groupe d'espace  $F\bar{4}3m$ . Elle est non centrosymétrique. Cette absence de centre de symétrie confère aux surfaces {111} un caractère polaire comme on peut le voir sur la figure I.2.

## **I.2 LES DISLOCATIONS DANS LES COMPOSES III-V**

Deux sortes de dislocations sont observées dans les hétérostructures épitaxiées: les dislocations dites émérgentes et les dislocations de désadaptation de réseau (ddr). Les premières sont des dislocations qui traversent les couches de part en part. Ce sont pour la plupart des dislocations qui sont déjà dans le substrat (dislocations de croissance) et qui sont répliquées dans les couches lors de l'épitaxie. Les secondes apparaissent au delà d'une certaine épaisseur critique des couches. Elles sont localisées aux interfaces.

Leur rôle est de relaxer tout ou partie des contraintes générées dans les couches par l'épitaxie.



**FIGURE I.2:** Empilement des couches (111) de la structure sphalérite. Projection parallèle à la direction [110]. Par convention, la direction [111] positive joint un atome A(III) à un atome B(V) immédiatement voisin.

Dans les structures diamant et zinc-blende, les dislocations parfaites ont des vecteurs de Burgers du type  $\mathbf{b} = \frac{1}{2} \langle 110 \rangle$  correspondant à la plus petite translation de réseau et sont de caractère coin, vis ou mixte ( $60^\circ$ ). Les plans de glissement sont les plans {111} qui sont les plans les plus denses du réseau. Dans ces structures à liaisons covalentes les dislocations subissent des forces de frottement de la part du réseau très importantes, ce qui les oblige à s'aligner suivant les vallées de Peierls, c'est-à-dire dans des directions parallèles aux directions  $\langle 110 \rangle$  du réseau. Ainsi les dislocations glissiles ne peuvent être qu'à caractère vis ou  $60^\circ$ . Les dislocations coins sont sessiles et leur apparition à l'interface entre une couche épitaxiée et le substrat résulte le plus souvent de l'interaction dans ce plan entre deux dislocations perpendiculaires [1]. L'anisotropie des plans {111} confère aux dislocations de signe opposé des structures de cœur différentes. Elles sont communément notées  $\alpha$  et  $\beta$ . Si la croissance s'est effectuée dans la direction [001] alors les dislocations  $\alpha$  sont alignées suivant la direction  $[\bar{1}10]$ , tandis que les dislocations  $\beta$  sont alignées dans la direction perpendiculaire [110]. Cette différenciation de caractère ( $\alpha$ ,  $\beta$  ou vis) se traduit par une différence de mobilité des dislocations correspondantes. Cette propriété est maintenant bien établie [2]. Les caractères  $\alpha$  et  $\beta$  sont propres aux structures sphalérites et n'ont pas leur équivalent dans la structure diamant (Si, Ge).

Comme dans les structures cubiques à faces centrées, les dislocations parfaites de vecteur de Burgers  $\frac{1}{2} \langle 110 \rangle$  peuvent se dissocier dans leur plan de glissement en deux partielles de Shockley de vecteur de Burgers  $\frac{1}{6} \langle 211 \rangle$ . Contrairement aux matériaux en tension, les dislocations dans les structures en compression sont très peu dissociées. La largeur moyenne de dissociation est déterminée par un équilibre de forces entre la force répulsive des deux partielles et les forces attractives exercées par les champs de contrainte et la faute d'empilement [3]:

$$\bar{d} = \frac{\mu b_p^2 (1 - \nu / 2)}{4\pi (1 - \nu)} \frac{1}{\gamma + \tau \cdot \mathbf{b}_p^2} \quad (1)$$

où  $b_p$  est le module du vecteur de Burgers d'une dislocation partielle,  $\tau \cdot \mathbf{b}_p^2$  est la force par unité de longueur de type Peach-Koehler exercée sur la deuxième partielle et  $\gamma$  est l'énergie de faute d'empilement par unité de surface. A contrainte nulle ( $\tau = 0$ ), la largeur moyenne de dissociation d'une dislocation dans GaAs est environ **5,9 nm** ( $\gamma = 2,2 \cdot 10^{-3} \mu\text{b}$  [2] et  $\nu = 0,3$ ). A contrainte non nulle, la largeur de dissociation sera d'autant plus petite que les contraintes élastiques seront élevées.

### **I.3 PSEUDOMORPHISME ET METAMORPHISME**

La croissance d'une couche A, qui à l'état non contraint posséderait un paramètre naturel  $a_1$  (lié à sa composition  $x$  vraie par une loi de type Végard), sur un substrat B de paramètre  $a_0 \neq a_1$  (figure I.3a), est nécessairement génératrice de contraintes. Au cours de la croissance, le substrat plus épais ( $\approx 400 \mu\text{m}$ ) impose son paramètre de maille dans le plan de l'interface. Si la désadaptation n'est pas trop grande, la relaxation purement élastique des contraintes générées dans la couche conduit à une maille tétragonale (quadratique) définie par un paramètre  $a_0$  dans le plan de base et un paramètre  $a_1^\perp \neq a_1$  dans la direction de croissance (effet de Poisson). La croissance est alors dite **pseudomorphique** (figure I.3b). On appelle  $f$  le taux de désadaptation en paramètre de maille que l'on définit par:

$$f = \frac{\Delta a}{a} = \frac{a_1 - a_0}{a_0} \quad (2)$$

où  $a_1$  et  $a_0$  sont respectivement les paramètres de maille de la couche et du substrat.

Lorsque l'énergie élastique emmagasinée dans la couche A devient trop forte, une relaxation plastique apparaît, qui a pour effet de diminuer cette énergie. Cette relaxation

plastique se manifeste par la nucléation, et la localisation à l'interface, de dislocations (ddr). La figure I.4 montre de façon schématique comment une relaxation plastique peut effectivement s'opérer à l'interface à l'aide de ces dislocations, tandis que la micrographie électronique de la figure I.5 en est une illustration. L'énergie élastique emmagasinée étant proportionnelle à l'épaisseur de la couche, il existe de fait une épaisseur critique au-delà de laquelle apparaît la relaxation plastique, c'est-à-dire les premières dislocations. Cette épaisseur critique est d'autant plus petite que la désadaptation entre les paramètres de maille est grande.

Pour des densités moyennes de ddr la relaxation est partielle. Une partie de l'énergie mécanique emmagasinée reste purement élastique. Cet état intermédiaire se caractérise par une maille qui reste tétragonale, voire orthorhombique, caractérisée par un paramètre  $a_{\parallel}$  dans le plan de base différent de  $a_0$  (ou deux paramètres  $a_{\parallel}$  dans les deux directions  $\langle 110 \rangle$  du plan de base car la relaxation plastique induite par les dislocations n'est pas nécessairement la même dans les deux directions) et un paramètre  $a_{\perp} \neq a_{\parallel} \neq a_0$  dans la direction perpendiculaire (figure I.3c).

A la limite d'une densité de ddr adéquate (généralement très forte), la relaxation plastique devient totale. Ceci correspond au cas où les dislocations ont rattrapé entièrement l'écart de paramètre entre la couche et le substrat, c'est-à-dire  $a_{\parallel} = a_{\perp} = a_1$ . La maille de la couche est de nouveau cubique, c'est-à-dire non contrainte. La croissance est alors dite **métamorphique** (figure I.3d).

On comprend aisément que c'est une situation idéale pour le concepteur de composants, car les propriétés physiques de la couche, en absence de contraintes, sont alors les propriétés optimales correspondant à la composition vraie de l'alliage. Ce caractère métamorphique est malheureusement très difficile à atteindre car il est pratiquement impossible de contrôler l'introduction et l'agencement parfait d'un réseau de dislocations capable de supprimer toute contrainte résiduelle dans les couches. Plusieurs solutions pour arriver au caractère métamorphique des couches ont été proposées. Toutes reposent sur le choix d'une **structure dite tampon**: structure intermédiaire entre le substrat et la couche dont le rôle est de rattraper l'écart de paramètre et de filtrer les dislocations afin qu'elle n'atteignent pas la couche active.

Avant d'aborder l'étude de ces structures tampons, il est utile de rappeler quel est l'ordre de grandeur des contraintes élastiques induites par l'épitaxie de matériaux désadaptés, ce qui nous conduira tout naturellement au problème de la relaxation de ces contraintes et plus particulièrement à la notion d'épaisseur critique.

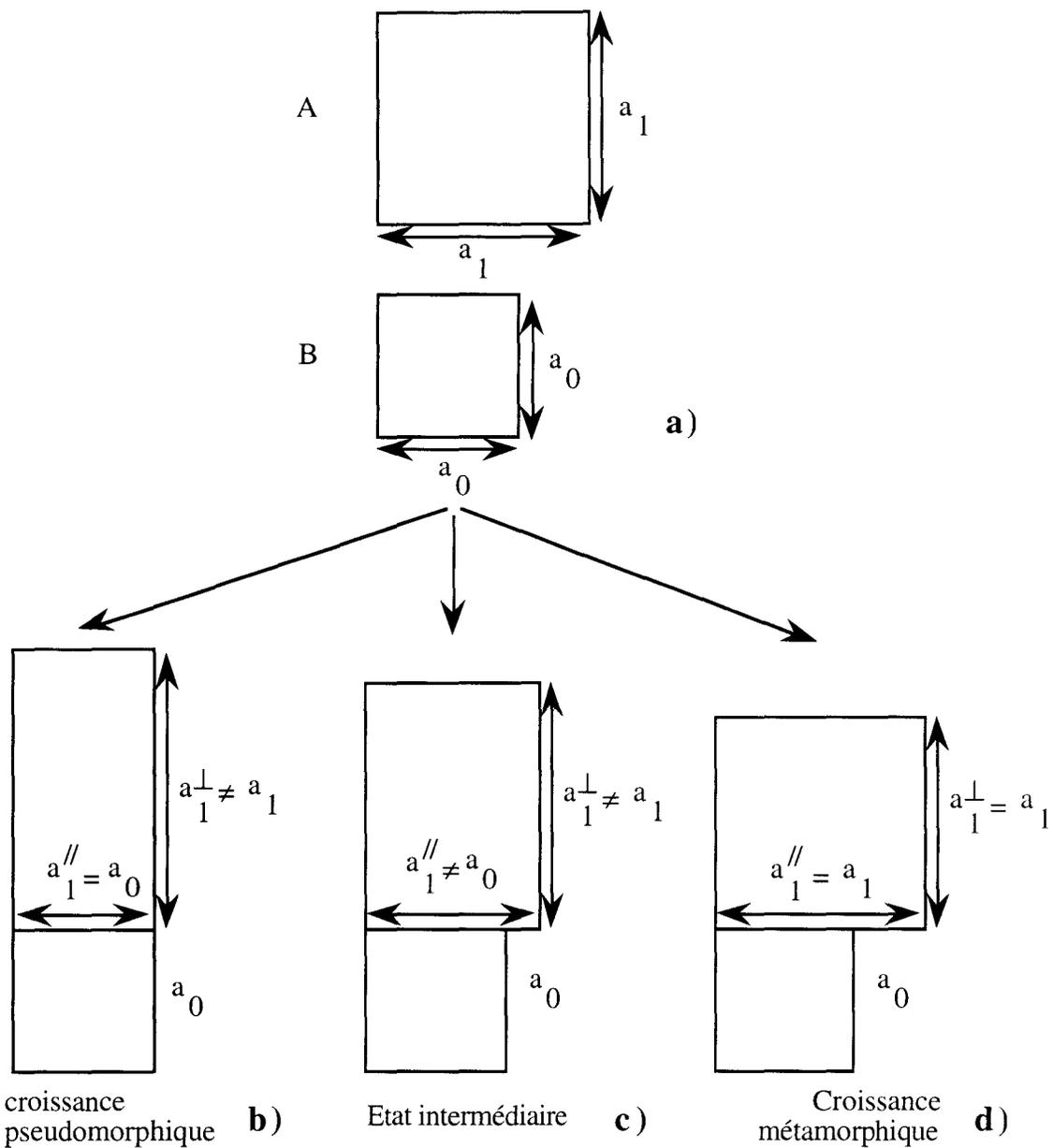


FIGURE I.3: Différentes situations correspondant à la croissance d'un matériau A sur un matériau B désadapté en paramètre de maille.

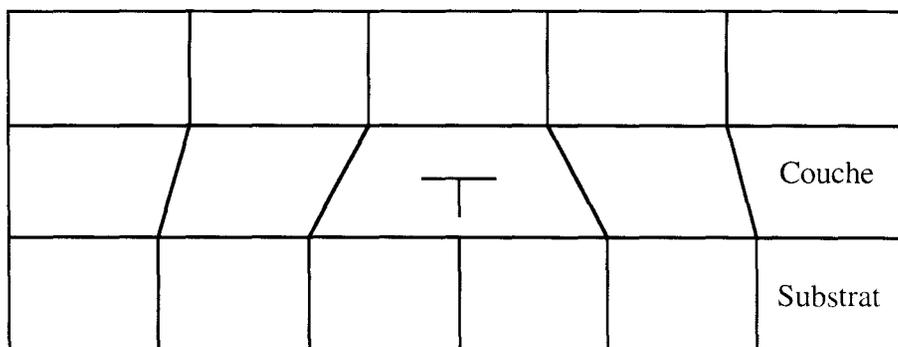
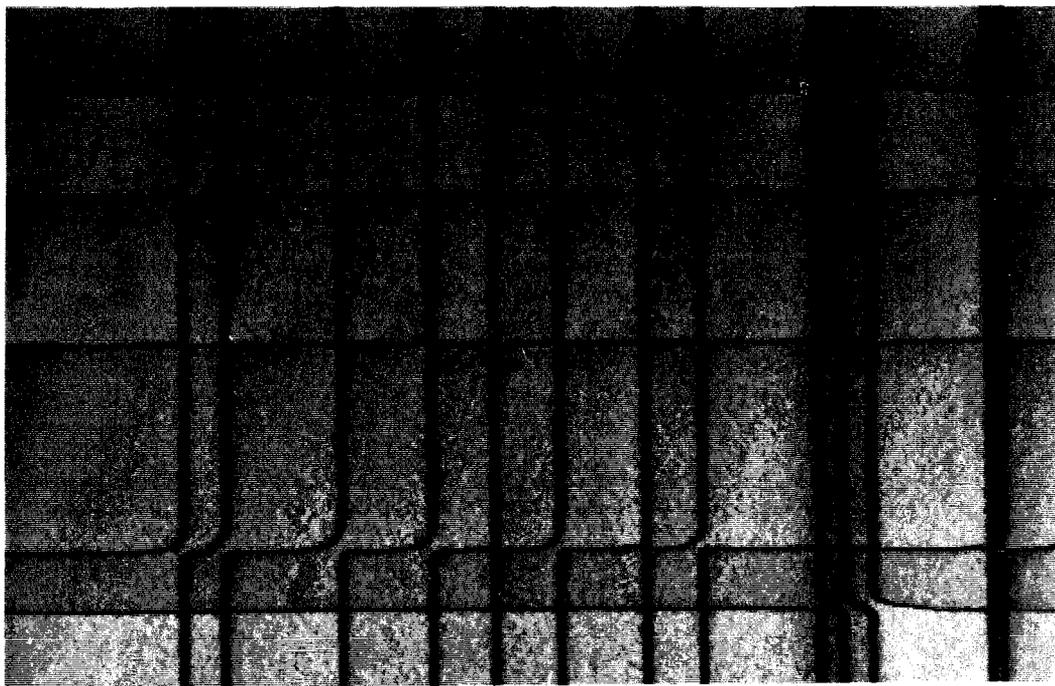


FIGURE I.4: Désadaptation partiellement compensée par une relaxation plastique sous forme d'une dislocation coin à l'interface



**FIGURE I.5:** Micrographie électronique en transmission d'une hétérostructure amincie parallèlement au plan (001). Observation en vue plane d'un arrangement orthogonal (i.e. suivant les deux directions  $\langle 110 \rangle$  du plan d'interface) de dislocations de désadaptation de réseau à l'interface entre la couche épitaxiée et le substrat (d'après C. Herbeaux [4]). Le vecteur de diffraction  $\mathbf{g}$  est dans le plan de la feuille ( $\mathbf{g} = \langle 220 \rangle$ ). Echelle:  $\times 23000$ .

## **I.4 CONTRAINTES ELASTIQUES DANS LES HETERO-STRUCTURES**

### **I.4.1 CAS GENERAL**

Nous nous inspirons ici d'un modèle récent proposé par L.B. Freund [5] pour déterminer la distribution des contraintes dans l'épaisseur, et la courbure qui en résulte, de n'importe quelle hétérostructure semiconductrice de composition variable. La modélisation des contraintes liées à la croissance d'une structure épitaxiée a été traitée de nombreuses fois [6-8]. L'avantage du modèle que nous allons exposer est qu'il permet de calculer à partir d'une seule équation l'état de contrainte de toute hétérostructure.

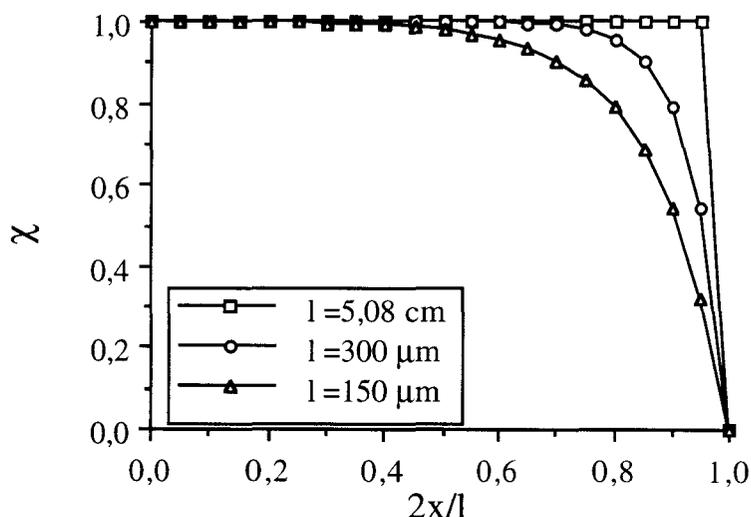
Dans ce modèle, le système physique considéré est une structure mince de couches contraintes. L'épaisseur totale  $h$  est beaucoup plus petite que les dimensions latérales et les détails de ce qui se passe près des bords latéraux sont ignorés. Comme le montre la figure I.6, cette approximation est totalement justifiée. Par conséquent, la structure est invariante par rapport à une translation suivant les directions  $x$  et  $y$ , le système d'axes étant celui défini sur la figure I.7. Les faces inférieure et supérieure et les interfaces de l'hétérostructure sont libres de toute traction, la contrainte normale suivant  $z$

s'annule partout dans la lame. Les contraintes de cisaillement sont aussi identiquement nulles. Les modules élastiques  $E$  et  $\nu$  (module d'Young et de Poisson respectivement) étant égaux dans les deux directions orthogonales  $[110]$  et  $[\bar{1}10]$  du plan  $[001]$  (voir le tableau I.2), les contraintes normales suivant ces deux directions sont égales. Le tenseur des contraintes se réduit donc à:

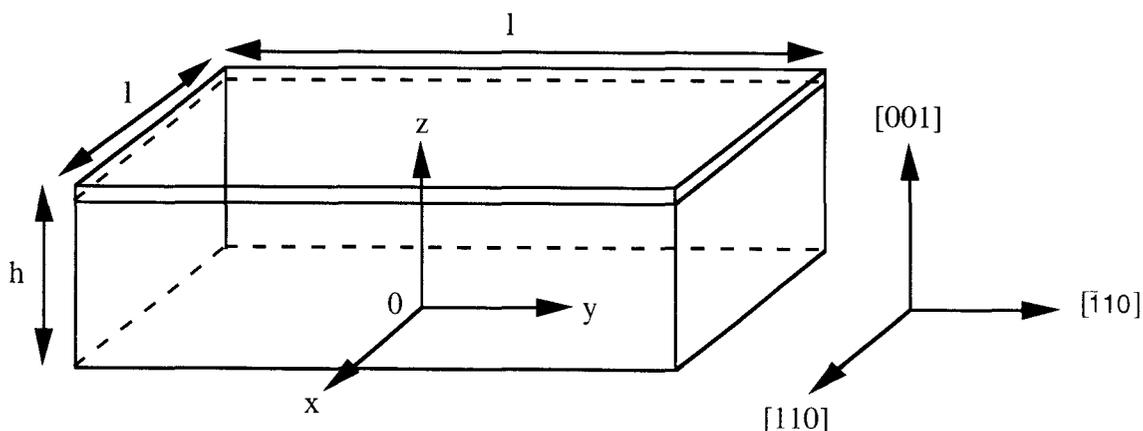
$$\sigma_{xx}(z) = \sigma_{yy}(z) = \sigma(z) \quad (3a)$$

$$\sigma_{zz}(z) = \sigma_{xz}(z) = \sigma_{yz}(z) = \sigma_{xy}(z) = 0 \quad (3b)$$

On dit que la structure est soumise à un régime de **contraintes planes et biaxiales**.



**FIGURE I.6:** Variation latérale de la contrainte dans une couche épitaxiée, d'après Sühr [9]. La fonction  $\chi$  caractérise la distribution latérale des contraintes:  $\sigma(x,z) = \sigma \chi(x) \exp(-\pi z/l)$  où  $x, y$  sont définis sur la figure I.7.  $l$  est la largeur du substrat et  $\sigma$  est la contrainte maximale exercée dans la couche parallèlement au plan d'interface. L'épaisseur de la couche étant faible devant  $l$ , le terme exponentiel vaut 1.



**FIGURE I.7:** Axes de coordonnées du système par rapport aux directions cristallographiques du cristal. La face inférieure de la structure ( $z = 0$ ) est le plan de référence.

**TABLEAU I.2:** Module d'Young E et coefficient de Poisson v calculés pour les directions du repère choisi (figure I.7) pour quelques composés III-V, d'après Brantley [10] (E exprimé en  $10^{10}$  Pa).

	directions <110>			direction [001]		
	E	v	$\frac{E}{1-v}$	E	v	$\frac{E}{1-v}$
GaAs	12,13	0,021	12,39	8,53	0,312	12,39
InAs	7,91	0,004	7,94	5,13	0,354	7,94
Si	16,89	0,064	18,05	13,02	0,279	18,05
Ge	13,80	0,028	14,20	10,37	0,270	14,20

Dans le cadre de l'élasticité linéaire et après avoir vérifié les critères de compatibilité, la contrainte  $\sigma(z)$  peut s'écrire de la manière suivante:

$$\sigma(z) = c(z) [ \kappa (z^* - z) - \Delta\alpha(z)\Delta T(z) + \epsilon_0(z) ] \quad (4)$$

où  $c(z) = E(z)/(1-v(z))$  est le module d'Young réduit. Le premier terme de l'équation décrit la courbure de la structure sous l'effet des contraintes liées à l'épitaxie. Le plan  $z = z^*$  est appelé plan neutre et possède un rayon de courbure  $R = 1/\kappa$ . Le second terme correspond aux contraintes d'origine thermique ( $\alpha$  désigne un coefficient de dilatation thermique). Le troisième terme traduit les contraintes induites par l'épitaxie de deux matériaux de paramètres différents, soit  $\epsilon_0(z) = (a(0) - a(z)) / a(z)$ .

Les conditions initiales sont les suivantes: la température initiale à la base du film ( $z = 0$ ) est prise comme température de référence, soit  $\Delta T(0) = 0$ ; L'état du matériau, à la côte  $z = 0$ , à la température de référence, est pris comme référence pour exprimer les niveaux de déformation élastique à travers la structure ainsi que les niveaux des différences de coefficients de dilatation thermique, soit  $\epsilon_0(0) = \Delta\alpha(0) = 0$ .

La fonction  $\sigma(z)$  est assujettie aux conditions imposées par l'équilibre global. Si le film est coupé par tout plan perpendiculaire à la surface de la couche, alors l'absence de toute charge appliquée extérieurement implique que la force totale et le moment total causés par la traction agissant sur cette surface de coupure doivent être tous les deux nuls, soit:

$$\int_0^h \sigma(z) dz = 0 \quad \text{et} \quad \int_0^h z\sigma(z) dz = 0 \quad (5)$$

Ces conditions sont invariantes par un changement de l'origine  $z = 0$ .

Les valeurs des constantes  $\kappa$  et  $z^*$  sont déterminées par les deux équations précédentes pour toute configuration particulière. Pour des modules élastiques donnés, une distribution de températures  $\Delta T(z)$  et une désadaptation de paramètres données, ces

constantes sont exprimées en termes d'intégrales  $I_0, I_1, I_2$  et  $J_0, J_1$ :

$$I_n = \int_0^h z^n c(z) dz, \quad n = 0, 1, 2 \quad (6a)$$

$$J_m = \int_0^h z^m c(z) [\Delta\alpha(z)\Delta T(z) - \varepsilon_0(z)] dz, \quad m = 0, 1 \quad (6b)$$

On en déduit aisément

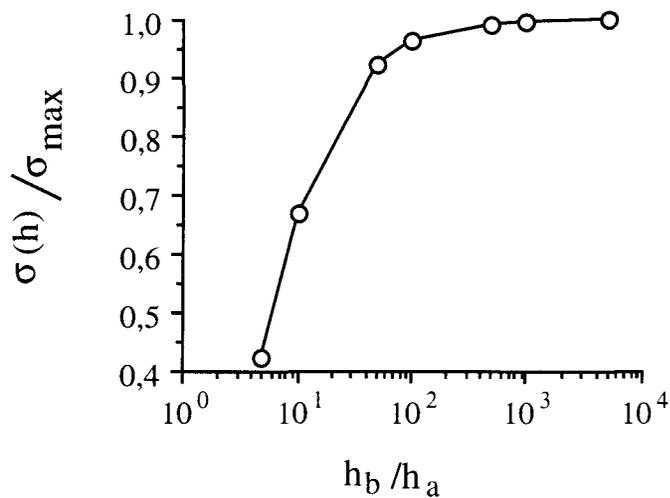
$$z^* = \frac{I_1 J_1 - I_2 J_0}{I_0 J_1 - I_1 J_0} \quad \text{et} \quad \kappa = \frac{I_0 J_1 - I_1 J_0}{I_1^2 - I_2 I_0} \quad (7)$$

puis  $\sigma(z)$  par l'équation (4).

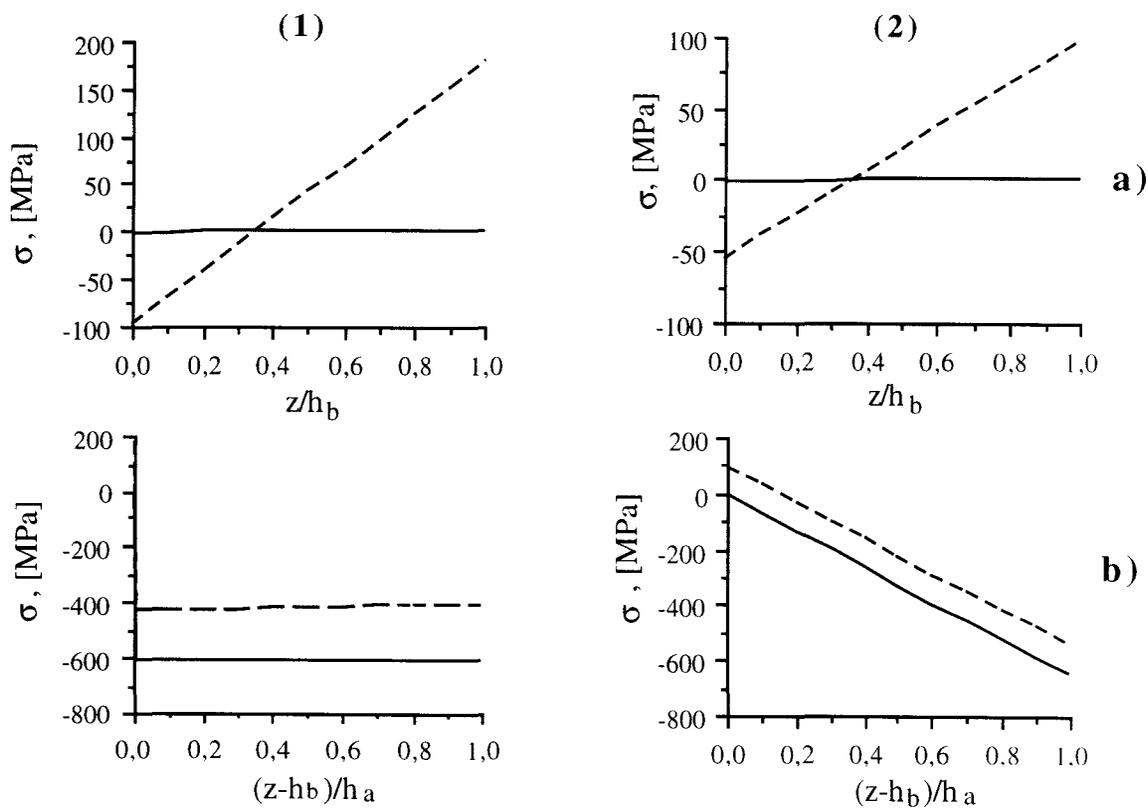
#### I.4.2 CAS PRATIQUES

Pour les systèmes très désadaptés tels que l'association  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  le seuil de plasticité est très vite atteint lors de la croissance, si bien que l'épaisseur de la couche contrainte élastiquement ne dépasse pas quelques centaines de nanomètres. Par exemple l'épaisseur critique d'une couche d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  de composition constante  $x = 0,07$  déterminée par diffraction des rayons X est de l'ordre de 200 nm [11], et l'épaisseur de la partie déformée de façon purement élastique d'une couche d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  de composition graduelle linéaire égale à 30% d' $\text{In}/\mu\text{m}$  est environ 250 nm (voir chapitre V). Par conséquent et compte tenu de l'épaisseur relativement importante du substrat (environ 300 $\mu\text{m}$ ), le "poids" de la couche qui intervient sur le degré de courbure de la structure est généralement négligeable. Nous en donnons quelques illustrations. Les équations (i.e. les différentes intégrales  $I_n$  et  $J_m$ ) servant aux applications numériques sont données en annexe 1.

L'influence du rapport des épaisseurs de la couche  $h_a$  et du substrat  $h_b$  sur les profils de contrainte est représentée sur les figures I.8 et I.9 pour les deux types de structures décrites ci-dessus. Ces figures montrent qu'au-delà d'un rapport  $10^3$  entre les épaisseurs du substrat et de la couche épitaxiée, l'épaisseur du premier a peu d'influence sur les niveaux de contrainte du second.



**FIGURE I.8:** Influence de l'épaisseur du substrat sur la contrainte en surface d'une hétérostructure composée d'une couche d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x=0,07$ ,  $h_a=200\text{nm}$ ) sur un substrat GaAs (épaisseur  $h_b$  variable).  
 $\sigma_{\max} = c(x)\epsilon(x) = -608 \text{ MPa}$ .



**FIGURE I.9:** Profils de contraintes dans l'épaisseur d'un substrat GaAs (1.a et 2.a) et dans celle d'une couche d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  (1.b et 2.b). Celle-ci est de composition constante  $x=7\%$  d'In (1.b) ou graduelle linéaire  $\Delta x/\Delta h=30\%/ \mu\text{m}$  (2.b). Le rapport des épaisseurs du substrat  $h_b$  et de la couche  $h_a$  est faible pour les courbes en pointillé (i.e. =10), alors que pour les courbes en trait plein il est supérieur à  $10^3$  (il vaut exactement 1500 et 1200 pour la couche de composition constante (1) et graduelle (2) respectivement).

En absence de contraintes d'origine thermique la distribution de contraintes dans les hétérostructures est alors décrite avec une bonne précision par:

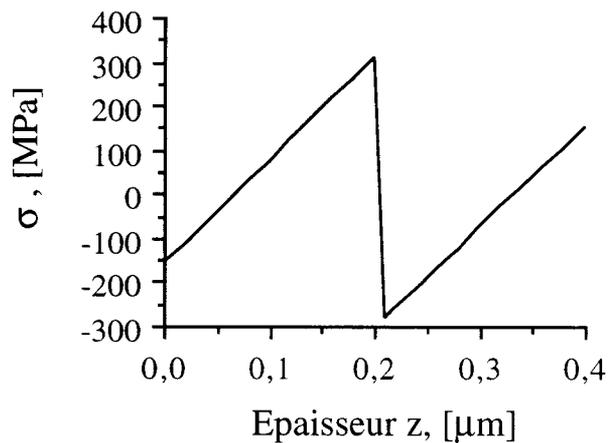
$\sigma(z) = 0$ , dans le substrat	(8a)
$\sigma(z) = c(z)\varepsilon(z)$ , dans la couche	(8b)

avec

$$\varepsilon(z) = \varepsilon_{//} = \frac{a_{//}(z) - a(z)}{a(z)} \quad (9)$$

dans laquelle  $a_{//}(z)$  est le paramètre de maille de la couche parallèlement aux interfaces et  $a(z)$  est le paramètre de maille de la couche correspondant à sa composition vraie.

Si la plupart du temps la répartition des contraintes dans un échantillon est très bien décrite par ces équations, il n'en est pas toujours de même, par exemple en microscopie électronique en transmission où l'échantillon aminci est tel que l'épaisseur du substrat devient comparable à celle de la couche. Dans le cas extrême d'une couche épitaxiée de même épaisseur que le substrat sur lequel elle est déposée, la figure I.10 montre que la contrainte passe alternativement de la compression à la tension deux fois tout au long de la structure. Les contraintes se répartissent ici équitablement entre la couche et le substrat. Ceci reste cependant une façon exceptionnelle de relaxer les contraintes.



**FIGURE I.10:** Profil de contrainte dans l'épaisseur totale d'une hétérostructure composée d'une couche d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x=0,07$  et  $h_a=200\text{nm}$ ) sur  $\text{GaAs}$  ( $h_b=200\text{nm}$ ).

## I.5 LA NOTION D'ÉPAISSEUR CRITIQUE

### I.5.1 INTRODUCTION

Comme nous venons de le voir, la croissance d'un matériau désadapté en paramètre de maille par rapport au substrat sur lequel il est déposé engendre des contraintes élastiques importantes. Si le substrat est très épais, c'est la couche épitaxiée qui accommode ces contraintes. Cette accommodation peut se produire de différentes façons suivant l'importance de la désadaptation et l'épaisseur de la couche. Dans le cas des matériaux dont le taux de désadaptation est inférieur à 1-2% environ, une accommodation purement élastique des contraintes est observée pour des épaisseurs faibles de matériaux épitaxiés. Cet état est caractérisé par une déformation tétragonale des mailles cristallines et une cohérence des paramètres de réseau parallèlement à l'interface (figure I.3b). L'énergie de déformation élastique ainsi emmagasinée est considérable et augmente de surcroît avec l'épaisseur de la couche. Lorsque cette énergie excède un certain seuil, la structure accommode les contraintes non seulement de façon élastique mais aussi de façon plastique. L'état de déformation de la couche est caractérisé par des mailles qui restent encore déformées tétragonalement, et par une rupture de cohérence des paramètres de maille parallèlement à l'interface, due à l'apparition à cet endroit de dislocations. La déformation initiale de la couche  $\epsilon_0$  est alors égale à la somme d'une déformation élastique résiduelle  $\epsilon$  et d'une partie de la déformation initiale relaxée plastiquement  $\delta$ , soit:

$$\epsilon_0 = \epsilon + \delta \quad (10)$$

avec

$$\delta = \frac{b_e}{p}, \text{ pour une couche de composition constante } (\epsilon_0 = \text{const.}) \quad (11a)$$

$$\delta(z) = b_e \int_0^z \rho(z) dz, \text{ pour une couche de composition graduelle } (\epsilon_0 = \epsilon_0(z)) \quad (11b)$$

où  $b_e$  est la composante du vecteur de Burgers qui est efficace pour relaxer les contraintes,  $p$  est la séparation moyenne entre deux dislocations du réseau à l'interface entre une couche de composition constante et son substrat et  $\rho(z)$  désigne une densité de dislocations contenues dans la couche de composition graduelle, à la côte  $z$ .

*On appelle par convention épaisseur critique l'épaisseur de la couche au-delà de laquelle apparaît à l'interface des dislocations de désadaptation de réseau.*

Pour les matériaux dont le taux de désadaptation est supérieur à 1-2% environ, l'introduction de dislocations à l'interface n'est pas le mécanisme le plus énergétiquement favorable pour relâcher les contraintes. Pour ces matériaux fortement désadaptés, la

croissance passe très rapidement d'une croissance en deux dimensions (surface de la couche plane) à une croissance en trois dimensions (surface rugueuse due à la formation d'îlots), voir par exemple [12]. Les plans atomiques s'écartent aux sommets des îlots, ce qui permet à la couche de retrouver son paramètre naturel à ces endroits [13]. En cours de croissance, la taille des îlots augmente et ceux-ci finissent par se rejoindre, engendrant des zones intermédiaires de fortes concentrations de contraintes qui peuvent être génératrices de dislocations [14].

Prédire les valeurs des épaisseurs critiques est bien entendu crucial pour le fabricant de composants compte tenu des effets néfastes que produisent les dislocations sur les propriétés électroniques. Nous allons ici présenter quelques modèles de calculs d'épaisseurs critiques qui sont les plus fréquemment cités.

## 1.5.2 LES MODELES D'EQUILIBRE

### a) Les critères d'équilibre [15]

On suppose que la structure est dans un état d'équilibre thermodynamique. Cet état minimise l'énergie libre ( $F = E - TS$ ). Si on néglige la contribution entropique, l'état de la structure à l'équilibre est donc défini par:

$$E = \min \quad (12)$$

L'équation (12) gouverne la relaxation des contraintes à l'équilibre. L'énergie  $E$  est essentiellement l'énergie interne de la couche épitaxiée et se compose de la somme de l'énergie élastique  $E_\epsilon$ , emmagasinée dans la couche et qui résulte de la désadaptation de paramètres de maille, et de l'énergie élastique  $E_\delta$  qui est l'énergie du réseau de dislocations situées à l'interface, soit:

$$E = E_\delta + E_\epsilon = E(h, \epsilon_0, \epsilon \text{ ou } \delta) \quad (13)$$

avec  $\epsilon_0 = \epsilon + \delta$ . La condition d'équilibre (12) revient à résoudre, à  $\epsilon_0$  et  $h$  constants, l'équation suivante:

$$0 = \frac{\partial E}{\partial \epsilon} = \frac{\partial E}{\partial \delta} \text{ compte-tenu de (10), pour } \epsilon = \epsilon_{\text{éq}} \text{ et } \delta = \delta_{\text{éq}} \quad (14a)$$

On peut interpréter la condition  $\partial E / \partial \delta = 0$  d'une autre façon: si  $E$  ne varie pas avec  $\delta$ , cela veut dire que le travail  $W$  effectué pour créer une dislocation de plus à l'interface s'annule, soit:

$$W = \int F ds = 0, \text{ pour } \epsilon = \epsilon_{\text{éq}} \text{ et } \delta = \delta_{\text{éq}} \quad (14b)$$

où  $F$  est une force extérieure dont on a besoin pour générer la dislocation et  $ds$  le déplacement de sa surface d'application, ou encore  $F$  est la force totale agissant sur une dislocation de croissance (dislocation émergente) à partir de laquelle une dislocation est créée à l'interface et  $ds$  est le déplacement infinitésimal de la ligne de dislocation émergente. Si  $F$  ne dépend pas du déplacement  $ds$  alors l'équation d'équilibre (14b) se réduit à [16]:

$$0 = F = F_{\varepsilon} - F_{\delta}, \text{ pour } \varepsilon = \varepsilon_{\text{éq}} \text{ et } \delta = \delta_{\text{éq}} \quad (14c)$$

où  $F_{\varepsilon}$  est la force de Peach-Koehler (induite par la déformation élastique  $\varepsilon$ ) qui agit sur la dislocation émergente et  $F_{\delta}$  est la force de rappel due à la tension de ligne de la dislocation d'interface.

Les équations (14) sont trois critères d'équilibre équivalents, ce que faisait remarquer Hu [17] en disant qu'à la fois l'équilibre de forces et la minimisation de l'énergie libre sont des lois fondamentales de la physique gouvernant un état en équilibre; et que lorsque cela est traité correctement, les formulations de l'équilibre de forces et de la minimisation de l'énergie doivent donner des résultats identiques.

*L'épaisseur critique  $h_c$  à l'équilibre, pour une déformation  $\varepsilon_0$  donnée (ou pour un taux de désadaptation  $f$  donné), est déterminée par la condition suivante:*

$$\Psi ( h_c, \varepsilon_0; \delta = 0 ) = 0 \quad (15)$$

où  $\Psi$  est l'une des trois fonctions (14).

### **b) Les modèles d'épaisseur critique**

Frank et van der Merwe [18] les premiers, puis van der Merwe [19], ont employé un critère de minimisation de l'énergie totale  $E$ , dans laquelle des potentiels du type Frenkel-Kontorowa [20] ont été utilisés pour déterminer l'énergie  $E_{\delta}$  des dislocations à l'interface. Avec ce type de potentiel d'interaction, il n'y a malheureusement pas de solution exacte couvrant tout le domaine des épaisseurs des couches épitaxiées. Plusieurs modèles traitent de cas spéciaux comme les couches ultra-fines (quelques monocouches) ou les couches semi-infinies. Pour les épaisseurs intermédiaires, une solution approchée et simple peut être déduite du modèle appelé "modèle d'extrapolation" [19, 21]. Toutefois une solution exacte a été trouvée plus récemment pour les cristaux de mêmes modules élastiques ou de modules différents [22]. Bien qu'exactes, les auteurs reconnaissent la grande complexité des expressions ainsi formulées [15].

Une deuxième approche pour déterminer  $E_{\delta}$  est celle des dislocations de Volterra. C'est en considérant les dislocations comme des dislocations de Volterra que Matthews

[16] a développé son modèle d'épaisseur critique à l'équilibre. L'avantage de cette approche est la simplicité des expressions qui en résultent et son domaine de validité qui va des couches d'épaisseurs intermédiaires à épaisses. Par contre l'approximation de Volterra n'est plus valable pour des épaisseurs de l'ordre de quelques monocouches. Comme on peut le constater, ces deux types de modélisations, Frenkel-Kontorowa et Volterra, apparaissent plus complémentaires qu'exclusifs [23].

Dans la mesure où nous nous intéressons aux hétérostructures épitaxiées d'épaisseurs intermédiaires à épaisses, l'expression de la tension de ligne des dislocations suivant l'approximation de Volterra sera toujours employée par la suite. L'objet de ce qui suit sera de donner des expressions d'épaisseurs critiques dans des cas simples.

### I.5.3 CAS D'UNE COUCHE DE COMPOSITION CONSTANTE ( $\epsilon_0 = \text{const.}$ )

Puisqu'il a été démontré que l'application d'un critère énergétique (14a) et (14b) ou d'un critère mécanique (14c) revenait au même, nous explicitons uniquement ce dernier et en particulier le modèle de Matthews [16] pour déterminer l'épaisseur critique à l'équilibre d'une couche épitaxiée de composition constante.

Matthews explique l'apparition de dislocations à l'interface d'une telle structure à partir d'un mécanisme particulier qui est la courbure à l'interface, sous l'effet d'une force de type Peach-Koehler, d'une dislocation inhérente au substrat et répliquée dans la couche (figure I.11 ci-dessous).

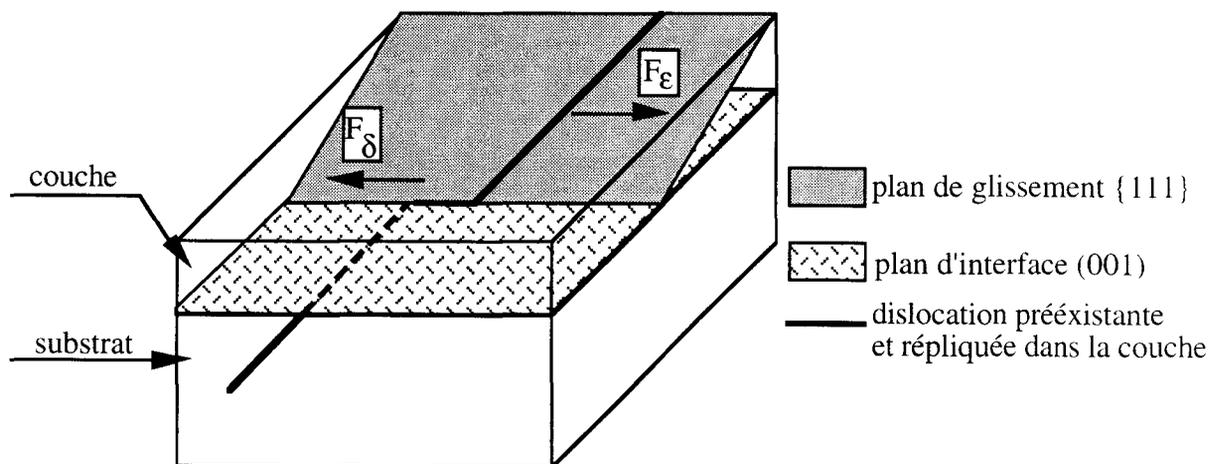


FIGURE I.11: Illustration du mécanisme de Matthews par lequel est créée une ligne de dislocation de désadaptation de réseau à l'interface à partir d'une dislocation préexistante.  $F_E$  et  $F_\delta$  sont respectivement la force de Peach-Koehler et la tension de ligne qui agissent sur la dislocation.

L'épaisseur de la couche, au-delà de laquelle une dislocation émergente peut se déplacer en laissant derrière elle une longueur de dislocation à l'interface peut être calculée à partir

des forces qui agissent sur la dislocation.

La force  $F_e$  qui tend à déplacer la dislocation émergente vers la droite s'écrit:

$$F_e = C h \epsilon_0 \quad (16a)$$

avec

$$C = \frac{E}{1 - \nu} b \cos \lambda = \frac{2 \mu (1 + \nu) b \cos \lambda}{1 - \nu} \quad (16b)$$

si la normale à l'interface est dans la direction [001]. C'est le cas usuel en croissance épitaxiale des structures cubiques.  $E$ ,  $\mu$ ,  $\nu$ ,  $h$  et  $\epsilon_0$  sont respectivement les modules d'Young et de cisaillement, le coefficient de Poisson, l'épaisseur et la déformation initiale de la couche épitaxiée.  $\lambda$  est l'angle entre le vecteur de Burgers et la direction du plan d'interface qui est perpendiculaire à l'intersection du plan de glissement avec l'interface ( $b_e = b \cos \lambda$ ).

La force  $F_e$  est opposée à la tension de ligne  $F_\delta$  de la dislocation formée à l'interface:

$$F_\delta = D \left[ \ln \left( \frac{h}{b} \right) + 1 \right] \quad (17a)$$

avec

$$D = \frac{\mu_e b^2 (1 - \nu \cos^2 \theta)}{4 \pi (1 - \nu)} \quad (17b)$$

où  $\theta$  est l'angle que fait la ligne de dislocation avec son vecteur de Burgers et  $\mu_e$  le module de cisaillement effectif à l'interface.  $\mu_e$  est relié aux modules  $\mu$  et  $\mu_s$ , qui sont les modules de cisaillement respectifs de la couche et du substrat, par:

$$\mu_e = \frac{2\mu\mu_s}{\mu + \mu_s} \quad (18)$$

L'introduction d'un module de cisaillement effectif (18) permet déjà d'entrevoir les effets des constantes élastiques sur la valeur de l'épaisseur critique. Ces effets ont été traités en détail par Zhang [24]. Le terme entre crochets dans l'expression de la tension de ligne (17a) doit tenir compte de la relaxation des contraintes aux extrémités d'un cylindre imaginaire contenant la dislocation (exceptées les boucles fermées de dislocations) [25], de la force image et de l'énergie de cœur de la dislocation. Si le terme logarithmique rend assez bien compte des deux premiers facteurs, le terme +1 quant à lui est une approximation très moyenne de l'énergie de cœur [17].

Si la dislocation est dissociée, la faute d'empilement d'énergie  $\gamma_0$  (par unité de surface) agit comme une barrière à la progression de la dislocation émergente. La force due à la faute d'empilement s'écrit:

$$F_{\gamma} = \frac{\gamma_0 h}{\cos \phi} \quad (19)$$

où  $\phi$  est l'angle entre la surface et la normale au plan de glissement.

Si la dislocation crée une marche en surface au cours de son déplacement, alors la tension  $\sigma_0$  (par unité de longueur) associée à la surface ainsi créée agit comme une force de rappel. Bien sûr, une marche en surface peut tout aussi bien être annihilée par le passage de la dislocation. Cette fois-ci, la tension associée à la suppression d'une marche agit comme une force motrice. La force due à la création ou à la suppression d'une marche en surface s'écrit:

$$F_s = \pm \sigma_0 b \sin \theta \quad (20)$$

L'épaisseur critique à l'équilibre  $h_c^{\text{éq}}$  est déterminée en égalisant les forces motrices et les forces de rappel, soit:

$$h_c^{\text{éq}} = \frac{D[\ln(h_c^{\text{éq}}/b) + 1] \pm \sigma_0 b \sin \theta}{C \epsilon_0 - \gamma_0 / \cos \phi} \quad (21a)$$

Si on considère que les modules élastiques de la couche et du substrat sont égaux et si on néglige l'effet d'une création ou d'une suppression d'une marche en surface, alors l'expression de  $h_c^{\text{éq}}$  se simplifie et devient pour la génération d'une dislocation parfaite de caractère  $60^\circ$ :

$$h_c^{\text{éq}} \approx \frac{D[\ln(h_c^{\text{éq}}/b) + 1]}{C \epsilon_0} = \frac{b(1 - \nu/4)}{4\pi(1 + \nu)\epsilon_0} \left[ \ln\left(\frac{h_c^{\text{éq}}}{b}\right) + 1 \right] \quad (21b)$$

L'épaisseur critique d'apparition de dislocations de désadaptation de réseau dans des couches minces d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) confinées dans une matrice GaAs (i.e. puits quantiques) a été déterminée par photoluminescence par Andersson *et al.* [26]. Ces auteurs ont montré un bon accord des valeurs expérimentales avec le modèle théorique de Matthews sur tout le domaine de composition étudié.

L'état d'équilibre tel qu'il a été défini suppose au préalable que les dislocations peuvent être créées librement. Or, nous savons maintenant qu'à la fois leur nucléation et leur propagation sont contrôlées par des barrières d'énergie. Néanmoins, Houghthon *et al.* [27] ont montré expérimentalement un excellent accord entre leurs données et le modèle de Matthews (21b). Leur expérience consistait à déposer sur un substrat de silicium, par épitaxie par jets moléculaires, une série de couches  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  de compositions et

d'épaisseurs continuellement variables, puis à les recuire. Ils ont ainsi pu observer une transition nette du comportement plastique des couches pour des valeurs critiques de compositions et d'épaisseurs. Dans les parties épaisses et au-delà de ces valeurs critiques, un accroissement important de la densité de défauts a été observé, tandis que dans les zones minces c'est-à-dire en dessous de la courbe de stabilité thermodynamique, aucune dislocation n'a été trouvée. Selon ces auteurs, le modèle de Matthew (21b) décrit remarquablement bien cette courbe de stabilité.

#### **I.5.4 CAS D'UNE COUCHE DE COMPOSITION GRADUELLE LINEAIRE ( $\varepsilon_0(z) = \varepsilon_0(0) + \varepsilon'z$ )**

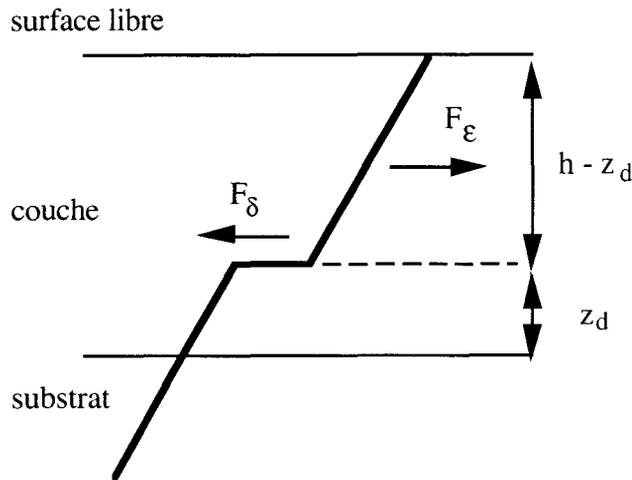
L'épaisseur critique au-delà de laquelle l'introduction de dislocations est énergétiquement favorable a été déterminée pour la première fois par Ball et Laird [28] dans le cas de structures de composition graduelle linéaire. Sur la base du même critère de minimisation de l'énergie élastique, Tersoff [29] a plus récemment repris le calcul et en donne un résultat beaucoup plus simple à utiliser. Nous avons choisi, quant à nous, d'étendre le modèle de Matthews à ce nouveau type de structure. Cette approche mécanique est à notre connaissance la première à être adoptée pour un calcul d'épaisseur critique d'une couche de composition graduelle linéaire.

Contrairement aux couches de compositions constantes où l'interface est l'unique endroit où se localisent les dislocations, ces dernières peuvent se répartir dans l'épaisseur des couches de composition graduelle [29, 30]. En effet, comme chaque "monocouche" est désadaptée par rapport à la "monocouche" sous-jacente, elles sont par conséquent autant de plans d'interface virtuels où les ddr peuvent se localiser. La force de Peach-Koehler qui tend à déplacer la partie mobile de la dislocation émergente s'écrit:

$$F_{\varepsilon} = \int_{z_d}^h C \varepsilon_0(z) dz \quad \text{et} \quad \varepsilon_0(z) = \varepsilon_0(0) + \varepsilon'z \quad (22)$$

$\varepsilon_0(z)$  est le profil dans l'épaisseur de la couche de la déformation élastique initiale,  $\varepsilon_0(0)$  est la déformation initiale à l'interface,  $\varepsilon'$  est le gradient de déformation et  $z_d$  est la hauteur au-dessus de l'interface où sera formée une dislocation de désadaptation de réseau grâce au déplacement de la partie  $h - z_d$  de la dislocation émergente (voir la figure I.12). La tension de ligne de la dislocation ainsi générée  $h - z_d$  en dessous de la surface s'écrit:

$$F_{\delta} = D \left[ \ln \left( \frac{h - z_d}{b} \right) + 1 \right] \quad (23)$$



**FIGURE I.12:** Illustration pour une structure de composition graduelle du mécanisme de Matthews par lequel est créée à la côte  $z_d$  une dislocation de désadaptation de réseau.

La condition d'équilibre est obtenue en annulant la force totale  $F$  qui agit sur la dislocation émergente (condition (14c)). L'épaisseur critique à l'équilibre est déduite de l'équation (15), c'est-à-dire de la condition supplémentaire qu'aucune déformation élastique n'a été accommodée plastiquement ( $\delta = 0$ ). Si on regarde plus en détail le mécanisme illustré par la figure I.12, on se rend compte que pour former une ddr à la côte  $z_d$  il faut non seulement que la partie  $h - z_d$  de la dislocation émergente se déplace mais que l'autre partie de celle-ci, jusqu'à  $z_d$ , reste immobile. Pour qu'une dislocation reste immobile, il faut qu'aucune force de type Peach-Koehler ne s'applique sur elle. Cela est rendu possible dans le cas présent si  $\epsilon = 0$  jusqu'à  $z_d$ , c'est-à-dire si toute la déformation élastique initiale entre 0 et  $z_d$  est accommodée plastiquement. L'introduction d'une dislocation de désadaptation de réseau supplémentaire à la côte  $z_d$  suppose donc que de telles dislocations se sont préalablement réparties entre 0 et  $z_d$ . Par conséquent, la condition  $\delta = 0$  se traduit par  $z_d = 0$  dans les équations (22) et (23). **Les premières dislocations de désadaptation de réseau qui apparaissent dans les couches à rampe de composition linéaire s'alignent dans le plan d'interface avec le substrat ( $z = 0$ ).** Ceci est parfaitement cohérent avec les observations en microscopie électronique en transmission qui confirment ce point (voir chapitre V). Nous obtenons ainsi une expression de l'épaisseur critique des couches de composition graduelle linéaire qui est la suivante:

$$h_c^{éq} = \left\{ \frac{2D}{C \epsilon'} \left[ \ln \left( \frac{h_c^{éq}}{b} \right) + 1 \right] + \left( \frac{\epsilon_0(0)}{\epsilon'} \right)^2 \right\}^{1/2} - \frac{\epsilon_0(0)}{\epsilon'} \quad (24)$$

Il est intéressant de remarquer que l'expression (24) est identique à celle de

Matthews (21b) quand le rapport de la déformation initiale à l'interface et du gradient de déformation tend vers l'infini:

$$\left[ h_c^{éq}(\epsilon_0(0), \epsilon') \right] \text{ (Equ. 24)} \approx \left[ h_c^{éq}(\epsilon_0(0)) \right] \text{ (Equ. 21b)}, \quad \text{pour } \frac{\epsilon_0(0)}{\epsilon'} \gg 1 \quad (25)$$

En effet, dans ce cas, la couche de composition graduelle peut être considérée comme une couche de composition constante dont la déformation initiale est égale à celle qui existe en début de rampe.

On retrouve également notre résultat en considérant l'expression de l'épaisseur critique à l'équilibre déduite de la minimisation de l'énergie élastique totale d'une simple "rampe" de composition linéaire (c'est-à-dire sans marche abrupte de composition à l'interface) donnée par Tersoff [29] (une description plus détaillée de ce modèle est donnée au chapitre suivant). L'expression (24), plus générale, se réduit en effet à celle présentée par cet auteur si  $\epsilon_0(0) = 0$ . Dans ce cas encore, un critère mécanique et un critère énergétique conduisent à un résultat identique.

Si d'un côté nous avons montré par une approche mécanique que les premières dislocations de désadaptation de réseau sont formées à l'interface entre la couche graduelle et le substrat, on peut aussi aboutir au même résultat avec une approche énergétique.

→ D'après le modèle de Tersoff [29], les dislocations de désadaptation de réseau ne se répartissent pas dans toute la "rampe" mais sont confinées dans une partie inférieure entre 0 et  $z_c$ , où  $z_c = h - w_c$ .  $w_c$  désigne de fait une épaisseur critique, son expression est identique à celle donnée par l'équation (24) en posant  $\epsilon_0(0) = 0$ , soit:

$$w_c = h_c^{éq}(\epsilon'; \epsilon_0(0) = 0) = \sqrt{\frac{2E_d}{b_e c \epsilon'}} \quad \epsilon_0(z) = \epsilon'z \quad (26)$$

où  $E_d$  est l'énergie par unité de longueur d'une ddr ( $E_d = F_\delta$ ) et  $b_e c = C$ . Quand  $h = w_c$ , les premières dislocations apparaissent à la côte  $z_c = 0$ , c'est-à-dire à l'interface.

→ Une autre approche est due à Heigl *et al.* [31] qui ont modélisé numériquement la relaxation d'une structure tampon constituée d'une "rampe simple" ( $\epsilon(z) = \epsilon'z$ ) sur laquelle est déposée une couche de composition constante adaptée en paramètre de maille par rapport à la fin de la couche graduelle. Leur modèle s'appuie sur un critère de minimisation de l'énergie élastique emmagasinée dans cette structure en supposant cette fois-ci que les dislocations se répartissent dans toute la "rampe". Ces auteurs n'ont pas donné dans ce cas de figure une expression analytique de l'épaisseur critique. En partant de leur hypothèse, nous nous proposons d'en établir une. En absence de couche plateau, l'énergie élastique de la couche graduelle est alors donnée par:

$$E = c \frac{h^3}{3} (\epsilon' - b_e \rho)^2 + 2E_d \rho h \quad (27)$$

où  $\rho$  est la densité de ddr répartie dans toute la couche graduelle. Le premier terme de l'équation ci-dessus représente l'énergie élastique due à la déformation élastique résiduelle des mailles cristallines. Le second terme représente l'énergie "plastique" c'est-à-dire la somme de toutes les énergies élastiques des dislocations. L'épaisseur critique est déterminée en minimisant  $E$  par rapport à  $\rho$  et en faisant tendre cette densité vers 0 (conditions (14a) et (15)). On obtient:

$$h_c^{éq} = \sqrt{\frac{3E_d}{b_e c \epsilon'}} \quad (28)$$

Bien que n'apparaissant pas dans leur article, l'expression analytique (28) permet de retrouver exactement les valeurs numériques des épaisseurs critiques données par ces auteurs. Comparativement, les valeurs d'épaisseurs critiques calculées à partir de l'équation (28) sont  $\sqrt{3/2} \approx 1,22$  fois supérieures à celles calculées à partir de l'équation (26). *L'épaisseur de la couche graduelle au-delà de laquelle des dislocations apparaissent n'importe où dans le volume est plus grande que celle où elles apparaissent à l'interface.* Ceci est une preuve supplémentaire pour énoncer que la relaxation plastique des contraintes commence à l'interface de la couche épitaxiée avec le substrat, même pour des matériaux de composition graduelle linéaire simple, c'est-à-dire n'ayant pas de déformation initiale à l'interface. Ce résultat n'est pas a priori d'évidence.

### 1.5.5 EPAISSEURS CRITIQUES APPARENTES

Les modèles ci-dessus sont des modèles d'équilibre (statiques). Dans la réalité il est un fait d'observation maintenant établi que l'épaisseur critique à l'équilibre, déterminée par exemple par la relation de Matthews pour les couches de composition constante, est souvent plus faible que l'épaisseur critique observée. Ce constat est d'autant plus flagrant pour les systèmes SiGe/Si que pour InGaAs/GaAs par exemple. Nous résumons plusieurs interprétations données à ces écarts.

Des expériences de recuit de Houghton *et al.* [27], introduites précédemment, s'est dégagée une notion très importante en physique des semiconducteurs qui est celle de métastabilité structurale. Si d'un côté il est apparu clairement que l'épaisseur critique à l'équilibre (en particulier celle donnée le modèle de Matthews) fixait une limite inférieure à la stabilité des couches vis à vis de l'introduction de dislocations, de l'autre côté, il a été vérifié à travers ces expériences que la plupart des structures contraintes étudiées n'étaient pas en équilibre avant recuit: elles étaient *métastables*. C'est un point bien sûr très

important pour le fabricant de composants de connaître le degré de métastabilité des structures qu'il utilise pour éviter que des dislocations soient introduites lors des étapes technologiques du procédé de fabrication. Y-a-t'il une limite de métastabilité ? Tsao *et al.* [32] ont proposé un concept nouveau pour décrire cette métastabilité, celui de la contrainte d'excès  $\sigma_{exc}$ . La contrainte d'excès est définie comme la différence de la contrainte induite par la désadaptation de paramètres de maille et de la contrainte *fictive* associée à la tension de ligne de la dislocation à l'interface, soit pour une couche de composition constante directement épitaxiée:

$$\sigma_{exc} = \frac{F_{exc}}{h \ b / 2} = \frac{F_{\epsilon} - F_{\delta}}{h \ b / 2} \quad (29)$$

Le facteur 1/2 est une application numérique de  $\cos \lambda$  pour une dislocation de caractère  $60^\circ$  et  $h$  est l'épaisseur de la couche épitaxiée. D'après ces auteurs, le processus qui mène à la relaxation des contraintes dans les couches épitaxiées n'est plus directement lié à l'épaisseur ni au taux de désadaptation mais à la contrainte d'excès et à la température. Dans ce point de vue,  $\sigma_{exc} / \mu = 0$  décrit la frontière entre les couches stables et les couches métastables, tandis qu'une contrainte d'excès critique non nulle, à une température donnée, sépare les couches métastables des couches partiellement relaxées (par exemple  $0,024\mu$  à  $494^\circ\text{C}$  pour SiGe/Ge [32]).

Les différences entre les épaisseurs critiques observées et calculées dépendent aussi de la nature des matériaux. En particulier, elles sont beaucoup moins marquées pour les métaux que pour les semiconducteurs. Il paraissait donc important de développer un modèle d'épaisseur critique qui soit valable à la fois pour les métaux et pour les semiconducteurs. C'est ce que Fox et Jesser [33, 34] ont fait, en reprenant le mécanisme de Matthews de génération de dislocations et en tenant compte des forces de frottement (concept nouveau d'*équilibre forcé* [35]). Les forces de frottement empêchent la dislocation émergente de se déplacer. Les auteurs en dénombrent trois, toutes thermiquement activées, qui se mettent sous la forme suivante:

$$F_f = Ah \exp\left(\frac{U_i}{k_B T}\right) + vBh \exp\left(\frac{Q_i}{k_B T}\right) + \Delta(v,T)Eh \exp\left(\frac{W_i}{k_B T}\right) \quad (30)$$

Le premier terme représente le frottement de réseau (ou force de Peierls). Le deuxième terme est dû aux mécanismes de diffusion (phonons et électrons) qui sont associés au déplacement de la dislocation [36]. Le troisième terme est dû à l'atmosphère environnant la dislocation.  $A$  et  $B$  sont des constantes,  $k_B$  est la constante de Boltzman,  $E$  est un facteur qui dépend de la concentration en impureté,  $\Delta = 0$  ou  $1$  selon que la dislocation a échappé ou non à son atmosphère d'impuretés,  $U_i$  est une énergie d'activation nécessaire

pour qu'une dislocation de type  $i$  puisse franchir les barrières de Peierls,  $Q_i$  est une énergie d'activation associée aux mécanismes de diffusion contrôlant le déplacement à vitesse  $v$  constante d'une dislocation de type  $i$ , et  $W_i$  est une énergie d'activation associée à la diffusion des impuretés.

En égalisant les forces qui agissent sur la dislocation émergente et en posant  $v = 0$ , Fox et Jesser déterminent une nouvelle expression de l'épaisseur critique à l'équilibre qui tient compte des forces de frottement:

$$h_c^* = \frac{D}{C (\epsilon_0 - \epsilon_u - \epsilon_a)} \left[ \ln \left( \frac{h_c^*}{b} \right) + 1 \right] \quad (31a)$$

avec

$$\epsilon_u = \frac{A}{C} \exp\left(\frac{U_i}{k_B T}\right) \quad \text{et} \quad \epsilon_a = \frac{E}{C} \exp\left(\frac{W_i}{k_B T}\right) \quad (31b)$$

Dans leur calcul, les auteurs supposent que la dislocation n'est pas dissociée et que l'effet d'une création ou d'une suppression d'une marche en surface après le passage de la dislocation est négligeable. L'équation (31) devient identique à celle déterminée par Matthews si  $\epsilon_u = \epsilon_a = 0$ . L'équation (21b) est équivalente à (31) si on remplace la déformation initiale  $\epsilon_0$  par une *déformation effective*  $\epsilon_0 - \epsilon_u - \epsilon_a$ . C'est la déformation qui reste utilisable pour surmonter la tension de ligne associée à la génération d'une dislocation à l'interface. Ceci conduit donc à un accroissement de la valeur de l'épaisseur critique. Cet accroissement est d'autant plus important que la déformation effective est petite. Les auteurs expliquent la différence entre épaisseurs critiques observées et calculées des métaux et des semiconducteurs par les valeurs des contraintes de Peierls. Dans les métaux à structure cubique à faces centrées, le réseau oppose peu de résistance au déplacement des dislocations et on constate un bon accord entre les valeurs expérimentales et théoriques (Equ. 21b) des épaisseurs critiques [37]. Dans les semiconducteurs à structure zinc-blende, les contraintes de Peierls sont beaucoup plus fortes et le désaccord entre l'expérience et la théorie devient important. Si la résolution de la technique expérimentale utilisée pour déterminer une épaisseur critique est infinie alors c'est cette valeur d'épaisseur critique (avec forces de frottement) qui sera observée plutôt que celle calculée par un modèle qui ne tient pas compte des forces de frottement. Même à l'équilibre,  $h_c^{obs} = h_c^*$  (Equ. 31) devient supérieure à  $h_c^{eq}$  (Equ. 21b) puisque ces forces de frottement conduisent à définir une déformation effective  $\epsilon_0 - \epsilon_u - \epsilon_a$  plus petite que  $\epsilon_0$ .

Fritz [38] a montré qu'une résolution expérimentale finie peut avoir un effet majeur sur la mesure d'épaisseur critique. Considérant cet effet, l'équation (21.b) a été modifiée, afin de rendre compte des valeurs d'épaisseurs critiques apparentes, en remplaçant la déformation élastique initiale  $\epsilon_0$  par  $\epsilon_0 - R/Q$ .  $R$  désigne la sensibilité de la

technique utilisée, c'est-à-dire la plus petite valeur de déformation accommodée plastiquement que peut détecter l'appareil de mesure,  $Q (<1)$  est un facteur qui montre que la sensibilité est perdue si la densité de dislocations observée est plus petite que prévue. En d'autres termes, il se passe "un certain temps" avant que ne soit détecté un début de relaxation. Même à l'équilibre, l'épaisseur critique expérimentale est supérieure à l'épaisseur critique théorique si on tient compte de la sensibilité de l'appareil de mesure.

### I.5.6 LES MODELES DYNAMIQUES D'ÉPAISSEUR CRITIQUE

L'obtention d'un état d'équilibre suppose qu'il n'y a aucune barrière énergétique à la nucléation et à la propagation des dislocations. Ces dernières sont disponibles à tout moment de la croissance et à tout endroit de la couche. En réalité de telles barrières d'énergie existent, si bien que les épaisseurs critiques observées dépendent à la fois de la température  $T$  (par l'intermédiaire soit du mouvement thermiquement activé des dislocations, soit de l'activation de sources de dislocations par exemple), et du temps  $t$ . En ce qui concerne l'influence du temps, Kui et Jesser [39] ont effectivement montré pour le système InGaAs/GaAs que l'épaisseur à laquelle apparaissent les premières dislocations varie avec le temps de recuit des hétérostructures.

On définit alors une épaisseur critique dynamique comme l'épaisseur de la couche à laquelle une partie  $\delta_R$  de la déformation est accommodée par les dislocations. On distingue en gros trois modèles dynamiques correspondant au fait qu'ils traitent de trois processus différents qui limitent les relaxations de contraintes. Ces modèles ont été appliqués à l'étude des couches épitaxiées de composition constante. Ils sont basés sur des équations qui ont été introduites à l'origine pour décrire les comportements plastiques des matériaux massifs. Elles sont ici appliquées aux couches minces:

**i)** Une expression semi-empirique (de type Alexander et Haasen) de la vitesse, finie, des dislocations:

$$v = v_0 (\tau / \mu)^n \exp - \frac{Q_i}{k_B T} \quad (32)$$

où  $n$  est un coefficient de l'ordre de 1 à 2,  $v_0$  est une constante dépendant de la nature du matériau,  $\tau$  est une contrainte effective,  $\mu$  est un module de cisaillement et  $Q_i$  est une énergie d'activation liée aux mécanismes de diffusion contrôlant le déplacement à vitesse  $v$  constante d'une dislocation de type  $i$ .

**ii)** Des lois empiriques (et phénoménologiques) de nucléation et de multiplication des dislocations de désadaptation de réseau.

**iii)** Une loi de relaxation (de type Orowan):

$$\frac{d\delta}{dt} = \rho b v \quad (33)$$

où  $\rho$  est la densité de dislocations mobiles dans le matériau massif.

On examine successivement ces trois modèles

**a) Le modèle dynamique de Matthews**

Le modèle le plus antérieur est celui développé par Matthews et ses collaborateurs [40]. La relaxation des contraintes est ici contrôlée par le déplacement thermiquement activé de dislocations préexistantes, en densité constante  $\rho_0$  par unité de surface ( $\rho_0$  dénombre les dislocations qui se déplacent dans une des deux directions  $\langle 110 \rangle$  du plan d'interface). La seule force supplémentaire qui s'oppose au déplacement de chaque dislocation est la force due aux mécanismes de diffusion de cœur, soit  $F_f = v B h \exp(-Q/kT)$  (second terme de l'équation (30)). La relation liant la vitesse  $v$  des dislocations à la vitesse d'accommodation plastique  $\dot{\delta}$  est donnée par la loi de relaxation de type Orowan, soit  $\dot{\delta} = \rho_0 b_e v$ . Utilisant cette dernière équation pour éliminer  $v$  dans l'expression de  $F_f$  et posant  $F_\varepsilon = F_\delta + F_f$ , on obtient l'équation différentielle suivante:

$$\frac{d\delta}{dt} = \alpha_R (\delta_{\varepsilon q} - \delta) \quad (34)$$

$\delta_{\varepsilon q}$  est l'accommodation plastique à l'équilibre de la déformation initiale  $\varepsilon_0$ , soit:

$$\delta_{\varepsilon q} = \varepsilon_0 - \frac{D}{C h} \left[ \ln \left( \frac{h}{b} \right) + 1 \right] \quad (35)$$

$\alpha_R$  est un paramètre cinétique ayant la dimension d'une fréquence. Plus  $\alpha_R$  sera grand et plus vite les états d'équilibre seront atteints. Cette fréquence est reliée à la densité  $\rho_0$  et à la température  $T$  par:

$$\alpha_R = \frac{C b_e}{B} \rho_0 \exp \left( - \frac{Q}{k_B T} \right) \quad (36)$$

$B$ ,  $Q$  et  $C$  sont des constantes qui dépendent du matériau. Elles ont déjà été introduites dans les équations (16) et (30).  $\alpha_R$  est d'autant plus grand que la densité de dislocations initiales est importante et que la température est élevée. La solution de l'équation différentielle (34) telle que  $\delta(t=0) = 0$  est:

$$\delta(t) = \delta_{\varepsilon q} \left[ 1 - \exp(-\alpha_R t) \right] \quad (37)$$

Cette équation à laquelle aboutissent Matthews *et al.* décrit la conversion de la déformation élastique en déformation plastique en fonction de temps.

Notes

Aucune référence n'est faite dans ce modèle aux processus de nucléation et de multiplication des dislocations. Par conséquent, il ne s'applique rigoureusement qu'aux matériaux possédant un nombre suffisant de sources de dislocations.

Matthews *et al.* ont implicitement supposé qu'à partir de l'instant où les dislocations émergentes commencent à se déplacer en laissant derrière elles des segments de dislocations à l'interface, elles échappent à leur atmosphère d'impuretés, ce qui revient à faire  $\Delta = 0$  dans l'équation (30). La force de rappel agissant sur les dislocations due au frottement de réseau (premier terme de l'expression de  $F_f$  dans l'équation 30) a été omise. Si on tient compte de cette force supplémentaire, l'accommodation plastique tend non plus vers  $\delta_{\epsilon_q}$  mais vers  $\delta_{\epsilon_q}^*$ , dont l'expression dérive directement de la première en remplaçant  $\epsilon_0$  par  $\epsilon_0 - \epsilon_u$  [33].

La solution  $\delta(t)$  (Equ. 37) est réellement solution de l'équation différentielle (34) à condition de considérer  $\delta_{\epsilon_q}$  (ou  $\delta_{\epsilon_q}^*$ ) comme une constante indépendante du temps.

L'équation (35) montre que la relaxation plastique à l'équilibre dépend de l'épaisseur de la couche. Par conséquent, l'équation (37) n'est rigoureusement valable que pour décrire la relaxation des contraintes de couches d'épaisseurs constantes et à température constante. L'équation (37) peut de fait décrire le comportement plastique des couches lors des expériences de recuit mais ne s'applique pas aux structures en cours de croissance. Il n'existe pas en réalité de solution analytique simple à l'équation différentielle (34) lorsque  $\delta_{\epsilon_q}$  dépend du temps. On peut cependant intégrer numériquement cette équation en procédant par exemple de la façon suivante:

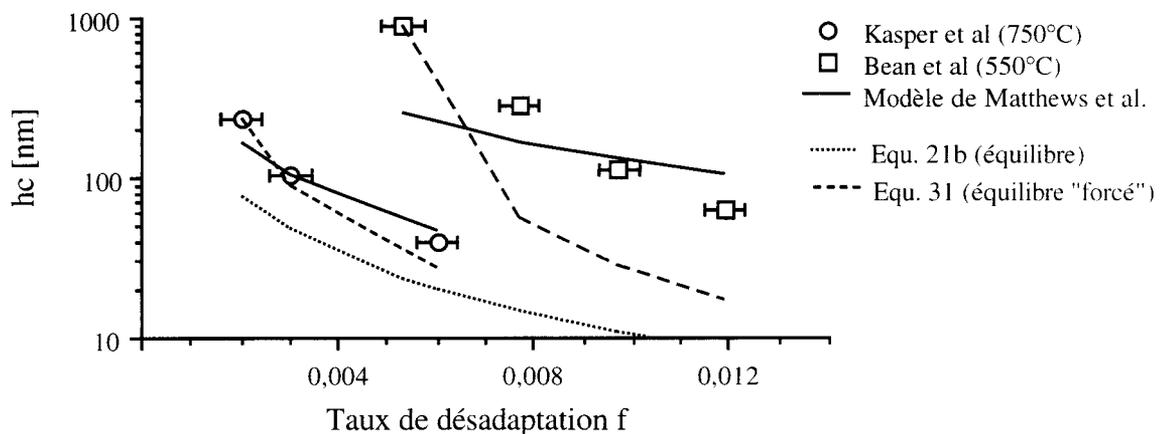
$$\delta(0) = 0, t \leq 0 \quad (38a)$$

$$\delta(t + \Delta t) = \delta(t) + \frac{d\delta(t)}{dt} \Delta t, t > 0 \quad (38b)$$

Quand l'épaisseur de la couche est inférieure à l'épaisseur critique à l'équilibre ( $t < 0$ ), les contraintes liées à la croissance sont accommodées uniquement par la déformation élastique ( $\delta = 0$ ). Au delà de l'épaisseur critique ( $t > 0$ ), une accommodation plastique dépendant du temps apparaît. La relaxation plastique à l'instant  $t + \Delta t$  est la somme de ce qui a déjà été relaxé à l'instant  $t$  et de ce qui peut l'être en un temps  $\Delta t$ . L'épaisseur critique dynamique est alors déduite du temps que mettra la couche pour accommoder une quantité  $\delta_R$  de la déformation élastique initiale.

Nous avons reporté sur la figure I.13 les valeurs des épaisseurs critiques déterminées par ce modèle en même temps que les valeurs expérimentales tirées des systèmes SiGe/Si [21, 41]. Ces systèmes sont reconnus être très métastables comme on peut le constater sur cette figure où les valeurs expérimentales sont largement

supérieures à celles déduites des modèles d'équilibre avec ou sans forces de frottement.



**FIGURE I.13:** Comparaison entre épaisseurs critiques mesurées et calculées pour le système SiGe/Si (les symboles représentent les points expérimentaux).

Les valeurs des constantes intervenant dans les calculs sont celles données par W.A Jesser et J. Kui [35]. Ce modèle permet de rendre compte des valeurs observées par Kasper *et al.* en prenant une valeur de  $\rho_0 = 8,25 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-2}$ , pour une température du substrat de 750 °C pendant la croissance des couches. Par contre, ce modèle ne permet pas de retrouver les valeurs expérimentales de Bean *et al.*, à la température de croissance de 550 °C. S'il existe pour chaque valeur expérimentale de  $h_c$ , une valeur de  $\rho_0$  telle que l'épaisseur critique calculée soit égale à celle mesurée, contrairement aux valeurs expérimentales de Kasper *et al.*, il n'existe pas de valeur unique de  $\rho_0$  (valeur moyenne) qui permet de retrouver l'ensemble des points expérimentaux de Bean *et al.*.

Pour comparaison, une application numérique de l'équation (31) a été effectuée avec  $\epsilon_u + \epsilon_a = 1,2 \cdot 10^{-3}$  et  $5,1 \cdot 10^{-3}$  pour essayer de recouper les valeurs expérimentales de Kasper *et al.*, et de Bean *et al.*, respectivement.

### b) Le modèle de Houghton

Houghton [42] a proposé dans le cas de SiGe/Si, un modèle cinétique où le processus de relaxation est contrôlé par la nucléation et l'extension de segments de dislocations de désadaptation de réseau. Ce modèle n'inclut aucun processus de multiplication des dislocations. Comme le modèle de Matthews, il se limite au régime des faibles densités de dislocations. Par conséquent, les interactions entre ces dernières sont négligées. L'accroissement de longueur par seconde des segments de ddr, qui est aussi égal à la vitesse de propagation des dislocations émergentes, est donné par la relation semi-empirique de Alexander et Haasen, soit:

$$v = B' (\tau_{exc} / \mu)^m \exp - \frac{Q_v}{k_B T}$$

avec  $B' = (4 \pm 2) \cdot 10^{11} \text{ m.s}^{-1}$ ,  $m = 2$  et  $Q_v = 2,25 \text{ eV}$  pour SiGe/Si.

De l'expérience, l'auteur a montré que la nucléation de nouveaux segments de ddr est aussi activée thermiquement. L'accroissement du nombre de segments de dislocations à l'interface, par seconde et par unité de surface, est donné par l'expression semi-empirique suivante:

$$\frac{dN(t)}{dt} = A N_0 \left( \frac{\tau_{exc}}{\mu} \right)^n \exp \left( - \frac{Q_n}{k_B T} \right) \quad (39)$$

$A$  et  $n$  sont des constantes dépendant du matériau,  $N_0$  est le nombre de sources de dislocations de désadaptation de réseau à  $t = 0$  par unité de surface (et dans une des deux directions  $\langle 110 \rangle$  du plan d'interface), et  $Q_n$  est l'énergie d'activation pour la nucléation ( $A = 10^{18} \text{ s}^{-1}$ ,  $n = 2,5$  et  $Q_n = 2,5 \text{ eV}$  pour SiGe/Si). Ensuite une loi de type Orowan:  $\dot{\delta} = N b_e v$ , permet de relier le nombre et la vitesse d'expansion des segments de dislocations à l'interface, à la vitesse de déformation plastique.  $\delta(t)$  est alors obtenue en combinant ces trois dernières relations, soit:

$$\delta(t) = \frac{A B' N_0 t^2 b_e}{2} \left( \frac{\tau_{exc}}{\mu} \right)^y \exp \left( - \frac{Q_s}{k_B T} \right) \quad (40)$$

avec  $y = m + n$  et  $Q_s = Q_v + Q_n$ .

La quantité dont a relaxée la couche à un temps  $t$  est une fonction quadratique du temps et elle est proportionnelle à la densité initiale de sources de ddr,  $N_0$ .  $\delta(t)$  est très sensible à la contrainte effective par l'intermédiaire de l'exposant  $y$  qui vaut 4,5. La relaxation à  $t$  donnée varie rapidement avec la température compte tenu de la valeur élevée de l'énergie d'activation  $Q_s = 4,75 \text{ eV}$ .

### Notes

Le passage entre  $dN(t)/dt$  et  $N(t)$ , de même celui entre  $d\delta(t)/dt$  et  $\delta(t)$ , n'est pas en réalité aussi direct et simple que ne l'a supposé Houghton. Le fait que  $\delta(t)$  soit une fonction en  $t^2$  vient des deux intégrations par rapport au temps où la contrainte effective est considérée à chaque fois comme une constante (c'est-à-dire indépendante du temps). Par conséquent, l'expression  $\delta(t)$  obtenue par Houghton ne peut être appliquée qu'à l'étude du comportement plastique des hétérostructures épitaxiées subissant ici aussi des recuits.

Il n'existe pas non plus, dans ce modèle, de solution analytique simple qui permet de décrire la relaxation en fonction du temps des couches en cours de croissance. Il faut procéder en plusieurs étapes. Tout d'abord, il faut déterminer pour tout  $t$  la valeur de la contrainte d'excès qui permettra de calculer à la fois la vitesse  $v(t)$  et la dérivée  $dN(t)/dt$ .

Ensuite, cette dérivée est intégrée numériquement pour déterminer les valeurs de la densité de segments de dislocations à l'interface à chaque instant:

$$N(t = 0) = N_0 \quad (41a)$$

$$N(t + \Delta t) = N(t) + \frac{dN(t)}{dt} \Delta t \quad (41b)$$

Connaissant les valeurs de  $v(t)$  et de  $N(t)$ , la dérivée en fonction du temps de  $\delta(t)$  est calculée à chaque instant à partir de la relation d'Orowan. Enfin, l'accommodation plastique  $\delta(t)$  est déterminée numériquement en appliquant l'équation (38) pour chaque valeur de  $t$ .

La comparaison de ce deuxième modèle avec le premier et les valeurs expérimentales d'épaisseurs critiques est illustrée sur la figure I.14 .

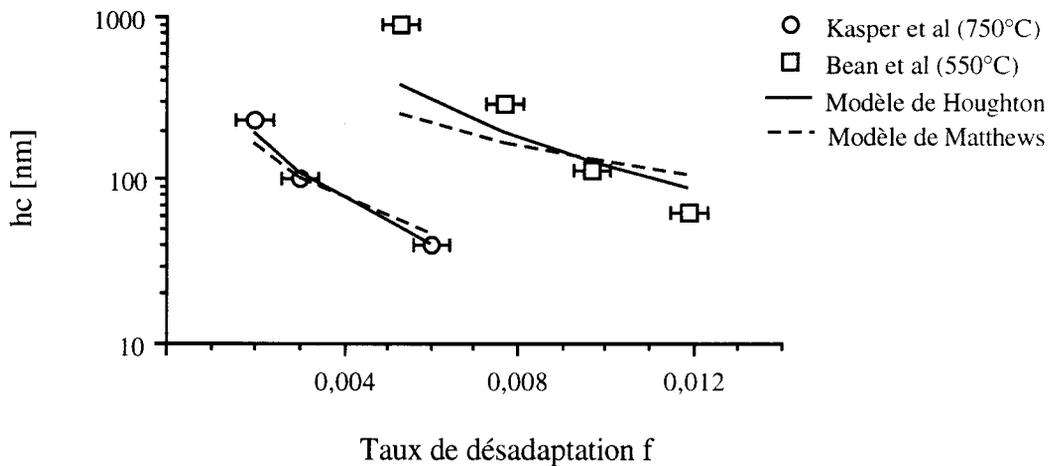


FIGURE I.14: Comparaison entre les valeurs des épaisseurs critiques calculées et mesurées.

Le même critère est utilisé pour chacun des deux modèles, à savoir, l'épaisseur critique calculée est l'épaisseur à laquelle il y a une accommodation plastique égale à  $10^{-5}$ . La figure I.14 montre que le modèle de Houghton modifié réalise un bon accord avec les valeurs expérimentales de Kasper *et al.* lorsque  $N_0 = 1,37.10^3 \text{ cm}^{-2}$ . Par contre, il ne permet toujours pas de rendre compte de toutes les valeurs mesurées par Bean *et al.*. Le nombre de sources initiales de nucléation de dislocations est relativement faible ce qui est plutôt cohérent avec la quasi perfection des substrats en silicium.

### c) Le modèle de Dodson et Tsao

Un autre modèle a été proposé par Dodson et Tsao [43] où cette fois-ci le processus de relaxation est limité par la vitesse de déplacement des dislocations et par la multiplication. Ces auteurs prennent une loi phénoménologique de multiplication qui est

proportionnelle à la contrainte effective  $\sigma_{exc}$ , à la densité de dislocations mobiles  $\rho_m$  et à la vitesse de déplacement  $v$  de celles-ci:

$$\frac{d\rho_m}{dt} = K \rho_m v \sigma_{exc} \quad (42)$$

où  $K$  est un paramètre phénoménologique.

Après avoir réécrit les densités de dislocations en termes d'accommodation plastique  $\delta$ , développé l'expression de la vitesse en fonction de la contrainte effective puis celle-ci en fonction de la différence  $\delta_{\epsilon q} - \delta(t)$ , les auteurs montrent que l'accommodation plastique de la déformation élastique initiale d'une couche épitaxiée directement sur un substrat obéit à l'équation dynamique suivante:

$$\frac{d\delta(t)}{dt} = \kappa \mu^2 [\delta_{\epsilon q}(h) - \delta(t)]^2 [\delta(t) + \delta_0] \quad (43)$$

où  $\kappa \mu^2$  et  $\delta_0$  sont des constantes ajustables par l'expérience. Le terme  $\delta_0$  qui est introduit dans l'équation (43) représente les sources de dislocations de désadaptation de réseau. Le terme  $\kappa$  dépend en particulier de l'énergie d'activation pour le glissement des dislocations et de la température. Ces deux termes interviennent tous deux dans l'expression de la vitesse  $v$  [44].

Ce modèle prédit des valeurs d'épaisseurs critiques dynamiques dans le cas du système SiGe/Si qui sont en bon accord avec les valeurs expérimentales de Bean *et al.* si on prend  $\kappa \mu^2 = 46$ ,  $\delta_0 = 3 \cdot 10^{-5}$ , une résolution expérimentale  $\delta_R = 10^{-3}$  et une échelle de temps telle que  $t [s] = 10^3 + h/r$ , où  $r$  est la vitesse de croissance de la couche épitaxiée.  $10^3 [s]$  représente le temps de refroidissement de cette dernière.

On peut noter que People [45] donne une solution analytique à l'équation (43) et commente les prédictions du modèle dynamique de Dodson et Tsao comme étant des artefacts de la valeur choisie pour la résolution expérimentale  $\delta_R$ .

La détermination d'épaisseurs critiques (dynamiques) est certes une application particulière du modèle de Dodson et Tsao qui prévoit comment s'effectue, au cours du temps, la relaxation des contraintes par les dislocations. A ce propos, Drigo *et al.* [46] ont souligné qu'il n'est pas possible de rendre compte de toutes les données expérimentales sur l'état de relaxation de simples couches d'InGaAs déposées sur GaAs avec un unique jeu de paramètres.

## **I.6 CONCLUSION**

Nous avons vu dans ce premier chapitre que la croissance d'une couche mince semiconductrice sur un substrat de paramètre de maille différent engendre des contraintes élastiques énormes (plusieurs centaines de MPa). Lorsque la couche est suffisamment mince (par rapport à l'épaisseur du substrat), ces contraintes sont essentiellement accommodées par une déformation élastique du réseau cristallin du matériau épitaxié.

Il y a dans ces hétérostructures une épaisseur de couche critique au-delà de laquelle la déformation élastique initiale est partiellement accommodée par l'introduction à l'interface de l'hétérojonction de dislocations de désadaptation de réseau qui permettent de rattraper localement le paramètre de maille de la couche. L'épaisseur critique est omniprésente dans la physique des matériaux épitaxiés et sa nécessaire évaluation doit permettre de prévenir l'apparition des dislocations qui est dans beaucoup de cas rédhibitoire aux propriétés attendues des composants électroniques fabriqués à partir de ces matériaux.

Nous avons exposé dans ce chapitre les modèles les plus cités pour déterminer les valeurs de ces épaisseurs critiques des couches. Ces modèles sont soit des modèles d'équilibre, soit des modèles dynamiques. Il semble que les valeurs expérimentales sont toujours plus importantes que celles prévues par les modèles, en particulier par les modèles d'équilibre. Les raisons invoquées à ces écarts sont les processus dynamiques associés à l'apparition de dislocations et à une résolution finie des techniques expérimentales, difficilement dissociables l'une de l'autre. Aucun modèle n'est pleinement satisfaisant et il subsiste un sentiment de confusion autour de ce concept d'épaisseur critique.

Pour tenter de concilier ces différents modèles, Mazzer *et al.* [47] ont suggéré qu'il n'y avait peut-être pas une, mais **deux** épaisseurs critiques. La première épaisseur critique serait associée à l'apparition des premières dislocations et serait en bon accord avec les modèles d'équilibre de Matthews [16] ou de van der Merwe [19]. Ensuite, bien que les dislocations soient apparues, il n'y aurait pas réduction notable des déformations en-dessous d'une seconde épaisseur critique.

En ce qui nous concerne, les structures que nous allons étudier ont largement dépassé leurs épaisseurs critiques pour entrer dans une phase d'accommodation plastique des déformations. Nous voulons, de plus, que cette étape de relaxation plastique des contraintes soit la plus efficace que possible. Ce qui justifie en soi de consacrer à cet aspect le chapitre suivant tout entier.

## CHAPITRE II

### MODELES ET MODELISATION DE LA RELAXATION PLASTIQUE DES CONTRAINTES DANS LES HETEROSTRUCTURES

- II.1 MULTIPLIER LES INTERFACES: POURQUOI ?
- II.2 RELAXATION D'UNE COUCHE SIMPLE DE COMPOSITION CONSTANTE
  - II.2.1 Sans interactions entre dislocations
  - II.2.2 Avec interactions
    - a) Quelques données expérimentales
    - b) Un modèle mécanique
    - c) Un modèle énergétique
    - d) Les densités de dislocations émergentes
    - e) Conclusion
- II.3 LES HETEROSTRUCTURES DE COMPOSITIONS GRADUELLES PAR PAS
  - II.3.1 Aspect de la qualité cristalline
  - II.3.2 Aspect de la relaxation
    - a) Le modèle de Dunstan *et al.*
    - b) Ce que montre l'expérience
  - II.3.3 Conclusion
- II.4 LES HETEROSTRUCTURES DE COMPOSITIONS GRADUELLES LINEAIRES
  - II.4.1 Les dislocations émergentes
  - II.4.2 Relaxation plastique d'une couche de composition graduelle: Le modèle de Tersoff
    - a) Cas général
    - b) Cas de la "rampe" simple
  - II.4.3 La "rampe" simple comme couche tampon: le métamorphisme
- II.5 CONCLUSION

Ce chapitre est consacré à l'étude de la relaxation des contraintes élastiques dans les hétérostructures épitaxiées. En particulier, une comparaison sur le comportement vis-à-vis de la relaxation est entrepris entre les couches de composition constante directement épitaxiées sur un substrat et les structures de composition graduelle par pas ou linéaire. Une étude sur la réduction des densités de dislocations émergentes observée avec ces deux dernières structures est menée en parallèle. L'enjeu est de proposer à la fin du chapitre une structure, dite "tampon" car placée entre le substrat et la couche active, qui permet à la couche superficielle d'être dans un état de contrainte nulle tout en ayant une faible densité de dislocations émergentes.

## **II.1 MULTIPLIER LES INTERFACES: POURQUOI ?**

Au-delà de l'épaisseur critique, la déformation initiale  $\epsilon_0$  est en partie accommodée par une déformation plastique  $\delta$  due à l'apparition de dislocations de désadaptation de réseau (ddr). De nombreuses observations, directes ou indirectes, ont montré que l'introduction de ces dislocations n'est pas brutale, mais progressive, la densité de dislocations augmentant au fur et à mesure que l'épaisseur de la couche croît [17]. La relaxation s'effectuant par l'introduction de ces ddr, toute évolution de leur densité entraîne directement une évolution de la relaxation.

La relaxation d'une couche de composition constante directement épitaxiée sur un substrat de paramètre de maille différent n'est jamais totale. L'expérience montre que le taux de relaxation n'est jamais de 100 %, c'est-à-dire qu'on ne peut pas, et on ne l'a pratiquement jamais observé, rattraper exactement un écart conséquent de paramètres par l'introduction d'un réseau serré de dislocations, aussi parfait soit-il.

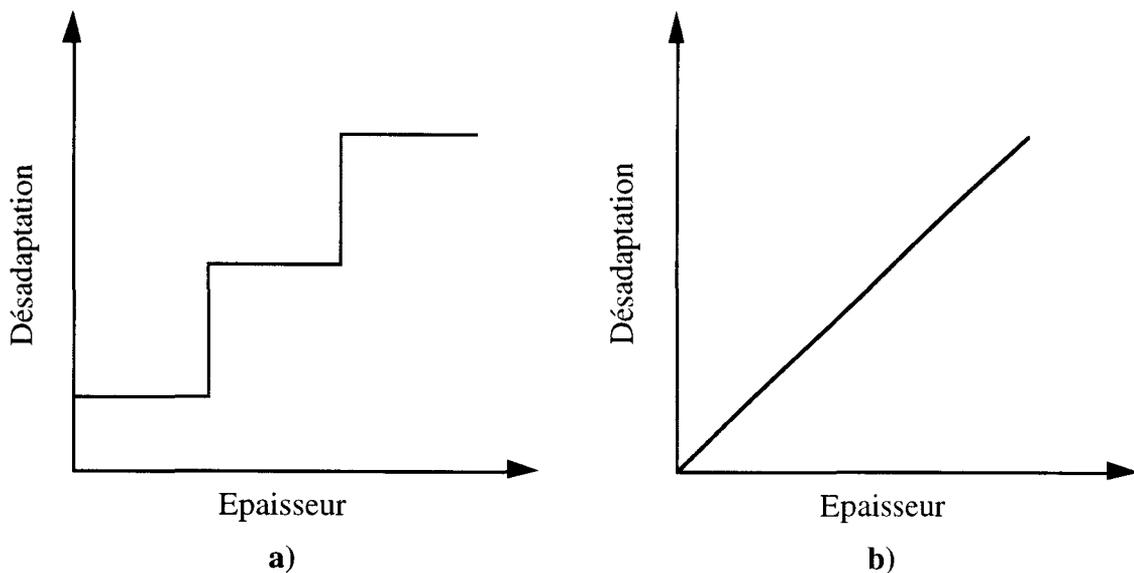
La raison profonde de cette impossibilité est inhérente, d'une part, à la nature même des dislocations qui veut qu'au-delà d'une certaine densité **celles-ci interagissent entre elles**. Elles forment des jonctions attractives ou répulsives qui peuvent servir de sources de nouvelles dislocations, voire produire des dislocations émergentes qui se répliquent au fur et à mesure de la croissance et peuvent être rhédibitoires pour le devenir des composants. Ces interactions de croisement sont favorisées, dans les composés III-V, par l'existence de deux familles de dislocations à 90° l'une de l'autre et donc sécantes. Des interactions à longues distances entre dislocations parallèles peuvent être aussi à l'origine d'un durcissement par effet d'écrouissage qui ralentit voire annihile le processus de relaxation par compensation entre apparition de nouvelles dislocations et accroissement du durcissement.

La deuxième raison, pour laquelle le taux de relaxation d'une couche directement déposée sur un substrat n'atteint jamais 100 %, est liée à l'existence d'un seul interface où se localisent à l'équilibre toutes les dislocations de désadaptation de réseau. L'effet de proximité qui en résulte accroît considérablement le nombre d'interactions possibles entre ces dernières. Cela se traduit généralement par une relaxation partielle de la couche épitaxiée et par l'apparition dans celle-ci de fortes densités de dislocations émergentes.

Différentes stratégies ont été proposées pour accélérer, ou améliorer, le processus de relaxation mettant nécessairement en jeu de fortes densités de dislocations dès lors que la désadaptation de paramètres entre substrat et couche active est grande ( $>1\%$ ). Elles développent précisément l'idée de "multiplier" les interfaces. En créant des interfaces multiples sur lesquels les dislocations vont venir se localiser et se distribuer, on diminue leur nombre sur chacun d'eux et donc les risques de voir les interactions limiter le degré de relaxation. Essentiellement deux structures "tampons" ont été proposées et étudiées:

- les structures de composition graduelle par pas (dites en "escalier"),
- les structures de composition graduelle linéaire (dites à "rampe").

Les figures II.1a et II.1b sont des représentations schématiques de ces deux types d'empilement multimatériaux.



**FIGURE II.1:** Deux sortes de structures tampons à composition graduelle:  
a) structure en "escalier". b) en "rampe" linéaire.

La seconde partie de ce chapitre sera consacrée aux potentialités qu'offrent ces deux types de structures tampons.

## II.2 RELAXATION D'UNE COUCHE SIMPLE DE COMPOSITION CONSTANTE

Nous déterminons dans ce paragraphe le taux de relaxation d'une couche de composition constante directement déposée sur un substrat de paramètre de maille différent, dans le cas où les interactions entre dislocations sont négligées et dans le cas où elles ne le sont plus.

### II.2.1 SANS INTERACTIONS ENTRE DISLOCATIONS

Nous avons vu au chapitre précédent que le principe qui gouverne l'état d'équilibre d'une structure épitaxiée est la minimisation de l'énergie totale de celle-ci. En présence de dislocations, l'énergie totale  $E_T$  par unité de surface d'une hétérostructure semiconductrice composée d'une simple couche de composition constante déposée directement sur un substrat est la somme d'une énergie élastique  $E_\epsilon$  due à la déformation élastique  $\epsilon$  qui persiste dans la couche, plus une énergie élastique  $E_\delta$  due au réseau de dislocations qui est apparu à l'interface [16]:

$$E_T = E_\epsilon + E_\delta \quad (1)$$

où

$$E_\epsilon = c \left( \epsilon_0 - \frac{b_\epsilon}{p} \right)^2 h \quad (2a)$$

$$E_\delta = \frac{2}{p} E_d, \quad E_d = D \left[ \ln \left( \frac{h}{r_0} \right) + 1 \right] \quad (2b)$$

$\epsilon_0$  et  $h$  sont respectivement la déformation initiale et l'épaisseur de la couche,  $p$  est la distance entre deux lignes de dislocations parallèles localisées à l'interface,  $c$  est une constante élastique qui est liée au module de cisaillement  $\mu$  et au coefficient de Poisson de la couche par  $c = 2\mu(1+\nu)/(1-\nu)$ ,  $r_0$  est le rayon de cœur des dislocations ( $r_0 = b/\alpha$  où  $\alpha$  est un paramètre).  $E_\delta$  est égale à l'énergie d'une dislocation de désadaptation de réseau  $E_d$  par unité de longueur, multipliée par la longueur totale de lignes de dislocations par unité de surface. Le facteur 2 dans l'expression (2b) traduit le fait qu'il y a deux réseaux perpendiculaires de dislocations. Celles ci sont supposées ne pas interagir entre elles et il en est de même pour les deux réseaux.  $D = \mu_e b^2 (1 - \nu \cos^2 \theta) / 4\pi(1 - \nu)$ .

Lorsque la densité de dislocations augmente (i.e.  $1/p \uparrow$ ),  $E_\epsilon$  diminue tandis que  $E_\delta$  augmente et inversement lorsque  $1/p$  diminue. Il existe donc une densité particulière telle que toute variation infime de cette densité n'induit aucune variation de l'énergie totale de la couche (la variation de  $E_\epsilon$  est compensée par celle de  $E_\delta$ ),  $dE_T = 0$ , ce qui caractérise

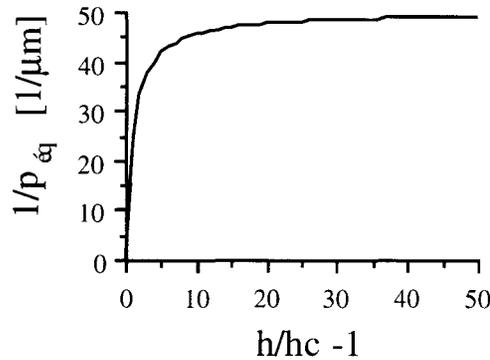
une situation d'équilibre. La densité de dislocations à l'équilibre est obtenue par la condition (vue au chapitre I):

$$\left( \frac{dE_T}{d\left(\frac{1}{p}\right)} \right)_{p=p_{\text{éq}}} = 0 \quad (3)$$

soit,

$$\frac{1}{p_{\text{éq}}} = \frac{\epsilon_0}{b_e} \left( 1 - g \frac{h_c^{\text{éq}}}{h} \right) \quad (4)$$

où  $h_c^{\text{éq}}$  ( $= E_d(h_c) / b_e c \epsilon_0$ ) est l'épaisseur critique à l'équilibre et  $g$  ( $= E_d(h) / E_d(h_c^{\text{éq}})$ ) est un coefficient proche de l'unité. Une expression plus générale de ce coefficient est donnée par Hu [17] qui a tenu compte de l'énergie de cœur des dislocations ainsi que de l'énergie d'une marche en surface. Une fois l'épaisseur critique dépassée, la densité de dislocations à l'équilibre croît de façon continue avec l'épaisseur  $h$ . Ceci est illustré sur la figure II.2 ci-dessous.



**FIGURE II.2:** Densité surfacique de dislocations de désadaptation de réseau dans l'interface entre une couche de composition constante et son substrat en fonction de l'épaisseur normalisée de la couche épitaxiée.  $\epsilon_0 = 0,01$ .

$1/p_{\text{éq}} = 0$  quand  $h = h_c^{\text{éq}}$  puis augmente et tend asymptotiquement vers  $\epsilon_0/b_e$  qui représente la densité maximale de dislocations de désadaptation de réseau pour laquelle la déformation élastique de la couche devient nulle ( $\epsilon = 0$ ).

La déformation résiduelle à l'équilibre est liée à la densité de ddr par:

$$\epsilon_{\text{éq}} = \epsilon_0 - \frac{b_e}{p_{\text{éq}}} = g \epsilon_0 \frac{h_c^{\text{éq}}(\epsilon_0)}{h} \propto h^{-1} \quad (5)$$

A l'équilibre, la déformation résiduelle d'une couche épitaxiée de composition constante est inversement proportionnelle à l'épaisseur de celle-ci.

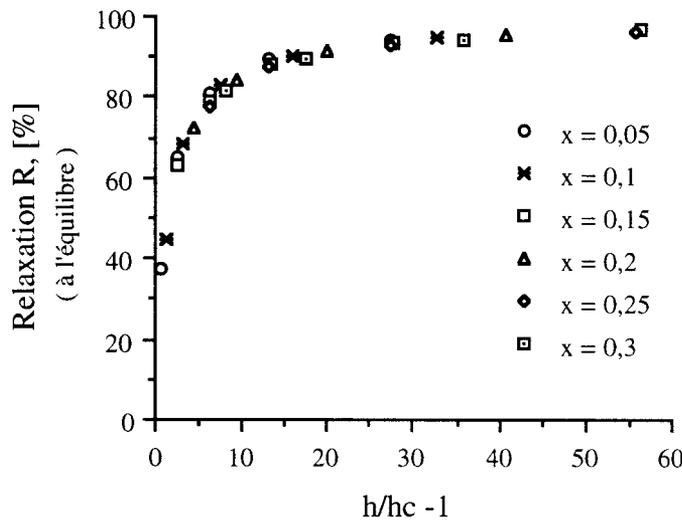
Le coefficient de relaxation (des contraintes)  $R$  peut être défini comme suit:

$$R = 1 - \frac{\varepsilon}{\varepsilon_0} \quad (6)$$

Quand la couche est totalement contrainte,  $\varepsilon = \varepsilon_0$ , le coefficient de relaxation  $R$  est nul alors que si la couche est non contrainte,  $\varepsilon = 0$ , et  $R$  vaut 1. En remplaçant dans l'équation (6) la déformation résiduelle par son expression (5), le coefficient de relaxation  $R$  s'écrit:

$$R_{\text{éq}} = 1 - g \frac{h_c^{\text{éq}}}{h} \quad (7)$$

Le coefficient de relaxation à l'équilibre ne dépend que du rapport  $h/h_c^{\text{éq}}$ . Ceci est un résultat remarquable car l'ensemble des coefficients de relaxation à l'équilibre de n'importe quelle couche de composition constante forme une courbe unique lorsqu'ils sont tracés en fonction des épaisseurs normalisées aux épaisseurs critiques. Nous avons effectué une application numérique de l'équation (7) et reporté sur la figure II.3 les coefficients  $R_{\text{éq}}$  des couches d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  de différentes compositions à différentes épaisseurs.



**FIGURE II.3:** Coefficients de relaxation à l'équilibre en fonction des épaisseurs normalisées pour des couches d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  de différentes compositions épitaxiées sur GaAs, calculés à partir des équations (5) et (6). L'ensemble des points calculés forme une courbe unique qui est la représentation de l'équation (7).

Comme l'équation (7) permet de le prévoir, l'ensemble des points se positionne sur une même courbe.  $R$  et  $h/hc$  jouent de ce fait le rôle de deux paramètres de normalisation vis à vis respectivement de la composition et de l'épaisseur des couches.

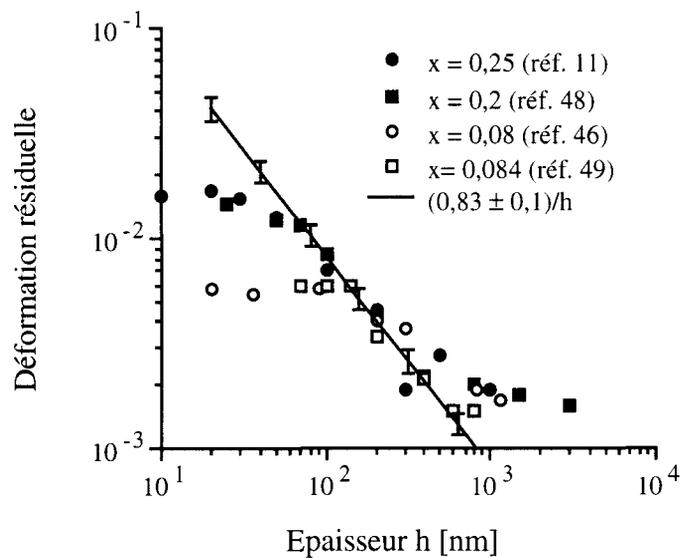
On retiendra qu'en absence d'interactions entre dislocations, le coefficient de

relaxation d'une couche de composition constante tend asymptotiquement vers 100 % quand l'épaisseur de celle-ci tend vers l'infini.

## II.2.2 AVEC INTERACTIONS

### a) Quelques données expérimentales

Les courbes de déformation résiduelle en fonction de l'épaisseur se ressemblent les unes aux autres. Nous avons reporté sur la figure II.4 certaines d'entre elles. Les matériaux étudiés sont des couches d'InGaAs de différentes compositions en indium déposées sur un substrat GaAs.



**FIGURE II.4:** Quelques profils expérimentaux de déformations résiduelles en fonction des épaisseurs des couches.

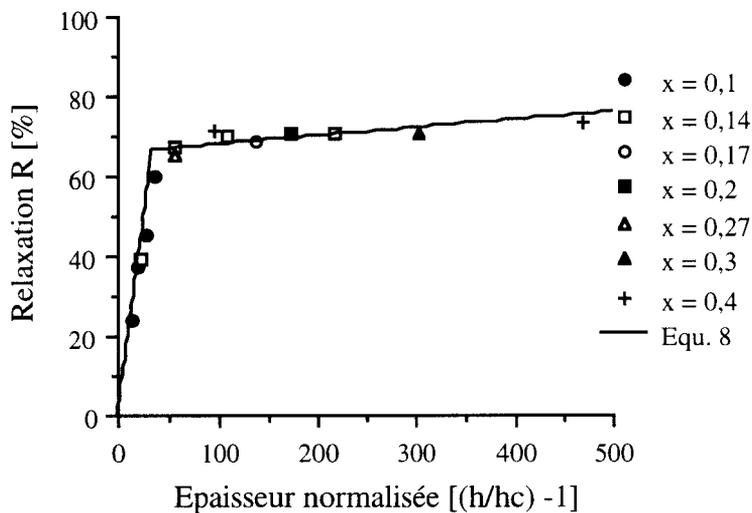
Les courbes  $\epsilon(h)$  peuvent être divisées en trois parties. La première partie correspondant aux faibles épaisseurs est caractérisée par un palier. On se situe en dessous de l'épaisseur critique et la désadaptation de paramètres de mailles est accommodée par de la déformation purement élastique. La deuxième partie de la courbe correspondant aux épaisseurs intermédiaires est caractérisée par une diminution de  $\epsilon$  au fur et à mesure que l'épaisseur augmente: c'est le régime de la relaxation plastique. Cette relaxation s'opère dans un domaine fini d'épaisseurs puisque une saturation est observée juste après.

L'expérience montre donc qu'au-delà de l'épaisseur critique, il y a deux régimes de relaxation plastique. Dans un premier temps, la relaxation s'opère relativement rapidement alors que dans les derniers stades de la relaxation, celle-ci est lente, voire inexistante. Krishnamoorthy *et al.* [50] ont montré que les coefficients R des couches

d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  de compositions comprises entre  $x = 0,1$  et  $x = 0,4$  se positionnent sur la même courbe lorsqu'ils sont tracés en fonction de  $h/h_c^{\text{éq}} - 1$  (voir figure II.5). Ces auteurs ont mis en évidence deux régimes de relaxation de contraintes qu'ils caractérisent par les deux droites de pentes respectives:

$$R [\%] = 2,0 \pm 0,1 \left( \frac{h}{h_c^{\text{éq}}} - 1 \right), h_c^{\text{éq}} \leq h \leq 30h_c^{\text{éq}} \quad (8a)$$

$$R [\%] = 0,02 \pm 0,005 \left( \frac{h}{h_c^{\text{éq}}} - 1 \right) + 66 \pm 1, 30h_c^{\text{éq}} \leq h \leq \text{au moins } 450h_c^{\text{éq}} \quad (8b)$$



**FIGURE II.5:** Coefficients expérimentaux de relaxation en fonction des épaisseurs normalisées pour des couches d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  de différentes compositions épitaxiées sur GaAs, d'après [50].

Un simple rapport des pentes indique que la relaxation est 100 fois moins efficace dans le second régime que dans le premier.

Ces expériences mettent en évidence une relaxation incomplète des couches de compositions constantes directement épitaxiées sur un substrat, même pour des épaisseurs importantes. Par exemple, le coefficient de relaxation  $R$  est de 85,8 % pour une couche d' $\text{In}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{As}$  d'épaisseur  $0,8 \mu\text{m}$  [48] et de 73,4 % pour une couche d' $\text{In}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$  d'épaisseur  $1\mu\text{m}$  [50].

L'évolution de la déformation élastique résiduelle aux épaisseurs élevées est attribuée à un phénomène de durcissement [48, 51]. Observé au départ dans les matériaux massifs, le phénomène de durcissement peut s'expliquer en termes d'interactions à longue distance entre les dislocations. Nous allons exposer deux modèles de relaxation plastique, l'un mécanique qui est centré sur la contrainte d'excès, l'autre énergétique qui minimise l'état de la structure. Ces deux modèles ont les mêmes bases que ceux présentés précédemment sauf que des termes d'interaction  $\gamma$  sont maintenant incorporés.

## b) Un modèle mécanique

### *Présentation du modèle de Dodson [51]*

On suppose qu'à chaque dislocation est associé un champ de contrainte à symétrie cylindrique que l'on représente approximativement par :

$$\sigma_d \approx \frac{\mu b}{2\pi r} \quad (9)$$

où  $r$  est la distance à partir du cœur d'une dislocation. Dans les premiers instants de la relaxation, il est raisonnable de négliger la contrainte  $\sigma_d$  locale autour des dislocations puisque les distances entre ces dernières sont relativement importantes. La relaxation se poursuivant, la contrainte interne due aux interactions entre les dislocations devient comparable à la contrainte d'excès (définie au chapitre I), ce qui conduit à une limitation progressive du processus de relaxation. Dans les matériaux massifs, les dislocations sont aléatoirement distribuées, par conséquent les champs de contraintes de celles-ci sont écrantés par celles de signes opposés, à une distance qui est égale à la séparation moyenne  $d$  entre les dislocations. Une contrainte appliquée de l'ordre de  $\sigma_d(d)$  est de fait nécessaire pour que le matériau puisse se déformer encore un peu plus.

Ce modèle de durcissement a été transposé par Dodson [51] aux hétérostructures épitaxiées. Le passage à ce cas de figure n'est pas direct. Premièrement, puisqu'à l'origine la couche épitaxiée est dépourvue de dislocations, l'auteur considère que toutes les dislocations de désadaptation de réseau ont le "même signe". Par conséquent, la longueur d'écrantage n'est pas la distance moyenne entre dislocations mais sera prise égale à l'épaisseur de la couche. Deuxièmement, les dislocations ne sont pas réparties dans le volume mais se localisent aux interfaces. La distance entre deux ddr est approximativement  $d \approx b / (\epsilon_0 - \epsilon)$ . La contrainte due à l'interaction entre premières voisines est donnée par:

$$\sigma_d \approx \frac{\mu (\epsilon_0 - \epsilon)}{2\pi} \quad (10)$$

Etant donné que la portée des interactions s'étend sur une distance égale à l'épaisseur des couches, la contrainte interne due à l'ensemble du réseau de ddr vaut environ:

$$\sigma_n \approx 2 \sum_{i=1}^n \frac{\sigma_d}{i} \quad (11)$$

où  $n$  est le plus grand entier tel que  $nd < h$ . Lorsque la contrainte d'excès devient égale à  $\sigma_n$  le processus de relaxation cesse. La déformation élastique résiduelle  $\epsilon$  à cet instant

vaut:

$$\varepsilon \approx \frac{\frac{1-\nu \cos^2 \theta}{4\pi(1-\nu)} \frac{\ln(4h/b)}{h/b} + S_n \varepsilon_0}{\frac{1+\nu}{1-\nu} + S_n} \quad (12a)$$

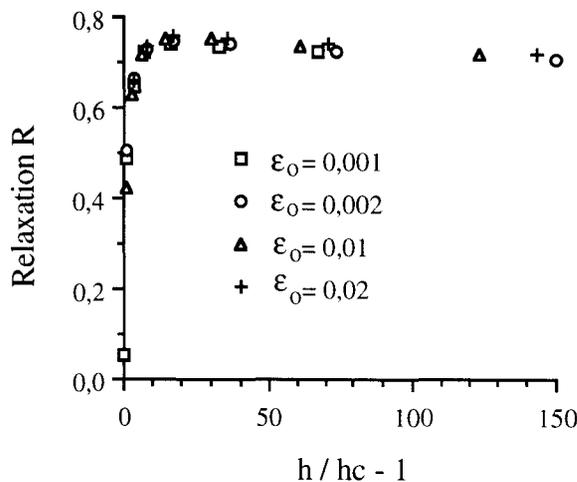
où

$$S_n = \sum_{i=1}^n \frac{1}{2\pi i} \quad (12b)$$

On note qu'en absence d'interactions ( $S_n = 0$ ), l'équation (12a) est identique à l'expression (5) donnant la déformation résiduelle à l'équilibre. Le paramètre de cœur des dislocations est ici pris égal à 4 ( $r_0 = b/4$ ).

*Discussion du modèle*

Le coefficient de relaxation R, par exemple celui d'une couche d' $\text{In}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$  d'épaisseur 1  $\mu\text{m}$  épitaxiée directement sur GaAs, peut être déterminé à partir des équations (12) et (6). Il est de 70 % environ, ce qui est très proche de la valeur expérimentale, 73,4 % [50]. Nous avons reporté sur la figure II.6 les coefficients de relaxation de couches de différentes déformations élastiques initiales en fonction des épaisseurs normalisées  $h/h_c^{\text{éq}} - 1$ .



**FIGURE II.6:** Coefficients de relaxation en fonction des épaisseurs normalisées pour des systèmes de différentes déformations initiales. (Applications numériques de l'équation (12)).

L'ensemble des points calculés à partir de ce modèle se positionne sur une même courbe. On observe bien deux régimes de relaxation, l'un rapide jusqu'à environ  $10h_c$ , et l'autre lent au-delà. Les valeurs de R atteintes pour des épaisseurs supérieures à  $10h_c$  sont du même ordre de grandeur que celles déterminées expérimentalement par Krishnamoorthy et

al.. Ceci met en évidence que la relaxation plastique des contraintes liées à l'épitaxie directe d'une couche de composition constante sur un substrat est contrôlée (ou limitée) en grande partie par les interactions entre dislocations lorsque leur densité devient importante.

La principale différence entre les courbes présentées sur les figures II.5 et II.6 se situe au niveau des faibles épaisseurs c'est-à-dire juste au-dessus des épaisseurs critiques. La relaxation est moins rapide expérimentalement qu'en théorie dans cette partie des courbes car le seuil de R est atteint pour des épaisseurs de l'ordre de  $30h_c^{éq}$  dans le premier cas et  $10h_c^{éq}$  dans le second. Dans cette plage d'épaisseurs où les densités de dislocations ne sont pas trop élevées et par conséquent les interactions peuvent être négligées, l'évolution du coefficient de relaxation traduit sans doute des effets dynamiques tels que la nucléation et la propagation des dislocations qui sont des processus thermiquement activés. Si on ne considère que le côté cinétique c'est-à-dire si on ne tient compte que de la vitesse finie des dislocations, cela suffit pour comprendre pourquoi la relaxation est plus lente en réalité que prévue.

### c) Un modèle énergétique

*Présentation du modèle de Stiffler et al. [52]*

Stiffler et ses collaborateurs déterminent la densité de dislocations à l'équilibre à l'interface d'une couche de composition constante épitaxiée directement sur un substrat par la minimisation de l'énergie élastique totale de la structure en faisant intervenir des termes d'interaction.

L'énergie élastique totale par unité de surface s'écrit toujours comme la somme d'une partie purement élastique (déformation de la maille) et d'une partie plastique (réseau de dislocations):

$$E_T = E_\epsilon + E_\delta' \quad (13)$$

où  $E_\epsilon$  est donnée par l'équation (2a) et  $E_\delta'$  par:

$$E_\delta' = \frac{2}{p} E_d + \frac{2}{p} E_{//} + \frac{1}{p^2} E_+ \quad (14)$$

Le premier terme de l'équation (14) représente l'énergie d'un réseau de dislocations qui n'interagissent pas entre elles. Le second terme représente l'énergie d'interaction d'un réseau de dislocations parallèles. Quant au troisième, il représente l'énergie d'interaction associée aux intersections entre dislocations orthogonales. On suppose que les dislocations sont régulièrement espacées avec une densité linéaire égale dans chacune des

deux directions  $\langle 110 \rangle$  du plan. Il y a ainsi une longueur totale de lignes de dislocations égale à  $2/p$  et un nombre total d'intersections égal à  $1/p^2$  par unité de surface.

Il y a quatre vecteurs de Burgers possibles pour une dislocation à caractère  $60^\circ$  s'alignant dans une des deux directions  $\langle 110 \rangle$  du plan d'interface. Par conséquent, il y a quatre sortes d'interactions entre deux lignes de dislocations parallèles dont deux s'avèrent attractives et deux répulsives. Comme ces dernières sont plus grandes en amplitude que les premières, en moyenne chaque dislocation subit **une interaction répulsive** avec une voisine parallèle. L'énergie d'interaction par unité de longueur d'une dislocation avec l'ensemble de ses voisines est donnée par:

$$E_{//} \approx \frac{\mu b^2}{4\pi(1-\nu)} \sum_{i=1}^{n_C} \ln \frac{R_C}{R_i} \quad (15)$$

où  $n_C$  désigne le nombre d'interactions prises en compte et il est défini comme le plus grand entier inférieur à  $R_C/p$ .  $R_i$  est la distance entre une dislocation et sa  $i^{\text{ème}}$  voisine, soit  $R_i = ip$ .  $R_C$  est défini comme le rayon de coupure d'interaction c'est-à-dire que les dislocations n'interagissent plus lorsqu'elles sont distantes de plus de  $R_C$ .

Deux lignes de dislocations orthogonales peuvent interagir. Comme il a été dit précédemment, il y a quatre vecteurs de Burgers possibles pour chacune des deux dislocations. Par conséquent, il y a au total 16 sortes d'interactions entre deux dislocations orthogonales. En moyenne, un élément différentiel d'une ligne de dislocation exerce une force répulsive sur un élément différentiel de la dislocation orthogonale. L'énergie d'interaction associée au croisement est donc positive et elle est évaluée à:

$$E_+ \approx R_C \frac{\mu b^2}{8} \quad (16)$$

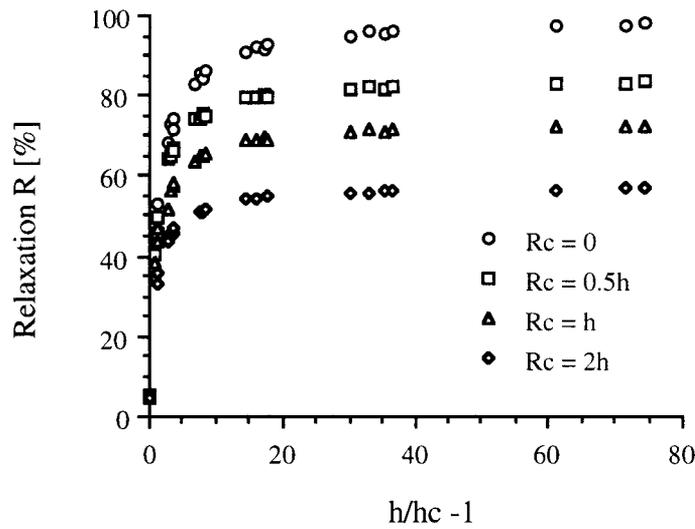
On a supposé ici que le rayon de coupure associé aux interactions perpendiculaires est le même que celui associé aux interactions parallèles.

La densité de dislocations de désadaptation de réseau à l'équilibre  $1/p_{\text{éq}}$  est obtenue en minimisant l'énergie totale de la structure par rapport à  $1/p$  (Equ. 3). Le résultat est:

$$\frac{1}{p_{\text{éq}}} \left[ h(1+\nu) + \frac{R_C(1-\nu)}{4} \right] + \frac{1}{2\pi} \left[ n_C + \sum_{i=1}^{n_C} \ln \frac{R_C}{ip_{\text{éq}}} \right] \\ \approx 2 \frac{h}{b} \varepsilon_0 (1+\nu) - \frac{1-\nu/4}{2\pi} \left[ \ln \frac{h}{r_0} + 1 \right] \quad (17)$$

Discussion du modèle

La densité de ddr à l'équilibre est calculée numériquement de façon récurrente. Connaissant les valeurs de  $1/p_{\text{éq}}$ , les déformations résiduelles ainsi que les coefficients de relaxation R sont déterminés. Nous avons effectué un certain nombre d'applications numériques de l'équation (17) avec différentes valeurs de déformation initiale  $\epsilon_0$ . Pour chacune d'elles, nous avons calculé  $1/p_{\text{éq}}$  en fonction de h et à différentes valeurs de  $R_C$ . La figure II.7 regroupe l'ensemble des applications numériques.



**FIGURE II.7:** Coefficients de relaxation en fonction des épaisseurs normalisées pour des systèmes de déformations initiales différentes et pour différents rayons de coupure d'interaction. (Applications numériques de l'équation (17)).

Pour une valeur donnée de  $R_C$ , tous les résultats se positionnent sur une même courbe lorsqu'ils sont représentés par leurs coefficients de relaxation en fonction de leurs épaisseurs normalisées. Pour chacune des quatre courbes tracées, nous distinguons encore une fois deux régimes de relaxation, l'un rapide aux faibles épaisseurs et l'autre lent aux épaisseurs importantes. On remarque que le rayon de coupure d'interaction influence différemment ces deux régimes. Aux faibles épaisseurs, les quatre courbes se rejoignent, ce qui indique que les interactions entre dislocations jouent un rôle très modéré dans l'évolution du coefficient de relaxation. Par contre, la valeur de  $R_C$  influence fortement le niveau de relaxation des couches lorsque les épaisseurs augmentent. Plus  $R_C$  est grand, plus le nombre de dislocations qui interagissent est important et plus le niveau de relaxation est faible.

En règle générale, le coefficient de relaxation d'une couche de composition constante déposée directement sur un substrat est compris entre 70 % et 90 %. Par conséquent, on s'attend à ce que le rayon de coupure d'interaction soit inférieur à

l'épaisseur des couches, ce qui est précisément le cas si on se réfère à la figure II.7. Avec ce modèle, il est possible de retrouver une valeur expérimentale de R en ajustant convenablement la valeur de  $R_C$ . Le tableau II.1 montre, par exemple, que l'on peut raisonnablement expliquer les expériences de Krishnamoorthy *et al.* [50] et celles de Dunstan *et al.* [48] en posant respectivement  $R_C = h$  et  $R_C = 0,5h$ .

**TABLEAU II.1:** Différents ajustements du rayon de coupure d'interaction afin de rendre compte précisément des valeurs expérimentales de coefficients de relaxation.

Références	Structures	$R_{exp}$ [%]	$R_C$ ( $R_{calc} = R_{exp}$ )
[48]	$In_{0,2}Ga_{0,8}As/GaAs$ $h = 0,8 \mu m$	85,8	0,42h
[48]	$In_{0,2}Ga_{0,8}As/GaAs$ $h = 0,4 \mu m$	84,4	0,45h
[50]	$In_{0,2}Ga_{0,8}As/GaAs$ $h = 1 \mu m$	70,7	1,08h
[50]	$In_{0,4}Ga_{0,6}As/GaAs$ $h = 1 \mu m$	73,4	0,97h

#### d) Les densités de dislocations émergentes

Nous savons déjà que la relaxation des contraintes liées à l'épitaxie d'une couche de composition constante sur un substrat de paramètre de maille différent s'effectue par l'introduction à l'interface de segments de dislocations. A chacun de ces segments on peut associer un ou deux segments de dislocations émergentes suivant que le mécanisme de génération des dislocations à l'interface est par exemple la courbure d'une dislocation de croissance ou la nucléation d'une demi boucle. Par conséquent, la relaxation plastique de ces structures s'accompagne en général de fortes densités de dislocations émergentes ( $10^8$ - $10^9 / cm^2$ ). Le fait qu'en réalité les lignes de dislocations à l'interface ne s'étendent pas d'un bord à l'autre de l'échantillon mais sont segmentées permet de relier la densité de dislocations émergentes  $n_E$ , par unité de surface, à la densité linéaire de dislocations de désadaptation de réseau  $n_L$  [30]:

$$n_E = 4 n_L^2 / m \quad (18)$$

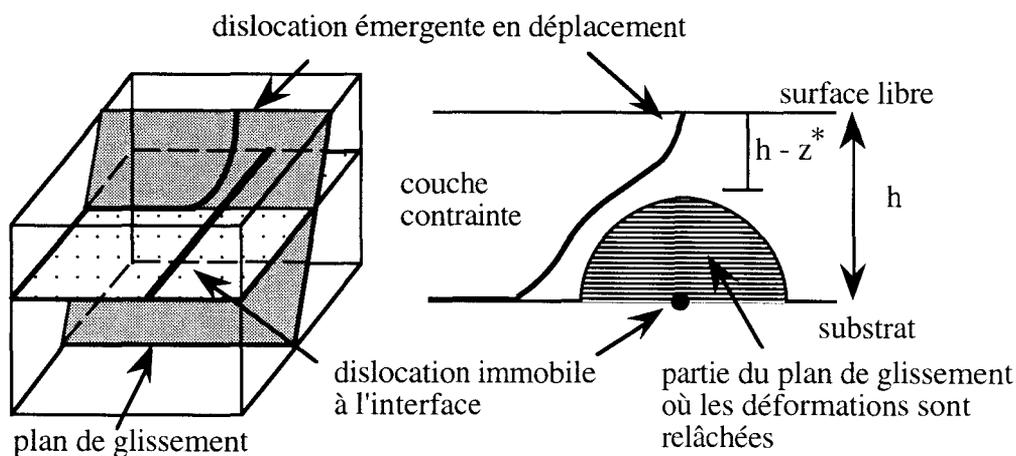
où la longueur moyenne d'une ligne de dislocation à l'interface est liée à  $n_L$  par:  $L_{moy} = m / n_L$ . La relation (18) suppose qu'il y a deux lignes de dislocations émergentes par segment de ddr.

Comme il y a un lien direct entre la densité de dislocations à l'interface et le niveau d'accommodation plastique, d'une certaine façon il existe un lien entre la densité de dislocations émergentes et la relaxation. Gillard et Nix [53] ont suivi au cours du temps l'évolution de la déformation élastique de structures SiGe/Si recuites. Connaissant la vitesse de déplacement des dislocations, ils ont ainsi montré que dans les derniers stades de la relaxation, *l'évolution de  $\epsilon(t)$  traduit une diminution significative de la densité de dislocations émergentes mobiles*. Il peut y avoir deux raisons à cela.

- i) Si le niveau de contrainte devient trop bas pour que de nouvelles dislocations puissent être générées pendant que les anciennes se déplacent jusqu'à ce qu'elles s'échappent par les bords de l'échantillon, alors la population de dislocations mobiles décroîtra.
- ii) Par ailleurs, l'interaction des dislocations mobiles avec les champs de contraintes de celles qui sont déjà à l'interface peut gêner leur déplacement et même provoquer leur arrêt.

L'étude du comportement plastique de structures de différentes tailles a conduit les auteurs à abandonner la première explication au profit de la seconde. En effet, si l'échappement des dislocations par les bords est la principale cause de la décroissance de la densité de dislocations mobiles alors une structure de plus petites dimensions latérales doit atteindre plus rapidement son plus bas niveau de déformation résiduelle. L'expérience a montré qu'il n'en était rien, par conséquent la diminution de la densité des dislocations mobiles est majoritairement due aux interactions entre dislocations.

Gillard et Nix ont considéré un type particulier d'interaction qu'il faut signaler, lequel a été traité en détail par Freund [54]. La figure II.8 en illustre schématiquement le principe.



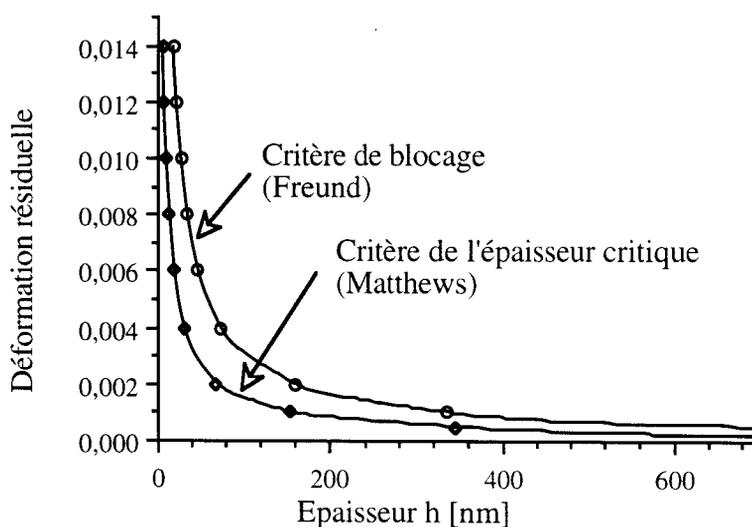
**FIGURE II.8:** Illustrations schématiques de l'interaction entre une dislocation émergente mobile et une dislocation de désadaptation de réseau immobile.

La figure II.8 montre une dislocation émergente en train de se déplacer dans son plan de glissement et qui rencontre sur son chemin une dislocation de désadaptation de réseau immobile perpendiculairement à la première. Le champ de contrainte associé à la ddr contrebalance la déformation élastique homogène de la couche sur une partie de l'épaisseur de celle-ci, laissant un canal de largeur plus faible que l'épaisseur de la couche à travers lequel la dislocation doit se déplacer.

La formulation mathématique exacte de cet événement est très compliquée. Toutefois, il existe une façon simple mais sensiblement moins précise de traiter le problème si on suppose que la déformation due à la ddr varie dans l'épaisseur de la couche en  $b/(2\pi z)$  à partir de l'interface et annule la déformation  $\epsilon_0$  sur une distance  $z^* \approx b/(2\pi\epsilon_0)$  au-dessus de l'interface. La déformation effective moyenne dans le canal  $z^* < z < h$  est:

$$\epsilon^* \approx \epsilon - \frac{b}{2\pi(h - z^*)} \ln \frac{h}{z^*} \quad (19)$$

Le critère de blocage est exprimé de la manière suivante: si la largeur du canal  $h - z^*$  est plus petite que l'épaisseur critique (Equ. I.21b) calculée pour la déformation  $\epsilon^*$  (19), alors la dislocation émergente sera arrêtée. La figure II.9 illustre graphiquement ce critère de blocage. Nous avons aussi représenté sur la même figure le critère de l'épaisseur critique que l'on déduit de l'équation I.21b (critère de Matthews). Le mécanisme de blocage ne joue pas un rôle prépondérant dans la relaxation plastique des systèmes ayant des caractéristiques déformations-épaisseurs qui les situent au-dessus et à droite de la courbe fléchée "critère de blocage". Par contre, le mécanisme de blocage sera important pour les systèmes dont leurs caractéristiques les situent entre les deux courbes.



**FIGURE II.9:** Représentation graphique du critère de blocage d'une dislocation émergente par une dislocation de désadaptation de réseau.

### e) Conclusion

Ce qui précède montre que les couches de compositions constantes directement épitaxiées sur des substrats ne rattrapent que partiellement leur paramètre de maille naturel. Il persiste **toujours** dans ces couches des déformations élastiques résiduelles. C'est un fait expérimental. Nous avons montré le rôle essentiel des **interactions** entre dislocations et le phénomène de **durcissement** qu'elles occasionnent aux grandes

épaisseurs dans la limitation de la relaxation. Non seulement ces interactions conduisent à des relaxations partielles mais elles engendrent aussi de fortes densités de dislocations émergentes (critère de blocage).

L'origine de cette relaxation partielle vient de ce qu'il existe **un seul interface** où viennent se localiser toutes les dislocations de désadaptation de réseau à l'équilibre. Au fur et à mesure qu'une couche relaxe ses contraintes, les dislocations à l'interface sont de plus en plus proches les unes des autres, ce qui donne aux termes d'interactions une part de plus en plus importante dans ce processus de relaxation.

Les modèles que nous avons présentés sont des modèles d'**équilibre**. Ces modèles sont de bons supports et permettent de cerner assez bien les comportements plastiques des couches épitaxiées. L'étude de l'évolution des déformations élastiques au cours du temps demanderait bien sur de faire intervenir des processus dynamiques (nucléation, multiplication, annihilation, propagation des dislocations). La dynamique contribue en réalité à retarder dans le temps les évolutions des comportements plastiques des couches décrits par les modèles d'équilibre. Si on laisse assez de temps aux systèmes, ils tendent vers des états d'équilibre. Comme les expériences sont de durées limitées, la relaxation est davantage partielle et les densités de dislocations émergentes sont de ce fait plus élevées.

## **II.3 LES HETEROSTRUCTURES DE COMPOSITIONS GRADUELLES PAR PAS (structures dites en "escalier")**

### **II.3.1 ASPECT DE LA QUALITE CRISTALLINE**

Les expériences montrent que la croissance directe d'un matériau très désadapté en paramètre de maille sur un substrat s'accompagne d'une forte densité de dislocations émergentes qui rend inintéressantes les propriétés électroniques du matériau en question. Nous avons montré dans le paragraphe précédent que les nombreuses interactions entre dislocations dues à une proximité forcée sont sans doute à l'origine de ce phénomène.

Une solution au problème des fortes densités de dislocations émergentes dans les structures relaxées est de créer une série d'interfaces faiblement désadaptées. Une manière de concrétiser cette idée est de fabriquer des hétérostructures de composition graduelle par pas ("escalier"). Le succès de ces structures tampons réside dans la valeur prise pour les sauts de compositions entre les couches successives. Quelle valeur judicieuse de  $\Delta x$  (où  $x$  désigne une composition) faut-il prendre pour obtenir une bonne relaxation plastique à chaque interface tout en préservant les couches supérieures de l'apparition de dislocations émergentes ?

Krishnamoorthy *et al.* [55-57] ont tenté d'apporter une réponse qui s'applique au système InGaAs/GaAs en introduisant par la même occasion un concept de "différence critique de composition". Ces auteurs ont d'abord caractérisé en microscopie électronique en transmission la qualité de couches  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  de différentes compositions déposées sur substrat GaAs et ayant déjà dépassé leur épaisseur critique [57]. Le résultat de leurs observations est la mise en évidence d'une "composition critique" égale à 0,18 en dessous de laquelle aucune dislocation n'est observée dans la couche, par contre de nombreuses dislocations sont injectées dans le substrat. Ce mécanisme particulier de relaxation s'observe aussi dans les systèmes SiGe/Si faiblement désadaptés [58]. Entre  $x = 0,18$  et  $x = 0,28$ , les dislocations se propagent à la fois dans le substrat et dans la couche tandis que pour  $x$  supérieur à 0,28, elles apparaissent toutes dans la couche.

Krishnamoorthy *et al.* interprètent leurs résultats en termes de "équilibre de forces". La force effective qui pousserait une dislocation à traverser une couche en direction de la surface peut s'exprimer par:

$$F^c = F_s^c + F_d^c - F_e^c - F_l^c - F_p^c - F_i^c \quad (20a)$$

où  $F_s^c$  est une force image due à la surface libre,  $F_d^c$  est une force répulsive engendrée par les dislocations à l'interface,  $F_e^c$  est une force induite par la déformation élastique homogène de la couche,  $F_l^c$  est une tension de ligne,  $F_p^c$  est une force de Peierls et  $F_i^c$  est une force image due à l'interface. La force effective qui pousserait une dislocation plus loin dans le substrat peut s'exprimer de même par:

$$F^s = F_d^s - F_e^s - F_l^s - F_p^s - F_i^s \quad (20b)$$

où les lettres s et c désignent respectivement le substrat et la couche.

Pour les couches InGaAs de faible composition en indium, la force image  $F_s^c$ , qui est inversement proportionnelle à l'épaisseur, tend vers zéro puisque les valeurs d'épaisseurs critiques sont grandes dans ces cas là. De plus, la désadaptation est essentiellement

accommodée par une déformation élastique de la couche, donc  $F_e^c \gg F_e^s$ , et par conséquent:

$$F^c \ll F^s \quad (21)$$

L'inégalité (21) indique que les dislocations devraient apparaître seulement dans le substrat, comme cela est observé en réalité. Dans le cas des couches InGaAs de fortes compositions en indium, la force image  $F_s^c$  devient très importante puisque les épaisseurs critiques sont faibles.  $F^c$  devient alors supérieure à  $F^s$ , les dislocations peuvent se propager dans la couche en direction de la surface.

Le modèle de Krishnamoorthy *et al.*, basé sur un équilibre de forces, permet d'interpréter qualitativement pourquoi, *pour les faibles désadaptations de paramètres de mailles, les dislocations apparaissent dans le substrat et non dans la couche.* Malheureusement, la façon dont ces dislocations peuvent être introduites dans le substrat est totalement occultée. L'apparition dans le substrat de boucles de dislocations résulte en fait de l'intersection à l'interface de deux lignes orthogonales de dislocations de même vecteur de Burgers. Une telle configuration est instable et conduit à l'annihilation de l'intersection, en particulier l'un des "coins" est dévié vers le substrat [59]. Ce "coin" peut être vu comme l'étape initiale d'une source de Frank-Read modifiée [58] à partir de laquelle des boucles de dislocations se forment et se propagent dans le substrat.

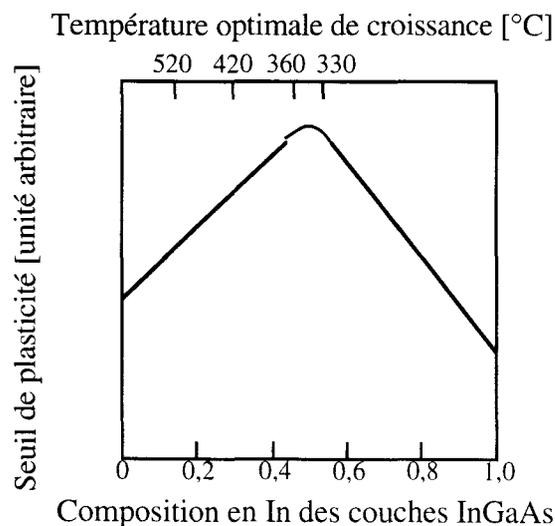
De même, la façon dont les dislocations apparaissent dans le volume d'une couche épitaxiée n'est pas explicitée par Krishnamoorthy *et al.*. Il semble que la dégradation de la qualité cristalline soit plutôt liée au mode de croissance. Dunstan *et al.* [60] ont montré que c'est le niveau de déformation élastique au début de la croissance d'une couche qui détermine la qualité cristalline de celle-ci. Il y a selon eux une déformation critique au-delà de laquelle la couche se dégrade. La valeur de cette déformation est évaluée à 1,8 % car elle correspond approximativement au niveau de déformation au-delà de laquelle ils observent dans le système InGaAs/GaAs une transition 2D-3D, c'est-à-dire un passage d'un mode de croissance en deux dimensions (surface plane) à un mode de croissance en trois dimensions (surfaces ondulées). Une transition 2D-3D est aussi observée dans le cas du système SiGe/Si pour des valeurs de déformations initiales supérieures à 1% environ [61, 62].

Même si les mécanismes de génération de dislocations soit dans le substrat soit dans la couche n'ont pas été explicitement décrits, Krishnamoorthy *et al.* ont mis en évidence des modes différents de relaxation dans le système InGaAs/GaAs qui ont permis d'introduire un concept essentiel pour la suite qui est celui de la "composition critique". Ce concept a été appliqué avec succès à la croissance des hétérostructures de composition graduelle par pas [55, 56]. La procédure de croissance est longue et elle est coûteuse en matériau.

La première étape consiste à faire croître une couche de composition  $x_1$  inférieure à la composition critique ( $x_1 < 0,18$ ), et à déterminer son état de contrainte. On calcule en particulier sa composition effective  $x_1'$  comme la composition du ternaire massif dont le paramètre de maille serait égal à celui mesuré dans le plan d'interface de la couche épitaxiée.

La deuxième étape consiste à faire croître deux couches d'InGaAs dont la première, la plus enterrée, est de composition  $x_1$ . Si la composition  $x_2$  de la seconde couche est telle que la différence  $x_2 - x_1'$  est inférieure à 0,18 alors les dislocations se propageront dans la couche inférieure et aucune dislocation émergente ne sera visible dans la couche supérieure. L'état de contrainte de la seconde couche est ensuite déterminé, ce qui permet de choisir une valeur de composition judicieuse de la troisième couche, et ainsi de suite.

Pour les empilements multimatériaux à base d'InGaAs, 0,18 représente la "différence critique de composition" au-delà de laquelle des dislocations émergentes sont créées dans les couches supérieures. Krishnamoorthy *et al.* ont pu faire croître en suivant cette méthode des couches d'InGaAs possédant de très faibles densités de dislocations émergentes (par exemple  $1-2 \cdot 10^3/\text{cm}^2$  pour une composition en indium de 35%). Toutefois, ils ont remarqué qu'au-delà de  $x = 0,5$  des dislocations apparaissent de nouveau dans les couches supérieures bien que la condition de différence critique de composition entre deux couches successives soit vérifiée ( $\Delta x < 0,18$ ). Ce "retournement de situation" est interprété en terme de seuil d'écoulement plastique. Ils déterminent, à partir de leurs observations, une évolution qualitative du seuil de plasticité à la température d'épitaxie en fonction de la composition  $x$  en indium. Ceci est représenté sur la figure II.10.



**FIGURE II.10:** Evolution conceptuelle du seuil de plasticité à la température de croissance en fonction de la composition  $x$  d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ , d'après [55].

Par conséquent, on peut utiliser la notion de différence critique de composition jusqu'à  $x \approx 0,5$  pour obtenir des couches d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  de faibles densités de dislocations émergentes puisque la relaxation des contraintes s'opère en générant des dislocations de préférence dans les matériaux les "moins durs", c'est-à-dire dans les couches sous-jacentes. Des structures tampons en "escalier" ont aussi été utilisées avec succès dans le système SiGe/Si [63] afin d'améliorer la qualité cristalline des couches en surface (il faut tout de même préciser que cela a été rendu possible à condition de recuire les structures avant le dépôt de chaque couche supplémentaire).

### II.3.2 ASPECT DE LA RELAXATION

#### a) Le modèle de Dunstan *et al.* [49, 64]

Il existe à notre connaissance dans la littérature qu'un seul modèle qui décrit la relaxation plastique des structures multicouches [64]. Le modèle en question est une extension aux empilements multimatériaux de la relaxation observée dans les simples couches [49]. Il est important de savoir non seulement comment une simple couche de composition constante relaxe ses contraintes pendant la croissance mais aussi si des couches déposées par dessus induisent ou empêchent les relaxations futures.

Les expériences montrent qu'un niveau d'accommodation plastique devient déTECTABLE lorsque les épaisseurs des couches dépassent nettement les épaisseurs critiques à l'équilibre [46, 47]. Il semble donc qu'il y ait, pour simplifier, deux sortes d'épaisseurs critiques (voir le chapitre I). La première est liée à l'apparition des dislocations tandis que la seconde est liée au début de la relaxation visible (i.e. détectable). Entre le moment où les premières dislocations apparaissent et celui où on commence à détecter une accommodation plastique, il peut se passer un temps plus ou moins long. Dunstan *et al.* [64] ont développé une théorie géométrique de l'épaisseur critique d'après laquelle l'épaisseur critique de relaxation d'une couche de déformation initiale  $\epsilon_0$  est donnée par:

$$h_{cr} = \frac{k}{\epsilon_0} \quad (22)$$

où  $k$  est appelée "**constante de relaxation**". Sa valeur a été déterminée expérimentalement:  $k = 0,83 \pm 0,1 \text{ nm}$  pour le système InGaAs/GaAs [48]. Par ailleurs, ces mêmes auteurs ont montré expérimentalement qu'une fois l'épaisseur  $h_{cr}$  dépassée, la relaxation d'une couche d'InGaAs suit la même relation déformation-épaisseur indépendamment de la désadaptation initiale, soit:

$$\epsilon = \frac{k}{h} \quad (23)$$

La valeur de  $k$  est la même que précédemment; il n'y a donc pas de discontinuité de la relaxation quand l'épaisseur  $h$  est égale à  $h_{cr}$ .

Le comportement plastique des structures multicouches peut être modélisé en utilisant les équations (22) et (23). La généralisation passe par une étape intermédiaire qui est l'introduction de la déformation moyenne,  $\epsilon_{moy}$ , d'une hétérostructure composée de  $n$  lamelles d'épaisseurs  $h_i$  et de déformations élastiques  $\epsilon_i$ :

$$\epsilon_{moy} = \frac{\sum_{i=1}^n \epsilon_i h_i}{\sum_{i=1}^n h_i} \quad (24)$$

On suppose alors que la déformation moyenne et l'épaisseur totale suivent aussi la relation (23), soit:

$$\epsilon_{moy} = \frac{k}{\sum_{i=1}^n h_i} \quad (25)$$

ou encore:

$$\sum_{i=1}^n \epsilon_i h_i = k \quad (26)$$

L'état de relaxation d'une structure multicouche est telle que la somme sur toutes les couches des produits de leur déformation par leur épaisseur est une constante. Nous montrons au chapitre V que ce résultat obéit en fait au critère de minimisation de l'énergie élastique de ces hétérostructures. Ce modèle permet premièrement de prévoir l'état de relaxation moyen d'une structure en escalier et deuxièmement d'obtenir une relation entre toutes les déformations élastiques résiduelles.

La relation (26) a une implication de première importance. Prenons le cas simple d'une hétérostructure constituée de deux couches de déformations originales  $\epsilon_{o1}$  et  $\epsilon_{o2}$  épitaxiées sur un substrat. Si la couche supérieure relaxe plastiquement par rapport à la couche sous-jacente, elle doit vérifier l'équation (23), donc le produit de sa déformation élastique par son épaisseur contribue intégralement à  $k$  dans la relation (26). La couche inférieure doit être de fait complètement relaxée ( $\epsilon_1 = 0$ ). Cela veut dire qu'indépendamment de l'épaisseur de la première couche, qu'elle soit en-dessous ou au-dessus de sa propre épaisseur critique de relaxation, sa déformation sera nulle quand l'épaisseur de la seconde couche atteindra l'épaisseur critique de relaxation pour une déformation correspondant à la différence des déformations élastiques initiales entre les deux couches,  $\Delta\epsilon = \epsilon_{o2} - \epsilon_{o1}$  \*:

$$h_2 = h_{cr2} = \frac{k}{\Delta\varepsilon} \quad (27)$$

\* Note: Si la première couche est complètement relaxée et si la seconde couche est totalement contrainte par rapport à la première (aucune dislocation dans l'interface entre ces deux couches), alors le niveau de déformation élastique de la seconde couche est plutôt donné par:

$$\varepsilon_2' = \varepsilon_{o2} - \frac{a_1}{a_2} \varepsilon_{o1} \approx \Delta\varepsilon \quad (28)$$

où  $a_1$  et  $a_2$  sont les paramètres de maille naturels respectifs des deux couches.

La question qui est posé est alors de savoir à quelle interface débute la relaxation plastique? Dunstan *et al.* démontrent que si les déformations élastiques sont toutes du même signe, la relaxation plastique débutera toujours à l'interface la plus enterrée. Considérons pour simplifier le cas  $\varepsilon_{o2} > \varepsilon_{o1}$ . La croissance de la première couche s'est déroulée sans que celle-ci soit relaxée. La couche de surface a une épaisseur critique égale à  $k/\varepsilon_{o2}$  par rapport à l'interface entre les deux couches, donc la relaxation plastique se produira à cette interface pour une épaisseur totale de la structure donnée par:

$$h_{cr2} = h_1 + \frac{k}{\varepsilon_{o2}} \quad (29)$$

D'un autre côté, l'hétérostructure peut être vue comme une simple couche de déformation  $\varepsilon_{moy}$  (donnée par l'équation (24) avec  $n=2$ ) dont l'épaisseur critique par rapport à l'interface avec le substrat est égale à  $h_{cr1} = k/\varepsilon_{moy}$ . Puisqu'au début de la relaxation plastique  $h_{cr1} = h_1 + h_2$ , nous obtenons après réarrangement:

$$h_{cr1} = h_1 + \frac{k}{\varepsilon_{o2}} - \frac{\varepsilon_{o1}}{\varepsilon_{o2}} h_1 < h_{cr2} \quad (30)$$

$h_{cr1}$  est toujours inférieure à  $h_{cr2}$  quand les deux déformations ont le même signe.

En conclusion, le processus de relaxation plastique des structures multicouches proposé par Dunstan *et al.* est le suivant. Quand la croissance commence, une hétérostructure croît de façon pseudomorphique jusqu'à une épaisseur critique même si plusieurs couches de déformations initiales différentes ont été déposées. Passant cette épaisseur critique, des dislocations sont générées et se localisent dans l'interface la plus profonde. Aucune relaxation ne peut se produire à une autre interface pendant que la première n'est pas totalement relaxée. Quand celle-ci le devient complètement, la croissance continue de façon pseudomorphique vis à vis de la première couche. Lorsque le reste de l'hétérostructure passe l'épaisseur critique, des dislocations sont introduites dans la seconde interface et la seconde couche relaxe ses contraintes. Ce processus de relaxation plastique couche par couche continue à chaque fois que l'épaisseur critique de

la partie non relaxée de l'empilement est dépassée. En fin de croissance, il reste quelques couches en surface qui sont totalement contraintes par rapport aux couches sous-jacentes.

### b) Ce que montre l'expérience

#### La "constante de relaxation" $k$

Nous avons regroupé dans le tableau II.2 des résultats d'expériences sur la caractérisation de la relaxation dans des hétérostructures de compositions graduelles par pas.

**TABLEAU II.2:** Calcul de la "constante de relaxation" de chaque hétérostructure à partir de données expérimentales tirées des références [49, 56, 65, 66].  $x_i$ ,  $h_i$ ,  $\epsilon_i$  représentent respectivement la composition, l'épaisseur et la déformation élastique résiduelle de chaque couche constituant une hétérostructure.

échantillons	$x_1$	$h_1$ [nm]	$\epsilon_1$ [%]	$x_2$	$h_2$ [nm]	$\epsilon_2$ [%]	$x_3$	$h_3$ [nm]	$\epsilon_3$ [%]	$k$ [nm]
Dun(2)1	0,1	120	0,25	0,2	120	0,45				0,84
Dun(2)2	0,1	120	0,09	0,18	120	0,58				0,80
Dun(3)3	0,09	120	0,064	0,18	120	0,11	0,29	120	0,49	0,80
Dun(2)4	0,08	50	0,45	0,29	50	1,0				0,73
Dun(3)5	0,085	50	0,43	0	50	0	0,27	50	1,16	0,80
Dun(2)6	0,14	100	0,44	0,26	50	1,05				0,97
Dun(2)7	0,20	230	0,168	0,34	200	0,167				0,72
Gon(2)1	0,1	120	0,040	0,2	120	0,58				0,74
Gon(3)2	0,1	120	0,060	0,2	120	0,18	0,3	120	0,515	0,94
Gon(2)3	0,1	115	0,09	0,2	115	0,58				0,77
Ferr(2)1	0,065	143	0,044	0,121	340	0,311				1,12
Ferr(2)2	0,068	239	0,033	0,123	244	0,349				0,93
Ferr(2)3	0,058	343	0,092	0,11	145	0,416				0,92
*Kri(2)1	0,14	200	0,20	0,22	200	0,566				1,53
*Kri(3)2	0,14	200	0,17	0,22	200	0,33	0,3	200	0,71	2,42

\*Note: Krishnamoorthy *et al.* [56] présentent leurs résultats expérimentaux sous la forme de désadaptations de paramètres de mailles parallèles ( $f_{//}$ ). Un calcul intermédiaire doit donc être effectué afin de déterminer la déformation parallèle ( $\epsilon_{//}$ ) correspondante. Connaissant la désadaptation des paramètres de mailles ( $f$ ), cette transformation est réalisée en appliquant l'équation suivante:

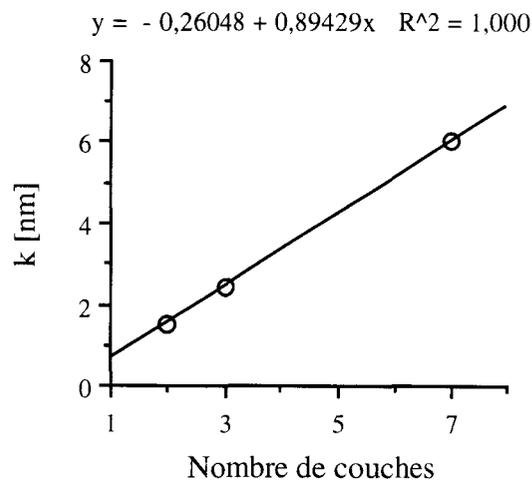
$$\epsilon_{//} = \frac{f - f_{//}}{1 + f} \quad (31)$$

Ces études portent sur le système InGaAs/GaAs et ont été menées par différents groupes [49, 56, 65, 66]. Le détail de ces structures (composition, épaisseur, déformation résiduelle de chaque couche constituant une hétérostructure) a été reporté dans ce tableau. Le nom de chaque échantillon a été rebaptisé de telle sorte que les trois premières lettres correspondent aux trois premières lettres des auteurs et le chiffre entre parenthèses indique le nombre de couches d'une hétérostructure.

Nous avons calculé pour chaque hétérostructure une valeur de  $k$ . Exceptés les deux derniers échantillons Kri(2)1 et Kri(3)2, les valeurs de  $k$  sont assez peu dispersées et sont positionnées autour d'une valeur moyenne égale à  $0,85 \pm 0,11$  nm. Les structures de Krishnamoorthy *et al.* [55, 56] conduisent à des valeurs de  $k$  plus grandes que la moyenne. Néanmoins, ce cas n'est pas isolé. Gonzalez *et al.* [67] ont appliqué la formule (26) à leurs résultats et ont déterminé une valeur numérique de  $k$  égale à  $3,8$  nm\*. L'hétérostructure étudiée était constituée de six couches d'InGaAs d'épaisseurs identiques égales à 125 nm et de composition en indium variant de 5 % à 30 % par pas de 5 %, puis d'une couche d'InGaAs à 27 % d'In et d'épaisseur 500 nm, le tout déposé sur un substrat GaAs.

\*Note: l'application de l'équation (26) donne une valeur de  $k$  égale à  $6,0$  nm. La valeur, semble-t-il erronée, de 3,8 nm donnée par Gonzalez *et al.* peut être retrouvée si on considère que la dernière couche ( $x=27$  % d'In) a une épaisseur de 125 nm (comme les autres) au lieu de 500 nm en réalité.

Les résultats de ces deux équipes laissent à penser que les valeurs de  $k$  ont tendance à être plus grandes lorsque le nombre de couches augmente. Cette remarque est illustrée sur la figure II.11.



**FIGURE II.11:** Evolution de la "constante de relaxation" en fonction du nombre de couches d'une structure en "escalier". Les deux premiers points sont déduits des résultats de Krishnamoorthy *et al.* [56] et le troisième de Gonzalez *et al.* [67].

La relation rigoureusement linéaire entre les valeurs de  $k$  et le nombre de couches constituant "l'escalier" est sans doute fortuite compte tenu du trop petit nombre de points.

### *La relaxation aux interfaces*

Les expériences montrent que plus une couche est enterrée, plus l'accommodation plastique de ses contraintes est meilleure. Inversement, les couches superficielles sont toujours moins relaxées que les autres [49, 55, 56, 60, 64, 65-68]. De plus, les couches profondes continuent de relaxer plastiquement au fur et à mesure que de nouvelles couches sont déposées par dessus. Cela a été observé aussi bien pour le système InGaAs/GaAs [55, 56] que pour SiGe/Si [68]. La relaxation plastique des contraintes débute bien aux premières interfaces suivant en cela les prédictions du modèle de Dunstan *et al.* [64].

### *Zéro de déformation*

Ferrari *et al.* [66] ont étudié la relaxation des contraintes dans des doubles hétérostructures InGaAs sur substrat GaAs. Le détail des trois hétérostructures en question est présenté dans le tableau II.2 sous les noms Ferr(2)*i* (*i* = 1, 2, 3). Elles sont constituées de deux couches d'InGaAs de compositions en moyenne égales à  $x_2 = 0,18$  pour la couche en surface et  $x_1 = 0,064$  pour la couche enterrée. Ces auteurs ont remarqué que les trois couches enterrées sont plus relaxées que les trois couches en surface. Ils ont remarqué en particulier que la déformation résiduelle de ces dernières suit une loi en  $h^{-1/2}$ , où  $h$  représente l'épaisseur de ces couches. Ce résultat est interprété comme une preuve que l'énergie élastique par unité de surface reste constante pendant la croissance.

Une autre façon de discuter des résultats expérimentaux de Ferrari *et al.* est de se demander dans quelle mesure la croissance d'une couche supplémentaire peut amener la couche sous-jacente à relaxer complètement ses contraintes. L'épaisseur totale  $h_1 + h_2$  des échantillons est constante, égale à environ 500 nm. Les trois structures se distinguent essentiellement par les rapports différents  $h_2/h_1$  des épaisseurs des deux couches. Ce rapport est successivement supérieur, environ égal et inférieur à 1.

Les données expérimentales montrent tout d'abord l'influence du rapport  $h_2/h_1$  sur les niveaux d'accommodation plastique des deux couches. Plus  $h_2/h_1$  est grand ( $>1$ ) et plus les déformations résiduelles sont faibles. Les coefficients de relaxation de l'échantillon Ferr(2)1 sont respectivement de 64 % et 90 % environ pour la couche supérieure et inférieure alors qu'ils sont approximativement de 47 % et 78 % pour l'échantillon Ferr(2)3. Ces deux structures représentent les cas extrêmes où le rapport  $h_2/h_1$  est respectivement supérieur et inférieur à 1.

En parallèle, il semble surprenant au premier abord que *plus l'épaisseur de la couche enterrée est grande et moins elle relaxe plastiquement*. Son coefficient de

relaxation passe en effet de 90 % (Ferr(2)1) à 78 % (Ferr(2)3) quand son épaisseur passe de 150 nm à 350 nm environ. Nous pouvons essayer d'interpréter ce résultat en terme d'épaisseur critique de relaxation  $h_{cr}$  (i.e. épaisseur au-delà de laquelle un niveau d'accommodation plastique des contraintes devient détectable).

A 150 nm, l'épaisseur de la première couche ( $x \approx 0,064$ ) est sans doute trop faible pour que celle-ci puisse relaxer ses contraintes ( $h_{cr} = 200$  nm pour  $x \approx 0,07$  [11]). La croissance d'une couche supplémentaire désadaptée en paramètre de maille contribue à l'augmentation de l'état de contrainte de la structure et le fait que celle-ci soit très contrainte au départ donne plus de "poids" à la couche supérieure. Déposer une première couche de faible épaisseur ( $h < h_{cr}$ ) est de ce point de vue plutôt bénéfique. De plus, non seulement l'épaisseur de la couche en surface est supérieure à la première (350 nm contre 150 nm) mais elle est aussi supérieure à l'épaisseur critique donnée par l'équation (27) (250 nm environ). D'après le critère de Dunstan *et al.*, l'épaisseur de la seconde couche est donc suffisante pour amener la couche sous-jacente à un niveau zéro de déformation. Les données de l'échantillon Ferr(2)1 montrent que l'influence de la couche supérieure va dans ce sens bien que 10 % de la déformation élastique initiale soit encore contenue dans la couche enterrée.

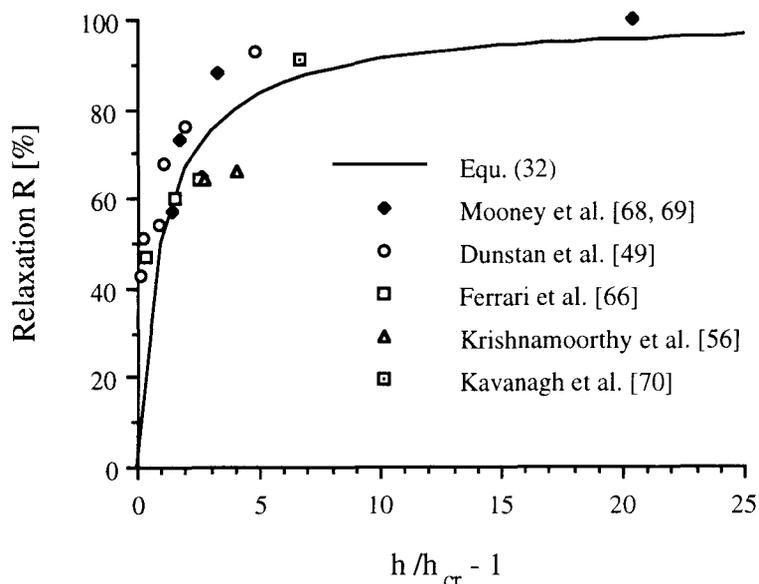
L'état de relaxation moins bon de la structure Ferr(2)3 peut être interprété de la même manière. L'épaisseur de la première couche est cette fois-ci telle qu'elle a commencé seule à relaxer plastiquement ses contraintes ( $h_1 \approx 350$  nm  $> h_{cr}$ ). La croissance de la seconde couche s'effectue alors sur une structure partiellement relaxée, ce qui diminue son "poids" d'autant plus que son épaisseur est trop faible pour satisfaire à la condition de Dunstan *et al.* représentée par l'équation (27) ( $h_2 = 150$  nm environ).

#### *Taux de relaxation des couches en surface*

D'après Dunstan *et al.* [64], il existera toujours des déformations résiduelles en fin de croissance, notamment si la dernière couche relaxe plastiquement, auquel cas sa déformation résiduelle est donnée par l'équation (23). Son coefficient de relaxation est déduit de l'équation (6), soit après simplification, par:

$$R = 1 - \frac{h_{cr}}{h} \quad (32)$$

Nous avons reporté sur la figure II.12 les coefficients de relaxation mesurés à la surface d'hétérostructures en "escalier" en fonction des épaisseurs des dernières couches normalisées à l'épaisseur critique de relaxation  $h_{cr}$  (Equ. 22). Globalement, les valeurs de R mesurées se distribuent autour de la courbe tracée à partir de l'équation (32).



**FIGURE II.12:** Coefficients de relaxation expérimentaux de différentes couches en surface en fonction des épaisseurs normalisées de celles-ci. Les points en plein sont issus du système SiGe/Si, les autres du système InGaAs/GaAs.

Enfin, des structures dites en "escalier" ont été utilisées comme structures tampons entre substrat et couche active. Nous avons reporté dans le tableau II.3 les coefficients de relaxation de couches d' $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ , qui est le matériau en surface, pour trois types d'"escaliers". Le meilleur taux de relaxation de la couche superficielle est de 91 %.

**TABLEAU II.3:** Coefficient de relaxation de la couche en surface dans trois cas différents.

Référence	Structure	R [%]
Dunstan <i>et al.</i> [49]	$x = 0,1/ 0,2/ 0,3$ $h = 120 \text{ nm}$	76
Krishnamoorthy <i>et al.</i> [56]	$x = 0,14/ 0,22/ 0,3$ $h = 200 \text{ nm}$	66
Kavanagh <i>et al.</i> [70]	$x = 0,1/ 0,2/ 0,3$ $h = 300 \text{ nm}$	91

### II.3.3 CONCLUSION

Les exemples qui précèdent illustrent le fait que les hétérostructures InGaAs/GaAs et SiGe/Si de compositions graduelles par pas sont efficaces pour diminuer les densités de dislocations qui émergent aux surfaces. Par contre, ce type de structure ne conduit que très rarement à des relaxations plastiques totales des couches superficielles. Mais ce qui transparait le plus des nombreuses études rapportées dans la littérature est la difficulté de mettre en œuvre une bonne structure en "escalier" lorsque l'on "perçoit" l'importance des

sauts des compositions et des épaisseurs de chaque lamelle. Les problèmes posés par l'épitaxie de ces structures complexes, associant le plus souvent aux sauts de composition des sauts de température rendus nécessaires pour préserver la qualité cristalline de chaque couche, et aussi celle des interfaces, rendent aléatoires la reproductibilité, et donc l'efficacité, des propriétés de relaxation attendues de ce type d'empilement. C'est une des raisons pour lesquelles nous nous sommes tournés vers les couches de compositions graduelles linéaires.

## **II.4 LES HETEROSTRUCTURES DE COMPOSITIONS GRADUELLES LINEAIRES (Structures dites à "rampes")**

### **II.4.1 LES DISLOCATIONS EMERGENTES**

Nous avons discuté précédemment que la clef du problème de la réduction des densités de dislocations émergentes réside sans doute dans la multiplication du nombre d'interfaces. Cette idée est poussée "à l'extrême" dans le cas d'une structure de composition graduelle linéaire dite à "rampe". Pour ce type d'échantillon, on peut penser que chaque plan atomique est désadapté en paramètre de maille par rapport au plan sous-jacent et offre potentiellement une position d'équilibre pour une dislocation de désadaptation de réseau. Tout se passe comme si il n'y avait plus un seul plan d'interface (comme dans le cas de l'épitaxie d'une couche de composition constante) mais une multitude "d'interfaces virtuelles" qui sont autant de positions d'équilibre possibles pour les ddr.

Nous retrouvons donc localement au sein d'une "rampe" des systèmes faiblement désadaptés. Or ces systèmes ont la particularité de relaxer les contraintes élastiques en introduisant notamment des dislocations dans les couches inférieures suivant des mécanismes discutés au paragraphe II.3.1. Cela va bien évidemment dans le sens d'une réduction de densité de dislocations émergentes. Augmenter le nombre de plans désadaptés permet aussi de mieux répartir les dislocations dans la structure. Il y a potentiellement moins de dislocations à proximité les unes des autres et par conséquent les mécanismes d'ancrage de celles-ci sont très affaiblis. Ceci offre une possibilité de plus aux bras des dislocations émergentes de s'échapper par les bords de l'échantillon. En particulier, le mécanisme de blocage d'une dislocation émergente par une dislocation de désadaptation de réseau évoqué par Freund [54] est quasi inexistant dans les "rampes" puisque dans ce cas la dislocation mobile peut surmonter cette difficulté en changeant de plan (001).

Il semble que la principale cause de réduction des densité de dislocations

émergentes est l'annihilation directe de ces dernières, ce qui n'est pas évident a priori [71, 72]. L'annihilation des segments émergents se produit à une plus grande échelle que prévue parce que le mécanisme de multiplication des dislocations conduit à un auto-alignement des sources. L'organisation des sources dans les couches de composition graduelle linéaire a été observée par microscopie électronique en transmission [72] et par microscopie à force atomique [73, 74] où cet événement se traduit par l'apparition à la surface de bandes de cisaillement.

Nous savons que la qualité cristalline des couches est étroitement liée au mode de croissance de celles-ci, en particulier nous connaissons les effets néfastes d'une transition 2D-3D de ces modes. Cette transition est attribuée dans le cas de l'épitaxie d'une couche de composition constante au niveau de déformation élastique en surface ( $\epsilon > \epsilon_c$ ). Dutartre *et al.* [62] ont postulé qu'il en est de même pour les couches graduelles, à savoir que la surface de ces dernières sera ondulée si la déformation élastique en cet endroit des échantillons  $\epsilon_s$  est supérieure à une certaine déformation critique  $\epsilon_c$ . Comme  $\epsilon_s$  dépend du gradient de déformation  $\epsilon'$  de la "rampe" [29], les auteurs prédisent pour le système SiGe/Si une dégradation de la surface si  $\epsilon'$  est supérieur à  $0,057 \mu\text{m}^{-1}$ , ce qui correspond à un gradient de composition de 137 % de Ge /  $\mu\text{m}$  ! Leurs observations en AFM ont confirmé cette prédiction. Ce seuil est trop élevé pour que nous puissions être confrontés à une transition 2D-3D du mode de croissance des couches de composition graduelle linéaire usuelles.

#### **II.4.2 RELAXATION PLASTIQUE D'UNE COUCHE DE COMPOSITION GRADUELLE: Le modèle de Tersoff [29]**

Le cas de la relaxation plastique d'une couche de composition graduelle a été considéré par Tersoff [29]. On en résume ici les principaux résultats.

##### **a) Cas général**

Une couche d'épaisseur  $w$  et de composition graduelle entre  $0 \leq z \leq w$ , où  $z$  est la distance depuis l'interface avec le substrat, est déposée par épitaxie sur ce dernier. Pour chaque  $z$  on définit un paramètre de maille  $a(z)$  égal à celui du matériau massif correspondant et une déformation élastique initiale  $\epsilon_0(z) = a_0 / a(z) - 1$ , où  $a_0$  est le paramètre de maille du substrat. L'énergie élastique totale de la structure est généralisée à partir de l'équation (1) et se compose toujours de deux termes qui sont une énergie élastique due aux réseaux de dislocations qui sont apparus dans l'épaisseur de la couche (premier terme de l'expression ci-dessous) et une énergie élastique due à la déformation élastique  $\epsilon$  qui persiste dans la couche (second terme de l'expression ci-dessous), soit:

$$E = 2E_d \int_0^w \rho(z) dz + c \int_0^w \left( \varepsilon_0(z) - b_e \int_0^z \rho(\zeta) d\zeta \right)^2 dz \quad (33)$$

Ici,  $\rho(z)$  est la densité de dislocations dans une section droite, à la côte  $z$ , de l'échantillon par unité de surface, supposée égale dans les deux directions  $\langle 110 \rangle$  des plans (001).

$c$  est un module élastique ( $c = 2\mu(1+\nu)/(1-\nu)$ ) et  $b_e$  est la composante du vecteur de Burgers efficace pour la relaxation ( $b_e = b/2$  pour les dislocations de caractère  $60^\circ$ ). La principale approximation dans l'expression de l'équation (33) est de prendre l'énergie élastique des dislocations,  $E_d$ , égale à une constante.

On détermine la distribution  $\rho(z)$  à l'équilibre en minimisant l'énergie  $E$  par rapport à  $\rho(z)$ , tout en respectant également la condition que  $\rho(z)$  soit toujours supérieure ou égale à 0. Si on suppose par ailleurs un gradient de composition monotone avec une désadaptation plus petite à l'interface avec le substrat qu'en surface, le résultat est:

$$\rho(z) = \frac{\varepsilon'(z)}{b_e}, \quad 0 \leq z \leq z_c \quad (34)$$

où  $\varepsilon'(z) = d\varepsilon/dz$  est le gradient de déformation en  $z$ . L'équation (34) nous dit que la densité à l'équilibre de dislocations est suffisante pour effacer toute désadaptation de paramètre jusqu'à une distance  $z_c$  au-dessus de l'interface et qu'il n'y a plus aucune dislocation au-delà de  $z_c$ .

La frontière  $z_c$  de la région libre de dislocations est donnée par la condition:

$$\int_{z_c}^w \left[ \varepsilon_0(z) - \varepsilon_0(z_c) \right] dz = \frac{E_d}{b_e c} \quad (35)$$

*Note:*

Comme il n'y a de déformation élastique résiduelle qu'entre  $z_c$  et  $w$ , la condition (35) exprimée de cette façon est une généralisation aux structures graduelles de la relation (26) de Dunstan *et al.* [49] écrite pour les structures multicouches en posant  $\mathbf{k} = \mathbf{E}_d / \mathbf{b}_e c$ .

### b) Cas de la "rampe" simple ( $\varepsilon_0(z) = \varepsilon'z$ )

Nous considérons le cas d'une couche de composition graduelle le plus répandu qui est celui où le gradient est linéaire soit  $\varepsilon_0(z) = \varepsilon'z$  et  $\varepsilon'$  est constant.

Dans ce cas, la densité de dislocations est constante dans l'épaisseur de l'échantillon et permet toujours de rattraper tout incrément de déformation élastique entre l'interface avec le substrat et  $z_c$ . La frontière est alors donnée par:

$$z_c = w - w_c, \quad \text{avec} \quad w_c = \sqrt{\frac{2k}{\epsilon'}} \quad (36)$$

Ainsi, pour une déformation élastique initiale totale de  $w\epsilon'$ , seule une partie  $z_c\epsilon'$  est relaxée par les dislocations. Il reste en surface une déformation résiduelle  $\epsilon_s$  (voir la figure II.13):

$$\epsilon_s = w\epsilon' - z_c\epsilon' = \sqrt{2k\epsilon'} \quad (37)$$

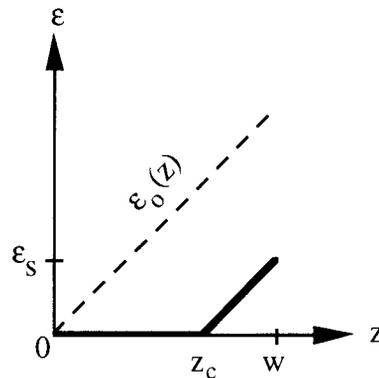


FIGURE II.13: Profil de déformation résiduelle dans l'épaisseur d'une rampe simple.

Une des caractéristiques importantes au sujet de la relaxation des "rampes" simples est la suivante: une fois que l'épaisseur critique  $w_c$  pour l'apparition des premières dislocations est atteinte, la déformation résiduelle  $\epsilon_s$  et l'épaisseur libre de dislocations  $w - z_c$  restent toutes deux *constantes* pendant la croissance de la couche. Si l'équilibre thermodynamique pouvait être maintenu pendant la croissance, la "rampe" simple aurait de fait la particularité de conserver à proximité de la surface une partie de l'échantillon libre de dislocations et d'épaisseur égale à l'épaisseur critique à l'équilibre.

#### II.4.3 LA "RAMPE" SIMPLE COMME COUCHE TAMPON: LE METAMORPHISME

Les couches de composition graduelle linéaire sont aussi utilisées comme structures intermédiaires entre substrat et couche active. Le taux de relaxation d'une couche plateau dépend de la configuration en fin de "rampe". Nous exposons les cas où la composition de la couche superficielle est égale, inférieure ou supérieure à celle atteinte à la sortie de la couche graduelle.

Dans le cas général, le modèle de Tersoff est appliqué à une structure dont le profil de déformation élastique initiale est alors donné par:

$$\epsilon_0(z) = \epsilon'z, \quad 0 \leq z \leq w \quad (38a)$$

$$\varepsilon_0(z) = \varepsilon_{0,\text{plat}} = \varepsilon'w + \Delta\varepsilon_0, \quad w \leq z \leq w + h \quad (38b)$$

$h$  et  $\varepsilon_{0,\text{plat}}$  sont respectivement l'épaisseur et la déformation élastique initiale de la couche plateau (i.e. de composition constante).  $\Delta\varepsilon_0$  est une quantité qui peut être nulle ou négative ou positive lorsque la composition de la couche plateau est respectivement égale, ou inférieure, ou supérieure, à celle atteinte à la fin de la "rampe". Les profils de déformation élastique initiale dans l'épaisseur des structures sont représentés sur la figure II.14 par des traits en pointillés.

Comme précédemment, les dislocations vont se distribuer de façon homogène dans la couche de composition graduelle linéaire et en densité suffisante pour relâcher tout incrément de déformation élastique entre 0 et  $z_c'$ , puis plus aucune dislocation au-delà. La nouvelle frontière entre la partie disloquée et non disloquée dans la "rampe" va dépendre à la fois de l'épaisseur et de la déformation élastique initiale de la couche plateau par l'intermédiaire de  $\Delta\varepsilon_0$ , soit:

$$z_c' = w + h - \sqrt{\frac{2k}{\varepsilon'} + h^2 - \frac{2h}{\varepsilon'} \Delta\varepsilon_0} \quad (39)$$

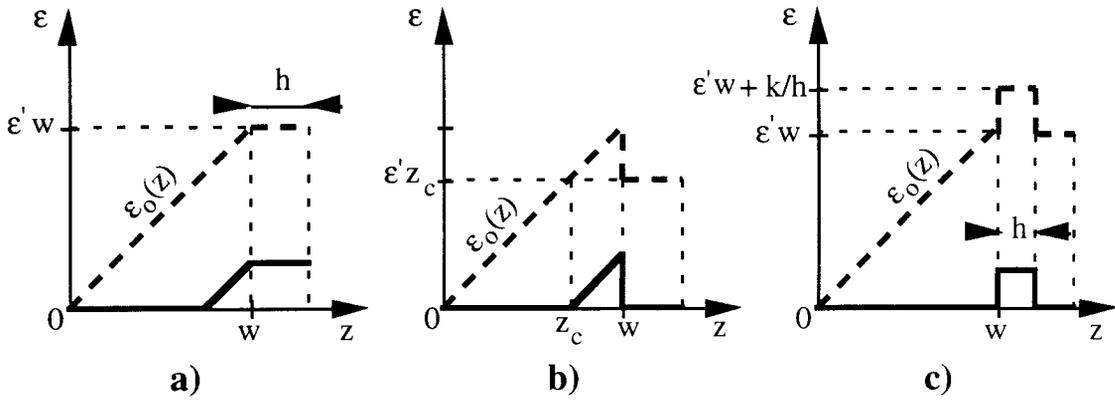
où  $k = E_d / b_{ec}$ .

Une couche de composition graduelle linéaire est presque toujours associée à une couche plateau adaptée en composition à la sortie de la "rampe". Cette configuration représente le cas où  $\Delta\varepsilon_0 = 0$ . Intuitivement, le dépôt d'une telle couche contraint encore plus la structure épitaxiée dans son ensemble. Ceci est traduit par l'équation (39) qui montre que la frontière  $z_c'$  se déplace, ou plus précisément augmente et tend vers  $w$  (i.e. fin de la "rampe") quand l'épaisseur de la couche tend vers l'infini. La déformation élastique résiduelle dans la couche plateau, qui est égale à  $\varepsilon_{0,\text{plat}} - \varepsilon'z_c'$ , est alors donnée par:

$$\varepsilon_{\text{plat}} \approx \frac{k}{h} \quad \text{quand } h \rightarrow \infty \quad (40)$$

Une telle configuration à l'équilibre ne peut pas conduire à une relaxation totale de la couche plateau. Ceci est illustré sur la figure II.14a.

Afin de contourner cet obstacle, Cao *et al.* [75] ont, les premiers, eu l'idée d'augmenter la composition atteinte en fin de "rampe" par rapport à la composition visée de la couche plateau. Le raisonnement est le suivant: en déposant une couche sur une autre de telle sorte que les paramètres de maille parallèles sont égaux à l'interface de ces deux matériaux, on "gèle" à cet interface les déformations élastiques résiduelles de la première couche. On évite donc la relaxation des contraintes résiduelles pendant la croissance de la couche superficielle supplémentaire.



**FIGURE II.14:** Profils dans l'épaisseur des déformations élastiques résiduelles à l'équilibre de trois hétérostructures différentes quant à la configuration de la sortie de la couche graduelle:  
 a) association "rampe" + couche plateau sans décrochement de composition,  
 b) association "rampe" + couche plateau avec décrochement (négatif) de composition,  
 c) association "rampe" + couche plateau avec décrochement (positif) de composition.

D'après Tersoff [29], ceci est rendu possible, dans le cas présent d'une association "rampe" + couche plateau, en égalisant la déformation élastique initiale de la couche plateau à celle atteinte à la côte  $z_c$  dans l'épaisseur de la "rampe". Le décrochement (négatif) de composition correspondant est tel que:

$$\Delta \epsilon_0 = -\epsilon' w_c \Rightarrow \epsilon_{\text{plat}} = 0 \quad (41)$$

où  $w_c$  est calculé par l'équation (36). La couche plateau se trouve alors dans un état de contrainte nulle. La figure II.14b illustre ce cas. Ce résultat peut bien évidemment être retrouvé avec l'équation (39).

Le raisonnement étant assimilé, nous proposons une alternative au cas de figure précédent. Cette nouvelle configuration en sortie de "rampe" qui n'a pas encore été testée expérimentalement, demande une procédure en deux étapes. La première étape consiste à croître une couche plateau qui va entraîner une relaxation complète de la "rampe".  $z_c$  est alors égale à  $w$ . Le décrochement (positif) de composition correspondant est tel que (d'après l'équation (39)):

$$\Delta \epsilon_0 = +\frac{k}{h} \quad (42)$$

La croissance d'une seconde couche plateau de même composition que celle visée pour la fin de la couche graduelle "gèle" à l'interface la déformation résiduelle de la première couche plateau. La couche superficielle est alors dans un état de contrainte nulle. Ce cas est illustré sur la figure II.14c. Compte tenu des difficultés supplémentaires pour la réalisation de cette structure, difficultés liées à la réalisation d'un interface supplémentaire, c'est la configuration précédente représentée sur la figure II.14b que nous avons choisie pour tenter d'obtenir une couche active non contrainte.

## **II.5 CONCLUSION**

Ce chapitre nous a permis de comparer le comportement vis à vis de la relaxation plastique des contraintes élastiques emmagasinées lors de la croissance par épitaxie des simples couches de compositions constantes, des hétérostructures de compositions graduelles par pas et aussi linéaires:

→ Une couche de composition constante directement épitaxiée relâche partiellement ses contraintes internes, même pour des épaisseurs importantes de celle-ci. De plus, lorsque la désadaptation de paramètres de mailles entre la couche épitaxiée et le substrat est importante, la qualité cristalline de la couche est fortement dégradée. Il est suggéré que l'origine du comportement médiocre des couches de composition constante est l'existence dans ces cas d'une interface unique où doivent se localiser toutes les dislocations si ces matériaux sont à même de relâcher leurs contraintes.

→ Une très nette amélioration de la qualité cristalline des couches en surface peut être obtenue en multipliant le nombre d'interfaces dans les structures (par exemple [55]). La démarche est, pour un système très désadapté au départ, d'obtenir une succession de systèmes qui le sont faiblement l'un par rapport à l'autre sous-jacent. Or ces systèmes multicouches ont la particularité de relâcher plastiquement leurs contraintes élastiques en introduisant des dislocations plutôt dans les couches inférieures, ce qui réduit considérablement les densités de dislocations émergentes. De ce point de vue, les couches de compositions graduelles linéaires sont de parfaits exemples. La multiplicité des interfaces est ici quasi infinie, à l'échelle des monocouches, et le comportement global de ces matériaux n'est pas loin de ressembler à celui d'un système faiblement désadapté [58].

→ Il reste malheureusement, même pour ces structures, des déformations résiduelles en surface. La persistance de telles déformations peut toutefois être exploitée avec profit. On peut en particulier réaliser des "décrochements de composition" qui exploitent cette propriété. La valeur du décrochement doit dépendre de façon critique de la façon dont la "rampe" a relâché ses contraintes. L'aspect quantitatif du problème met en jeu une caractérisation structurale poussée, soit par rayons X, soit par microscopie électronique, soit de façon plus judicieuse par une combinaison des deux techniques utilisées en complémentarité. Les deux chapitres suivants sont surtout consacrés à la caractérisation par Rayons X. C'était en bonne part l'enjeu de ce travail.

## **CHAPITRE III**

### **APPLICATION DE LA DIFFRACTION DES RAYONS X A LA CARACTERISATION STRUCTURALE DES COUCHES EPITAXIEES**

#### **III.1 CHOIX DES STRUCTURES**

#### **III.2 DETERMINATION EXPERIMENTALE DU TAUX DE RELAXATION PLASTIQUE PAR DIFFRACTION DES RAYONS X**

##### **III.2.1 La diffraction des rayons X**

##### **III.2.2 Principe du calcul de détermination de $x$ et de $R$**

##### **III.2.3 Problèmes liés à l'élargissement des pics de diffraction**

**a) Origines**

**b) Influence d'une fente fine verticale devant le détecteur**

##### **III.2.4 Conclusion**

Dans ce chapitre, nous commençons par une présentation des différents échantillons que nous avons étudiés. Le détail et l'intérêt de chacune des structures sont discutés. La seconde partie est consacrée à la détermination expérimentale du taux de relaxation plastique par double diffraction des rayons X en mode haute résolution. Une description du dispositif expérimental est faite et une méthode de calcul de la composition  $x$  et du taux de relaxation  $R$  est donnée. Nous terminons par un exposé de problèmes métrologiques posés par la caractérisation par Rayons X de matériaux fortement contraints.

### **III.1 CHOIX DES STRUCTURES**

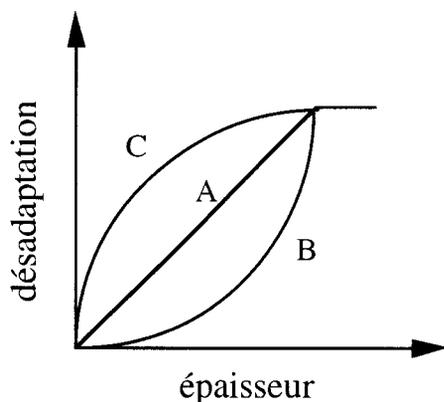
Nous avons vu au chapitre précédent que l'introduction d'une structure de composition graduelle entre des couches actives et leur substrat permet d'améliorer la qualité cristalline de celles-ci. En particulier, nous avons vu le rôle important que jouent les couches de compositions graduelles linéaires dites "rampes" dans ce domaine, en réduisant les densités de dislocations émergentes et en inhibant la formation d'ilôts pendant la croissance. Depuis le début des années 1990, les "rampes" sont utilisées comme structures intermédiaires dans tous les systèmes fortement désadaptés tels que le système InGaAs/GaAs par exemple. Leurs effets bénéfiques ont été rapportés dans de nombreuses applications, notamment dans les domaines de l'électronique rapide et de l'opto-électronique. Citons quelques exemples:

→ Des transistors de type HEMT ("high electron mobility transistor") [76] et MODFET ("modulation-doped field effect transistor") [77], conçus à partir de l'association d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  et d' $\text{In}_y\text{Al}_{1-y}\text{As}$  sur des substrats GaAs, ont des mobilités électroniques mesurées qui sont parmi les meilleures ( $8500$  et  $10500 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  à  $300 \text{ K}$  pour  $x = 0.3$  et  $0.53$  respectivement) et elles sont d'autant plus fortes que le taux d'indium est élevé, comme attendu [78]. Des résultats aussi remarquables ont été obtenus avec la même association mais sur des substrats InP [79, 80].

→ Les propriétés opto-électroniques attendues des systèmes désadaptés sont désormais réalisées. Des résonances excitoniques stables à des longueurs d'ondes proches de  $1,3$  et  $1,5 \mu\text{m}$  [81, 82] ont été obtenues à température ambiante avec des multi-puits quantiques d'InGaAs sur des substrats GaAs. Ces deux longueurs d'onde sont particulièrement intéressantes en communication car elles correspondent aux minima d'atténuation des fibres optiques employées actuellement. Des composants élaborés à partir d'autres associations de matériaux désadaptés ont été fabriqués. Des diodes électro-

luminescentes (LED) opérant dans le vert ont été ainsi conçues avec l'association d'InGaP et du substrat GaP [83].

Tous ces auteurs soulignent le rôle essentiel de la structure tampon et notamment les couches de compositions graduelles linéaires qui, en améliorant la qualité cristalline des couches actives, permettent d'accroître les performances de transport électronique et d'opto-électronique de ces dernières. Ceci étant, les "rampes" linéaires sont-elles les seules capables de ces performances ? Il semble que oui d'après Cao *et al.* [75]. Ces auteurs ont étudié l'association de matériaux GaAsP/GaAs et ils ont montré que les densités de défauts en surface révélés par attaque chimique sont plus faibles si la structure tampon est une couche de composition graduelle linéaire (A sur la figure III.1) que si elle est sublinéaire (B) ou même hyperlinéaire (C). Ceci justifie a posteriori le choix de se limiter aux "rampes" linéaires.



**FIGURE III.1:** Trois types de couches tampons de composition variable continue avec l'épaisseur: A linéaire, B sublinéaire et C hyperlinéaire.

Les échantillons que nous nous sommes proposés d'étudier sont présentés sur la figure III.2. Ils concernent tous l'association  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  sur GaAs. Le détail et l'intérêt de chacune de ces structures tampons sont les suivants:

→ Le premier échantillon (n° 1) est une "rampe" simple sans plateau de couche active. C'est la structure tampon de référence. Le but est de vérifier expérimentalement, voire à affiner, le modèle théorique de relaxation plastique proposé par Tersoff [29]. L'épaisseur de la "rampe" est de  $1\mu\text{m}$  environ. Cette valeur sera approximativement la même pour toutes les couches de composition graduelle étudiées dans ce travail.

→ La structure n° 2 doit permettre de tester l'idée de Tersoff d'une possibilité d'atteindre l'état métamorphique d'une couche en surface en faisant subir à la composition de celle-ci un abaissement "brutal" par rapport à la composition en fin de "rampe". Deux valeurs du décrochement de composition ont été testées à savoir 5 % et 8 % d'In.

→ L'échantillon n° 3 permet d'étudier l'effet d'une interface abrupte entre le substrat et la couche graduelle sur le comportement plastique global de la structure.

→ Les couches n° 4 et n° 5 sont des couches tampons standard classiquement utilisées pour la réalisation de composants sur substrats fortement désadaptés. L'intérêt est ici de tester quantitativement l'influence de l'épaisseur d'un plateau sur le degré de relaxation plastique de l'ensemble.

Une comparaison intéressante des résultats obtenus des structures de type 4 et 5 avec une structure de type 2 doit permettre de discuter de l'importance du décrochement de composition sur le taux de relaxation de la couche en surface, choisie de même composition pour les trois couches, soit 30% d'indium.

→ La structure 6 est celle d'un pseudo "escalier" constitué de deux plateaux épais séparés par une "rampe" étroite. Son efficacité à relaxer les contraintes est à comparer à celle d'une "rampe" épaisse de type 1.

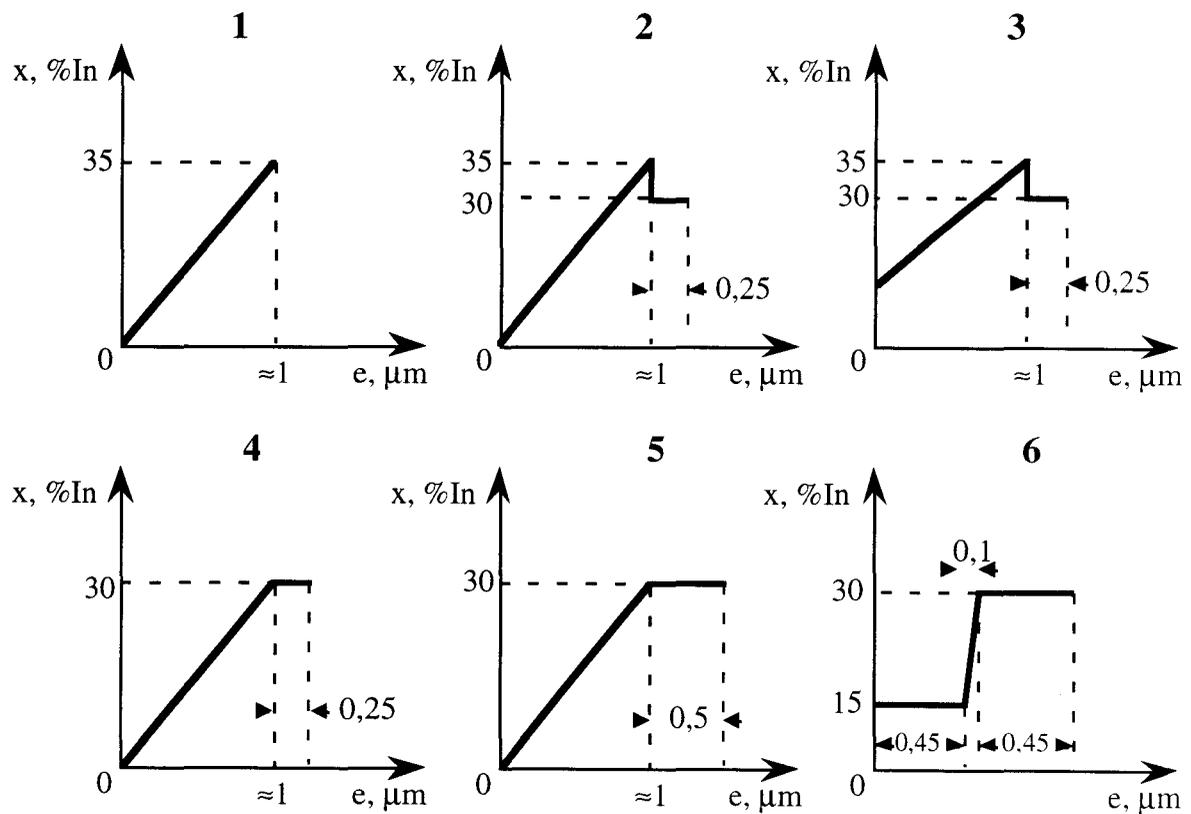


FIGURE III.2: Différents profils de composition dans l'épaisseur pour six structures tampons épaisses. (Association  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ ).

Les structures des couches que nous avons réellement étudiées sont présentées dans le tableau III.1. C'est le gradient de composition qui a été fixé à **30 % d'In / $\mu\text{m}$**  pour toutes les couches graduelles et non l'épaisseur. Ceci a une grande importance car d'après Tersoff [29], la déformation élastique résiduelle calculée à la surface d'une "rampe" dépend directement de son gradient de déformation élastique initiale (Equ. II.37). Il faut faire attention au fait que les valeurs données de composition sont des valeurs cibles de l'épitaxieur. A quelques exceptions près, les valeurs de composition

déterminées par rayons X sont en bon accord avec les valeurs cibles (voir chapitre V, tableau 2). La structure n° 5 n'ayant pas été conçue, nous ne pourrions pas discuter de l'influence de l'épaisseur du plateau sur le taux de relaxation de celle-ci.

On notera que certaines de ces structures sont constituées de "rampes" InAlAs. Pour des raisons que nous ne développerons pas ici, le choix du matériau "rampe" (et plateau) InAlAs au lieu du matériau InGaAs s'avère très approprié et judicieux, pour ce qui concerne la réalisation technologique de la structure complète allant jusqu'au composant transistor de puissance.

**TABLEAU III.1:** Caractéristiques signalétiques des échantillons étudiés.  $x_i$ ,  $x_f$  et  $x$  désignent respectivement les compositions en indium au début et à la fin des "rampes" et celles des couches plateaux.  $h$  et  $w$  sont les épaisseurs respectives des couches plateau et des "rampes". La structure de type 5 n'a pas été épitaxiée.

Nom	n° de repérage	Origine	Particularité
Var1440	n° 1	L.C.R. Thomson*	$x_i = 2 \%$ , $x_f = 30 \%$ , $w = 1 \mu\text{m}$
941201	n° 2	I.E.M.N.* **	$x_i \approx 2 \%$ , $x_f = 35 \%$ , $w = 1,1 \mu\text{m}$ , $x = 30 \%$ , $h = 0,2 \mu\text{m}$
960311	n° 2	I.E.M.N.	$x_i \approx 0$ , $x_f = 38 \%$ , $w = 1,27 \mu\text{m}$ , $x = 30 \%$ , $h = 0,25 \mu\text{m}$
960318 ***	n° 2	I.E.M.N.	$x_i \approx 0$ , $x_f = 38 \%$ , $w = 1,27 \mu\text{m}$ $x = 30 \%$ , $h = 0,25 \mu\text{m}$
941133	n° 3	I.E.M.N.	$10 \leq x_i \leq 14 \%$ , $x_f = 35 \%$ , $w = 1,4 \mu\text{m}$ $x = 30 \%$ , $h = 0,2 \mu\text{m}$
960312	n° 3	I.E.M.N.	$x_i = 10 \%$ , $x_f = 38 \%$ , $w = 0,94 \mu\text{m}$ $x = 30 \%$ , $h = 0,25 \mu\text{m}$
960241	n° 4	I.E.M.N.	$x_i < 2 \%$ , $x_f = 30 \%$ , $w = 1 \mu\text{m}$ $x = 30 \%$ , $h = 0,25 \mu\text{m}$
960317 ***	n° 4	I.E.M.N.	$x_i \approx 0$ , $x_f = 30 \%$ , $w = 1 \mu\text{m}$ $x = 30 \%$ , $h = 0,25 \mu\text{m}$
910608	n° 6	I.E.M.N.	$x_i \approx 15 \%$ , $x_f \approx 27 \%$ , $w = 0,1 \mu\text{m}$ $h = 0,45 \mu\text{m}$

Note: \* Laboratoire Central de Recherche Thomson. Domaine de Corbeville Orsay.  
 \*\* Institut d'Electronique et de Microélectronique du Nord. Université Lille 1.  
 \*\*\* Système InAlAs/GaAs.

La croissance de tous les échantillons a été effectuée par la technique de l'épitaxie par jets moléculaires (MBE, "molecular beam epitaxy"), dans un bâti où règne un vide très poussé. Des cellules contenant les éléments sources à l'état solide sont chauffées et

produisent par évaporation des jets de molécules. Les flux moléculaires sont réglés par les températures de chaque cellule. La croissance des composés III-V s'effectue par adsorption à la surface d'un substrat chauffé d'éléments de type III et V, ces derniers étant adsorbés immédiatement après le dépôt des premiers. Le substrat peut être animé d'un mouvement rotatif afin d'homogénéiser les dépôts. Tous les substrats GaAs sont ici non volontairement dopés et orientés suivant l'axe cristallographique [001]. Les vitesses de croissance sont très lentes, typiquement de l'ordre de 0,7  $\mu\text{m/h}$ , et sont contrôlées par la température du substrat. Ces échantillons ont été épitaxiés à basse température (entre 350 et 400 °C).

## **III.2 DETERMINATION EXPERIMENTALE DU TAUX DE RELAXATION PLASTIQUE PAR DIFFRACTION DES RAYONS X**

### **III.2.1 LA DIFFRACTION DES RAYONS X**

La diffraction des rayons X est régie par la loi de Bragg:

$$2 d \sin\theta_B = \lambda \quad (1)$$

où  $d$  est la distance interréticulaire entre plans réflecteurs,  $\lambda$  est la longueur d'onde du rayonnement incident et  $\theta_B$  est l'angle de Bragg. La détermination des paramètres cristallins peut être déduite directement de la loi de Bragg. Pour les hétérostructures épitaxiées, il n'est pas nécessaire que cette mesure s'effectue sur une échelle absolue car nous voyons toujours sur les profils de diffraction le pic de Bragg venant du substrat. Il nous suffit de fait de mesurer précisément l'écart de position  $\Delta\theta$  du pic de diffraction d'une couche épitaxiée avec celui du substrat et de le rapporter en terme d'écart  $\Delta d$  de paramètres de mailles. Connaissant les paramètres cristallins des substrats, nous en déduisons ceux des couches et donc leur composition chimique, en enregistrant plusieurs de ces profils correspondant à différentes réflexions.

Si les pics sont élargis pour une raison ou une autre, ou si ils sont trop rapprochés, il devient alors difficile de mesurer des écarts angulaires d'une façon très précise. Quel niveau de sensibilité d'écart de paramètres peut-on atteindre avec la technique de diffraction des rayons X ? En différentiant simplement la loi de Bragg, on s'aperçoit que ce sont les variations de longueur d'onde et d'angle d'incidence qui déterminent complètement la sensibilité de cette technique:

$$\frac{\Delta d}{d} = \frac{\Delta\lambda}{\lambda} - \frac{\Delta\theta}{\tan\theta} \quad (2)$$

Cette équation nous révèle qu'une grande sensibilité à l'état de déformation est atteinte si on peut à la fois réduire la dispersion spectrale et la divergence angulaire du faisceau X incident. Une échelle de sensibilité avec quelques valeurs caractéristiques déterminant la diffraction des rayons X est présentée dans le tableau III.2. Si on se base sur cette échelle, on voit qu'en utilisant un faisceau de rayons X quasi-parallèle et monochromatique, on peut discerner des écart relatifs de paramètres de l'ordre de  $10^{-5}$ . Dans cet ordre de grandeur, on entre dans le domaine de la haute résolution, pour laquelle trois exigences sont requises:

- La première est de disposer d'un goniomètre de grande précision dont les pas de rotation sont aussi petits que possible.
- La seconde exigence est de collimater angulairement, le mieux possible, le faisceau de rayons X incident.
- La troisième est d'éliminer l'élargissement des pics de diffraction dû à la dispersion spectrale.

**TABLEAU III.2:** Echelle de sensibilité pour la diffraction des rayons X [84].

sensibilité	caractéristique de l'expérience de diffraction	
$10^{-7}$	cristal parfait	$\frac{\Delta d}{d} \geq 10^{-7}$
$10^{-6}$	dilatation thermique	$\Delta T = 1^\circ\text{C}$
$10^{-5}$	largeur intrinsèque de diffraction	$\Delta\theta = 2''$
$10^{-4}$	dispersion intrinsèque $\text{CuK}\alpha_1$	$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 3 \cdot 10^{-4}$
$10^{-3}$	séparation $\text{CuK}\alpha_1$ - $\text{CuK}\alpha_2$	$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 2,5 \cdot 10^{-3}$
$10^{-2}$	fente	$\Delta\theta = 0,1^\circ$

### La collimation

Un faisceau de rayons X est rendu quasiment parallèle après une première réflexion sur un cristal parfait, voir par exemple [85]. La divergence angulaire du faisceau diffracté est alors égale à la largeur intrinsèque du pic de diffraction du cristal de référence. La collimation des rayons X seule est utilisée dans le montage de double diffraction (figure III.4).

Il faut noter qu'un cristal de référence de même paramètre de maille que l'échantillon ne joue pas le rôle d'un monochromateur lorsqu'il est utilisé selon le mode  $(+n, -n)$ , c'est à dire lorsqu'il est positionné de telle façon que le produit scalaire des normales aux surfaces du cristal de référence et de l'échantillon est négatif. Les

trajectoires de trois rayons de longueurs d'ondes différentes, tracés sur la figure III.4, en donnent une illustration. Une source ponctuelle émet un spectre complet de radiation X, dont les raies  $K\alpha_1$  et  $K\alpha_2$  qui sont représentées par les traits en pointillés courts et longs respectivement. Le cristal de référence est positionné à l'angle de Bragg exact pour la raie moyenne (trait plein). On remarque que les trois composantes sont diffractées simultanément par celui-ci mais à des endroits sensiblement différents de sa surface. Lorsque le second cristal est en position de réflexion exacte pour la raie médiane, sa surface est alors précisément parallèle au premier et il satisfait aussi simultanément la condition de Bragg pour les composantes de longueur d'onde plus petite et plus grande. Il y a donc, dans ce cas de figure, une insensibilité totale à la dispersion en longueurs d'ondes. Des pics de diffraction très étroits et très intenses (intégration entière du doublet  $K\alpha_1$ - $K\alpha_2$ ) sont obtenus avec ce type de montage en (+n,-n) car aucun élargissement n'est produit par la largeur spectrale du rayonnement X utilisé (montage non dispersif).

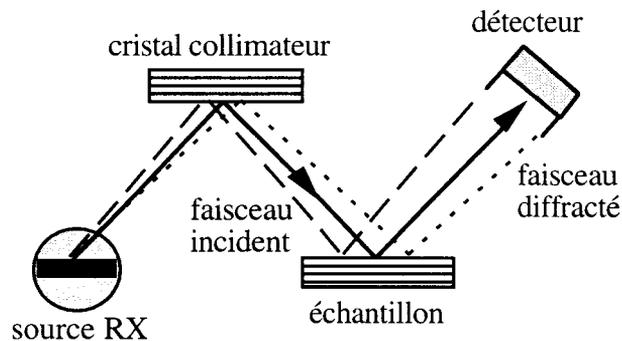


FIGURE III.4: Montage de double diffraction des rayons X (DCD, "Double Crystal Diffraction").

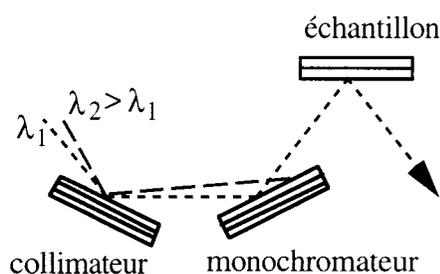
Quand le cristal de référence et l'échantillon n'ont pas le même espacement entre plans réflecteurs (mode (+m,-n)), la largeur totale à mi-hauteur du pic de diffraction est élargie du fait que différentes longueurs d'ondes satisfont à la condition de Bragg à différents angles de l'échantillon par rapport au premier cristal. L'élargissement  $\Delta\theta_\lambda$  est calculé à partir de [86]:

$$\Delta\theta_\lambda = \frac{\Delta\lambda}{\lambda} \left| \tan \theta_{\text{réf}} - \tan \theta_{\text{éch}} \right| \quad (3)$$

où  $\theta_{\text{réf}}$  et  $\theta_{\text{éch}}$  sont les angles de Bragg de la référence et de l'échantillon et  $\Delta\lambda/\lambda$  est la dispersion relative en longueur d'onde des rayons X incidents sur l'échantillon. Ceci est en réalité une sévère limitation car les matériaux cristallins ont en général plusieurs angles de Bragg, donc pour chaque expérience, il faut repositionner le premier cristal, voire le remplacer par un cristal de même nature que le cristal à analyser.

*La monochromatisation*

L'effet de la dispersion peut être grandement réduit, mais pas totalement éliminé, en utilisant un second cristal de référence dans une géométrie (+m,+m,-n). Cette association est représentée sur la figure III.5. La clef de la monochromatisation par un dispositif (+m,+m) repose sur le fait qu'un rayon X, émergent de la première face suivant un angle plus grand, attaque la seconde face sous un angle plus petit [85]. Sur la figure III.5, nous voyons que les rayons X de longueur d'onde  $\lambda_2 > \lambda_1$  réfléchis par le premier cristal ne le seront pas pour le second car l'angle d'incidence par rapport à ce dernier est trop faible ( $\theta < \theta_B(\lambda_1) < \theta_B(\lambda_2)$ ). Seuls les rayons X à l'intérieur d'une étroite bande de longueur d'onde satisfont à la condition de Bragg du second cristal.



**FIGURE III.5:** Géométrie (+m,+m,-n)

La dispersion spectrale relative est alors déterminée par la largeur intrinsèque de diffraction du deuxième cristal, soit:

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{\Delta\theta_i}{\tan\theta_B} \quad (4)$$

Les diagrammes de DuMond [87] fournissent une méthode géométrique simple pour déterminer la réduction du spectre de longueurs d'onde par un dispositif (+,+). On retrouve par cette méthode l'équation (4) à condition que les deux cristaux soient les mêmes.

*Dispositif expérimental de la double diffraction des rayons X en mode haute résolution (HRXRD)*

Le diffractomètre que nous avons utilisé est le modèle M200 de la société anglaise Bede [88]. Il possède un dispositif qui conditionne le faisceau de rayons X en longueur d'onde et en divergence angulaire. Le schéma du diffractomètre est représenté sur la figure III.6. Ce montage permet de pratiquer la diffraction X en mode haute résolution.

Le CCC ("Channel Cut Collimator") est constitué d'un bloc de cristal parfait de silicium dans lequel a été découpé un canal en U de longueur suffisante pour qu'un

faisceau entrant puisse se réfléchir deux fois, une réflexion symétrique (220) sur chaque surface parallèle, avant de sortir dans la même direction mais légèrement décalée.

Le profil intrinsèque de diffraction sur la première face est celui calculé pour un cristal parfait; Quant à la seconde réflexion, son profil de diffraction est le carré du premier [89]. La divergence angulaire du faisceau sortant du CCC est donnée par la largeur totale à mi-hauteur de ce profil, soit  $\Delta\theta = 6,15''$  (simulation faite à partir du logiciel RADS de la même société Bede).

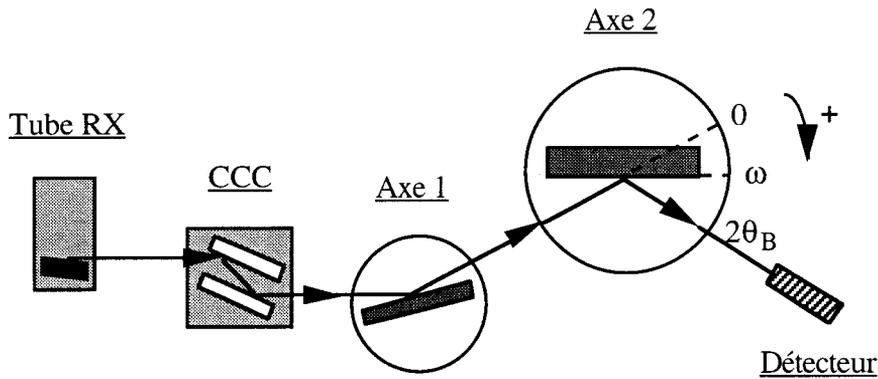


FIGURE III.6: Schéma du diffractomètre M200 de Bede.

Après le CCC, le faisceau de rayons X contient encore tout le spectre de longueurs d'onde émis par le tube, mais chaque composante peut être considérée comme une onde plane. Un cristal supplémentaire, dit de référence, monté sur l'axe 1 (figure III.6) suivant un arrangement (+,+) par rapport à la seconde réflexion du CCC permet de réduire considérablement la dispersion spectrale. Le monochromateur est un monocristal de silicium orienté pour la réflexion symétrique (111), la dispersion relative en longueur d'onde peut être déterminée grâce à la méthode des diagrammes de DuMond [87], soit  $\Delta\lambda/\lambda = 9,3 \cdot 10^{-5}$ .

L'échantillon est monté sur l'axe 2, qui est strictement parallèle à l'axe 1. Le pas de rotation de ces deux axes peut être aussi petit que 0,5 secondes d'arc. Du fait du conditionnement quasi parfait du faisceau de rayons X, l'échantillon n'a plus besoin d'être identique, ni parallèle, au cristal de référence. Toutefois, l'élargissement, même minime, des pics de diffraction de l'échantillon dû à la faible, mais non nulle, dispersion en longueur d'onde peut être évalué par simple différenciation de la loi de Bragg, soit:

$$\Delta\theta_\lambda = \frac{\Delta\lambda}{\lambda} \tan \theta_{\text{éch.}} \quad (5)$$

où  $\Delta\lambda/\lambda$  est la dispersion spectrale relative du rayonnement arrivant sur l'échantillon et  $\theta_{\text{éch.}}$  est l'angle de Bragg de ce dernier. On calcule par exemple  $\Delta\theta_\lambda \approx 12,5''$  pour la réflexion symétrique (004) d'un substrat GaAs, ce qui donne une largeur totale à mi-

hauteur d'environ **14,8"**, si on considère en première approximation que le profil de diffraction final est le produit de convolution de deux gaussiennes et que par conséquent  $FWHM_{(sec)} = \sqrt{8^2 + 12,5^2}$  [8" est environ la largeur intrinsèque de la réflexion (004) du GaAs]. Ceci est en bon accord avec les largeurs des profils expérimentaux que nous avons obtenu d'un substrat GaAs témoin ( $FWHM = 14'' - 15''$ ).

Le détecteur EDR ("Enhanced Dynamic Range", marque Bede) utilisé est un détecteur à scintillation. Il donne un bruit de fond de l'ordre de 0,15 cps et il est capable de compter plus de 350 000 cps. L'axe du détecteur et de l'échantillon sont coaxiaux. Le pas de rotation du détecteur peut être aussi petit que 1".

Le tube de rayons X est doté d'une anti-cathode de cuivre dont le foyer fin est de dimensions  $0,4 \times 0,8 \text{ mm}^2$ . La longueur d'onde de la raie  $K\alpha_1$  du cuivre est de 1,540562 Å.

### III.2.2 PRINCIPE DU CALCUL DE DETERMINATION DE X ET DE R

La séparation angulaire  $\Delta\omega$  des pics de diffraction d'une couche et de son substrat a deux composantes  $\Delta\theta$  et  $\Delta\varphi$ , soit:

$$\Delta\omega_A = \Delta\theta + \Delta\varphi \quad (6a)$$

$$\Delta\omega_B = \Delta\theta - \Delta\varphi \quad (6b)$$

$\theta$  désigne un angle de Bragg et  $\varphi$  désigne l'angle entre un plan réflecteur et la surface de l'échantillon.  $\Delta\theta$  et  $\Delta\varphi$  sont alors respectivement les différences d'angles de Bragg et d'inclinaisons de plans réflecteurs entre la couche et le substrat.

Les indices A et B indiquent des géométries de réflexion dites en émergence rasante et en incidence rasante respectivement (voir la figure III.7).

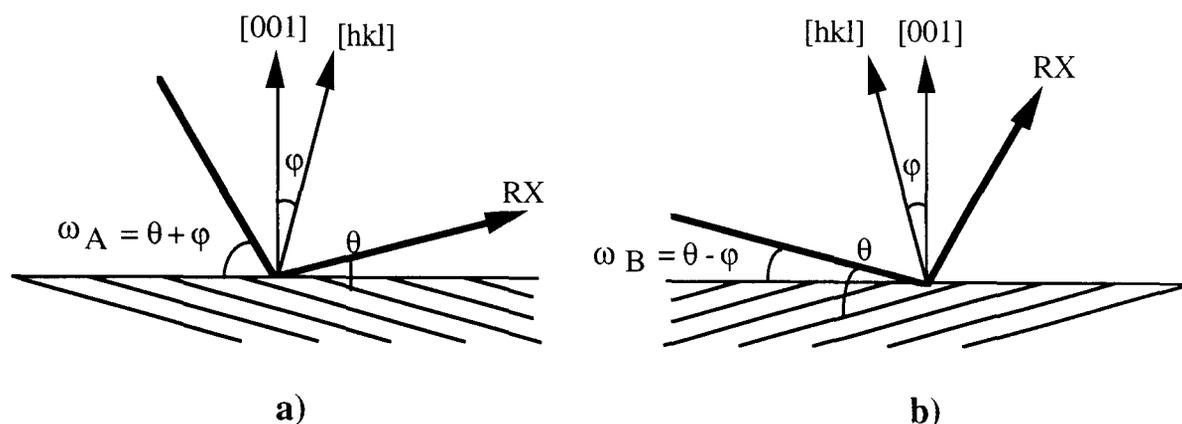


FIGURE III.7: Géométries du faisceau de rayons X en réflexion asymétrique: a) émergence rasante, b) incidence rasante.

Dans le premier cas, l'angle d'incidence des rayons X avec la surface de l'échantillon est plus grand que l'angle que font les rayons diffractés avec cette même surface. L'inverse est produit dans le second cas.

On note que l'extension géométrique du faisceau dans le plan d'incidence est, en émergence rasante, comprimée en sortie, et que le rapport des dimensions entre la sortie et l'entrée est donné par le facteur d'asymétrie  $b$ , soit  $\sin(\theta-\varphi) / \sin(\theta+\varphi)$ . Plus  $b$  est petit, plus la réflexion est asymétrique et plus le faisceau réfléchi est étroit.

La différence des distances interréticulaires  $d$  entre la couche et son substrat est à l'origine de  $\Delta\theta$ , tandis qu'une déformation tétragonale (i.e. suivant l'axe [001]) de la maille cristalline cause  $\Delta\varphi$ .  $\Delta\varphi$  est un effet purement géométrique [90].

Pour décrire l'état de déformation de la couche épitaxiée, il nous faut connaître séparément  $\Delta\theta$  et  $\Delta\varphi$ . Ceci est rendu possible en mesurant  $\Delta\omega$  deux fois pour la même réflexion asymétrique mais avec une géométrie différente [91]. Deux profils de diffraction sont enregistrés, l'un en émergence rasante ( $\Delta\omega_A$ ) et l'autre en incidence rasante ( $\Delta\omega_B$ ), l'échantillon ayant tourné de  $180^\circ$  autour de la normale à sa surface. Par ailleurs, on sait que les dislocations de désadaptation de réseau sont, dans le plan (001), allongées suivant les deux directions  $\langle 110 \rangle$  en densité pas forcément équivalente. Par conséquent la relaxation des contraintes n'est pas toujours la même dans ces deux directions. C'est pourquoi  $\Delta\omega_A$  et  $\Delta\omega_B$  sont mesurés deux fois eux aussi, l'échantillon tournant de  $90^\circ$  autour de la normale à sa surface entre chaque profil. On désigne par  $\phi$  l'angle de rotation de l'échantillon (angle azimutal) et on s'arrange pour qu'à  $\phi=0^\circ$ , la trace du plan d'incidence sur la surface de l'échantillon soit dans une des deux directions  $\langle 110 \rangle$ .

Ainsi les valeurs de  $\Delta\theta$  et  $\Delta\varphi$  sont déduites séparément des mesures de  $\Delta\omega_A$  et  $\Delta\omega_B$ , et ceci pour chacune des deux directions  $\langle 110 \rangle$  du plan d'interface, soit:

$$\Delta\theta = \theta_c - \theta_s = \frac{\Delta\omega_A + \Delta\omega_B}{2} \quad (7)$$

$$\Delta\varphi = \varphi_c - \varphi_s = \frac{\Delta\omega_A - \Delta\omega_B}{2} \quad (8)$$

Les indices  $s$  et  $c$  désignent le substrat et la couche respectivement.

La différence relative des distances interréticulaires  $\Delta d/d$ , déduite de la loi de Bragg, est ensuite calculée:

$$\frac{\Delta d}{d} = \frac{d_c}{d_s} - 1 = \frac{\sin\theta_s}{\sin(\theta_s + \Delta\theta)} - 1 \approx -\frac{\Delta\theta}{\tan\theta_s} \left(1 - \frac{\Delta\theta}{\tan\theta_s}\right) + \frac{\Delta\theta^2}{2} \quad (9)$$

L'expression de  $\Delta d/d$  donnée ici diffère quelque peu de celle écrite précédemment (2). Tout d'abord l'équation (9) suppose que nous avons considéré un faisceau de rayons X monochromatique. Ce n'est pas une approximation très gênante, dans la mesure où la

position angulaire de chaque pic de diffraction est mesurée en leur milieu et que l'effet d'une dispersion spectrale n'est autre qu'un élargissement de chacun de ces pics de part et d'autre de cette position moyenne (Equ. 5). Cette position des maxima d'intensité correspond alors à une longueur d'onde moyenne (et unique), soit  $\Delta\lambda/\lambda=0$ .

La seconde différence entre les équations (9) et (2) est le développement au deuxième ordre en  $\Delta\theta$  dans l'équation (9). Pour les hétérostructures fortement contraintes, le développement en  $\Delta\theta^2$  est totalement justifié et est de fait obligatoire.

Une construction géométrique (figure III.8) permet de relier  $\Delta d/d$  et  $\Delta\varphi$  à la désadaptation relative des paramètres de mailles parallèlement au plan d'interface,  $f_{//}$ .

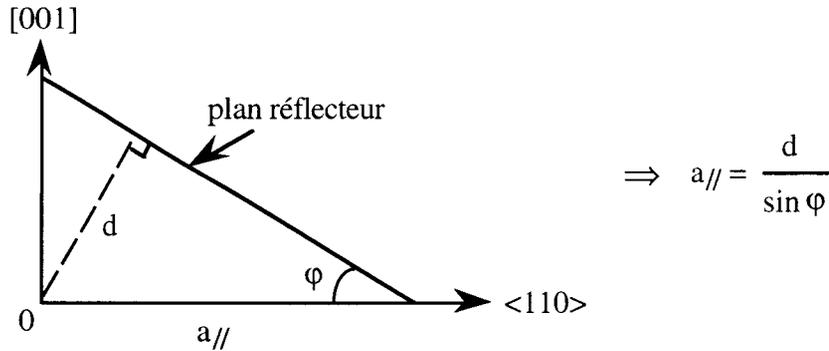


FIGURE III.8: Schéma illustrant la relation entre  $a_{//}$ ,  $d$  et  $\varphi$ .

Si on suppose que la maille cristalline de la couche épitaxiée reste orthogonale, alors:

$$f_{//} = \left(\frac{\Delta a}{a}\right)_{//} = \frac{a_{//c}}{a_s} - 1 = \frac{d_c \sin\varphi_s}{\sin\varphi_c d_s} - 1 = \sqrt{\frac{h^2+k^2}{h^2+k^2+l^2}} \frac{1+\Delta d/d}{\sin(\varphi+\Delta\varphi)} - 1 \quad (10)$$

$h, k, l$  sont les indices de Miller du plan réflecteur et  $a_{//c}$  est le paramètre de maille de la couche mesuré dans le plan d'interface.

Pour la réflexion symétrique (004), l'angle que fait le plan réflecteur avec la surface est identiquement nul, soit  $\varphi \equiv 0$ . La désadaptation relative des paramètres de mailles perpendiculairement au plan d'interface,  $f_{\perp}$ , est directement donnée par l'équation (9), soit:

$$f_{\perp} = \left(\frac{\Delta a}{a}\right)_{\perp} = \frac{a_{\perp c}}{a_s} - 1 = -\frac{\Delta\theta_{004}}{\tan\theta_{004}} \left(1 - \frac{\Delta\theta_{004}}{\tan\theta_{004}}\right) + \frac{\Delta\theta_{004}^2}{2} \quad (11)$$

où  $a_{\perp c}$  est le paramètre de maille de la couche mesuré dans la direction perpendiculaire au plan d'interface (i.e. dans la direction [001]).

Ayant déterminé les paramètres de mailles effectifs de la couche épitaxiée, il reste à remonter à son paramètre réel  $a_c$  qui est égal à celui du matériau massif correspondant non contraint. Dans le cadre de l'élasticité linéaire et sous un régime de contraintes planes

et homogènes, la désadaptation relative de paramètre de maille,  $f$ , de la couche épitaxiée ayant son paramètre naturel, c'est-à-dire supposée relaxée à 100 %, est déterminée à partir de l'équation suivante:

$$f = \left( \frac{\Delta a}{a} \right)_R = \frac{a_c}{a_s} - 1 = \frac{1 - \nu}{1 + \nu} \left( \frac{\Delta a}{a} \right)_\perp + \frac{\nu}{1 + \nu} \left[ \left( \frac{\Delta a}{a} \right)_{// [110]} + \left( \frac{\Delta a}{a} \right)_{// [\bar{1}10]} \right] \quad (12)$$

avec  $\nu = c_{12} / (c_{11} + c_{12})$  où les  $c_{ij}$  sont les modules élastiques du matériau épitaxié.

Le coefficient de relaxation  $R$  de la couche est calculé dans chacune des deux directions  $\langle 110 \rangle$  du plan (001) à l'aide des données de (10) et (12), soit:

$$R = \frac{f_{//}}{f} \quad (13)$$

Quant à la composition chimique de la couche, elle est déduite de  $f$ , en supposant que le paramètre de maille de celle-ci suit une loi de Végard. Dans le cas particulier de la croissance de l'alliage  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  sur un substrat GaAs, la composition  $x$  est donnée par:

$$x = \frac{f}{0,0716} \quad (14)$$

où 0,0716 correspond à la désadaptation relative de paramètres de maille entre InAs et GaAs.

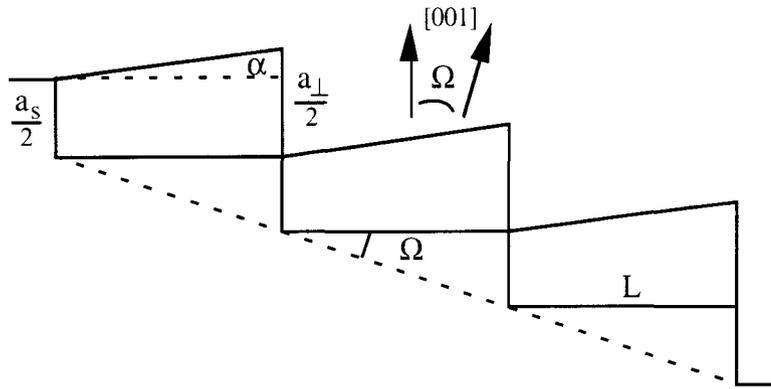
#### *Influence d'une désorientation d'axe [001]*

Il arrive souvent que la direction cristallographique [001] de la couche épitaxiée fasse un angle  $\alpha$  avec celle du substrat. On pense qu'il existe deux effets, parfois combinés, qui sont à l'origine de cette désorientation.

→ Le premier est un effet géométrique lié aux marches en surface. Le modèle proposé par Nagai [92] pour décrire cet effet n'a de sens que si la surface du substrat est vicinale, c'est-à-dire si la normale de la surface géométrique fait un angle  $\Omega$  avec la direction cristallographique [001] exacte (figure III.9). L'angle  $\Omega$  est communément appelé angle d'*offcut*. La désorientation  $\alpha$  des axes [001] de la couche et du substrat est alors liée à l'angle de l'*offcut* et à la désadaptation de paramètre de maille le long de la direction de croissance par [92]:

$$\tan \alpha = \tan \Omega \times f_\perp \quad (15)$$

Cette théorie prédit de plus que la direction de rotation est conditionnée par la direction de l'angle d'*offcut* et qu'elle est dans le même sens que ce dernier quand la couche est en tension, dans le sens inverse quand la couche est en compression. L'étude de systèmes



**FIGURE III.9:** Illustration du modèle de Nagai [92] pour la désorientation  $\alpha$  dans les couches épitaxiées pseudomorphiques et désadaptées en paramètres de maille. La surface inclinée du substrat est simulée par des terrasses de longueur  $L$  et de hauteur  $a_s/2$ .

faiblement désadaptés comme l'association d'AlGaAs sur GaAs a permis de confirmer expérimentalement ce modèle, aussi bien pour les valeurs de  $\alpha$  que pour les directions de rotation [93, 94].

→ Le second effet est dû à la relaxation plastique de la déformation initiale quand la génération de dislocations qui l'accompagne produit une composante effective de vecteur de Burgers perpendiculairement à l'interface [95]. Dans les matériaux à structure sphalérite, comme c'est le cas ici, les dislocations de caractère  $60^\circ$  ont un vecteur de Burgers  $\mathbf{b}$  qui peut être décomposé en une somme de deux parties coins et une partie vis. La partie coin  $\mathbf{b}_\alpha$  ( $b_\alpha = a/2$ ), qui est perpendiculaire au plan d'interface, est responsable de la rotation de la couche par rapport au substrat, tandis que la deuxième partie coin  $\mathbf{b}_e$  ( $b_e = a\sqrt{2}/4$ ), qui se trouve dans le plan d'interface, est la composante efficace pour relaxer les contraintes. Ces deux dernières dislocations sont désignées respectivement comme de type 1 et de type 2 par Jesser [96]. Un réseau interfacial de dislocations de type 1 conduirait à une désorientation  $\alpha$  de:

$$\alpha = b_\alpha \rho_1 \quad (16)$$

où  $\rho_1$  est la densité linéaire de ces dislocations. En supposant que toute la déformation initiale  $\epsilon_0$  entre la couche et le substrat soit accommodée par les dislocations, la densité  $\rho_1$  est alors donnée par:  $\rho_1 = \epsilon_0 / b_e$  et l'angle  $\alpha$  par [95]:

$$\alpha = \epsilon_0 \frac{b_\alpha}{b_e} = \epsilon_0 \sqrt{2} \quad (17)$$

Cet angle représente bien entendu la valeur maximale que peuvent produire les dislocations dès lors qu'il a été supposé une colinéarité de tous les vecteurs de Burgers et une relaxation totale des contraintes par une seule famille de dislocations. La rotation maximale de la couche ne se fait alors que dans une direction  $\langle 110 \rangle$  du plan d'interface.

Ce cas d'école ne reflète pas la réalité. Les expériences montrent que la direction de rotation n'est pas forcément dans une des deux directions  $\langle 110 \rangle$  du plan et qu'elle n'est pas non plus forcément dans la même direction que celle de l'offcut [97, 98]. La désorientation  $\alpha$  observée dans une direction  $\langle 110 \rangle$  est créée par un déséquilibre du nombre de dislocations de caractère  $60^\circ$ , allongées dans la direction orthogonale, ayant des composantes de rotation de leur vecteur de Burgers en sens opposés. On peut exprimer cela par:

$$\alpha_\phi = b_\alpha (\rho_{\phi+90^\circ}^+ - \rho_{\phi+90^\circ}^-) \quad (18)$$

$\phi$  est l'angle d'azimut: il repère la position de l'échantillon sur le porte-objet du diffractomètre et donne aussi la direction de propagation des faisceaux de rayons X incidents et réfléchis. Les exposants + et - indiquent la direction de la composante de rotation des vecteurs de Burgers qui est comptée positivement quand elle sort de la surface de l'échantillon.

Il reste à expliquer pourquoi il y a un déséquilibre entre  $\rho^+$  et  $\rho^-$  dans chacune des deux familles de dislocations. On peut ici citer deux études sur cette question. Ayers *et al.* [99] pensent que l'inclinaison du substrat crée une asymétrie des contraintes résolues entre différents plans de glissement et conduit à l'introduction préférentielle de dislocations de vecteurs de Burgers d'un type donné. Considérant un mécanisme de relaxation plastique limitée par la nucléation des dislocations, LeGoues *et al.* [100] pensent que l'inclinaison du substrat affecte justement ces énergies de nucléation et conduit donc à un déséquilibre du nombre de dislocations de natures différentes.

Seule la connaissance de l'écart d'angle de Bragg  $\Delta\theta$  entre la couche et le substrat, et qui traduit un effet de dilatation, permet de remonter aux déformations élastiques puis à la composition du matériau épitaxié. Comme  $\Delta\phi$ , la désorientation  $\alpha$  des axes [001] est un effet de rotation et comme  $\Delta\phi$ ,  $\alpha$  doit être soustraite de la mesure brute de l'écart angulaire  $\Delta\omega$  entre les pics de diffraction. Il faut par conséquent connaître la contribution à  $\Delta\omega$  de  $\alpha$  dans chacune des quatre orientations de l'échantillon sur son support ( $\phi=0^\circ$ ,  $90^\circ$ ,  $180^\circ$  et  $270^\circ$ ).

L'expérience, que nous appellerons une "précession (004)" consiste à enregistrer une série de profils de diffraction en réflexion symétrique (004), l'échantillon tournant autour de la normale à sa surface. La figure III.10 présente une série de tels spectres. En présence d'un angle d'offcut et d'une désorientation d'axe [001], à la fois le pic du substrat et celui de la couche épitaxiée oscillent autour de leur position moyenne. Comme  $\phi = 0$ , on peut modéliser ces variations par:

$$\theta_s = \theta_{\text{moy}}^{004} + \Omega \cos(\phi + \chi_s) \quad (19)$$

$$\Delta\theta = \Delta\theta_{\text{moy}}^{004} + \alpha \cos(\phi + \chi_c) \quad (20)$$

où  $\chi_s$  et  $\chi_c$  sont des angles azimutaux, tout comme  $\phi$ , qui repèrent dans le plan de l'échantillon la direction de rotation du substrat et de la couche respectivement. Si  $\chi$  est différent de  $0^\circ$  modulo  $90^\circ$  alors on peut dire que la rotation n'est pas dans une des deux directions  $\langle 110 \rangle$  de l'interface.

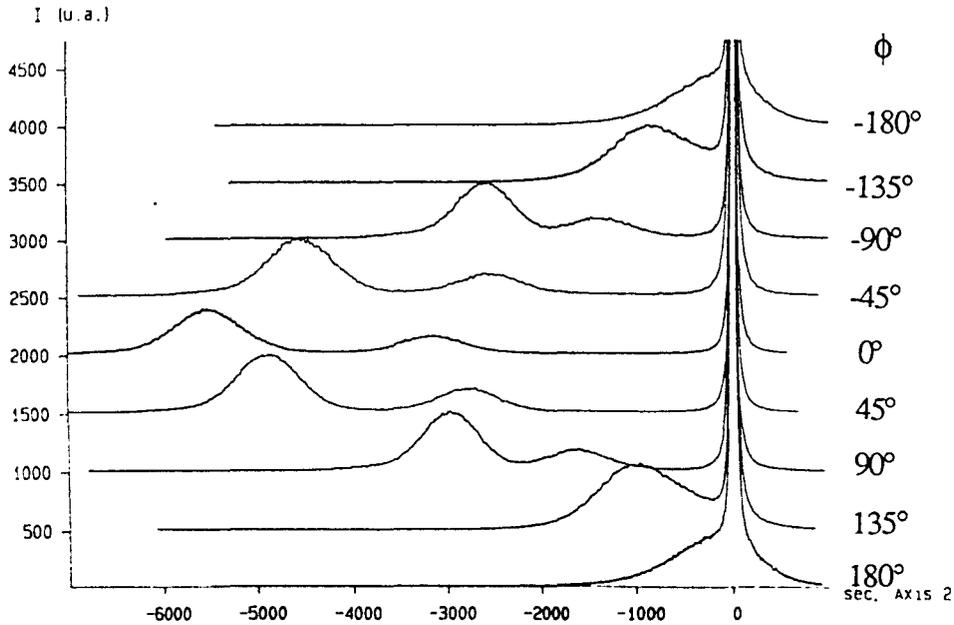
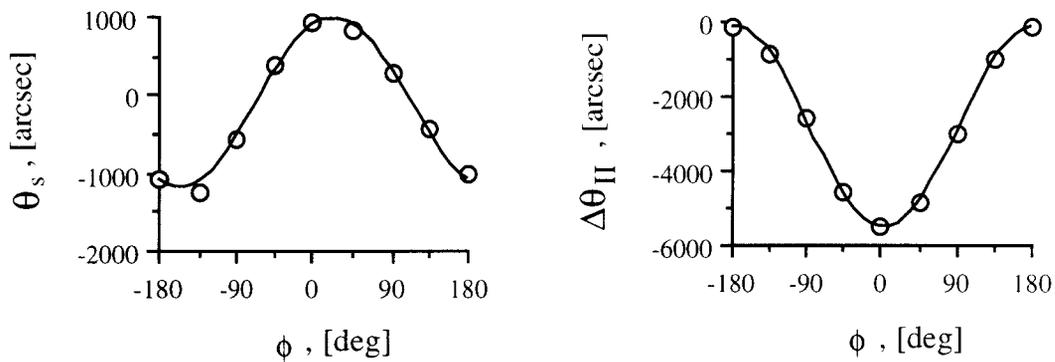


FIGURE III.10: Précession en réflexion symétrique (004). Echantillon 910120.

La figure III.11 et le tableau III.3 correspondant sont un exemple de dépouillement de l'expérience de précession effectuée sur l'échantillon 910120\*.

On note que les angles de rotation des deux couches de composition constante de cet échantillon sont très élevés pour un offset aussi faible du substrat. On note de plus que les directions de rotation des deux couches et du substrat sont quasiment diamétralement opposées, ce qui confirme les prédictions du modèle géométrique de Nagai [92].

\*Note: La structure de l'échantillon 910120 reprend celle de l'échantillon 910608 (structure de type 6). Il a été déposé en plus, par épitaxie, un petit superréseau ( $5 \times [\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}:200\text{\AA} / \text{GaAs}:20\text{\AA}]$ ) puis une couche superficielle (épaisse) d'InGaAs de composition constante 27 % d'In et d'épaisseur 0.5  $\mu\text{m}$ . Cette couche superficielle est notée II par comparaison à la couche d'InGaAs de composition constante égale à 15 % d'In qui est notée I.



**FIGURE III.11:** Tracés de la position du pic du substrat  $\theta_s$  et de la séparation angulaire  $\Delta\theta_{II}$  entre les pics de la couche (repérées par le chiffre II) et du substrat en fonction de l'angle azimutal  $\phi$ . Expérience de précession en réflexion (004) pour l'échantillon 910120.

**TABLEAU III.3:** Résultats de la précession en réflexion (004) sur l'échantillon 910120.

	$\Omega$ [°] ou $\alpha$ ["]	$\chi$ [°]	$\theta_{\text{moy}}$ ou $\Delta\theta_{\text{moy}}$ ["]
substrat	$0,30 \pm 0,01$	$-23,5 \pm 2,3$	$-98 \pm 30$
couche I	$1414 \pm 89$	$174,5 \pm 4$	$-1671 \pm 67$
couche II	$2693 \pm 21$	$176,2 \pm 0,5$	$-2816 \pm 16$

### III.2.3 PROBLEMES LIES A L'ELARGISSEMENT DES PICS DE DIFFRACTION

#### a) Origines

Différents facteurs contribuent à l'élargissement des pics de diffraction. Si on suppose que la forme du pic de diffraction de l'échantillon est représentée par une gaussienne et si on suppose qu'il en est de même pour la distribution d'intensité des composantes du profil dues aux rotations et aux déformations autour des dislocations, à la courbure et à l'épaisseur finie de l'échantillon ainsi qu'au système conditionnant le faisceau de rayons X, alors la largeur totale à mi-hauteur mesurée  $\beta_m$  est donnée par la racine carrée de la somme des carrés des élargissements angulaires  $\beta$  correspondants [101], soit:

$$\beta_m = \sqrt{\beta_i^2 + \beta_{MC}^2 + \beta_h^2 + \beta_R^2 + \beta_\alpha^2 + \beta_\epsilon^2} \quad (21)$$

→  $\beta_i$  est la largeur intrinsèque de diffraction du cristal à analyser, déterminée à partir de la théorie dynamique de la diffraction des rayons X [102], soit:

$$\beta_i = \frac{2,12 r_e \lambda^2 p |F_H'|}{\pi V \sqrt{|b|} \sin 2\theta_B} \quad (22)$$

où  $r_e$  est le rayon classique de l'électron ( $r_e = 2,818 \cdot 10^{-5} \text{ \AA}$ ),  $V = a^3$  est le volume de la maille élémentaire,  $b$  est le facteur d'asymétrie égal au rapport des sinus des angles d'incidence et réfléchi,  $p$  est le facteur de polarisation égal à 1 ou  $|\cos 2\theta_B|$  dans le cas d'une polarisation normale ou parallèle respectivement,  $|F_H'|$  est le facteur de structure ne contenant que les parties réelles des facteurs de diffusion atomique.

→  $\beta_{MC}$  est l'élargissement angulaire instrumental car il est lié aux multiples réflexions produites dans le système monochro-collimateur du faisceau. On peut considérer que  $\beta_{MC}$  est environ égal à 12" (Equ. 5).

→  $\beta_h$  est l'élargissement angulaire qui apparaît lorsque l'épaisseur  $h$  du cristal diffractant devient très petite. La largeur totale à mi-hauteur  $\beta_{i,h}$  du pic de diffraction d'un cristal de faible épaisseur ( $h < 1 \mu\text{m}$ ) est donnée par la théorie cinématique de la diffraction des rayons X [102]:

$$\beta_{i,h} = 2 \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \frac{\lambda |\gamma_H|}{h \sin 2\theta_B} \quad (23)$$

où  $\gamma_H$  est le sinus de l'angle d'émergence. Par exemple,  $\beta_{i,h} \approx 17,8'' / h$  pour la réflexion symétrique (004) de GaAs,  $h$  étant exprimée en micromètres. La somme  $\beta_i^2 + \beta_h^2$  est remplacée par  $\beta_{i,h}^2$  lorsque l'épaisseur de la couche épitaxiée est mince.

→ La courbure de la structure toute entière sous l'effet des contraintes élastiques internes provoque un élargissement  $\beta_R$  des profils de diffraction [103]:

$$\beta_R = \frac{L}{R \sin \theta_B} \quad (24)$$

où  $L$  est la largeur du faisceau de rayons X dans le plan de diffraction et  $R$  est le rayon de courbure de l'échantillon.

→ De même, une densité  $\rho$  de dislocations (de vecteur de Burgers  $b$ ), aléatoirement réparties dans l'épaisseur de la couche épitaxiée, induit un élargissement  $\beta_\alpha$  des spectres. Cet élargissement reflète les désorientations cristallines produites par ces dislocations [101, 104]:

$$\beta_\alpha^2 = 2\pi \ln 2 b^2 \rho \approx 4,36 b^2 \rho \quad (25)$$

Lorsque les dislocations sont régulièrement réparties dans un plan, l'élargissement

angulaire causé est donné par, [105]:

$$\beta_{\alpha} = 3 b \rho h \quad (26)$$

→ Le champ de déformation produit par les dislocations contribue lui aussi à l'élargissement angulaire des profils. En supposant que le réseau irrégulier de dislocations donne lieu à une distribution gaussienne de la déformation locale, alors celle-ci provoque un élargissement qui est donné par, [101, 104]:

$$\beta_{\varepsilon}^2 = 8 \ln 2 \left( \overline{\varepsilon_n^2} \right) \tan^2 \theta_B \quad (27)$$

où  $\overline{\varepsilon_n^2}$  est la moyenne du carré de la déformation calculée dans la direction normale au plan de diffraction. Pour une réflexion symétrique et dans le cas où toutes les dislocations sont à caractère  $60^\circ$ , l'expression (27) devient, [104]:

$$\beta_{\varepsilon}^2 = 0,160 b^2 \rho \ln \left( \frac{r}{r_0} \right) \tan^2 \theta_B \quad (28)$$

où  $r$  et  $r_0$  sont respectivement la limite haute et la limite basse qui interviennent dans l'intégration du champ de déformation dans la direction radiale et à partir du cœur de la dislocation. On peut prendre pour valeur de  $r$  la demi distance entre les dislocations, i.e,  $r = 0,5 \sqrt{b}$ . Dans le cas où toutes les dislocations sont à caractère vis, le facteur numérique de l'équation (28) devient égal à 0,090.

La figure III.12 présente deux profils de diffraction en réflexion symétrique (004), l'un expérimental, l'autre simulé, pour l'échantillon 910608. Les deux pics correspondant aux deux couches de composition constante sont clairement mis en évidence. Le détecteur est fixe et son ouverture angulaire est maximale. Les pics de diffraction expérimentaux sont considérablement élargis. Leur largeur totale à mi-hauteur est de  $1170''$  (moyenne des deux), comparée à  $40''$  dans le cas idéal. Les deux couches étant fortement relaxées (voir chapitre V), les contraintes résiduelles sont très amoindries ce qui ne provoque pas de grande courbure de l'échantillon. Par conséquent l'élargissement  $\beta_R$  peut être négligé. L'application numérique de l'équation (23) donnant une valeur de  $40''$  à  $\beta_{i,h}$ , il est clair que l'élargissement angulaire restant ne peut provenir que des dislocations. D'une manière générale, dans les hétérostructures fortement disloquées, l'élargissement angulaire des pics de diffraction reflète l'influence catastrophique des dislocations. Cet élargissement des profils de diffraction dû aux dislocations n'est pas pris en compte par les programmes de simulation des profils qui tous reposent sur une intégration paramétrique des équations de Takagi-Taupin basées sur

la théorie dynamique de la diffraction des rayons X appliquée aux cristaux parfaits ou presque parfaits.

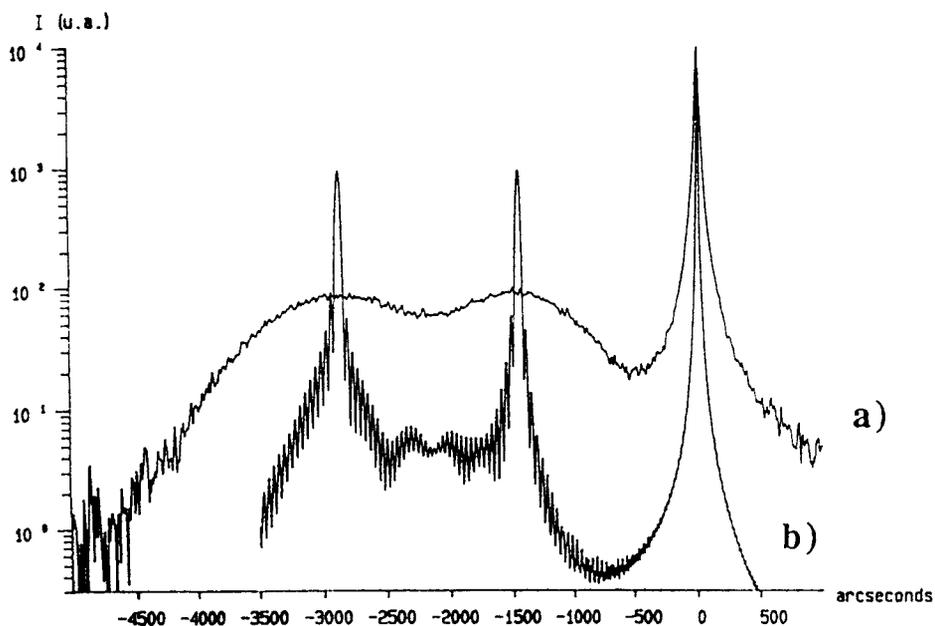


FIGURE III.12: Spectres de diffraction en réflexion (004):  
a) expérimental b) simulé. Echantillon 910608.

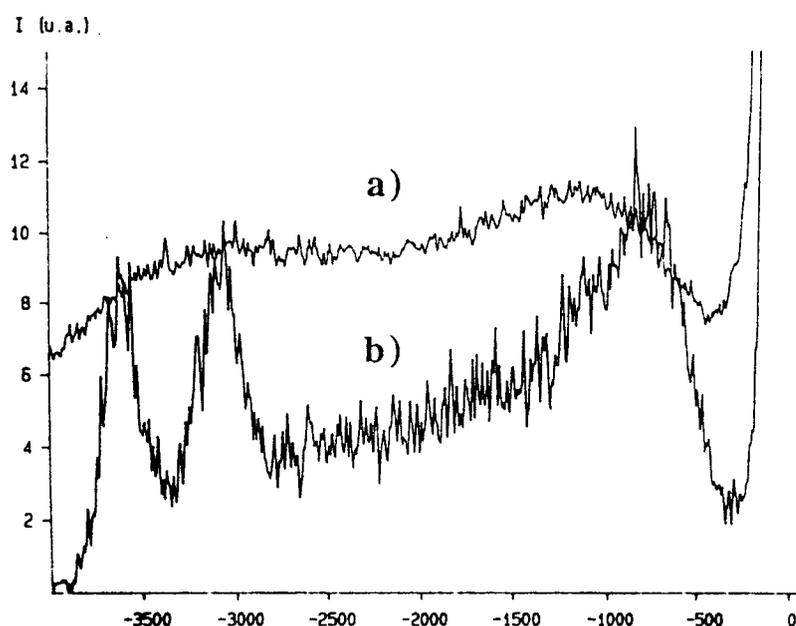
Note: Une échelle logarithmique sur l'axe des intensités offre une vue d'ensemble et permet de comparer le profil expérimental avec celui simulé mais ne permet pas de distinguer nettement les deux pics expérimentaux seuls; lorsque seules les informations sur ces derniers nous intéressent, une échelle linéaire et limitée sur l'axe des intensités est préférable (voir la figure III.15 par exemple).

### b) Influence d'une fente fine verticale devant le détecteur

Lorsque le détecteur est grand ouvert, il intègre quasiment tous les photons X qui émanent de l'échantillon. Il ne peut pas de fait discerner les effets de rotation et de dilatation des mailles qui participent à l'intensité diffractée [106]. Dans cette configuration, le diffractomètre est beaucoup moins sensible. Deux pics de diffraction de deux couches de compositions proches peuvent ne pas être résolus. La figure III.13(a) illustre cette situation. Le spectre présenté est celui obtenu en réflexion symétrique (004) sur l'échantillon Var1054 (structure de type n° 4). La couche plateau est en fait composée d'une couche d' $\text{In}_{0,29}\text{Al}_{0,71}\text{As}$  d'épaisseur 2000 Å et d'une couche superficielle d' $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$  d'épaisseur 1000 Å. Ce spectre ne présente aux petits angles (i.e. grandes désadaptations) qu'un pic très élargi et peu distinct du signal de diffraction de la "rampe".

La résolution du détecteur est grandement améliorée si on place devant celui-ci une fente fine verticale [107]. Cette résolution, dite géométrique, se calcule en effectuant le rapport de la largeur de la fente à la distance entre l'échantillon et le détecteur. Comme il

faut balayer angulairement sur une plage relativement importante et que l'ouverture angulaire du détecteur a été diminuée, on ne peut plus opérer avec un balayage de l'échantillon seul. Il faut coupler l'échantillon et le détecteur. Les profils de diffraction sont enregistrés en tournant le détecteur d'un pas double de celui de l'échantillon (mode dit  $\theta/2\theta$ ). La figure III.13(b) montre que la mise en place d'une fente fine verticale, de largeur  $L = 0,4$  mm, devant le détecteur permet de séparer les deux pics de diffraction correspondant aux deux couches plateaux superficielles InAlAs et InGaAs.



**FIGURE III.13:** Spectres de diffraction en réflexion (004) de l'échantillon Var1054.  
a) détecteur grand ouvert b) fente verticale devant le détecteur ( $L = 0,4$  mm).

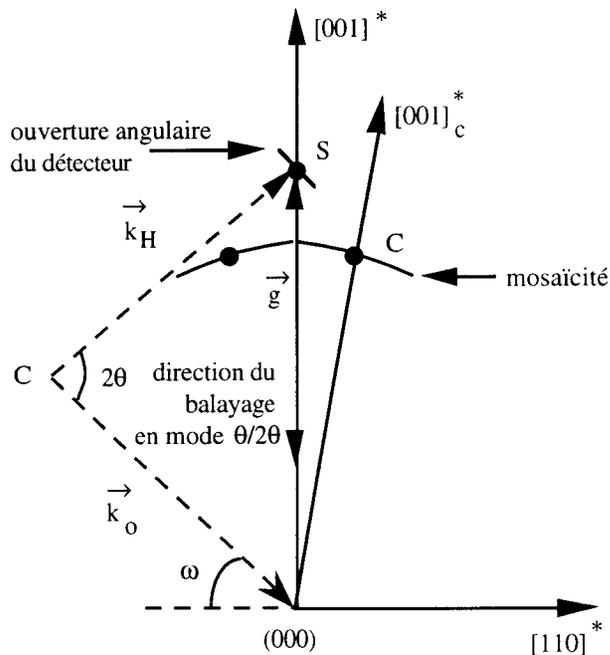
Le gain remarquable en résolution que montre cet exemple suggère d'appliquer cette méthode (i.e. fente fine + balayage en mode  $\theta/2\theta$ ) aux réflexions qui sont nécessaires pour déterminer les degrés de relaxation et les compositions des échantillons. En fait, il faut être prudent dans son utilisation car la zone de l'espace réciproque sondée par ce type de balayage avec fente fine conduit à des mesures de taux de relaxation qui sont entachées d'erreurs. Trois facteurs sont à considérer pour s'en convaincre [107]. Ceci est illustré sur la figure III.14.

**1:** Un raisonnement géométrique simple montre qu'un balayage angulaire d'axes couplés, dit  $\omega-2\theta$ , est représenté dans l'espace réciproque par une trajectoire qui joint la position du nœud de diffraction du substrat à l'origine (000). Cette trajectoire longe la direction du vecteur de diffraction  $\mathbf{g}$  qui est normal aux plans réflecteurs du substrat.

**2:** L'ouverture angulaire du détecteur est représentée dans l'espace réciproque par un arc de cercle perpendiculaire à la direction du faisceau diffracté  $\mathbf{k}_H$  et centré sur

la pointe de ce dernier.

3: La mosaïcité du cristal élargit le nœud de diffraction suivant un arc de cercle perpendiculaire à son vecteur de diffraction.



**FIGURE III.14:** Ce schéma montre l'insensibilité d'un balayage  $\omega-2\theta$  devant une désorientation macroscopique telle que, par exemple, une différence d'axe  $[001]$  entre une couche épitaxiée et son substrat. L'axe de rotation de la couche est ici perpendiculaire au plan de la feuille. Les nœuds de la couche et du substrat sont repérés par les lettres c et s respectivement. Entre les deux positions du nœud de la couche, l'échantillon a tourné de  $180^\circ$  autour de la normale à sa surface. L'intersection de l'extension mosaïque du nœud de diffraction de la couche avec la rangée  $[001]^*$  du réseau réciproque reste la même après cette opération. (Aucune longueur n'est mise à l'échelle pour plus de clarté).

En règle absolue, seuls les nœuds de diffraction se trouvant sur la trajectoire du balayage donnent lieu à des pics de diffraction. En réflexion asymétrique, seules les couches ayant totalement relaxé leurs contraintes internes diffractent selon cette règle. En réflexion symétrique, seules les couches dont l'axe  $[001]$  est identique à celui du substrat diffractent selon cette règle.

Dans les faits, l'écart à la trajectoire du balayage de la position du nœud de diffraction d'une couche épitaxiée peut être assez petit et l'extension de ce nœud assez grande pour que celui-ci puisse intercepter quand même la trajectoire et donner lieu à un signal diffracté. Dans ce cas, il faut être prudent quant à la validité du pic de diffraction observé. Premièrement, le signal diffracté est relativement faible car il vient de la partie mosaïque du nœud. Deuxièmement, le "point" d'intersection de l'extension latérale du nœud est invariant après une rotation de  $180^\circ$  de l'échantillon autour de la normale à sa surface (voir figure III.14). Un profil de diffraction **unique** enregistré avec un balayage  $\omega-2\theta$  et une fine fente verticale devant le détecteur est donc insensible à toute désorientation macroscopique, c'est à dire à une désorientation des axes  $[001]$  ou de plans réflecteurs

entre une couche épitaxiée et son substrat.

Les deux spectres de diffraction présentés sur la figure III.15 en fournissent une preuve expérimentale. Ces profils sont ceux de l'échantillon 910120 et ils ont été enregistrés en réflexion (004) pour deux positions azimutales  $\phi = 90^\circ$  et  $\phi = 45^\circ$  de l'échantillon sur son support. Une fente fine verticale devant le détecteur ainsi qu'un balayage en mode  $\theta/2\theta$  ont été utilisés. A  $\phi = 90^\circ$ , l'axe de rotation des couches épitaxiées est dans le plan d'incidence de la réflexion, tandis qu'à  $\phi = 45^\circ$ , il ne l'est plus (voir figures III.10 et III.11). Dans le premier cas, l'angle de rotation ne participe donc pas à la valeur de la séparation angulaire des pics de diffraction des couches par rapport au substrat et un signal de diffraction de ces couches est observé. Dans le second cas, l'angle de rotation des couches participe à la valeur de  $\Delta\omega$ . Cet angle est si grand que l'extension latérale des nœuds de diffraction des couches n'est pas suffisante, même en tenant compte de l'ouverture non nulle du détecteur, pour couper la trajectoire du balayage dans le réseau réciproque. Aucun signal de diffraction n'est recueilli dans ce cas.

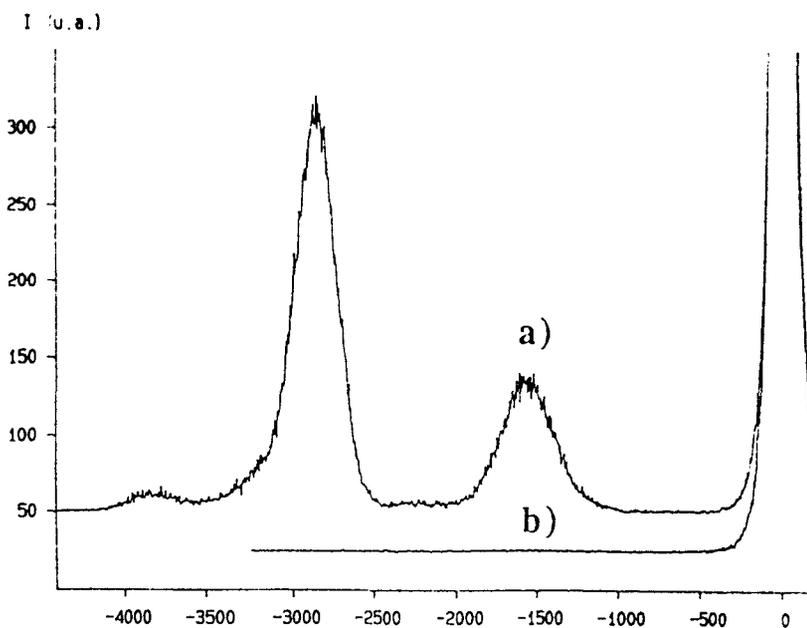


FIGURE III.15: Spectres de diffraction en réflexion (004) de l'échantillon 910120.  
a)  $\phi = 90^\circ$       b)  $\phi = 45^\circ$ .

### III.2.4 CONCLUSION

Il est clair, d'après les exemples qui précèdent, qu'il faut pouvoir séparer les effets de rotation et ceux de dilatation qui composent l'intensité diffractée par les hétérostructures épitaxiées fortement contraintes.

Or ces deux composantes sont systématiquement englobées dans les spectres

obtenus à partir d'un balayage standard. Les profils sont alors considérablement élargis et deux pics proches peuvent très bien se confondre en un seul.

La résolution du diffractomètre est améliorée en plaçant, par exemple, une fente fine verticale devant le détecteur. Un nouveau balayage angulaire, dit  $\omega-2\theta$ , couplant le détecteur et l'échantillon remplace alors le balayage standard. Malheureusement, la zone sondée dans l'espace réciproque ne passe généralement pas par le centre du nœud de diffraction d'une couche épitaxiée et l'information obtenue est alors erronée.

En enregistrant plusieurs de ces profils mais à différentes valeurs initiales de l'angle  $\omega$ , on va pouvoir "cerner" le nœud de diffraction d'une couche. Une véritable cartographie de l'intensité diffractée autour du nœud est alors envisageable. Cette possibilité qu'offre la diffraction X est développée au chapitre IV.

# CHAPITRE IV

## PRINCIPE ET APPLICATIONS DE LA CARTOGRAPHIE DE RESEAU RECIPROQUE

### IV.1 LA TRIPLE DIFFRACTION DES RAYONS X

#### IV.1.1 Principe de la triple diffraction

- a) Dispositif expérimental
- b) Apport du "troisième axe"
- c) Enregistrement d'une cartographie

#### IV.1.2 Calcul de $x$ et de $R$ à partir de cartographies de l'espace réciproque

- a) Cartographies en réflexion symétrique 00l (ex: 004)
- b) Cartographies en réflexion asymétrique (hhl) (ex: 224)

#### IV.1.3 Exemple d'application: cartographies autour du nœud (004) d'un substrat GaAs

- a) Mode opératoire
- b) Analyse d'un substrat GaAs
- c) La pseudo-triple diffraction

### IV.2 APPLICATION A L'ETUDE PAR CARTOGRAPHIES X DE LA RELAXATION DES CONTRAINTES DANS UNE STRUCTURE A RAMPE DE COMPOSITION LINEAIRE

#### IV.2.1 Introduction

#### IV.2.2 Analyse qualitative des cartographies X

- a) Les cartes en réflexion (004)
- b) Les cartes en réflexion (224)

#### IV.2.3 Analyse quantitative des cartographies X

#### IV.2.4 Conclusion

Ce quatrième chapitre est consacré à la triple diffraction des rayons X. L'amélioration de la résolution angulaire du détecteur rendue possible grâce à la mise en place d'un cristal analyseur devant celui-ci permet l'établissement de cartographies de l'intensité diffractée autour des nœuds du substrat et des couches épitaxiées. Nous présentons dans la première partie de ce chapitre comment établir ces cartes du réseau réciproque ainsi qu'une méthode de dépouillement qui permet le calcul de compositions et de degrés de relaxation de couches épitaxiées. Nous donnons en particulier un exemple simple d'application qui est la cartographie X autour d'un substrat GaAs. La seconde partie du chapitre traite de l'étude par cartographies X de la relaxation des contraintes dans une couche de composition graduelle linéaire (Var1440). Des profils, dans l'épaisseur de la structure, de compositions, de déformations élastiques résiduelles, de degrés de relaxation, de densités de dislocations, sont donnés et ensuite discutés.

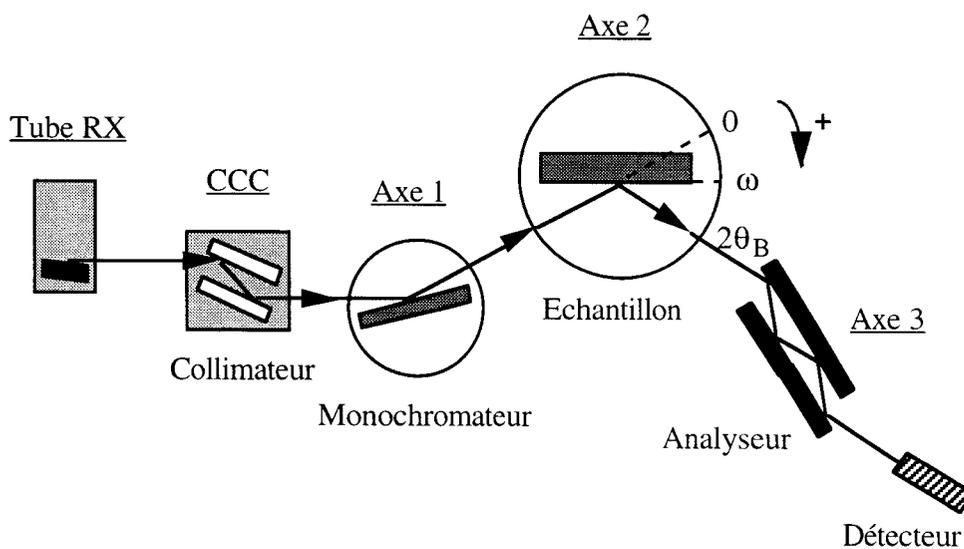
## **IV.1 LA TRIPLE DIFFRACTION DES RAYONS X**

### **IV.1.1 PRINCIPE DE LA TRIPLE DIFFRACTION**



#### **a) Dispositif expérimental**

Le montage pour les expériences dites de "triple diffraction des rayons X" (TDX) [108, 109] reprend le dispositif décrit au chapitre précédent pour la double diffraction en mode haute résolution, sur lequel on place un analyseur en position intermédiaire entre l'échantillon et le détecteur dans la direction du faisceau diffracté (figure IV.1).



**FIGURE IV.1:** Schéma du diffractomètre permettant de travailler en "trois axes".

Cet analyseur est composé d'un cristal de silicium taillé en forme de U dont les surfaces planes en regard sont orientées suivant la direction [111]. La longueur du canal est suffisante pour qu'un rayon X entrant soit réfléchi quatre fois avant de sortir dans une direction parallèle mais légèrement décalée par rapport à la direction incidente ( $\approx 1,5$  cm). La résolution angulaire de l'analyseur est de  $8''$  d'arc ce qui correspond à la largeur à mi-hauteur du profil de diffraction intrinsèque de ce cristal. Par conséquent, seuls les faisceaux de rayons X dont la divergence horizontale (c'est-à-dire parallèlement au plan d'incidence) est au plus de  $8''$  peuvent traverser l'analyseur et atteindre le détecteur. Ce gain considérable en résolution est fondamental pour obtenir des cartographies de l'intensité diffractée autour des nœuds dans le réseau réciproque.

### b) Apport du "troisième axe"

Les hétérostructures que nous avons étudiées sont très relaxées et par la même les densités de dislocations y sont très importantes. Le signal diffracté par ces échantillons disloqués englobe par conséquent des effets de rotation (désorientations macroscopiques et microscopiques du réseau cristallin) qui élargissent les spectres, et des effets de dilatation pure des mailles cristallines qui seuls permettent une mesure fiable de la relaxation vraie en termes de variations de paramètres de réseaux. Or, compte tenu de l'ouverture angulaire du détecteur en double diffraction, ces deux composantes du rayonnement X émis sont intégrées par celui-ci lorsqu'on effectue un profil suivant un balayage angulaire standard, voir par exemple [106]. La "triple diffraction", qui consiste à positionner entre l'échantillon et le détecteur un cristal analyseur, permet de séparer les effets de rotation des effets de dilatation; chacune de ces deux composantes étant maintenant accessible à l'expérience comme le montrent les deux exemples suivants [86]:

#### Mesure de désorientations cristallines

Nous allons exposer ici de manière schématique le principe d'une mesure de désorientation d'un réseau cristallin.

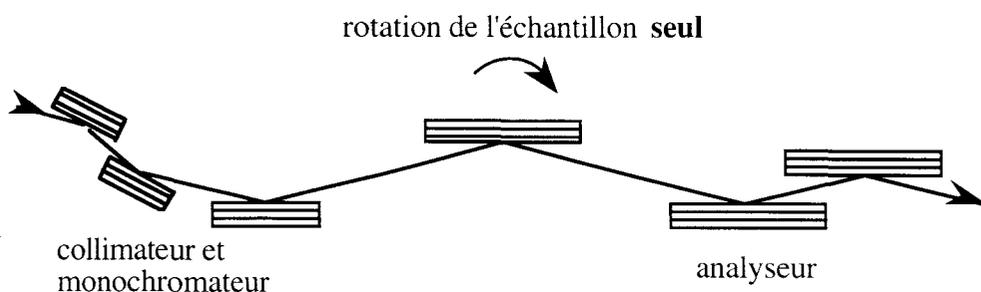


FIGURE IV.2: Montage "trois axes" modèle.

Considérons un banc de diffraction composé d'un collimateur, d'un monochromateur, d'un échantillon et d'un analyseur qui sont tous faits du même matériau et qui sont placés pour une réflexion symétrique suivant le même angle de Bragg (figure IV.2). Les cristaux étant tous parfaits, les rayons X sont diffractés et atteignent le détecteur. Une rotation de l'échantillon seul conduit alors à une perte totale de l'intensité. On suppose maintenant que l'échantillon est formé de parties cristallines désorientées les unes par rapport aux autres. Pendant que celui-ci tourne, différentes régions se trouveront en condition de diffraction et l'intensité diffractée mesurera une distribution de désorientations.

### Mesure de variations de paramètres cristallins

Nous allons prendre la même configuration décrite précédemment, seulement cette fois-ci l'analyseur tourne en même temps que l'échantillon mais avec un pas de rotation double (balayage avec axes couplés  $\omega-2\theta$ ). On suppose qu'une partie de l'échantillon de paramètre  $d$  est en condition de diffraction et que l'analyseur est positionné de telle sorte que le faisceau diffracté atteint le détecteur. Si nous effectuons un balayage angulaire  $\omega-2\theta$ , les rayons X diffractés par des régions de l'échantillon qui ont le même angle de Bragg mais qui sont désorientées par rapport à la région originale ne seront pas collectés par le détecteur puisque la position de l'analyseur ne sera plus correcte. Néanmoins, une autre partie de l'échantillon de paramètre  $d'$  peut venir se mettre en condition de diffraction avec un angle de Bragg correspondant. L'analyseur est maintenant positionné à deux fois cet angle et le signal diffracté peut être recueilli par le détecteur. Les spectres effectués dans ces conditions fournissent des informations sur les variations de paramètres.

## **c) Enregistrement d'une cartographie**

### Principe

D'une manière générale, une cartographie de l'espace réciproque est calculée à partir d'une série de spectres de diffraction réalisés en balayage angulaire  $\omega-2\theta$  avec différentes valeurs initiales  $\omega$  [110]. On effectue de cette façon un enregistrement à deux dimensions des valeurs d'intensité diffractée.

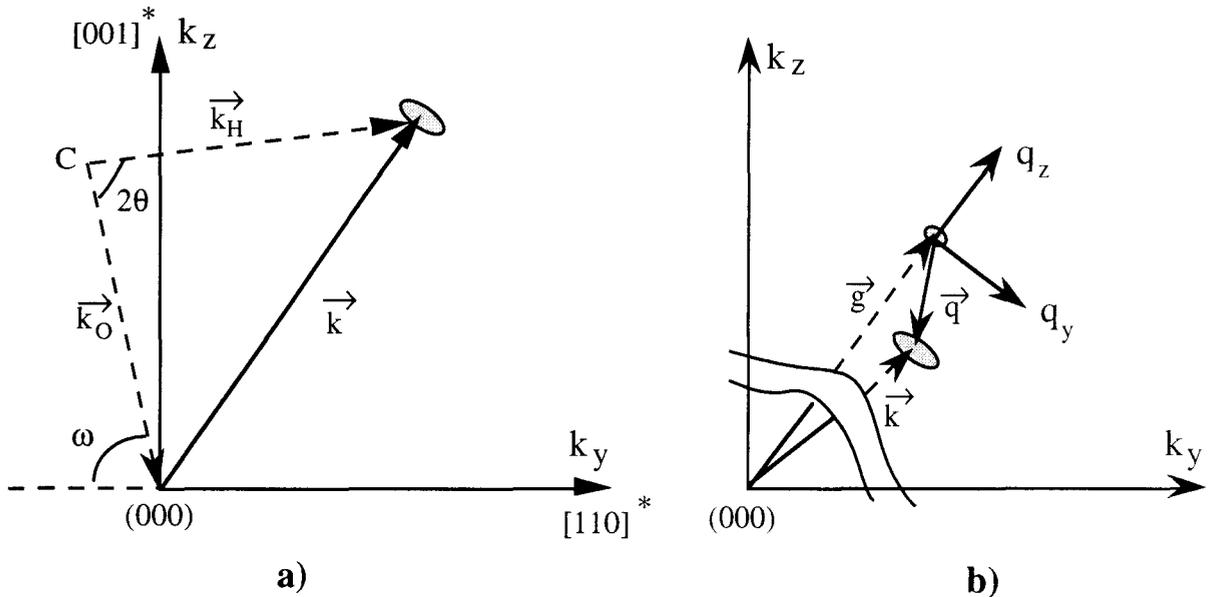
Un pic de diffraction est localisé par ses deux coordonnées angulaires  $\omega$  et  $2\theta$ . Dans le réseau réciproque, le nœud correspondant à ce pic est repéré par son vecteur de diffraction  $\mathbf{k}$  de coordonnées (figures IV.3a), [111] :

$$k_y = \frac{2}{\lambda} \sin\theta \sin(\omega-\theta) \quad (1a)$$

$$k_z = \frac{2}{\lambda} \sin\theta \cos(\omega-\theta) \quad (1b)$$

Changement de repère

En pratique on ne travaille pas avec les valeurs absolues des angles  $\omega$  et  $2\theta$ , on préfère (et ceci est le cas pour toutes les hétérostructures épitaxiées) se référer par rapport au pic du substrat. Nous écrirons donc le vecteur de diffraction  $\mathbf{k}$  comme la somme d'un vecteur de diffraction "idéal"  $\mathbf{g}$  qui joint l'origine (000) du réseau réciproque au nœud (hkl) du substrat, plus un vecteur déviation  $\mathbf{q}$  soit  $\mathbf{k} = \mathbf{g} + \mathbf{q}$ .



**FIGURE IV.3:** Position d'un nœud de diffraction dans le réseau réciproque: a) coupe de l'espace réciproque suivant le plan {110}, b) changement de référentiel.  $\mathbf{k}_0$  et  $\mathbf{k}_H$  sont respectivement les vecteurs d'onde du rayonnement X incident et réfléchi. (figures non mises à l'échelle pour plus de clarté).

Le vecteur  $\mathbf{q}$  a deux composantes  $q_y$  et  $q_z$  (figure IV.3b). La composante verticale  $q_z$  est dans le prolongement du vecteur  $\mathbf{g}$  et elle est positive du bas vers le haut. La composante horizontale  $q_y$  est perpendiculaire au vecteur  $\mathbf{g}$  et elle est positive de la gauche vers la droite c'est-à-dire suivant le même sens que les vecteurs d'onde des faisceaux incident et diffracté. Les quantités  $q_y$  et  $q_z$  sont, dans le réseau réciproque, les correspondances des écarts angulaires  $\Delta\omega$  et  $\Delta(2\theta)$ , c'est-à-dire des rotations de l'échantillon et du détecteur par rapport à leurs positions d'origines définies précédemment comme celles permettant la diffraction du substrat.

Iida et Kohra [108] ont obtenu à partir de considérations géométriques les relations approchées suivantes qui lient le vecteur déviation  $\mathbf{q}$  aux écarts angulaires:

$$q_y \approx ( 2\Delta\omega - \Delta(2\theta) ) \sin\theta / \lambda \quad (2a)$$

$$q_z \approx \Delta(2\theta) \cos\theta / \lambda \quad (2b)$$

où  $\theta$  est l'angle de Bragg du substrat. L'étude de ces deux équations montre qu'une

rotation de l'échantillon seul ( $\Delta\omega \neq 0$  et  $\Delta(2\theta) = 0$ ) affecte uniquement  $q_y$  et engendre ainsi un balayage dans le réseau réciproque perpendiculaire au vecteur  $\mathbf{g}$ . Ce type de balayage angulaire nous renseigne sur le degré de mosaïcité de la structure cristalline. Par contre un balayage de  $q_z$  seul, c'est-à-dire dans la direction de  $\mathbf{g}$ , est accompli en posant:  $2\Delta\omega - \Delta(2\theta) = 0$ , ce qui revient à tourner le détecteur d'un pas double de celui de l'échantillon (balayage angulaire  $\omega-2\theta$ ). Ce type de balayage nous renseigne sur les variations de paramètres cristallins. Ces deux équations expriment mathématiquement les trajectoires dans le réseau réciproque des parties de l'échantillon sondées par ces deux types de balayage angulaires. Associées à la très haute résolution du détecteur (due au troisième axe), ces équations interprètent donc pourquoi on peut séparer les effets des rotations de réseau et les effets des dilatations pures du signal diffracté dans l'expérience de triple diffraction.

Correction sur  $q_y$  et  $q_z$

Nous avons déterminé dans l'annexe 2 que les expressions exactes reliant  $q_y$  et  $q_z$  aux écarts angulaires sont les suivantes:

$q_y = \frac{2}{\lambda} \sin(\theta + \Delta\theta) \sin(\Delta\omega - \Delta\theta) \quad (3a)$
$q_z = \frac{2}{\lambda} \left[ \sin(\theta + \Delta\theta) \cos(\Delta\omega - \Delta\theta) - \sin\theta \right] \quad (3b)$

Les équations (2) peuvent être déduites des équations présentées ci-dessus par un développement limité au premier ordre en  $\Delta(2\theta)$  et  $\Delta\omega$ . Dans le cas de structures multicouches fortement contraintes, l'écart angulaire entre une couche et le substrat sur lequel elle est déposée peut être relativement important. Des différences d'angles de Bragg  $\Delta\theta$  de l'ordre de  $1^\circ$  et plus sont aisément atteintes. Il est clair que dans ces conditions, les équations (2) introduisent des erreurs supplémentaires sur les valeurs de compositions et de relaxations des hétérostructures étudiées par le simple fait de leurs approximations au premier ordre. On préférera utiliser, soit directement les expressions exactes de  $q_y$  et  $q_z$  (équations 3a et 3b), soit leurs développements limités au second ordre en  $\Delta(2\theta)$  et  $\Delta\omega$ :

$$q_y = (2\Delta\omega - \Delta(2\theta)) \frac{\sin\theta}{\lambda} \left[ 1 + \frac{\Delta\theta}{\tan\theta} \right] \quad (4a)$$

$$q_z = \Delta(2\theta) \frac{\cos\theta}{\lambda} - \left[ (\Delta\theta)^2 + (\Delta\omega - \Delta\theta)^2 \right] \frac{\sin\theta}{\lambda} \quad (4b)$$

On s'aperçoit maintenant qu'une rotation de l'échantillon seul affecte à la fois  $q_y$  et  $q_z$

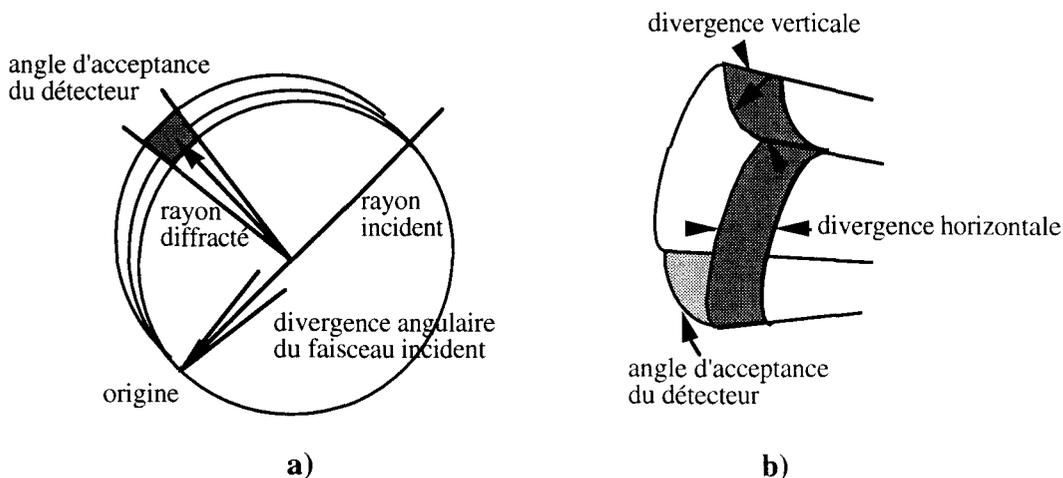
mais dans un moindre rapport. La pointe du vecteur de diffraction décrit un arc de cercle comme on devrait s'y attendre [110]. Cet arc de cercle est en fait assimilé à une droite pour les faibles valeurs de  $\Delta\omega$ .

Remarques complémentaires sur la résolution du diffractomètre

Toutes les constructions de sphères d'Ewald représentent en général une situation idéale dans laquelle le faisceau X incident est non divergent et le détecteur collecte uniquement les radiations émises dans une seule direction. La réalité est tout autre [110]:

- Premièrement, le faisceau de rayons X incident a une divergence horizontale (dans le plan d'incidence) non nulle qui conduit à une multitude de centres possibles de sphères d'Ewald.
- Deuxièmement, plusieurs rayons de ces sphères sont rendus possibles à cause de la dispersion en longueur d'onde du faisceau incident.
- Troisièmement, la résolution angulaire du détecteur revient à considérer (et à intégrer) une distribution de rayons X provenant de plusieurs directions.

Le résultat de ces trois effets est une "surface d'acceptance" dans le plan d'incidence où le faisceau diffracté peut intercepter la sphère d'Ewald (figure IV.4a) ce qui conduit, en particulier, à un élargissement des pics de diffraction [112].



**FIGURE IV.4:** Illustration par des constructions de sphères d'Ewald de la résolution d'un diffractomètre: a) Coupe du réseau réciproque dans le plan d'incidence, b) "Volume d'acceptance". (Figures non mises à l'échelle pour plus de clarté).

Une cartographie de l'espace réciproque est en fait une coupe à deux dimensions de cet espace dans le plan d'incidence des faisceaux de rayons X. Or, les rayons incidents ont aussi une divergence verticale, c'est-à-dire perpendiculaire au plan d'incidence. Ceci conduit à une multitude de centres de sphères d'Ewald qui se répartissent de part et d'autre et normalement au plan d'incidence. La "surface d'acceptance" définie précédemment est en réalité un volume (figure IV.4b). Les dimensions de ce "volume

d'acceptance" déterminent la résolution du diffractomètre [89, 113].

#### **IV.1.2 CALCUL DE X ET DE R A PARTIR DE CARTOGRAPHIES DE L'ESPACE RECIPROQUE**

Les paramètres de réseau d'une couche épitaxiée partiellement (ou totalement) relaxée, les désorientations macroscopiques (différences d'axes de croissance) et microscopiques (rotations locales de plans réticulaires) peuvent être déterminés en enregistrant **quatre cartographies** du réseau réciproque pour deux réflexions différentes soit deux cartographies par réflexion [114]. Pour chaque réflexion, deux positions à 90° de l'échantillon ( $\phi = 0$  et  $\phi = 90^\circ$ ) sont systématiquement analysées. Ces cartes représentent la projection sur un plan de l'intensité diffractée en trois dimensions, et une mesure globale des désorientations et des déformations peut être effectuée à partir de ces deux cartes orthogonales.

Les cartes que nous avons enregistrées ont un système d'axes qui n'est pas lié à l'origine du réseau réciproque mais aux nœuds du substrat. La mesure des paramètres de maille et des désorientations ne se fait pas aussi directement dans ce cas là. Une méthode de dépouillement adaptée doit être développée. Cette méthode est exposée ci-dessous.

##### **a) Cartographies en réflexion symétrique 00l (ex: 004)**

Nous allons tout d'abord définir un ensemble de notations. Un nœud de diffraction est repéré par ses coordonnées  $\Delta q_i$  ( $i = y, z$ ) dans le repère lié au nœud du substrat et par  $\Delta k_i$  ( $i = y, z$ ) dans le repère lié à l'origine (000) du réseau réciproque. Les différences  $\Delta$  sont toujours rapportées au substrat, c'est-à-dire  $\Delta q_i$  (ou  $\Delta k_i$ ) =  $q_i^c - q_i^s$  (ou  $k_i^c - k_i^s$ ) où les lettres c et s désignent la couche et le substrat respectivement.

L'élargissement horizontal et vertical d'un nœud sera décrit par les quantités  $\delta q_i$  ( $i = y, z$ ), tandis que les déplacements horizontaux et verticaux sur les cartes seront notés  $dq_i$  ( $i = y, z$ ).

La figure IV.5 est une cartographie modèle de l'espace réciproque autour du nœud (004) d'un substrat, la position de ce dernier servant d'origine à la carte. Le deuxième nœud est celui d'une couche épitaxiée (de composition constante) de paramètre de maille supérieur à celui du substrat (système en compression). Ce nœud étant décalé par rapport à l'axe vertical, le réseau cristallin tout entier de la couche est incliné par rapport à celui du substrat. Ces premiers renseignements accessibles à l'observation directe peuvent être chiffrés comme suit:

Calcul du  $a_{\perp}$

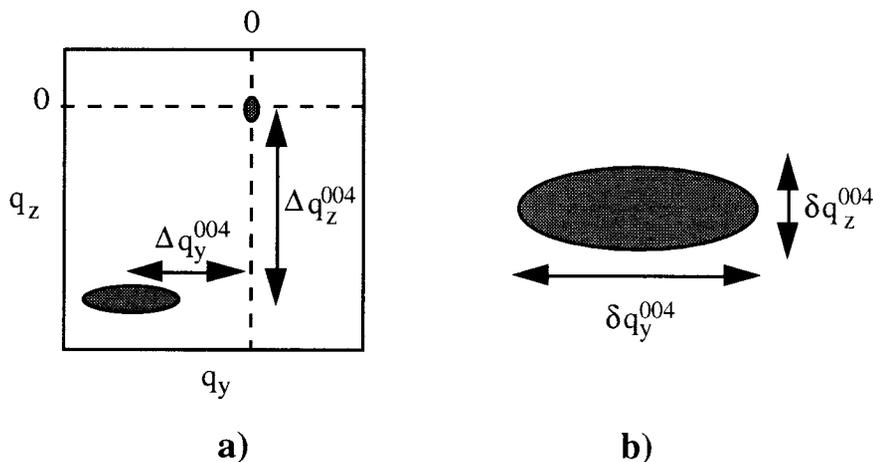
On mesure sur l'axe  $q_z$  la différence de positions entre les nœuds de diffraction de la couche et du substrat, soit  $\Delta q_z^{004}$ . Pour une réflexion symétrique, les axes  $k_z$  du réseau réciproque et  $q_z$  sont les mêmes, donc  $\Delta k_z = \Delta q_z^{004}$ . Le paramètre de maille perpendiculaire est alors directement déduit de  $k_z^c$  exprimé comme suit:

$$k_z^c = g_{004}^s + \Delta q_z^{004},$$

soit:

$$a_{\perp} = \frac{a^s}{1 + \frac{a^s}{4} \Delta q_z^{004}} \quad (5)$$

où  $a^s$  est le paramètre de maille du substrat.



**FIGURE IV.5:** Cartographie modèle du réseau réciproque autour du nœud (004) du substrat: a) vue d'ensemble, b) agrandissement du nœud de la couche.

Calcul de l'angle  $\alpha$  de rotation de la couche par rapport au substrat

On mesure sur l'axe  $q_y$  la différence de positions entre les nœuds de diffraction de la couche et du substrat, soit  $\Delta q_y^{004}$ . L'angle de rotation  $\alpha$  de la couche par rapport au substrat dans la direction définie par  $q_y$  (l'une des deux directions  $\langle 110 \rangle$ ) est alors donné par:

$$\tan \alpha = \frac{\Delta q_y^{004}}{k_z^c} \quad (6)$$

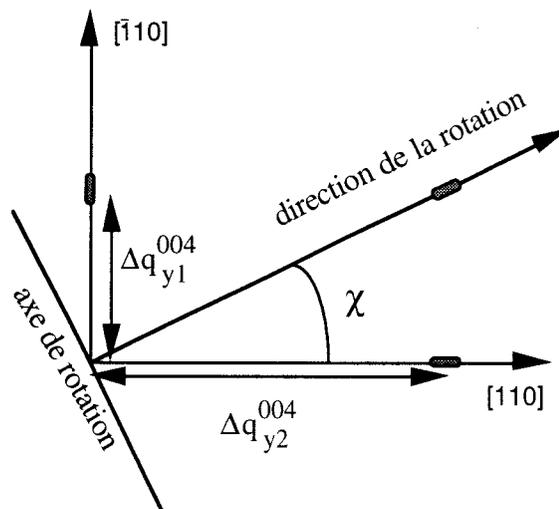
soit,

$$\tan \alpha = \frac{\frac{a^s}{4} \Delta q_y^{004}}{1 + \frac{a^s}{4} \Delta q_z^{004}} \quad (7)$$

Détermination de la direction de la rotation

La rotation du réseau réticulaire tout entier ne se fait pas obligatoirement dans une des deux directions  $\langle 110 \rangle$  du cristal. Si on note  $\Delta q_{y1}^{004}$  et  $\Delta q_{y2}^{004}$  les abscisses du nœud de diffraction de la couche mesurés sur les deux cartes orthogonales (figure IV.6), alors l'angle  $\chi$  que fait la direction de rotation de la couche avec l'une des deux directions  $\langle 110 \rangle$  est déterminé à partir de l'expression suivante:

$$\tan \chi = \frac{\Delta q_{y1}^{004}}{\Delta q_{y2}^{004}} \quad (8)$$



**FIGURE IV.6:** Coupe du réseau réciproque suivant le plan (001). Les projections du nœud de diffraction de la couche sur les deux cartes orthogonales permettent de déterminer la direction de la rotation du réseau cristallin de celle-ci par rapport au substrat.

Estimation du degré de mosaïcité de la couche

Les désorientations microscopiques du réseau cristallin induisent un élargissement horizontal des nœud de diffraction. On mesure sur l'axe  $q_y$  l'extension de ces derniers soit  $\delta q_y$ .  $\delta q_y$  est en quelque sorte une mesure du "degré de mosaïcité" du cristal. Plus la valeur de  $\delta q_y$  est petite et plus le cristal est "parfait". A contrario, plus sa valeur est grande et plus la couche est "mosaïque". L'équivalent dans l'espace direct de  $\delta q_y$  est la largeur totale à mi-hauteur du pic de diffraction qui est enregistré avec un balayage angulaire  $\omega$  (rotation de l'échantillon seul et analyseur fixe). Cette largeur à mi-hauteur

que l'on notera  $FWHM_{\omega}$  est calculée à partir de l'équation (2a) en posant  $\Delta(2\theta)=0$ , et sa valeur, pour une réflexion quelconque hkl, est donnée par l'équation suivante:

$$FWHM_{\omega} = \frac{a^s}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \delta q_y^{hkl} \quad (9)$$

### b) Cartographies en réflexion asymétrique (hhl) (ex: 224)

La figure IV.7a montre une cartographie de l'espace réciproque modèle autour du nœud (224) d'un substrat. La structure étudiée est la même que précédemment, c'est-à-dire une couche épitaxiée partiellement relaxée dont l'axe de croissance est désorienté par rapport à celui du substrat. La figure IV 7b indique la géométrie de la réflexion utilisée, ici une réflexion en émergence rasante. La détermination du paramètre de maille  $a_{//}$  de la couche n'est pas directe et nous devons procéder en quatre étapes successives.

→ Il faut dans un premier temps éliminer l'angle de rotation  $\alpha$  qui ne contribue pas au calcul des paramètres de maille. Cette opération est effectuée en déplaçant horizontalement l'origine de la carte d'une quantité:  $dq_y^{hhl} = g^{hhl} \tan \alpha$ , qui est égale, à un facteur géométrique près, au déplacement  $\Delta q_y^{004}$  du nœud de la couche par rapport à l'axe vertical  $q_z$  lu sur la carte précédente (figure IV.5):

$$dq_y^{hhl} = \frac{\sqrt{2h^2 + l^2}}{4} \Delta q_y^{004} \quad (10)$$

Ce trajet vu sur la figure IV.7a joint le point S à S' .

→ De cette nouvelle position de l'origine, notée S', on se déplace le long de l'axe  $q_z$  d'une quantité  $dq_z^{hhl}$  qui est égale, à un facteur géométrique près, à la différence  $\Delta q_z^{004}$

lue sur la carte en réflexion symétrique (figure IV.5):

$$dq_z^{hhl} = \frac{\sqrt{2h^2 + l^2}}{1} \Delta q_z^{004} \quad (11)$$

Ce trajet vu sur la figure IV.7a joint les points S' et C1. Cette nouvelle position, notée C1, correspond au nœud d'une couche **totale**ment relaxée possédant un paramètre de maille égal au  $a_{\perp}$  calculé précédemment.

→ L'ensemble des positions des nœuds des couches possédant le même paramètre de maille perpendiculaire, égal à  $a_{\perp}$ , est une droite de pente  $\pm \tan \varphi$  (cela dépend de la géométrie de la réflexion) passant par C1.

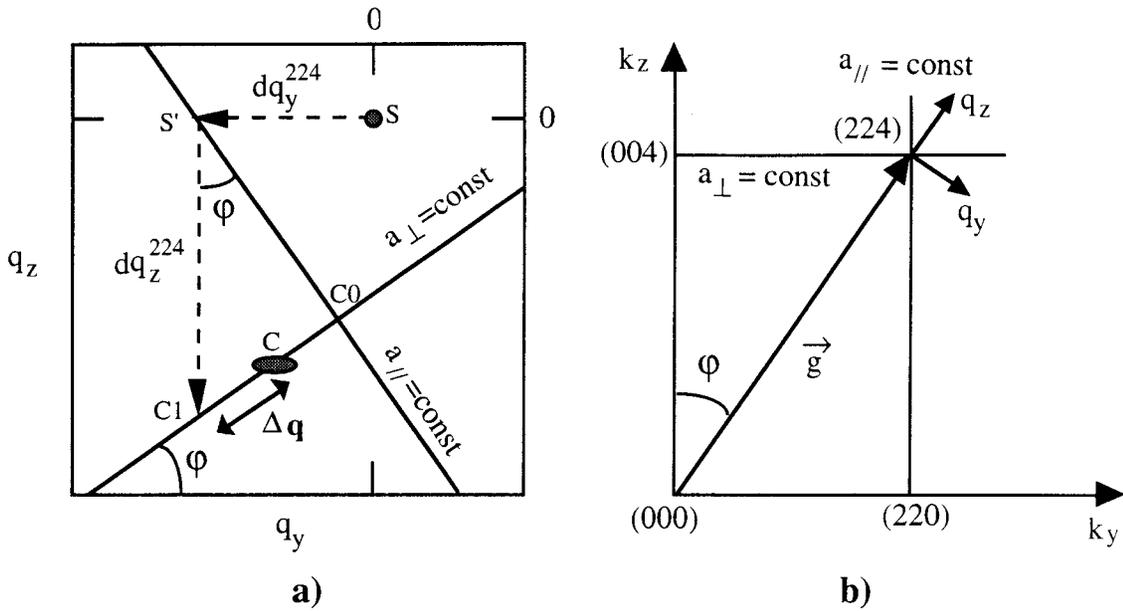


FIGURE IV.7: a) Cartographie de l'espace réciproque autour du nœud (224) d'un substrat dans un repère centré sur ce dernier. b) Schéma illustrant la géométrie de la réflexion dans le repère absolu de l'espace réciproque.  $\varphi$  est l'angle entre la normale au plan réflecteur et la direction [001].

Cette droite est notée  $a_{\perp} = \text{const}$  sur les figures IV.7a et 7b. L'ensemble des positions des nœuds des couches possédant le même paramètre de maille parallèle, égal à  $a^s$ , est une droite de pente  $\pm 1 / \tan \varphi$  passant par  $S'$ . Cette droite est notée  $a_{\parallel} = \text{const}$  sur les figures IV.7a et 7b. L'intersection entre ces deux droites, notée  $C0$ , correspond au nœud d'une couche **pseudomorphique** possédant un paramètre de maille perpendiculaire égal à  $a_{\perp}$ . **Le segment délimité par les points  $C0$  et  $C1$  est le lieu des positions possibles du nœud de diffraction de la couche**, sachant que plus on s'éloigne de  $C1$  et moins la couche est relaxée.

#### Calcul du $a_{\parallel}$

On mesure sur ce segment de droite l'écart  $\Delta q$  entre la position du nœud de la couche et  $C1$ . La composante horizontale du vecteur de diffraction de la couche dans le réseau réciproque peut s'écrire de la manière suivante:

$$k_y^{hh0} = k_y^{C1} + \Delta q = \frac{h\sqrt{2}}{a_{\parallel}} \quad (12)$$

où  $k_y^{C1}$  est la composante horizontale du vecteur de diffraction de la couche totalement relaxée de paramètre de maille égal à  $a_{\perp}$ . Son expression est donnée par:

$$k_y^{C1} = (g^{hhl} + \Delta q_z^{hhl}) \sin \varphi = \frac{h\sqrt{2}}{a^s} \left(1 + \frac{a^s}{l} \Delta q_z^{004}\right) \quad (13)$$

On extrait  $a_{\parallel}$  en combinant les équations (12) et (13), soit:

$$a_{//} = \frac{a^s}{1 + \frac{a^s}{l} \Delta q_z^{004} + \frac{a^s}{h\sqrt{2}} \Delta q} \quad (14)$$

La mesure de  $\Delta q_z^{004}$ ,  $\Delta q$  et  $\Delta q_y^{004}$  permet donc de déterminer les paramètres de maille de la couche et donc de remonter à sa composition vraie et à son taux de relaxation. Il faut remarquer que seuls les deux premiers termes contribuent explicitement aux calculs de paramètres de maille, le troisième servant uniquement à éliminer la contribution due à l'angle de désorientation  $\alpha$ .

### IV.1.3 EXEMPLE D'APPLICATION: CARTOGRAPHIES AUTOUR DU NŒUD (004) D'UN SUBSTRAT GaAs

#### a) Mode opératoire

Les cartographies de l'espace réciproque de l'intensité diffractée autour des nœuds du substrat et des couches épitaxiées sont construites à partir d'une centaine de profils de diffraction. Chaque profil est obtenu par un balayage angulaire  $\omega$ - $2\theta$ . Entre chaque profil, on incrémente de  $d\omega$  la position angulaire  $\omega$  de l'échantillon (le détecteur restant fixe pendant cette opération). Bien entendu, le nombre de profils nécessaires et donc les dimensions des cartes dépendront de la nature de l'hétérostructure étudiée. Dans le cas de nos échantillons, on balaie dans les directions  $\omega$  et  $\omega$ - $2\theta$  sur des domaines qui sont respectivement de l'ordre de  $1^\circ$  et  $1,5^\circ$  (soit  $3^\circ$  pour  $\Delta(2\theta)$ ). Un compromis doit être alors trouvé entre le temps de comptage et les pas de rotation dans chacune des deux directions pour que l'enregistrement de ces centaines de profils ne prenne pas plus de 24 h.

Ensuite ces profils sont introduits dans le programme CONTOUR fourni par la société Bede avec le diffractomètre. Le programme est chargé de transformer les coordonnées angulaires  $\omega$  et  $2\theta$  en coordonnées  $q_y$  et  $q_z$  de l'espace réciproque dans un nouveau repère lié au substrat. Le programme procède en deux temps. Dans un premier temps, il recherche la position du pic de diffraction d'intensité maximale. Les coordonnées angulaires de ce pic servent à définir l'origine  $q_y = q_z = 0$  de la carte. Dans un second temps, le programme transforme tout écart angulaire avec les coordonnées de ce pic en coordonnées  $q_y$  et  $q_z$  de l'espace réciproque à partir des équations (2). L'ensemble des profils de diffraction se présente maintenant sous la forme d'un seul fichier de même volume présentant trois colonnes qui sont les valeurs de  $q_y$ ,  $q_z$  et des intensités.

Ce fichier de données est alors chargé dans le logiciel SURFER® (édité par la société Golden Softwear). Ce logiciel graphique permet de construire des cartes

topographiques à deux et à trois dimensions de l'intensité diffractée autour des nœuds. Ces cartes se présentent le plus généralement comme des lignes de contours d'isointensités  $X$  et c'est au moins sous cette forme que nous présenterons nos résultats.

### **b) Analyse d'un substrat GaAs**

Notre première application a été de cartographier l'intensité diffractée autour du nœud (004) d'un substrat GaAs témoin. Cette carte est représentée sur la figure IV.8a. Elle a été réalisée en triple diffraction  $X$ , c'est-à-dire avec un cristal analyseur devant le détecteur. Ce nœud se présente sous la forme d'un ellipsoïde dont le grand axe est confondu avec  $q_z$  et le petit axe avec  $q_y$ . Le fait que ce nœud soit plus étendu dans la direction verticale que dans la direction horizontale est caractéristique d'un matériau de bonne qualité cristalline. On mesure sur cette carte:

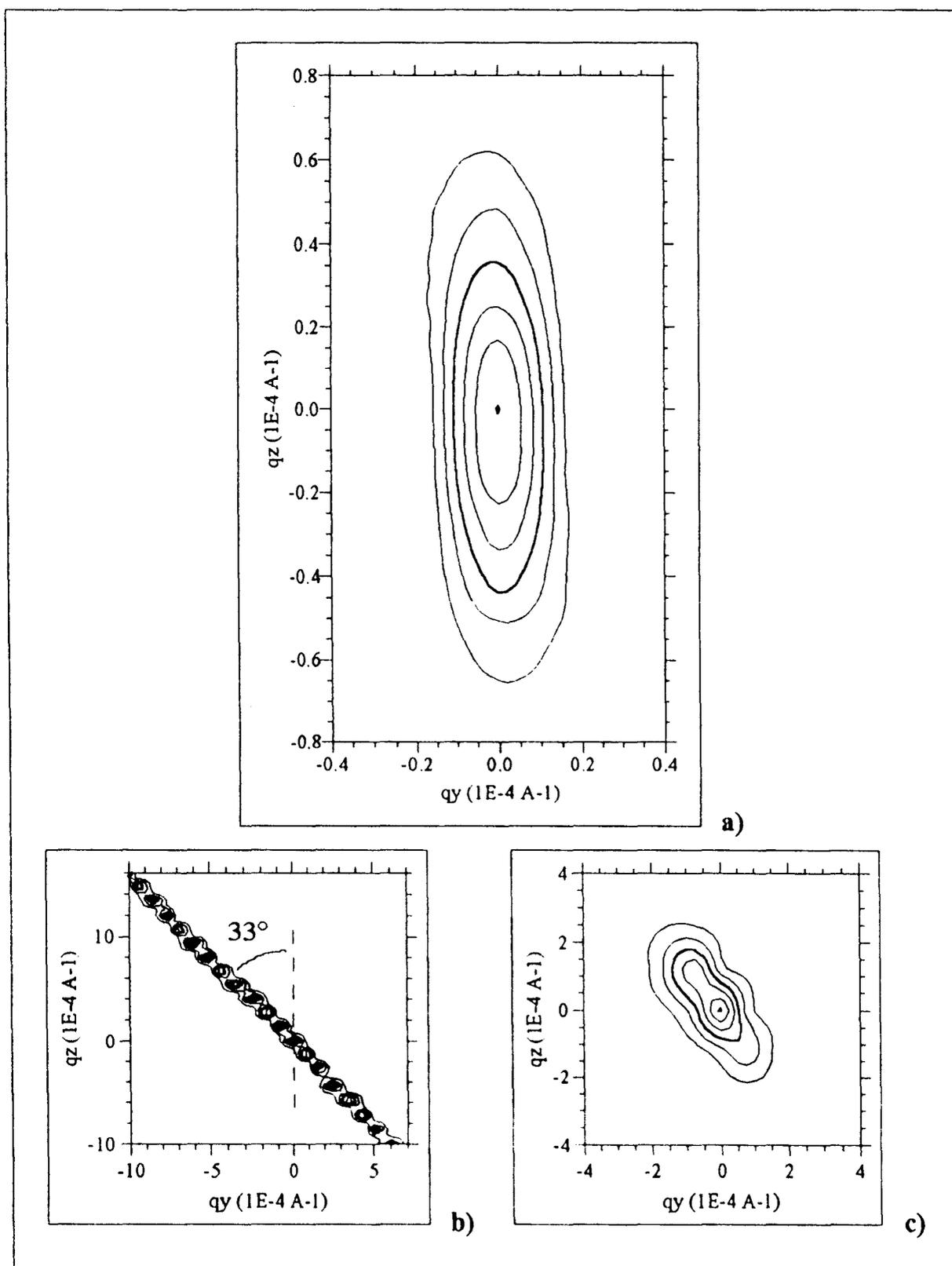
$$\delta q_y^{004} = 0,2 \cdot 10^{-4} \text{ \AA}^{-1} \text{ et } \delta q_z^{004} = 0,8 \cdot 10^{-4} \text{ \AA}^{-1}.$$

La première valeur correspond dans le réseau direct à la largeur à mi-hauteur du pic de diffraction obtenu par un balayage angulaire de l'échantillon seul, soit  $\text{FWHM}_\omega = 6''$ .  $\text{FWHM}_\omega$  est plus petite que la résolution angulaire de l'analyseur, autant dire que le substrat étudié peut être considéré comme parfait.

$\delta q_z^{004}$  correspond dans le réseau direct à la largeur à mi-hauteur du pic de diffraction obtenu par un balayage angulaire  $\omega-2\theta$ , soit  $\text{FWHM} = 15''$ . Cette valeur est totalement cohérente avec celle prédite au chapitre précédent, laquelle tenait compte de l'élargissement angulaire occasionné par un faisceau de rayons  $X$  incident qui n'est pas complètement monochromatique.

### **c) La pseudo-triple diffraction**

Le gain en résolution nécessaire pour pratiquer des cartographies dans l'espace réciproque de l'intensité diffractée peut être obtenu de deux façons différentes. La première façon est de placer entre l'échantillon et le détecteur un cristal analyseur. C'est le principe de la triple diffraction des rayons  $X$ . L'avantage de ce montage est la résolution qui est alors optimale. L'inconvénient est que les multiples réflexions occasionnées dans l'analyseur atténuent considérablement l'intensité du signal collecté par le détecteur. La deuxième façon est de placer devant le détecteur une fine fente verticale qui joue le rôle d'un cristal analyseur. On reste de ce fait dans le cadre de la double diffraction des rayons  $X$  en mode haute résolution. L'avantage est que le signal recueilli par le détecteur est nettement plus intense. L'inconvénient est que la résolution angulaire de ce dernier est bien inférieure dans ces conditions. La résolution est néanmoins d'autant plus grande que



**FIGURE IV.8:** Cartographies d'intensité diffractée autour du nœud (004) de substrats GaAs réalisées en triple et en pseudo-triple diffraction des rayons X:

- a) GaAs témoin en triple diffraction,
- b) GaAs témoin en pseudo-triple diffraction (fente fine 75  $\mu\text{m}$  devant le détecteur),
- c) Substrat GaAs de l'échantillon 941211 en pseudo-triple diffraction (fentes avant et après l'échantillon, 150 et 75  $\mu\text{m}$  respectivement).

la largeur de la fente est petite, mais ceci est au détriment de l'intensité mesurée. Un compromis doit être établi entre la largeur de la fente et le nombre de photons X collectés par le détecteur.

Adoptant ce point de vue, van der Sluis [107] utilise une fente de largeur égale à la largeur du faisceau diffracté et il opère avec une réflexion asymétrique en condition d'émergence rasante. La dimension de la fente permet donc de collecter un maximum de signal tout en diminuant le rapport signal sur bruit. La géométrie de la réflexion dite en émergence rasante comprime le faisceau de rayons X à la sortie de l'échantillon. Cette géométrie permet l'emploi d'une fente plus fine qui augmente par conséquent la résolution du détecteur. Van der Sluis [113, 107] a pu enregistrer des cartographies d'intensité diffractée dans le réseau réciproque utilisant ces conditions (qu'on peut qualifier de pseudo-triple diffraction). Les nœuds de diffraction sont simplement élargis mais leur position est inchangé [110].

Ce qu'on remarque le plus quand on opte pour la fente fine au lieu de l'analyseur est la forme du nœud de diffraction du substrat qui change d'aspect. La figure IV.8b représente une cartographie de l'espace réciproque autour du nœud (004) du même substrat témoin obtenu en double diffraction des rayons X. Seule une fente verticale de 75 µm est placée devant le détecteur. Le nœud est étiré en travers de la carte. En fait, il est allongé le long de la sphère d'Ewald [115].

**L'extension verticale (i.e. dans la direction  $q_z$ ) du nœud de diffraction du substrat est directement liée à la largeur du faisceau diffracté**, comme l'illustre la figure IV.8c. Cette troisième carte a été obtenue en ajoutant au montage précédent une fente verticale de 150 µm environ derrière le monochromateur d'entrée. On observe dans ce cas que le nœud de diffraction du substrat est peu allongé. Nous mesurons sur la carte une extension  $\delta q_z^{004}$  du nœud de l'ordre de  $2,8 \cdot 10^{-4} \text{ \AA}^{-1}$ .

Ceci correspond à une rotation  $\Delta(2\theta)$  du détecteur de  $5,14 \cdot 10^{-4} \text{ rad}$  (ou **106''**).

Il est possible de retrouver ces résultats par des considérations purement géométriques. Le détecteur ne collecte qu'une partie du faisceau diffracté du fait de la fine fente verticale placée devant celui-ci. Si la largeur du faisceau diffracté est plus importante que la largeur de la fente alors du signal sera encore recueilli quand le détecteur tourne. L'amplitude de la rotation dépendra bien entendu de la largeur du faisceau. La rotation  $\Delta(2\theta)$  du détecteur peut être reliée à la largeur L du faisceau diffracté par la relation suivante:

$$\Delta(2\theta) = \frac{L}{D} \quad (15)$$

où D est la distance entre l'échantillon et le détecteur.

En réflexion symétrique (004) la largeur du faisceau diffracté est égale à celle du faisceau

incident, soit  $L = 150 \mu\text{m}$  dans ce cas. Nous avons mesuré  $D = 29 \text{ cm}$  environ. L'application numérique de l'équation (15) donne  $\Delta(2\theta) = 5,17.10^{-4} \text{ rad}$  (ou  $107''$ ). On retrouve bien la valeur de l'extension verticale du nœud de diffraction du substrat.

Cela explique aussi pourquoi cet artefact est beaucoup moins visible en réflexion asymétrique en émergence rasante (224), comme nous le verrons par la suite. Dans cette géométrie, la largeur du faisceau diffracté est environ 8,5 fois plus petite que la largeur du faisceau incident pour une réflexion sur le GaAs. Par conséquent, l'extension du nœud (224) du substrat est beaucoup moins importante qu'en réflexion (004).

Enfin, il semble que cet artefact n'affecte que les contours des hautes intensités (substrats) et pas les contours des faibles intensités (couches épitaxiées) [115].

## **IV.2 APPLICATION A L'ETUDE PAR CARTOGRAPHIES X DE LA RELAXATION DES CONTRAINTES DANS UNE STRUCTURE A RAMPE DE COMPOSITION LINEAIRE: Var1440**

### **IV.2.1 INTRODUCTION**

Cette technique de caractérisation par diffraction des rayons X a été appliquée à l'échantillon noté Var1440. Cette structure est constituée, rappelons-le, d'une seule couche d'InGaAs de composition graduelle linéaire (30 % d'In / $\mu\text{m}$  visé) déposée sur un substrat GaAs (non dopé). Cet échantillon est étudié en vue d'une application comme couche tampon dans les futures réalisations d'hétérostructures. L'étude de la relaxation d'une "rampe" simple de ce type est de ce point de vue très importante car son comportement plastique va conditionner fortement l'état de contrainte des couches supérieures. Par ailleurs, on peut noter que l'enregistrement de cartographies de l'espace réciproque d'une couche de composition graduelle linéaire est d'un intérêt tout récent comme en témoignent les publications dans ce domaine, qui sont essentiellement consacrées à l'étude du système SiGe sur substrat Si ou Ge [116-118].

Quatre cartes de l'espace réciproque autour du nœud de diffraction du substrat ont été établies. Pour cela, deux réflexions ont été utilisées, à savoir une réflexion symétrique (004) et une réflexion asymétrique (224)A en géométrie d'émergence rasante. La position de l'échantillon est repérée par l'angle d'azimut  $\phi$ . Nous ne savons pas pour cet échantillon repérer exactement les deux directions cristallographiques  $\langle 110 \rangle$  du plan (001) d'interface. Néanmoins, nous nous sommes arrangés pour qu'à  $\phi = 0^\circ$  les projections du faisceau incident et du faisceau réfléchi soient dans une des deux directions  $\langle 110 \rangle$  de ce plan, dans le but de déterminer une éventuelle anisotropie de relaxation

plastique entre ces deux directions.  $\phi$  ne prendra donc que deux valeurs:  $0^\circ$  ou  $90^\circ$ .

Compte-tenu de ce qui précède (paragraphe IV.1.3.c), nous avons remplacé l'analyseur par une fine fente verticale positionnée devant le détecteur. La résolution angulaire de ce dernier passe de  $8''$  avec l'analyseur à environ  $50''$  avec la fente.

Nous allons dans un premier temps discuter de l'aspect général des cartes produites et des informations majeures qu'il est possible de récolter de visu. Ensuite, l'application des formules développées au paragraphe IV.1.2 permettra d'établir des profils de relaxation et de composition dans l'épaisseur de la couche. Une discussion sur ces profils suivra.

## IV.2.2 ANALYSE QUALITATIVE DES CARTOGRAPHIES X

### a) Les cartes en réflexion (004)

La position du nœud de diffraction du substrat marque l'origine des cartes présentées sur la figure IV.9 et il se situe dans la partie haute de chaque carte, au-dessus de la position du nœud de la couche: le système étudié est bien un système en compression. L'aspect allongé du nœud du substrat est dû à l'utilisation d'une fente devant le détecteur au lieu d'un cristal analyseur. Cet effet a été discuté au paragraphe IV.1.3.c. Le nœud de diffraction de la couche s'étend verticalement (vers les  $q_z$  négatifs) sur un large domaine: cette couche présente donc une grande distribution de paramètres perpendiculaires. On observe de même une extension latérale importante ce qui traduit une distribution large de désorientations locales du réseau cristallin. On remarque que l'élargissement latéral du nœud a tendance à diminuer lorsque l'on se dirige vers les petits  $q_z$  c'est-à-dire vers les grands  $a_\perp$ : cela signifie que la couche est plus "mosaïque" près du substrat que vers la surface.

Des différences apparaissent nettement entre les deux cartes. Pour  $\phi = 0^\circ$ , le nœud de la couche s'écarte de plus en plus de l'axe vertical au fur et à mesure que l'on va vers les petits  $q_z$ , tandis que la position du nœud ne semble pas être trop décentrée par rapport à cet axe pour  $\phi = 90^\circ$ : la désorientation des axes de croissance entre la couche et le substrat s'effectue principalement dans une seule direction repérée par  $\phi = 0^\circ$ . Cette désorientation varie dans l'épaisseur de la couche. Elle est plus faible près du substrat que près de la surface. La deuxième différence vient de la forme particulière des lignes de niveau. On peut observer sur la carte (b) un certain renflement de ces lignes. Ce renflement semble commencer en dessous du nœud de diffraction du substrat c'est-à-dire au début de la couche et se propage dans une direction parallèle à l'axe vertical  $q_z$ .

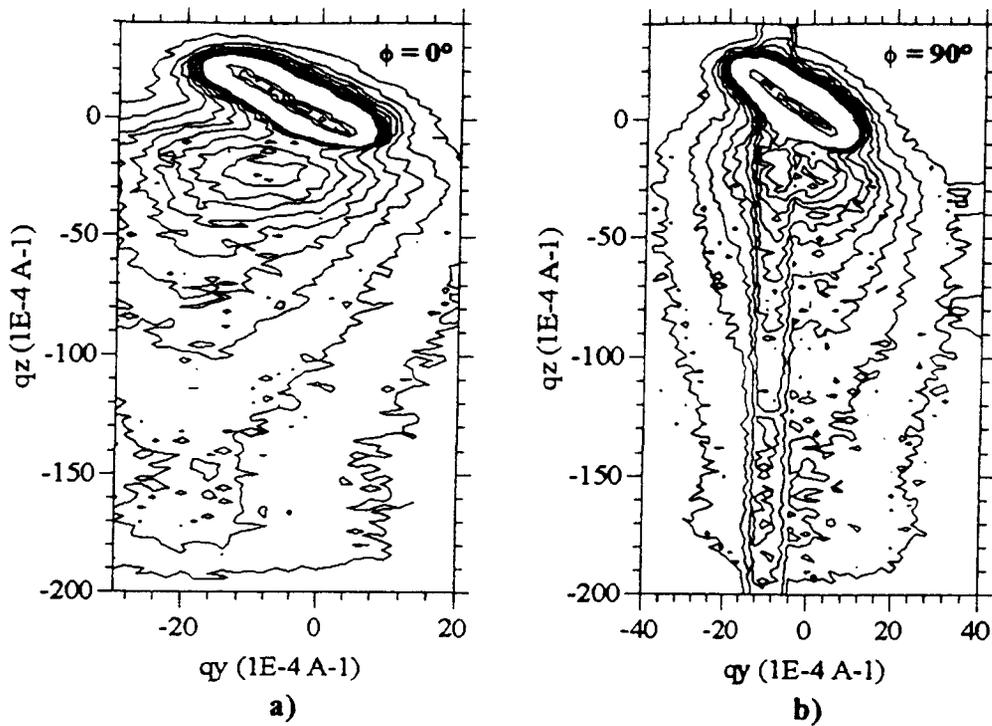


FIGURE IV.9: Cartographies d'intensité diffractée autour du nœud (004) du substrat de l'échantillon Var1440 pour deux azimuts: a)  $\phi = 0^\circ$ , b)  $\phi = 90^\circ$ .

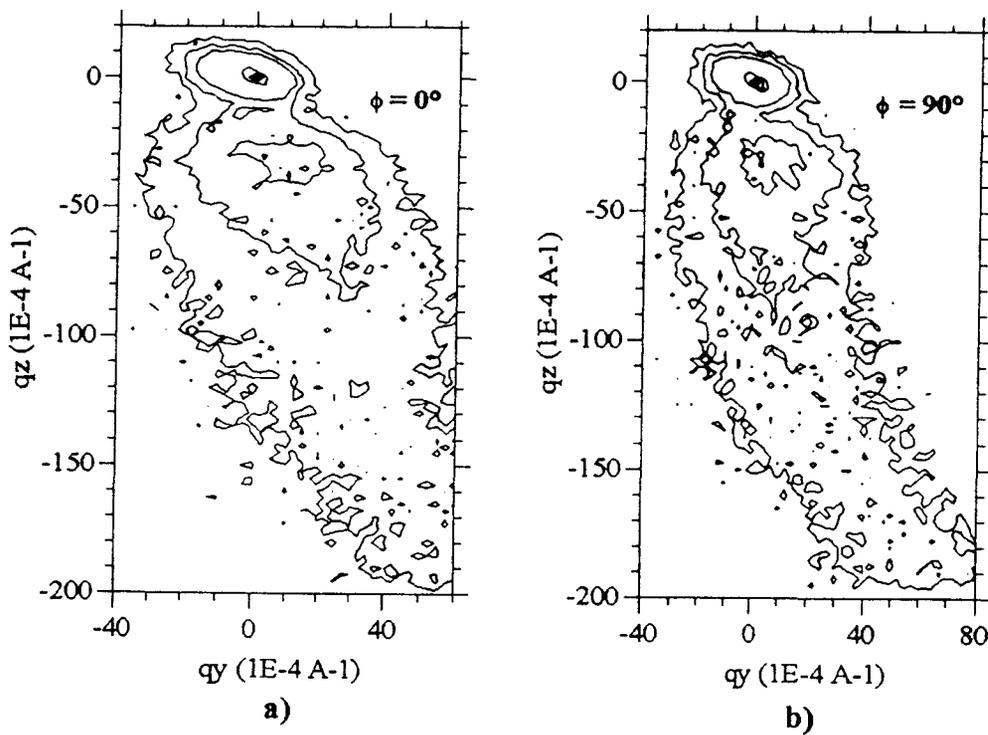


FIGURE IV.10: Cartographies d'intensité diffractée autour du nœud (224) du substrat de l'échantillon Var1440 pour deux azimuts: a)  $\phi = 0^\circ$ , b)  $\phi = 90^\circ$ .

Ce phénomène n'est pas observé sur l'autre carte et il n'est pas observé non plus sur les deux cartes en réflexion asymétrique (figure IV.10). L'origine de ce renflement est une question qui reste sans réponse à l'heure actuelle.

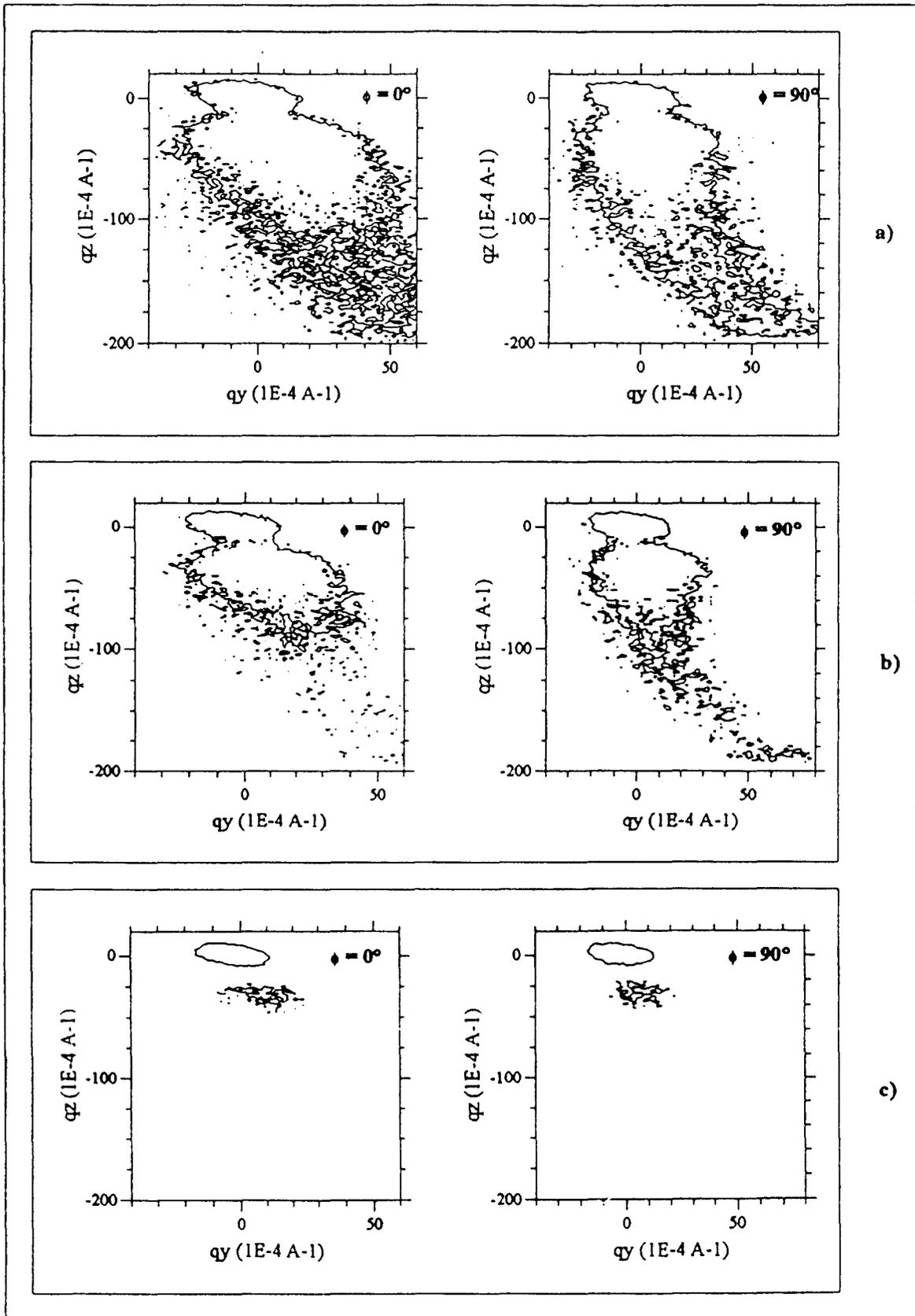
### **b) Les cartes en réflexion (224)**

Comme pour les cartographies précédentes, le nœud de diffraction du substrat vu sur les deux cartes (a) et (b) de la figure IV.10, sert de repère. Il est centré sur  $q_y = q_z = 0$  et occupe la partie supérieure des cartes tandis que le nœud de diffraction de la couche occupe la partie inférieure. Celui-ci s'étend à la fois dans la direction de l'axe  $q_z$  et de l'axe  $q_y$ . Il y a donc à la fois une distribution de paramètres perpendiculaires et de paramètres parallèles. Un écart de la position du nœud par rapport à l'axe  $q_z$  peut être relié au degré de relaxation de la structure. Plus cet écart est important et moins la structure est relaxée. Globalement, les figures IV.10a et IV.10b montrent que la couche relaxe différemment dans les deux directions  $\langle 110 \rangle$ .

Le nœud de la couche peut être séparé en deux parties bien distinctes pour  $\phi = 90^\circ$ . Dans la première partie située juste en dessous du nœud du substrat, celui de la couche longe approximativement l'axe  $q_z$ , alors qu'il s'en écarte progressivement dans la seconde partie. Ceci met en évidence deux états de relaxation différents dans l'épaisseur. Pour cette orientation, la couche est plus relaxée en profondeur qu'en surface. Pour  $\phi = 0^\circ$ , le nœud de la couche ne présente pas ces deux parties mais semble s'écarter de l'axe  $q_z$  dès le début. Ceci traduit une relaxation globalement moins bonne dans cette direction. Ces aspects différents des cartes sont le reflet d'**une anisotropie de relaxation** fortement marquée entre les directions  $\phi = 0^\circ$  et  $\phi = 90^\circ$ . Cela est clairement mis en évidence sur la figure IV.11 où sont juxtaposées plusieurs cartographies représentant différentes coupes isointensités à des niveaux croissants.

## **IV.2.3 ANALYSE QUANTITATIVE DES CARTOGRAPHIES X**

Une analyse quantitative de l'échantillon Var1440 dans l'épaisseur a pu être réalisée en "découpant" virtuellement la couche de composition graduelle linéaire en plusieurs lamelles. Nous avons donc effectué une dizaine de pointés sur chaque cartographie en réflexion (004), entre le début et la fin du nœud de diffraction de la couche dans la direction de l'axe  $q_z$ . Chaque pointé est une mesure locale de  $a_\perp$  et de l'angle  $\alpha$  de désorientation des axes de croissance. Ensuite, pour chaque paramètre de maille perpendiculaire, une mesure du paramètre  $a_\parallel$  correspondant peut être effectuée avec l'aide des cartes en réflexion asymétrique (224). Ainsi à chaque pointé sur les cartes (004), on peut faire correspondre une valeur de composition, une mesure de degré de



**FIGURE IV.11:** Cartographies d'intensité diffractée autour du nœud (224) du substrat de l'échantillon Var1440 pour les deux azimuts  $\phi = 0^\circ$  et  $\phi = 90^\circ$  et à différents niveaux d'intensité: a) 0,6 b) 0,9 c) 2,2 cps.

relaxation, etc. Pour obtenir des profils en épaisseur, nous avons fait l'hypothèse suivante: l'extension totale du nœud de diffraction de la couche suivant l'axe  $q_z$ , lue sur les cartographies en réflexion (004) et délimitée par le premier et le dernier pointé, correspond à  $w = 1 \mu\text{m}$  c'est-à-dire à l'épaisseur totale de la couche graduelle. Une régression linéaire permet alors de faire correspondre une valeur d'épaisseur à chaque pointé.

→ Un profil de composition en fonction de l'épaisseur obtenu par cette méthode est représenté sur la figure IV.12. Le gradient de composition de la couche déterminé par cette expérience vaut environ **23,7 % d'indium par micron**, ce qui est bien en dessous des 30 % In / $\mu\text{m}$  visés.

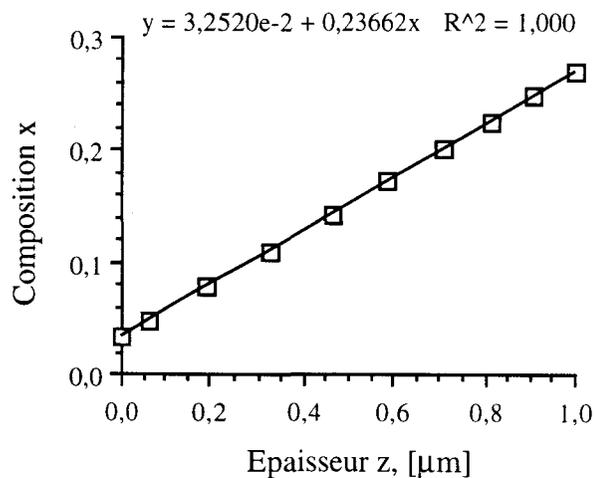


FIGURE IV.12: Profil de composition dans l'épaisseur de la couche graduelle (Var1440).

L'aspect rigoureusement linéaire du profil de composition est dû pour beaucoup à la relation linéaire choisie entre les paramètres de maille mesurés dans la direction de croissance et l'épaisseur  $z$ . On peut imaginer deux exemples pour lesquels cette forme de représentation en fonction de l'épaisseur ne permet pas de rendre compte des variations réelles de composition dans la couche graduelle:

- i) Une couche de composition graduelle peut ne pas avoir en début d'épitaxie un caractère strictement linéaire. On peut imaginer en effet qu'une partie de l'épaisseur de la couche graduelle près du substrat soit vue comme une couche de composition constante dont la relaxation plastique des contraintes conduit à une seule valeur de  $a_{\perp}$ .
- ii) Soit une couche de composition graduelle effectivement linéaire, mais par le biais de la relaxation plastique il est possible de maintenir près du substrat une partie de la couche avec un paramètre de maille perpendiculaire sensiblement

constant.

Dans chaque cas ci-dessus, une partie de l'épaisseur de l'échantillon est en condition de diffraction pour un même angle de Bragg correspondant au même  $a_{\perp}$ . La distribution de paramètres de maille perpendiculaires n'est donc pas rigoureusement linéaire dans ces cas. D'autre part, le fait qu'une partie de l'épaisseur de l'échantillon satisfasse globalement à une même condition de diffraction accroît le signal diffracté dans ces régions. Nous avons toujours mesuré sur les spectres de diffraction et sur les cartographies X un niveau d'intensité diffractée des "rampes" plus élevé près du substrat que vers la fin des couches graduelles, ce qui n'est pas a priori physique si on tient compte uniquement de l'absorption du matériau. Il est impossible cependant de dire quelle est, des deux exemples cités plus haut, la cause exacte de cet accroissement local d'intensité.

On note que la composition initiale n'est pas nulle mais elle est de **3,3 % d'indium**. Ceci montre qu'il est difficile, voire impossible, de démarrer rigoureusement à 0 % en indium la croissance d'une couche en MBE.

→ Les mesures combinées des paramètres de maille parallèles et des compositions (figure IV.12) permettent de représenter les déformations résiduelles en fonction de l'épaisseur (figure IV.13). Les déformations résiduelles sont en fait les déformations dans le plan d'interface dont on rappelle qu'elles sont calculées à partir de l'équation suivante:

$$\epsilon_{//}(z) = \frac{a_{//}(z) - a(z)}{a(z)} \quad (16)$$

où  $a_{//}(z)$  est le paramètre de maille parallèle mesuré à la côte  $z$  et  $a(z)$  est le paramètre de maille de la couche totalement relaxée (c'est-à-dire de structure cubique) correspondant à la composition mesurée à la côte  $z$ . L'origine  $z = 0$  est prise à l'interface entre le substrat et la couche graduelle.

D'un point de vue général, on remarque que les déformations résiduelles sont maximales en surface et minimales à l'interface. Entre les deux, les profils des déformations sont complètement différents dans les deux azimuts  $0^{\circ}$  et  $90^{\circ}$ , tant au niveau des valeurs qu'au niveau de la forme des courbes, ce qui confirme bien l'**anisotropie de la relaxation** dans les deux directions  $\langle 110 \rangle$ . Nous avons tracé, pour comparaison sur la même figure, en trait continu le profil des déformations maximales  $\epsilon_0(z)$  correspondant à une structure totalement pseudomorphique et en trait pointillé le profil des déformations résiduelles que l'on peut déduire du modèle de relaxation de Tersoff (Equ. II.37).

Pour la position de l'échantillon repérée par  $\phi = 90^{\circ}$ , l'allure du profil semble le

mieux se rapprocher du modèle théorique au moins au début (pour les valeurs) et à la fin de la courbe (pour les variations). Deux états différents de déformation de la couche sont mis en évidence. Les régions les plus enterrées, entre 0 et 0,4  $\mu\text{m}$  environ, sont quasiment non contraintes tandis que les régions "en surface", entre 0,8 et 1  $\mu\text{m}$  environ, sont totalement contraintes par rapport au matériau sous-jacent.

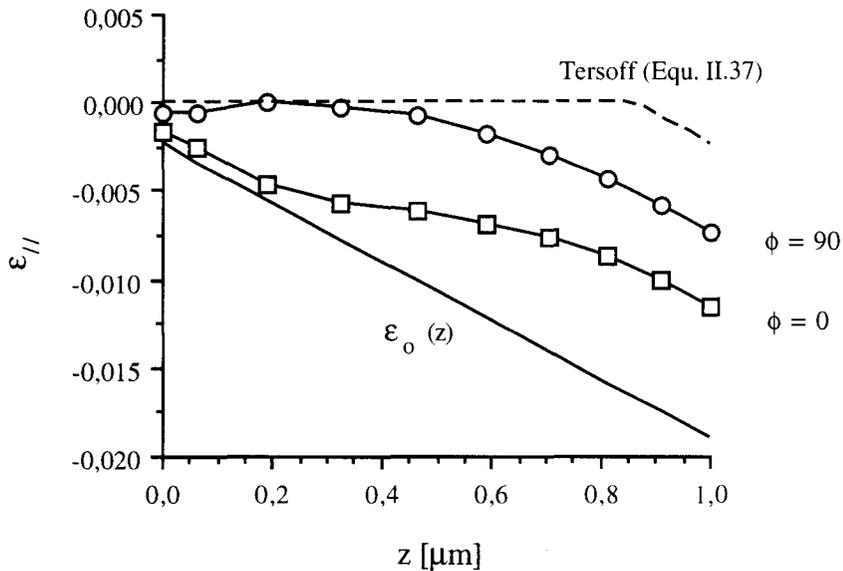


FIGURE IV.13: Profils des déformations résiduelles dans l'épaisseur de la couche graduée (Var1440)

C'est en cela que nous disons que le modèle de relaxation de Tersoff [29] est qualitativement vérifié dans cette direction. Dans l'autre direction ( $\phi = 0^\circ$ ), les régions de la couche proches de la surface sont elles aussi totalement contraintes par rapport à la matière sous-jacente. Par contre, l'état de déformation proche de l'interface est à l'opposé de celui qui régit dans la direction perpendiculaire. Pour  $\phi = 0^\circ$ , ces régions restent en grande partie contraintes élastiquement.

→ D'un point de vue quantitatif, les différences avec le modèle de Tersoff sont très nettes. La déformation résiduelle proche de l'interface mesurée dans la direction  $\langle 110 \rangle$  correspondant à  $\phi = 90^\circ$  est faible mais non nulle. Ceci reflète sans doute de la difficulté réelle à nucléer et à propager des dislocations dans une partie de l'échantillon faiblement contrainte au départ. On peut donc s'attendre à ce que la relaxation soit moins efficace tout près de l'interface qu'un peu plus loin. Ceci est observé sur la figure IV.14 qui montre comment évolue le degré de relaxation  $R (= 1 - \epsilon_{||}(z) / \epsilon_0(z))$  dans l'épaisseur de la couche. Le degré de relaxation mesuré pour  $\phi = 90^\circ$  passe en effet de 73 % à 100 % entre  $z = 0$  et  $z = 0,2 \mu\text{m}$ .

Dans la direction  $\langle 110 \rangle$  correspondant à  $\phi = 0^\circ$ , la déformation résiduelle déterminée à l'interface est beaucoup plus importante, ce que traduit le degré de relaxation qui est de 28 %. Mais la différence ne s'arrête pas à ce chiffre. L'allure des profils de déformation au voisinage de l'interface est complètement différent. Pour  $\phi = 90^\circ$ , le profil semble suivre la courbe théorique du modèle de Tersoff (figure IV.13) et le degré de relaxation augmente (figure IV.14), alors que pour l'autre azimuth, le profil semble suivre la courbe des déformations maximales (figure IV.13) et le degré de relaxation, qui est déjà plus faible au départ, diminue passant de 28 % à 17 % entre  $z = 0$  et  $z = 0,2 \mu\text{m}$

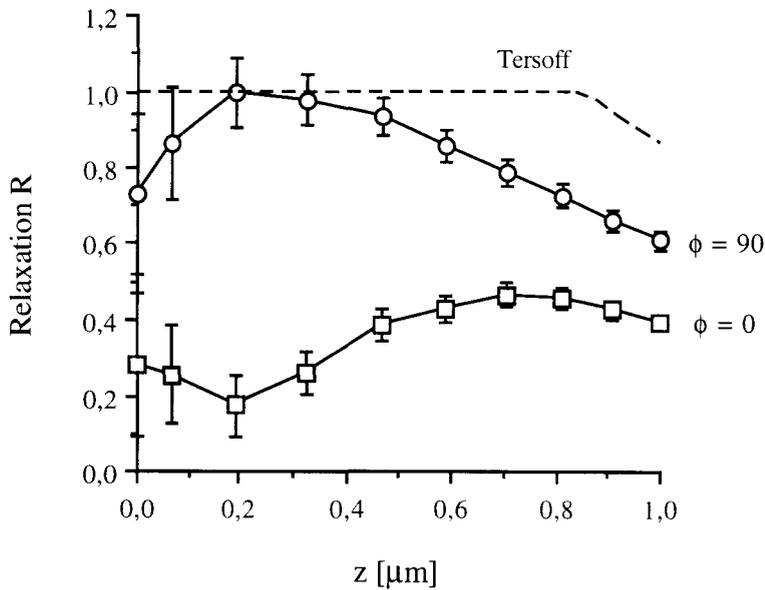


FIGURE IV.14: Profils du degré de relaxation R dans l'épaisseur de la couche graduelle (Var1440).

La relaxation des contraintes dans l'échantillon constitué d'une simple rampe linéaire se fait donc de manière très anisotrope. Globalement, le degré de relaxation mesuré dans la direction azimutale  $\phi = 90^\circ$  est supérieur à celui mesuré dans la direction perpendiculaire. Cette anisotropie est plus marquée près de l'interface que près de la surface. Elle est maximale pour  $z = 0,2 \mu\text{m}$ .

→ Ceci se traduit par des densités de dislocations près de l'interface plus fortes dans la direction azimutale  $\phi = 0^\circ$  que dans l'autre direction, comme le montre la figure IV.15. La densité de dislocations par unité de surface entre  $z_i$  et  $z_{i-1}$  peut être calculée en divisant la densité de dislocations par unité de longueur calculée dans l'interface "virtuelle" entre la  $i^{\text{ème}}$  et la  $(i-1)^{\text{ème}}$  couches par l'épaisseur de la  $i^{\text{ème}}$  couche soit:

$$\rho ( \overline{z_i} ) = \frac{\epsilon_{//,i} - \epsilon_{0,i}}{b_e} \times \frac{1}{z_i - z_{i-1}} \quad (17)$$

où  $\epsilon_{//,i}$  est la déformation résiduelle mesurée à la côte  $z_i$  (i.e. =  $a_{//}(z_i) / a(z_i) - 1$ ),  $\epsilon_{0,i}$  est la déformation initiale du matériau à la côte  $z_i$  par rapport à l'état du matériau à la côte  $z_{i-1}$  (i.e. =  $a_{//}(z_{i-1}) / a(z_i) - 1$ ),  $\bar{z}_i$  est la côte moyenne entre celle de  $z_i$  et celle de  $z_{i-1}$  (i.e. =  $(z_i - z_{i-1}) / 2$ ) et  $b_e$  est toujours la composante du vecteur de Burgers efficace pour relaxer les contraintes ( $b_e = b/2$  pour les dislocations à caractère  $60^\circ$ ), soit après arrangement:

$$\rho(\bar{z}_i) = \frac{a_{//}(z_i) - a_{//}(z_{i-1})}{a(z_i)} \times \frac{1}{b_e(z_i - z_{i-1})} \quad (18)$$

Dans le modèle de Tersoff, les dislocations sont supposées se répartir entre 0 et  $z_c$  de façon régulière et elles sont en nombre suffisant pour relaxer tout incrément de contrainte dans cette partie de la couche graduelle en cours de croissance. La densité de dislocations est prise constante et égale dans les deux directions  $\langle 110 \rangle$ .

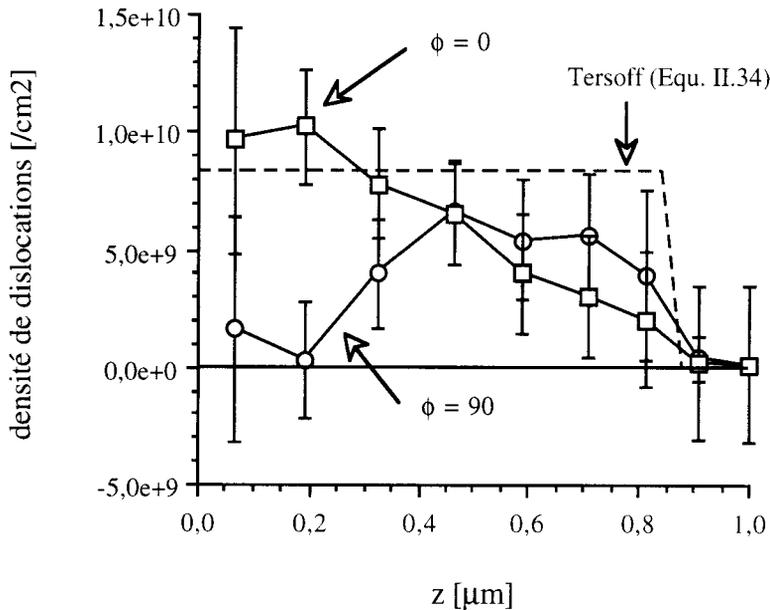


FIGURE IV.15: Profils de densités de dislocations dans l'épaisseur de la couche graduelle (Var1440).

Expérimentalement, nous montrons ici que d'une part la densité  $\rho$  n'est pas constante dans l'épaisseur de la couche, d'autre part qu'une anisotropie existe entre les deux directions  $\langle 110 \rangle$ , tout au moins dans la première moitié de la couche. Il semble en effet que les premières dislocations se soient développées préférentiellement dans la direction azimutale  $\phi = 0^\circ$ . Leur densité est très importante entre 0 et 0,2  $\mu\text{m}$  mais ne cesse de décroître au fur et à mesure que l'on se dirige vers la surface. La densité de dislocations dans l'autre direction est faible entre 0 et 0,2  $\mu\text{m}$  puis augmente entre 0,2 et 0,5  $\mu\text{m}$ , au détriment semble-t-il de la première population, pour s'égaliser au-delà (aux incertitudes près). La photographie de microscopie électronique de l'échantillon Var1440 aminci par

le substrat montre qu'il existe bel et bien deux populations de dislocations qui sont alignées à 90° l'une de l'autre (voir figure IV.16). Ces dislocations sont notées  $\alpha$  et  $\beta$  suivant que celles-ci sont alignées respectivement dans la direction  $[\bar{1}10]$  et  $[110]$ .

Dans les structures à rampe de composition graduelle, les premières dislocations se logent à l'interface ou tout près (voir chapitre I), les secondes s'arrêtent au-dessus des premières et ainsi de suite au cours de la croissance. L'état de contrainte en début de "rampe" et donc en début de croissance, est assez faible. Il est reconnu que les dislocations  $\alpha$  sont les plus faciles à nucléer. Elles apparaissent donc les premières et en grand nombre. Les dislocations  $\beta$  constituant la deuxième famille sont plus difficiles à nucléer. Ces dislocations sont donc en minorité (au moins en début de croissance). De ce point de vue, **la différence de densités de dislocations à l'interface reflète la difficulté plus ou moins grande qu'ont les dislocations des deux familles à être nucléées.**

Nous pouvons dire a posteriori qu'à  $\phi = 0^\circ$  la trace du plan d'incidence de la réflexion sur la surface de l'échantillon Var1440 est dans la direction  $[\bar{1}10]$  (i.e. dislocation  $\alpha$ ) car c'est dans cette direction que les déformations élastiques résiduelles mesurées par diffraction X sont les plus élevées.



**FIGURE IV.16:** Photographie de microscopie électronique en transmission de l'échantillon Var1440 aminci par le substrat (vue plane,  $g = \langle 220 \rangle$ , échelle:  $\times 77000$ ). Les flèches indiquent des événements d'interactions entre deux dislocations.

Alors que cette anisotropie de répartition des dislocations dans les deux directions  $\langle 110 \rangle$  est assez marquée dans la première moitié de la couche, il semble que cela s'harmonise dans la seconde. La raison de cette harmonisation est sans doute étroitement liée au phénomène de **multiplication** des dislocations qui s'est produit en cours de

croissance. La densité moyenne de dislocations dans l'épaisseur de la structure est en effet de  $5.10^9 \text{ cm}^{-2}$  environ. Si on suppose que la densité de dislocations initialement contenues dans le substrat GaAs soit de l'ordre de  $10^4 \text{ cm}^{-2}$ , un simple rapport de ces deux quantités suffit à montrer que la multiplication des dislocations a été importante pendant la croissance de l'échantillon, et cela malgré une épitaxie à basse température ( $T_{\text{épitaxie}} \approx 350-400 \text{ }^\circ\text{C}$ ). Il semble alors que le phénomène de multiplication par mécanisme de "sources" a eu tendance à fonctionner de façon à réguler les deux densités de dislocations  $\alpha$  et  $\beta$ . Ces "sources" ne sont pas forcément des sources isolées de dislocations  $\beta$  mais elles sont aussi des interactions entre dislocations qui se croisent. Il faut noter enfin que, compte tenu des niveaux plus élevés des déformations élastiques résiduelles en début de croissance dans la direction des dislocations  $\beta$ , l'apparition ultérieure de dislocations dans cette direction est favorisée, de même que le glissement dévié conduisant au changement du caractère  $\alpha$  en  $\beta$  est de fait plus probable que l'inverse.

#### IV.2.4 CONCLUSION

Nous avons montré grâce à cette technique de diffraction par cartographie X que la relaxation des contraintes de l'échantillon Var1440, qui est une "rampe simple", est très **anisotrope**. Le tableau ci-dessous regroupe les résultats majeurs que nous avons obtenus sur cette structure au cours de ces expériences.

**TABLEAU 1:** Résultats principaux de l'analyse par diffraction X de l'échantillon Var1440.

$\epsilon_{//}^{\text{th}}(z=h)$  est la déformation résiduelle maximale qui existe en fin de "rampe", calculée à partir du modèle théorique de Tersoff (Equ. II.37).

$\phi$ [deg]	direction	gradient de composition [% In/ $\mu\text{m}$ ]	x (z=0) [% In]	x (z=h) [% In]	R (z=0) [%]	R (z=h) [%]	$\epsilon_{//}(z=h)$ [%]	$\epsilon_{//}^{\text{th}}(z=h)$ [%]
0	[ $\bar{1}10$ ]	<b>23,7</b> 30*	<b>3,3</b> 0*	<b>26,9</b> 30*	<b>28,1</b>	<b>39,3</b>	-1,15	-0,23
90	[110]				<b>73,0</b>	<b>60,9</b>	-0,74	

\* compositions visées.

La relaxation des contraintes est plus efficace dans la direction [110] que dans la direction perpendiculaire. Les degrés de relaxation sont effectivement plus grands dans cette direction que dans l'autre. Les profils de densités de dislocations dans l'épaisseur de la couche sont différents, ce qui conduit à des déformations résiduelles en fin de structure

plus importantes dans la direction  $[\bar{1}10]$  que dans la direction  $[110]$ . Les densités de dislocations ne sont que très rarement celles qui minimisent l'énergie élastique totale de la structure et encore uniquement pour une seule famille. Par conséquent, les déformations résiduelles en surface sont environ 3 à 5 fois supérieures à celle prédite par le modèle de Tersoff (Equ. II.37).

**Une couche simple de composition graduelle relaxe donc moyennement ses contraintes.** Le taux de relaxation moyen en fin de structure, que nous avons déterminé à l'aide des cartographies X, est de **50,1 %**. Ce résultat confirme celui obtenu par Yang [119] qui a déterminé par microscopie électronique en transmission (technique CBED) un taux de relaxation moyen de 49 % près de la surface d'une couche de composition graduelle linéaire semblable à la notre.

Cela aura des répercussions sur la hauteur du décrochement de composition qu'il faudra opérer à la couche plateau pour qu'elle soit non contrainte. Compte tenu des résultats de la structure Var1440, des décrochements d'au moins 8 % d'indium sont à envisager.

# CHAPITRE V

## RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION

### V.1 RESULTATS EXPERIMENTAUX

#### V.1.1 Caractérisation par diffraction des rayons X

- a) Les rotations cristallographiques
- b) Compositions x et taux de relaxation R

#### V.1.2 Caractérisation par microscopie électronique en transmission

### V.2 DISCUSSION

#### V.2.1 Discussion sur les processus de relaxation des couches épitaxiées avec "rampe" de composition

- a) Détermination du nombre de dislocations responsables des rotations cristallographiques
- b) Processus de relaxation

#### V.2.2 Relaxation à l'équilibre d'une "rampe" simple (prise en compte des interactions entre dislocations)

#### V.2.3 Mécanismes de glissement ou de nucléation d'une dislocation dans l'épaisseur d'une "rampe" simple

- a) Glissement: Cas d'une dislocation de croissance
- b) Nucléation et expansion dans le cas d'une demi-boucle de dislocation
- d) Conclusion

L'objectif de ce dernier chapitre est de caractériser et d'interpréter les taux de relaxation mesurés de couches plateaux déposées sur des "rampes" linéaires épaisses ( $w \approx 1 \mu\text{m}$ ). Deux géométries en sortie de "rampe" ont été étudiées, une couche plateau de même composition qu'en fin de "rampe" (structures 4 et 5 vues au chapitre III) et une couche plateau avec décrochement de composition (structures 2 et 3). Nous discutons de l'efficacité d'un tel décrochement et de la comparaison au modèle théorique de Tersoff de la relaxation des contraintes dans les structures de composition graduelle [29]. Dans ce dernier cas, nous essayons de voir en quoi les interactions entre dislocations, que nous faisons entrer dans la valeur de la "constante de relaxation  $k$ " (chapitre II), peuvent modifier la répartition et la densité des dislocations à l'équilibre dans une "rampe" simple.

Le problème de la nucléation dans une "rampe" simple de dislocations de désadaptation de réseau n'ayant pas été abordé [29], nous proposons une comparaison entre deux mécanismes d'apparition de ddr qui sont:

→ la courbure et le glissement d'une dislocation de croissance,

→ la nucléation en surface libre puis l'expansion d'une demi-boucle de dislocation.

Cette comparaison est à la fois discutée suivant un critère mécanique et un critère énergétique.

En parallèle, nous avons aussi mené une caractérisation des rotations cristallographiques des couches plateaux par rapport à leur substrat. Couplés aux mesures des taux de relaxation, ces résultats expérimentaux donnent un aperçu sur les systèmes de glissement qui ont été effectivement activés [99], et ils permettent de déterminer la barrière d'énergie associée au processus de relaxation [100, 120].

## **V.1 RESULTATS EXPERIMENTAUX**

### **V.1.1 CARACTERISATION PAR DIFFRACTION DES RAYONS X**

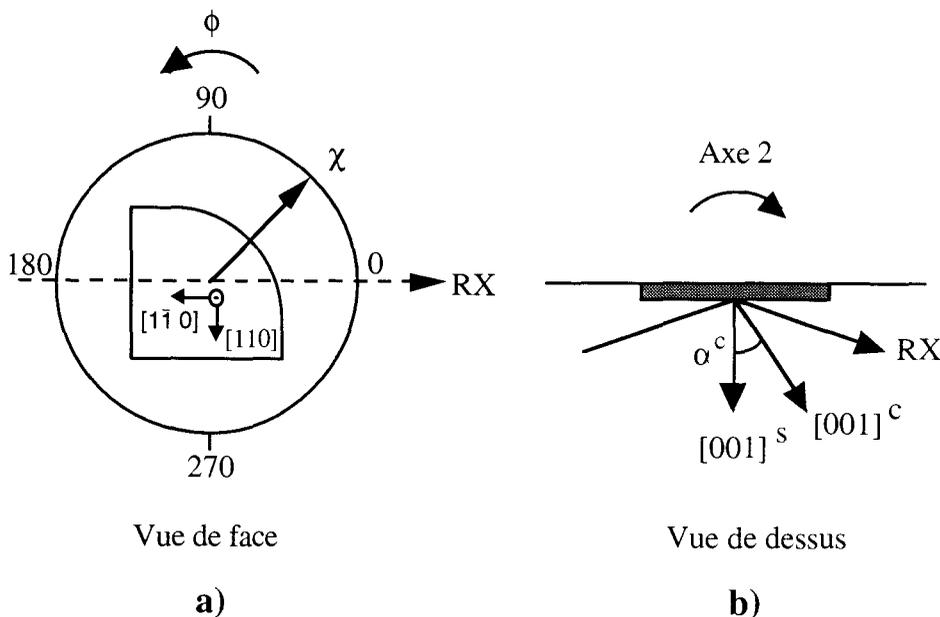
#### **a) Les rotations cristallographiques**

Il arrive fréquemment qu'une rotation des plans cristallographiques (001) se produit dans une couche épitaxiée dont le paramètre de maille est différent de celui du substrat. Cet angle entre les directions [001] de la couche et du substrat s'ajoute (en valeur algébrique) à l'écart angulaire entre les pics de diffraction de ces derniers [121]. Ne pas en tenir compte conduit à des valeurs erronées des compositions et des taux de relaxation déterminés par diffraction X, ainsi que nous l'avons dit au chapitre III.

D'autre part, nous avons vu aussi au chapitre III que cet angle est lié à la nature vicinale de la surface du substrat (i.e. surface inclinée) et aux dislocations de désadaptation de réseau quand elles sont présentes, chacune des ces deux composantes contribuant à la valeur de l'angle de rotation. Comme tous les échantillons étudiés ont été déposés sur des substrats dont les surfaces sont non volontairement vicinales, les désorientations d'axe [001] sont étroitement liées au réseau de dislocations générées dans ces hétérostructures. Par conséquent, la mesure de cet angle peut nous renseigner sur la façon dont ces échantillons relaxent et en particulier de connaître les systèmes de glissement qui sont actifs.

Des expériences de précession en réflexion (004) ont été effectuées sur l'ensemble des échantillons. Ces expériences consistent (voir chapitre III) à faire tourner un échantillon autour de la normale à sa surface et à enregistrer un profil de diffraction à chaque pas de rotation. L'angle de rotation (i.e. angle azimutal) est repéré par  $\phi$ . Le sens positif de la rotation, indiqué sur la figure V.1a, est donné par la règle du tire-bouchon dont la pointe serait dans la direction cristallographique [001].

La figure V.1a montre le positionnement des échantillons sur le porte objet du diffractomètre. Ainsi, à  $\phi = 0^\circ$ , la trace du plan d'incidence sur la surface est dans la direction  $[\bar{1}10]$  (i.e. parallèlement au grand méplat des substrats). Pour certains échantillons, seul le grand méplat est visible, mais le positionnement à  $\phi = 0^\circ$  reste le même. Pour d'autres, l'origine  $\phi = 0^\circ$  n'a pu être déterminée avec certitude (méplat non visible, voir tableau V.1).



**FIGURE V.1:** Positionnement des échantillons sur le porte objet du diffractomètre (Axe 2).  
 a) Vue de face. b) Vue de dessus (s = substrat, c = couche).

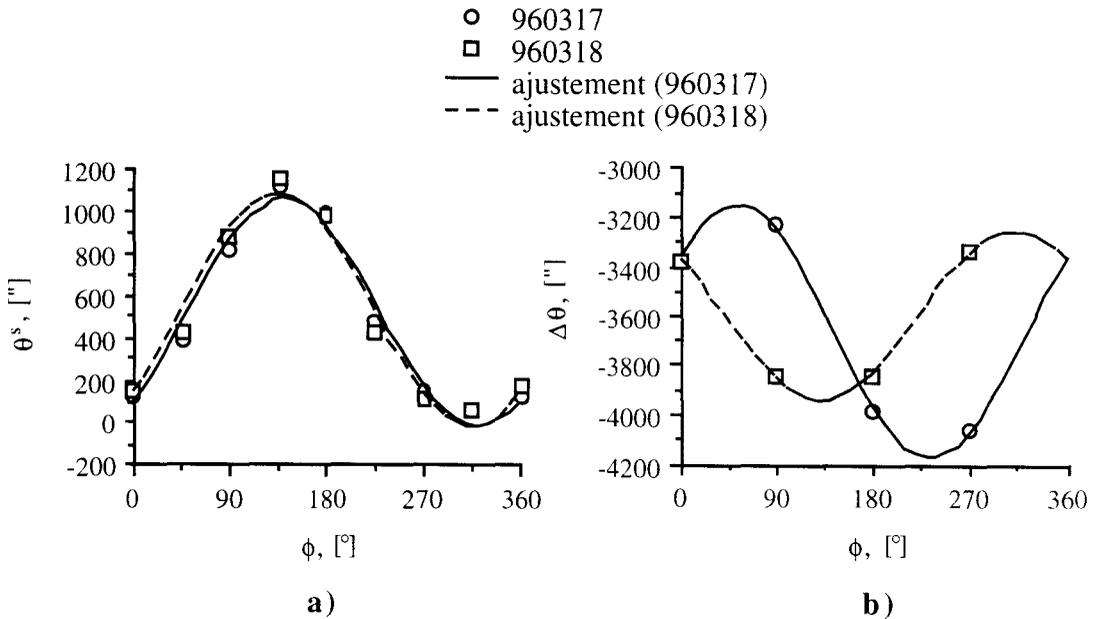
L'inclinaison des plans (001) du substrat avec la surface est représentée par l'angle  $\alpha^s$ , tandis que l'angle entre les directions [001] de la couche et du substrat est noté  $\alpha^c$ . Les rotations cristallographiques se font dans des directions du plan d'interface qui sont repérées par les angles  $\chi$ . Ces angles sont lus sur la même échelle que  $\phi$  (voir figure V.1a). Par exemple, quand  $\phi = -\chi$  (i.e. on tourne l'échantillon d'un angle  $-\chi$  autour de la normale à sa surface), la direction de la rotation considérée est dans le plan d'incidence de la réflexion. Il faut alors augmenter l'angle d'incidence  $\omega$  d'une quantité  $+\alpha$  pour que la couche (ou le substrat) soit en condition de Bragg. La figure V.1b illustre le cas de la rotation d'une couche par rapport au substrat sur lequel elle est déposée.

En réflexion symétrique (004), la position angulaire du pic du substrat  $\theta^s$  ainsi que la séparation  $\Delta\theta$  entre les pics de la couche et du substrat varient de façon sinusoïdale en fonction de l'angle d'azimut  $\phi$  [93, 94, 122]. Les angles des rotations, et les directions de celles-ci, sont alors déterminés en ajustant aux valeurs expérimentales correspondantes une des deux fonctions sinusoïdales suivantes par la méthode des moindres carrés (chapitre III, équations (19) et (20) que nous rappelons ici):

$$\theta^s = \theta_{\text{moy}}^s + \alpha^s \cos(\phi + \chi^s) \quad (1)$$

$$\Delta\theta = \Delta\theta_{\text{moy}} + \alpha^c \cos(\phi + \chi^c) \quad (2)$$

La figure V.2 représente un exemple de tels ajustements pour les échantillons 960317 et 960318. Les résultats des expériences de précession sont donnée dans le tableau 1.



**FIGURE V.2:** Variations sinusoïdales des positions angulaires des pics du substrat  $\theta^s$  (courbes (a) et des écarts angulaires entre les pics de couche et du substrat  $\Delta\theta$  (courbes (b)) en fonction de l'angle azimutal  $\phi$ . Echantillons 960317 et 960318.

**TABLEAU V.1:** Résultats des expériences de "précession (004)". Les rotations des plans cristallographiques et leurs directions dans le plan (001) sont représentées par  $\alpha$  et  $\chi$  respectivement. Les exposants c et s désignent la couche et le substrat.  $|\chi^c - \phi^{<110>}|$  est la différence angulaire entre la direction de la rotation de la couche et la direction  $<110>$  la plus proche.  $\chi^c - (\chi^s - 180^\circ)$  est l'angle que fait la direction de rotation de la couche avec l'opposée de celle du substrat (voir texte plus bas).

(<sup>◇</sup> Système InAlAs/GaAs).

Echantillon (profil)	$\alpha^c$ ["]	$\chi^c$ [°]	$\alpha^s$ ["]	$\chi^s$ [°]	$ \chi^c - \phi^{<110>} $ [°]	$\chi^c - (\chi^s - 180^\circ)$ [°]
Var1440* ↙	≈ 130	?	979 ± 28	201 ± 2	?	?
960241 ↙	187 ± 50	125 ± 15 ⊙	343 ± 41	234 ± 7 ⊙	35 ± 15	71 ± 17
941201 ↙	$\frac{1210}{\pm 100}$	0 ± 20 ⊙	285 ± 38	169 ± 7 ⊙	0 ± 20	11 ± 14
960311 ↙	230 ± 33	63 ± 8 ⊙	546 ± 45	224 ± 4 ⊙	27 ± 8	19 ± 9
960312 ↙	194 ± 38	31 ± 11 ⊙	499 ± 50	223 ± 5 ⊙	31 ± 11	-12 ± 12
960317 <sup>◇</sup> ↙	512 ± 20	-54 ± 2 ⊙	538 ± 36	219 ± 4 ⊙	36 ± 2	-93 ± 5
960318 <sup>◇</sup> ↙	341 ± 11	48 ± 2 ⊙	552 ± 39	225 ± 4 ⊙	42 ± 2	3 ± 4
910608* ↙ <sub>1</sub>	376 ± 23	166 ± 4 ⊙	1862±45	18 ± 1	14 ± 4	-32 ± 4
↙ <sub>2</sub>	437 ± 24	164 ± 3 ⊙		⊙	16 ± 3	-34 ± 4
910120* ↙ <sub>1</sub>	1414±89	175 ± 4 ⊙	1083±41	-24 ± 2	6 ± 4	18 ± 5
↙ <sub>2</sub>	2693±21	176 ± 1 ⊙		⊙	4 ± 1	20 ± 2

(\*) L'origine  $\phi = 0^\circ$  de ces échantillons est indéterminée et elle n'est sans doute pas la même que les autres. De plus, elle est peut être différente entre ces échantillons. Toutefois une comparaison avec les autres est permise en ce qui concerne les valeurs des deux dernières colonnes pour les échantillons 910608 et 910120. En ce qui concerne la "rampe" simple, les précessions ayant été effectuées sur deux morceaux différents de la plaquette, seules les valeurs de  $\alpha$  peuvent être comparées aux autres.

Les directions  $\langle 110 \rangle$  du plan d'interface étant aussi celles des lignes des dislocations, il est intéressant de savoir si les directions des rotations des couches se font dans une de ces deux directions privilégiées du plan. Nous avons donc pour chaque échantillon reporté dans l'avant dernière colonne du tableau V.1 la valeur absolue de l'angle que fait la direction de rotation de la couche avec l'une des deux directions  $\langle 110 \rangle$  la plus proche, soit  $|\chi^c - \phi_{\langle 110 \rangle}|$ .

→ Les résultats indiquent que **la direction  $\chi^c$  n'est pas toujours dans une des deux directions  $\langle 110 \rangle$**  du plan d'interface. Sur l'ensemble des échantillons 96..., nous notons que les directions des rotations des couches plateaux s'écartent en moyenne de  $35^\circ \pm 8^\circ$  par rapport à une des deux directions  $\langle 110 \rangle$ . Des écarts de  $30^\circ \pm 10^\circ$  ont été mesurés pour des couches d'InGaAs de compositions constantes directement épitaxiées sur un substrat GaAs non volontairement vicinal [98].

Dans le même esprit, il est tout aussi intéressant de savoir si les directions des rotations des couches sont influencées par celles des "offcuts".

→ Pour tous les échantillons 96..., la surface est inclinée dans la direction repérée par l'angle d'azimut  $\chi^s = 225^\circ \pm 5^\circ$ , ce qui correspond ici à la direction cristallographique [100].

D'après le modèle géométrique de Nagai [92], la direction de rotation d'une couche en compression est à l'opposée de celle de l'"offcut" (voir chapitre III). C'est à la même conclusion qu'aboutissent Ayers *et al.* [99] avec leur modèle de "glissement préférentiel", ainsi que LeGoues *et al.* [100] avec leur modèle que l'on peut qualifier, par comparaison au précédent, "d'activation préférentielle". C'est pourquoi nous avons pour chaque échantillon reporté dans la dernière colonne du tableau V.1 la valeur de l'angle que fait la direction de rotation de la couche avec la direction diamétralement opposée à celle de l'inclinaison du substrat, soit  $\chi^c - (\chi^s - 180^\circ)$ .

→ Cet écart est en valeur absolue de  $21^\circ \pm 11^\circ$  pour l'ensemble des échantillons, exceptés 960241 et 960317 pour lesquels il est de  $70^\circ$  et  $90^\circ$  respectivement. On montre avec ces premiers résultats que **la direction d'inclinaison du substrat, même faible, influence la direction de rotation des couches plateaux**, cette dernière se faisant bien dans la direction diamétralement opposée à la première. Les petits dessins des colonnes 3 et 5 du tableau 1 sont des indications visuelles de ce constat.

Ceci étant, du fait de la faible valeur d'inclinaison du substrat, celle-ci ne dicte pas à coup sûr la direction de rotation d'une couche épitaxiée. Nous sommes aussi sensibles à d'autres facteurs qui perturbent les prévisions du modèle de glissement préférentiel. Ces facteurs peuvent expliquer les différences constatées des échantillons 960241 et 960317:

i) Des changements de directions aussi importants que ceux observés ici sont fréquents dans le cas d'associations de matériaux fortement désadaptés ( $f > 5\%$ ) [97] et ils sont attribués au mode de croissance ainsi qu'à une distribution anisotrope de lignes de dislocations de désadaptation de réseau. Dans les matériaux de composition graduelle linéaire, la transition 2D-3D des modes de croissance est pratiquement inhibée (voir le chapitre II), au moins à faibles températures, ce qui est notre cas. Il reste qu'une relaxation anisotrope des contraintes peut conduire à un changement de direction de rotation des couches épitaxiées, et c'est ce qui peut expliquer le comportement de l'échantillon 960317 puisqu'on a mesuré une différence de 10 % des taux de relaxation entre les deux directions  $\langle 110 \rangle$  (voir le tableau V.2 un peu plus loin dans le texte).

ii) Il a été montré par ailleurs [123] qu'une forte densité de défauts initiaux (dislocations de croissance par exemple) à un effet "symétrisant", conduisant à de faibles valeurs de rotation des couches, alors qu'une asymétrie dans leur répartition peut modifier les valeurs, voire même les directions des rotations. Ceci peut expliquer le comportement de l'échantillon 960241.

iii) Enfin, comparativement aux autres échantillons à structure graduelle, les échantillons 960241 et 960317 sont les seuls où la couche plateau est de même composition que la fin de la "rampe". Il est alors tentant d'accorder au décrochement de composition (ou plutôt à son absence) une influence sur la direction de rotation des couches et par la même occasion une influence sur les processus de relaxation.

Il est à noter que des changements de direction de rotation de couches épitaxiées ont aussi été observés dans des hétérostructures InGaAs/GaAs de composition graduelle par pas [121].

→ Excepté l'échantillon 941201, **les valeurs des angles de rotation des couches plateaux des échantillons 96... sont faibles** et elles sont plus petites que celles déterminées sur les structures de composition graduelle par pas (échantillons 910608-0120):  $\alpha^c$  est en moyenne égal à  $200'' \pm 22''$  pour les échantillons 960241-0311-0312 (association InGaAs/GaAs),  $430'' \pm 90''$  pour les deux échantillons 960317-0318 (association InAlAs/GaAs). La valeur de ces angles nous renseigne beaucoup sur les processus de relaxation des couches épitaxiées. Ceci fera l'objet d'une prochaine discussion .

## b) Compositions x et taux de relaxation R

La plupart des échantillons ont été caractérisés deux fois, la première fois en double diffraction en mode haute résolution, "HRXRD" (voir le chapitre III), la seconde fois en triple diffraction. Cette dernière technique permet de cartographier l'intensité diffractée autour des nœuds des couches et de leur substrat (voir le chapitre IV). Seul l'échantillon 941201 a été véritablement caractérisé en triple diffraction, mais devant le manque d'intensité diffractée par la couche plateau et l'absence d'information venant de la couche graduelle, l'analyseur a été remplacé par la suite par une fine fente verticale (0,4 mm) disposée devant le détecteur [107]. La résolution angulaire du détecteur devient moins bonne (environ 280" contre 8" avec analyseur), des composantes de rotation sont maintenant ajoutées aux composantes de dilatation pure dans le faisceau diffracté. D'un autre côté les nœuds des couches de composition graduelle sont ici visibles. Les figures V.3 à V.5 montrent trois séries de quatre cartes correspondant à trois structures différentes à partir desquelles, et en appliquant les formules écrites au chapitre IV, nous déterminons les compositions et les taux de relaxation.

→ L'échantillon étudié sur la figure V.3 représente l'association d'une "rampe" et d'une couche plateau **sans** décrochement de composition (échantillon 960241). Que ce soit en réflexion symétrique (V.3a) ou en réflexion asymétrique (V.3b) le nœud de diffraction de la couche plateau et celui de la fin de la "rampe" se positionnent de fait au même endroit (parties basses des cartes). Le nœud du substrat étant toujours centré à l'origine, celui de la "rampe" commence immédiatement en dessous de ce dernier et s'étend verticalement sur une grande partie des cartes. L'allongement en travers du nœud (004) du substrat (voir chapitre IV) ne permet pas dans le cas présent de déterminer la composition en indium du début de la "rampe". La position du nœud du plateau ainsi que celui de la fin de la "rampe" s'écartent de l'axe vertical en réflexion asymétrique, ce qui traduit une **relaxation partielle** des contraintes dans cette partie de l'échantillon, alors que les parties plus profondes semblent par comparaison mieux relaxer.

→ L'échantillon 960311 (figure V.4) a une structure qui associe une "rampe" et une couche plateau **avec** un décrochement de composition. En comparant ces cartes avec les précédentes, on voit que **la position du nœud de diffraction du plateau est ici à l'intérieur de celui de la "rampe"** ! Ceci est un effet du décrochement de composition. Les deux cartes (a) nous renseignent sur l'écart de paramètres de maille  $\Delta a_{\perp}$  entre le plateau et la fin de la "rampe": on vérifie que le paramètre  $a_{\perp}$  du premier est plus petit que celui de l'autre. Les deux cartes (b) nous renseignent sur les niveaux de contraintes élastiques résiduelles: le nœud de diffraction du plateau étant plus proche de l'axe vertical que celui de la fin de la "rampe", **le plateau est donc plus relaxé que la fin de la "rampe"**. C'est bien là le but visé d'un décrochement de composition.

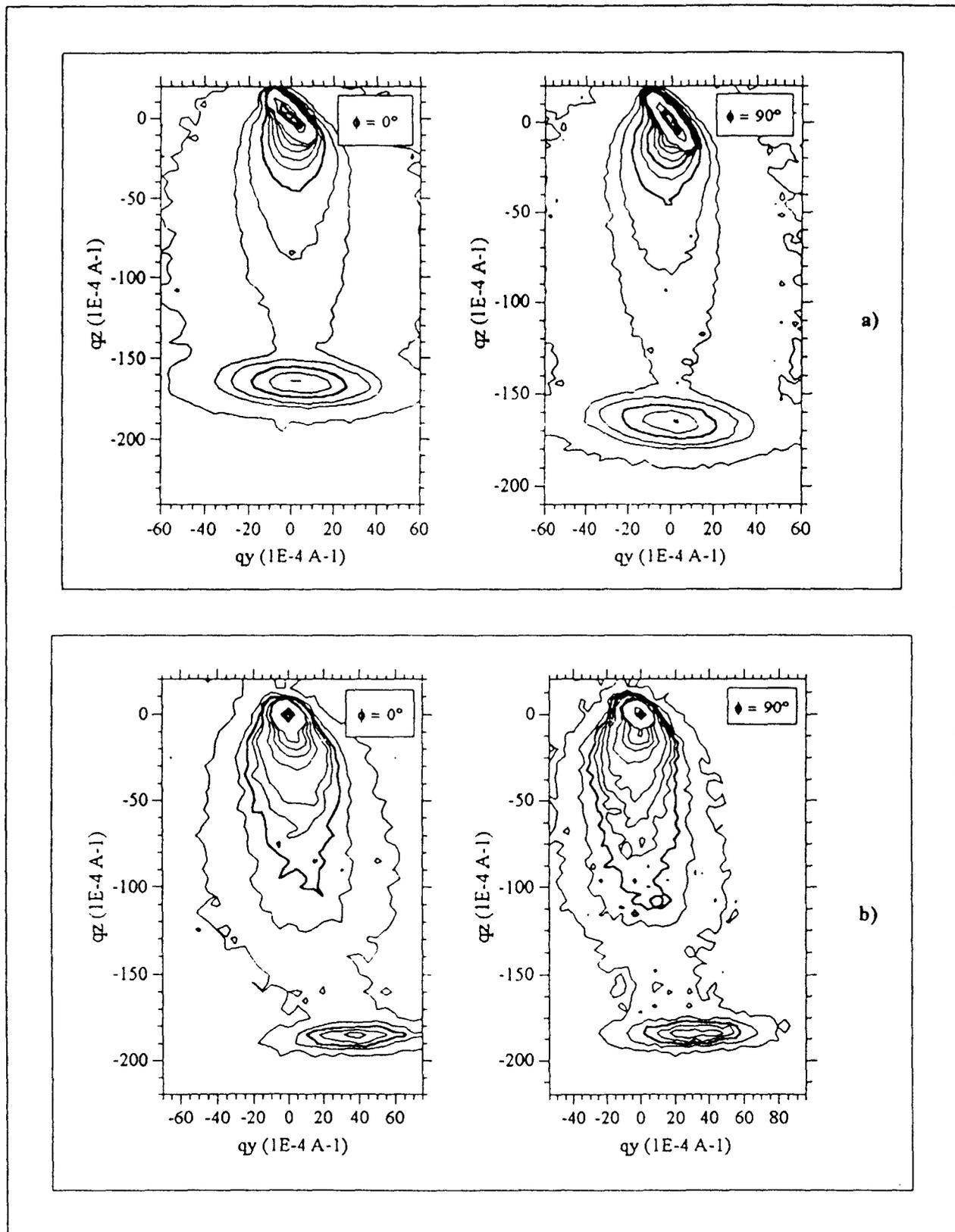


FIGURE V.3: Echantillon 960241. Série de quatre cartographies dans le réseau réciproque autour du nœud du substrat, a) en réflexion (004), b) en réflexion (224)A, en fonction de l'angle azimutal  $\phi$ .

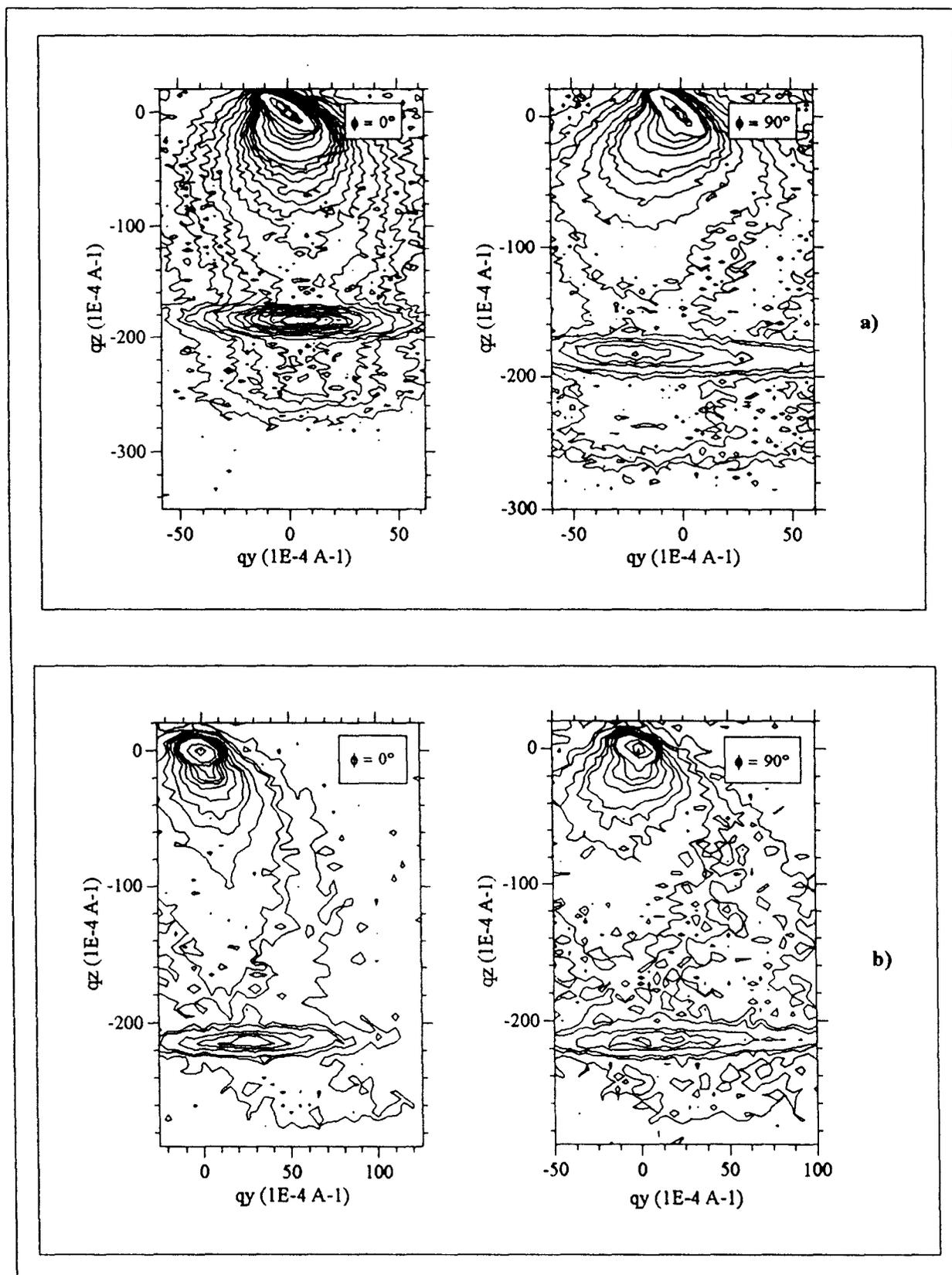
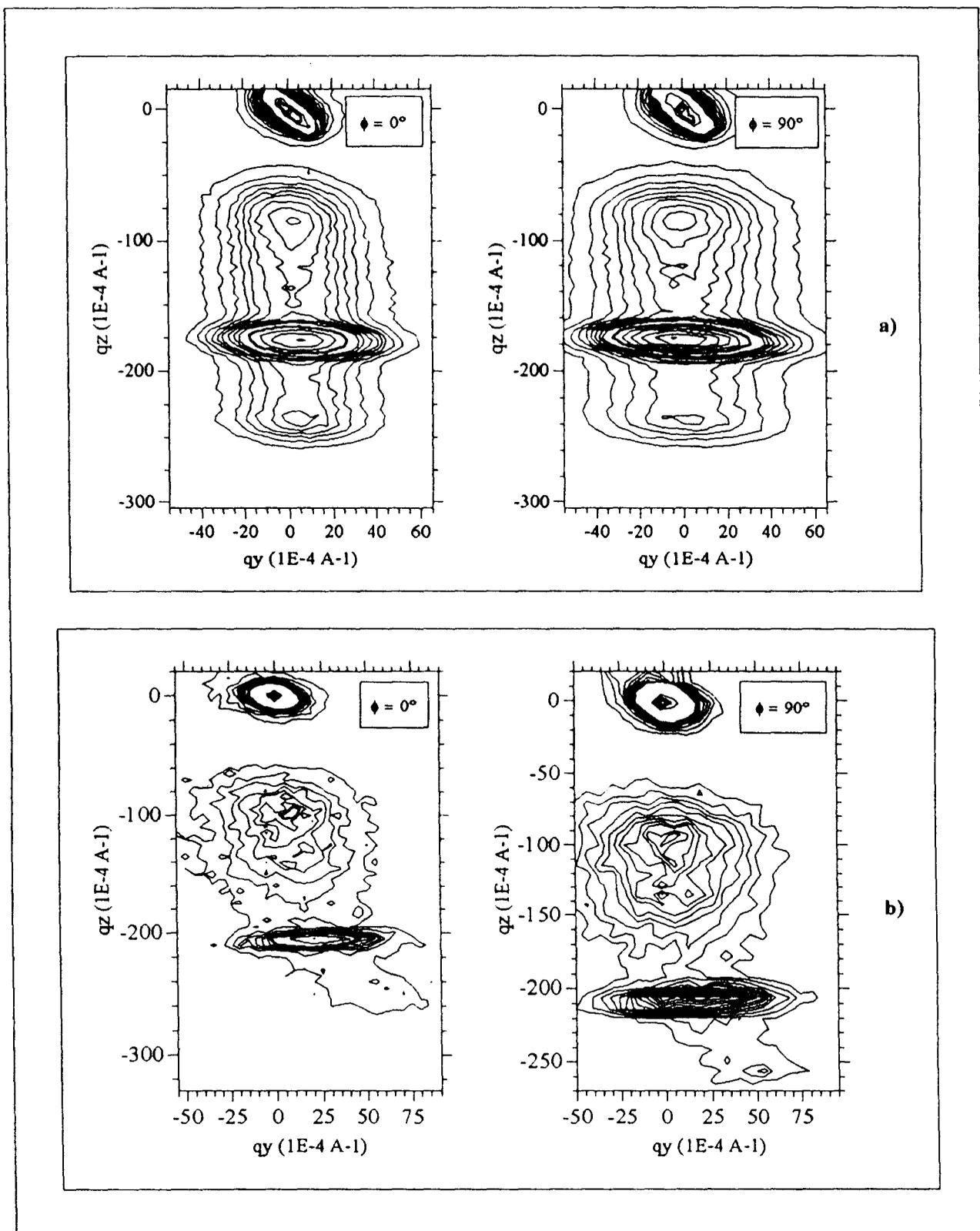


FIGURE V.4: Echantillon 960311. Série de quatre cartographies dans le réseau réciproque autour du nœud du substrat, a) en réflexion (004), b) en réflexion (224)A, en fonction de l'angle azimutal  $\phi$ .



**FIGURE V.5:** Echantillon 960312. Série de quatre cartographies dans le réseau réciproque autour du nœud du substrat, a) en réflexion (004), b) en réflexion (224)A, en fonction de l'angle azimutal  $\phi$ .

→ Nous avons testé avec l'échantillon 960312 (figure V.5) l'influence d'une marche initiale **abrupte** (i.e. un démarrage non pas à 0 % mais à 10 % d'In de la couche graduelle) sur le taux de relaxation de la couche superficielle (également à décrochement de composition). Qualitativement, les parties basses des cartes des figures V.4 et V.5 se ressemblent, le nœud de diffraction du plateau se positionnant encore à l'intérieur de celui de la "rampe". La différence principale se situe au niveau des parties hautes des cartes. Le nœud de la couche graduelle est circonscrit et se distingue cette fois-ci du nœud du substrat. La composition et le taux de relaxation en début de "rampe" peuvent ici être déterminés.

L'ensemble des résultats des mesures de compositions et de taux de relaxation sur les divers échantillons dont nous avons pu disposer sont donnés dans le tableau V.2.

→ Quand cela était possible, nous avons mesuré des compositions en début de "rampe" faibles mais **non nulles**, c'est-à-dire 3% à 4% d'In (échantillons Var1440 et 941201). De plus cette région est toujours **plus relaxée** que celle en fin de "rampe".

→ Le degré de relaxation d'une couche plateau de même composition que celle en fin de "rampe" est de **85%** en moyenne (échantillons 960241-0317). Ce résultat est en bon accord avec ceux tirés de la littérature. Sacedon *et al.*, par exemple, [124] ont mesuré un degré de relaxation de 81% avec un échantillon de même structure que celle de l'échantillon 960241; Häusler *et al.* [125] ont mesuré un degré de relaxation moyen de 86% avec un échantillon dont le gradient de composition de la "rampe" était de 50% d'In / $\mu\text{m}$ .

→ Le degré de relaxation d'une couche plateau qui a subi un décrochement de composition est d'environ **92%** (échantillons 960311-0312). La relaxation est très forte mais elle n'est malheureusement pas totale. Il faut tout de même noter que le décrochement de composition visé était de 8% d'In alors qu'il est en définitive de 5% d'In environ.

Les échantillons 941201 et 960318 ont un coefficient de relaxation de leur couche plateau qui reste aux alentours de 85%. L'échantillon 960318 constitué d'InAlAs présente un état de surface très chaotique, ce qui n'est pas le cas de l'échantillon 941201. Ceci n'est pas propre au système InAlAs/GaAs puisque son homologue, l'échantillon 960317, a un bel état de surface. La croissance de l'échantillon 960318 a sans doute été problématique. Il ne peut donc pas être représentatif et doit être écarté de l'étude. Quant au caractère d'exception de l'échantillon 941201, tant au niveau de la relaxation qu'au niveau de la rotation cristallographique de la couche plateau, il sera expliqué dans la discussion.

**TABLEAU V.2:** Compositions et taux de relaxation déterminés par diffraction X.

Echantillon (caractéristique générale)	Technique							
	"HRXRD"			Cartographie X				
	x	R		R <sub>moy</sub>	x	R		R <sub>moy</sub>
	[%]	φ = 0°	φ = 90°	[%]	[%]	φ = 0°	φ = 90°	[%]
Var1440 c. grad.†	≈ 5,1	-	-	≈ 63,8	3,3	28,1	73,0	50,6
∟ c. grad.‡	≈ 25,4	-	-	≈ 57	26,9	39,3	60,9	50,1
960241 c. grad.†	-	-	-	-	-	-	-	-
∟ c. plat.*	26,3	82,5	79,0	80,8	29,0	86,1	83,7	84,9
941201 c. grad.†	-	-	-	-	3,7	100	100	100
c. grad.‡	-	-	-	-	-	-	-	-
∟ c. plat.*	30,6	86,7	89,8	88,3	30,1	84,7	85,3	85,0
960311 c. grad.†	-	-	-	-	-	-	-	-
c. grad.‡	-	-	-	-	38,8	76,6	68,7	72,7
∟ c. plat.*	33,6	90,9	94,3	92,6	34,1	90,6	91,8	91,2
960312 c. grad.†	-	-	-	-	16,2	89,7	97,4	93,6
c. grad.‡	-	-	-	-	38,8	71,9	77,7	74,8
∟ c. plat.*	32,0	95,2	92,8	94,0	33,2	91,6	93,3	92,5
960317 c. plat.*	33,6	80,8	90,6	85,7	-	-	-	-
∟ (◇)								
960318 c. plat.*	33,2	86,0	87,3	86,7	-	-	-	-
∟ (◇)								
910608 c. plat.1*	15,4	90,5	87,7	89,1	-	-	-	-
∟ c. plat.2*	27,4	78,3	84,1	81,2	-	-	-	-

c. grad.†: début de la couche de composition graduelle linéaire.

c. grad.‡: fin de la couche de composition graduelle linéaire.

c. plat.\*: couche plateau. (◇): Système InAlAs/GaAs

→ Comparant les échantillons 960311-0312 à l'échantillon 960241, **il est indéniable que le décrochement de composition conduit à un état de relaxation de la couche plateau meilleur**. Des expériences récentes l'ont aussi prouvé [124, 126].

→ Comparant les échantillons 960311 et 960312, nous n'avons pas mis en évidence une influence d'un démarrage brutal en composition de la couche graduelle sur le degré de relaxation de la couche plateau.

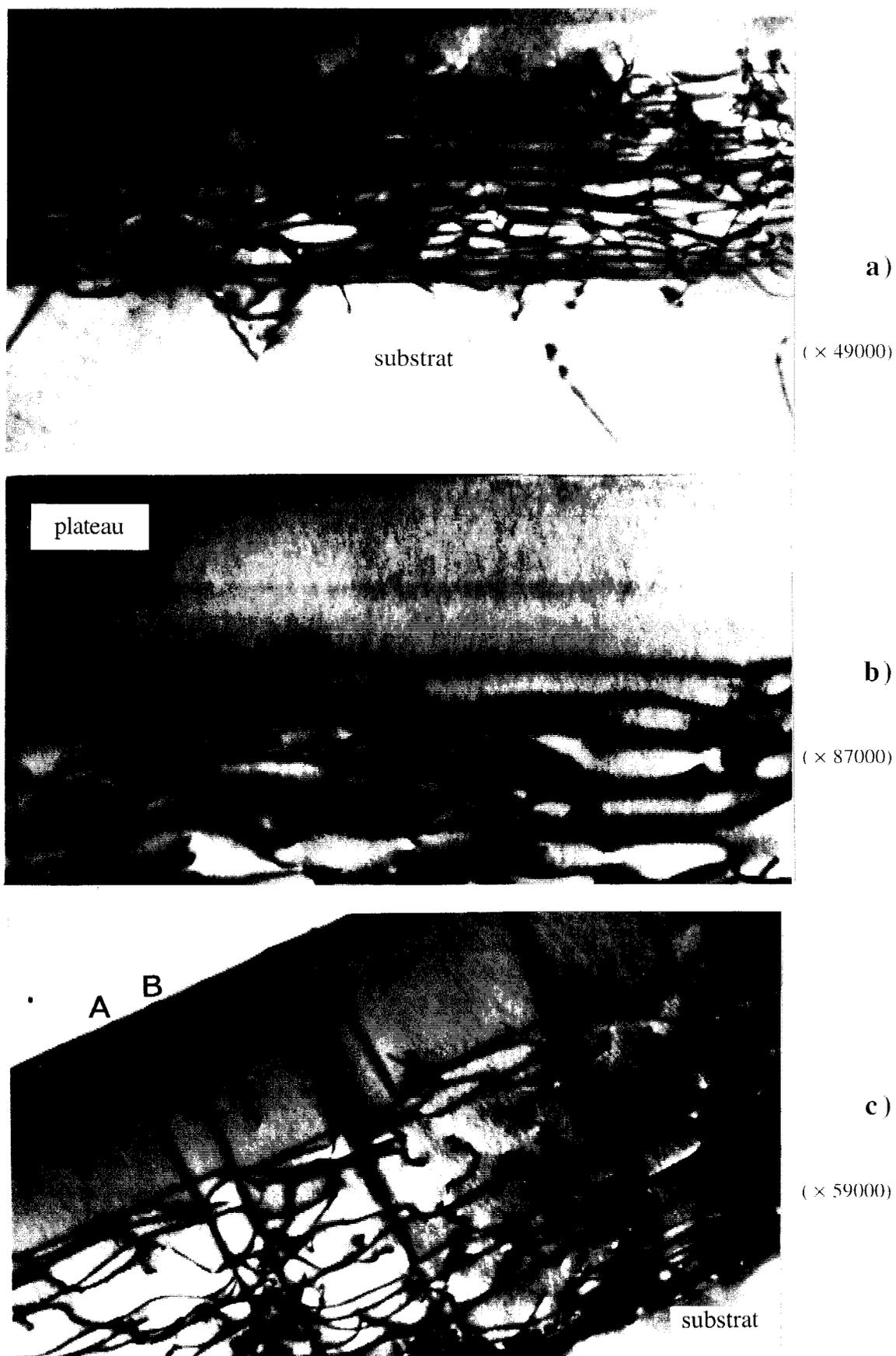
→ Enfin, le degré de relaxation de la couche plateau de l'échantillon 910608 (structure pseudo-escalier) est globalement plus petit que ceux des échantillons à "rampe" épaisse.

### V.1.2 CARACTERISATION PAR MICROSCOPIE ELECTRONIQUE EN TRANSMISSION

Trois échantillons (Var1440, 941201 et 941133) ont été observés en microscopie électronique en transmission. Ces échantillons ont été amincis sur la tranche mécaniquement dans un premier temps, puis par bombardement ionique. Le détail de cette longue procédure, rendue encore plus difficile par le caractère contraint des lames, se trouve par exemple dans la thèse de C. Uhlaq-Bouillet [127]. Ce type d'observation permet de visualiser la répartition des dislocations de désadaptation de réseau dans l'épaisseur des "rampes". Dans le cas de l'échantillon Var1440 ("rampe" simple), une observation en vue "plane" et "de dessus" nous a permis de visualiser directement le double réseau de dislocations présentes dans la structure (voir chapitre IV). Les trois micrographies sont présentées sur les figures V.6a-b-c.

→ La première micrographie (a) montre une vue d'une coupe  $\{110\}$  de la "rampe" simple (Var1440). Les dislocations de désadaptation de réseau **se répartissent de fait dans l'épaisseur de la couche** de composition graduelle depuis l'interface avec le substrat **jusqu'à une côte  $z_c$** , puis plus rien au-delà. Il est tout à fait remarquable que les dislocations puissent **s'arrêter à un même niveau** dans l'épaisseur d'une couche épitaxiée sans qu'il y ait à cet endroit un interface!

→ Ceci est vrai aussi pour les deux autres structures, (b) et (c), pour lesquelles il existe en plus une couche plateau dont la composition a subi un décrochement à la fin de la "rampe". La valeur du décrochement de composition pour ces deux échantillons est suffisamment importante pour que **le dépôt de la couche plateau n'ait pas contraint la "rampe" à relaxer plus**, ce qui se serait traduit par une réduction consécutive de l'épaisseur  $w_c$  de la partie libre de dislocations.



**FIGURE V.6:** Micrographies électroniques en transmission d'échantillons amincis sur la tranche. a) Var1440, b) 941201, c) 941133. Le vecteur de diffraction  $g$  est dans le plan de la feuille ( $g = \langle 220 \rangle$ ).

Le tableau V.3 regroupe les mesures faites des épaisseurs  $w_c$  pour les trois structures. Nous n'avons pas pu observer une différence de valeur de  $w_c$  correspondant aux deux directions  $\langle 110 \rangle$ , les différences éventuelles étant noyées dans les incertitudes statistiques. De telles différences doivent exister et elles ont d'ailleurs été observées [126, 128].

**TABLEAU V.3:** Résultats des mesures d'épaisseur  $w_c$  (épaisseur de la fin de la "rampe". libre de dislocations de désadaptation de réseau) et comparaison avec le modèle de Tersoff.  $\epsilon'$  est le gradient de déformation initiale de la couche graduelle (calculé d'après le tableau 2).

Echantillon	$\epsilon'$ [% / $\mu\text{m}$ ]	$w_c^{\text{exp}}$ [nm]	$\frac{w_c^{\text{exp}}}{w_c^{\text{Ters.}}}$
Var1440 ↙	1,66	221 ± 46	1,58 ± 0,33
941201 ↙	2,09	171 ± 16	1,38 ± 0,13
941133 ↖	1,13	388 ± 47	2,26 ± 0,27

→ La première conclusion que l'on peut tirer de ces observations, quand on compare la couche à "rampe" simple et les deux couches avec plateau et décrochement de composition, est qu'il existe encore une zone dépourvue de dislocations et donc encore très **contrainte élastiquement** à la fin de la couche de composition graduelle quand on lui associe une couche plateau avec un décrochement de composition. Ces observations sont totalement cohérentes avec la forme du nœud de diffraction des couches graduelles qui s'écarte de l'axe vertical principal quand on s'éloigne du substrat( Fig. V.4b et 5c).

La valeur de l'épaisseur  $w_c$  est bien sûr étroitement liée à l'existence ou non du décrochement de composition. Des micrographies prises par C. Ulhaq-Bouillet [127] d'une couche épitaxiée constituée d'une "rampe" et d'un plateau sans décrochement de composition ont montré que les dislocations s'étaient réparties sur toute l'épaisseur de la couche graduelle.

Ces observations sont extrêmement intéressantes car elles montrent que la réalisation de structures avec décrochement de composition **maintient les dislocations confinées dans le voisinage du substrat**, comme dans le cas de la "rampe" simple.

Ces observations expérimentales sont conformes aux prédictions du modèle d'équilibre exposé au chapitre II (**Equ. II.39**) qui veut que plus la hauteur du décrochement est faible, plus l'épaisseur du plateau est grande et plus la frontière  $z_c$  entre la partie disloquée et non disloquée se rapproche de la fin de la couche de composition

graduelle linéaire.

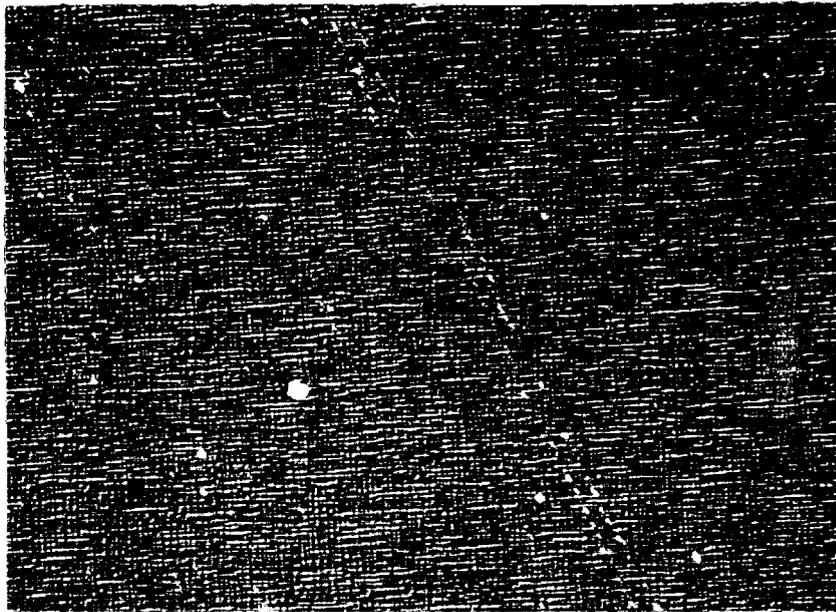
→ La deuxième conclusion est que les valeurs mesurées de  $w_c$  sont en moyenne environ **1,7 fois supérieures** à celles prédites par le modèle de Tersoff. Un écart équivalent a été observé pour des échantillons semblables aux nôtres [119, 126]. Ce résultat est d'une importance capitale pour la réalisation de structures avec décrochement de composition car la valeur de celui-ci dépend en grande partie de la valeur de  $w_c$ , mais aussi de la densité de dislocations entre l'interface avec le substrat et  $z_c$ . C'est pourquoi un décrochement d'au moins **8%** d'indium s'avèrerait nécessaire [124].

→ Des boucles de dislocations isolées ou empilées, introduites profondément dans le substrat ou uniquement à l'intérieur des couches de composition graduelle ont été fréquemment observées dans les micrographies de nos échantillons amincis sur la tranche. Ces événements sont visibles sur celles présentées sur les figures V.6a-b-c. Leur apparition est souvent associée à une faible densité de dislocations émergentes et donc à une bonne qualité cristalline des couches supérieures [55, 58, 129]. A l'exception de l'échantillon 941133, nous n'avons pas observé en effet de dislocations émergentes dans les couches plateaux à l'échelle de la microscopie électronique.

→ La micrographie en transmission de l'échantillon 941133 (figure V.6c) est particulière, en ce sens qu'elle montre un très grand nombre de dislocations traversant toute la structure. Les lignes de ces dislocations émergentes sont dans la direction **[001]**, ou ne s'en écartent que peu. Ces dislocations ont été très clairement générées à l'interface entre la couche graduelle et le substrat. De tels événements ont déjà été rapportés, par exemple [4, 130]. Ces fortes densités de dislocations émergentes sont à mettre en rapport avec l'état de surface perturbé de l'échantillon comme le montre une micrographie optique en contraste interférentiel de cette surface (figure V.7). La surface de l'échantillon 941133 ressemble de fait à celle d'une **peau d'orange**.

Il est vraisemblable que la nucléation de ces dislocations émergentes [001] résulte d'un mauvais démarrage de l'épitaxie (formation de précipités). Une structure de même type n'a pas montré, à l'observation optique, cette morphologie en peau d'orange caractéristique.

→ Bien que non attendues, ces dislocations émergentes présentent un certain intérêt car **elles sont des marqueurs des niveaux de déformations élastiques résiduelles** dans l'épaisseur de la structure. Si on considère par exemple les deux dislocations notées A et B sur la figure V.6c, elles sont approximativement dans la direction [001] jusqu'à environ  $z_c$  (i.e. la distance depuis l'interface avec le substrat où se situent les dernières dislocations de désadaptation de réseau) puis s'infléchissent dans un



**FIGURE V.7:** Micrographie optique en contraste interférentiel de la surface de l'échantillon 941133. L'aspect de la surface est à rapprocher de l'observation en microscopie électronique de la présence de nombreuses dislocations émergentes (figure V.6c). Echelle:  $\times 300$ .

premier temps vers la gauche pour A (resp. vers la droite pour B) au-delà de  $z_c$  jusqu'à l'interface avec la couche plateau, et dans un second temps vers la droite pour A (resp. vers la gauche pour B) dans l'épaisseur de cette dernière. La symétrie qui ressort du comportement de A et de B s'explique sans doute par le signe opposé des vecteurs de Burgers de ces dislocations.

On note que la flèche augmente linéairement de  $z_c$  à  $w$  (i.e. fin de la "rampe"), où elle est maximale, suivant la même variation que les déformations élastiques, dont le gradient  $\epsilon'$  est ici constant. L'infléchissement dans le sens opposé des lignes de dislocation dans la couche plateau est simplement dû à un niveau de déformation élastique plus faible à cet endroit, et conduit de ce fait au retour à une valeur plus faible de la flèche. Ces marqueurs de l'état de déformation élastique dans l'épaisseur de la structure permettent de vérifier que la couche plateau, après le décrochement de composition, est moins contrainte que la fin de la "rampe".

## V.2 DISCUSSION

### V.2.1 DISCUSSION SUR LES PROCESSUS DE RELAXATION DES COUCHES EPITAXIEES AVEC "RAMPE" DE COMPO- SITION

Nous allons mettre en évidence les liens entre les amplitudes des rotations cristallographiques des couches plateaux et les processus de relaxation mis en jeu. Nous montrerons en particulier que, contrairement au système SiGe/Si [100], tous les systèmes de glissement de nos échantillons sont également activés. Nous expliquerons sur la base du modèle de LeGoues *et al.* [100, 120] la différence de comportement de l'échantillon 941201 avec celui de l'échantillon 960311 (tous les deux représentent la même structure n° 2), tant au niveau de la rotation de la couche qu'au niveau de la relaxation, en déterminant une barrière d'énergie à la nucléation de dislocations beaucoup plus grande pour le premier que pour le second.

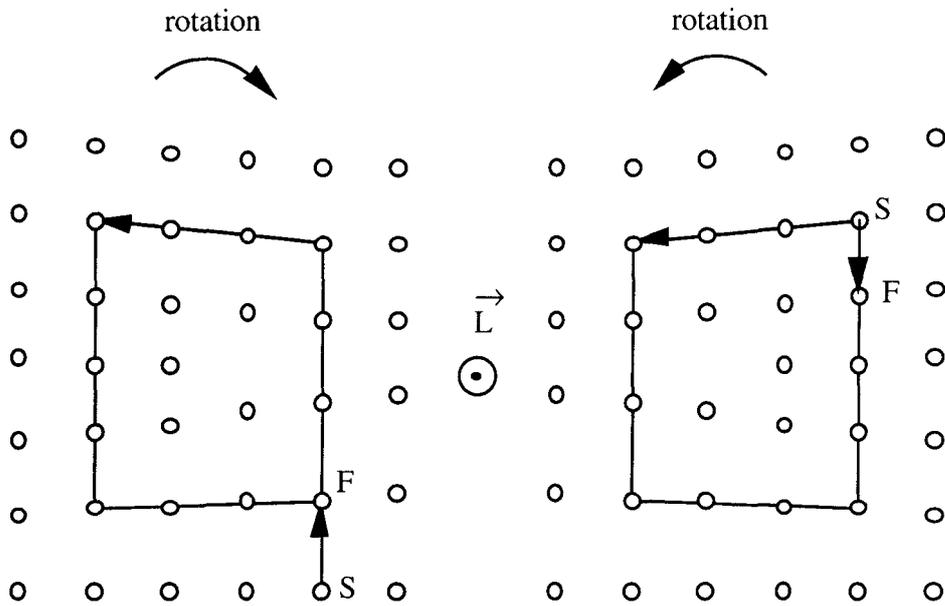
#### a) Détermination du nombre de dislocations responsables des rotations cristallographiques

Lorsqu'une couche a largement dépassé son épaisseur critique, l'angle  $\alpha^c$  entre la direction [001] de celle-ci et de son substrat est essentiellement dû à un déséquilibre des densités de dislocations ayant des composantes de rotation  $\mathbf{b}_\alpha$  de vecteurs de Burgers en sens opposés [99, 100]. Connaissant la valeur de cet angle et la valeur du taux de relaxation de la couche, il est possible d'en déduire le nombre de dislocations ayant une composante  $\mathbf{b}_\alpha$  dirigée vers la surface ou vers le substrat, et ceci pour chacune des deux directions  $\langle 110 \rangle$  des lignes [131].

Avant de commencer les calculs, nous rappelons le sens de la rotation cristallographique autour d'une dislocation suivant l'orientation de son vecteur de Burgers (figure V.8) conformément à la convention que nous avons prise pour l'orientation de ces derniers, i.e. trièdre direct ( $\mathbf{L}, \mathbf{b}, \mathbf{n}$ ) (voir Annexe 3).

Le sens du circuit de Burgers est imposé par celui de la ligne de dislocation (règle du tire-bouchon). Le vecteur de Burgers  $\mathbf{SF}$  joint le début et la fin de ce circuit dans le cristal imparfait. Avec cette convention, une composante  $\mathbf{b}_\alpha$  pointant vers le haut (i.e. dans la direction [001]) produit une rotation cristallographique d'une couche épitaxiée dans le sens inverse du circuit de Burgers.

Par analogie à la rotation des plans cristallographiques de part et d'autre d'un sous-joint de grain formé d'un empilement de dislocations [25] et à partir de considérations purement géométriques, il est facile de vérifier que la différence des



**FIGURE V.8:** Sens de la rotation cristallographique autour d'une ligne de dislocation suivant que la composante  $\mathbf{b}_\alpha$  de rotation du vecteur de Burgers est dirigée vers le haut ou vers le bas.

densités de dislocations ayant des composantes de rotation de vecteur de Burgers en sens opposés est reliée à la valeur de la désorientation des axes  $[001]$  d'une couche et de son substrat par:

$$\rho^+ - \rho^- = \frac{\tan \alpha^c}{b_\alpha} \quad (3)$$

où les exposants + et - désignent respectivement une composante  $\mathbf{b}_\alpha$  dans la direction  $[001]$  et son opposée  $[00\bar{1}]$ . Les angles de rotation des couches par rapport à leur substrat sont faibles pour les structures étudiées, par conséquent  $\tan \alpha^c \approx \alpha^c$ . Grâce aux expériences de précession et avec l'équation (2), nous pouvons donner la composante de  $\alpha^c$  dans chacune des deux directions  $\langle 110 \rangle$ . Comme les rotations s'effectuent dans les directions perpendiculaires aux lignes de dislocations et qu'il existe deux types de dislocations  $\alpha$  et  $\beta$ , la relation (3) s'écrit plutôt:

$$\rho_0^+ - \rho_0^- = \frac{\alpha_{90}^c}{b_\alpha} = \frac{-\alpha^c \sin \chi^c}{b_\alpha} \quad (4a)$$

$$\rho_{90}^+ - \rho_{90}^- = \frac{\alpha_0^c}{b_\alpha} = \frac{\alpha^c \cos \chi^c}{b_\alpha} \quad (4b)$$

où les indices 0 et 90 sont des valeurs d'angle d'azimut  $\phi$  lequel, rappelons le, repère la position en rotation de l'échantillon sur le porte objet du diffractomètre et par suite l'orientation des lignes de dislocations.

Il faut deux équations supplémentaires pour déterminer les valeurs de  $\rho_0^+$ ,  $\rho_0^-$ ,  $\rho_{90}^+$  et  $\rho_{90}^-$ . Comme chaque dislocation accommode une partie de la déformation élastique initiale dans la direction perpendiculaire à sa ligne, la mesure du degré de relaxation d'une couche épitaxiée dans une direction donnée du plan d'interface permet de déterminer la densité totale de dislocations alignées dans la direction perpendiculaire. Les deux équations supplémentaires sont donc les suivantes:

$$\rho_0^+ + \rho_0^- = \frac{\epsilon_0}{b_e} R_{90} \quad (5a)$$

$$\rho_{90}^+ + \rho_{90}^- = \frac{\epsilon_0}{b_e} R_0 \quad (5b)$$

où  $\epsilon_0/b_e$  correspond à la densité de dislocations maximale nécessaire pour accommoder plastiquement toute la déformation élastique initiale  $\epsilon_0$  de la couche.

La résolution de ce système de quatre équations à quatre inconnues conduit aux résultats suivants:

$$\rho_0^{+/-} = \frac{1}{2} \left( \frac{\epsilon_0}{b_e} R_{90} \text{ -/+ } \frac{\alpha^c \sin \chi^c}{b_\alpha} \right) \quad (6a)$$

$$\rho_{90}^{+/-} = \frac{1}{2} \left( \frac{\epsilon_0}{b_e} R_0 \text{ +/- } \frac{\alpha^c \cos \chi^c}{b_\alpha} \right) \quad (6b)$$

En combinant les résultats présentés dans les tableaux V.1 et V.2, nous avons déterminé pour la plupart des échantillons le nombre de dislocations alignées dans chacune des deux directions  $\langle 110 \rangle$ , qui ont un vecteur de Burgers orienté soit vers la surface soit vers le substrat. Cette nouvelle analyse est présentée dans le tableau V.4.

→ Le tableau V.4 montre qu'à l'exception de l'échantillon 941201, **la fraction de dislocations (i.e.  $\Delta\rho/\rho^t$ ) responsable des rotations est faible pour les structures de composition graduelle linéaire** (voir les deux colonnes du milieu du tableau V.4). Elle est égale, au maximum, à environ **3 %** de la densité totale de dislocations pour l'association InGaAs/GaAs et un peu plus pour celle d'InAlAs/GaAs. Nos valeurs sont du même ordre de grandeur que celles déterminées par Olsen *et al.* [131] pour cette dernière association de matériaux. La fraction de dislocations responsable des rotations est faible aussi pour la structure de composition graduelle par pas (échantillon 910608), soit environ 10 %.

**TABLEAU V.4:** Détermination des différentes densités de dislocations responsables des rotations cristallographiques des couches plateaux.  $\Delta\rho = \rho^+ - \rho^-$  et  $\rho^t = \rho^+ + \rho^-$  (960317-0318 correspondent à une "rampe" InAlAs).

	$\rho_0^+$	$\rho_0^-$	$\rho_{90}^+$	$\rho_{90}^-$	$\frac{\Delta\rho_0}{\rho_0^t}$	$\frac{\Delta\rho_{90}}{\rho_{90}^t}$	$\frac{\rho_0^+}{\rho_0^t}$	$\frac{\rho_0^-}{\rho_0^t}$	$\frac{\rho_{90}^+}{\rho_{90}^t}$	$\frac{\rho_{90}^-}{\rho_{90}^t}$
	[ / $\mu\text{m}$ ]	[ % ]	[ % ]	[ % ]	[ % ]	[ % ]	[ % ]			
960241 ↙	41,3	43,9	42,9	44,7	-3,1	-2,1	48,5	51,5	49	51
941201 ↘	45,0	45,0	55,1	34,3	0	<u>23,3</u>	50	50	61,6	38,4
960311 ↘	53,0	56,5	54,9	53,1	-3,2	1,7	48,4	51,6	50,8	49,2
960312 ↘	53,3	55,0	54,6	51,8	-1,6	2,6	49,2	50,8	51,3	48,7
960317 ↙	56,8	49,7	50,1	44,9	6,7	5,5	53,3	46,7	52,7	47,3
960318 ↘	48,5	52,9	51,9	48,0	-4,3	3,9	47,8	52,2	52,0	48,0
910608 ↘	23,1	24,7	21,6	27,8	-3,3	-12,6	48,3	51,7	43,7	56,3
	39,4	41,5	34,1	41,3	-2,6	-9,6	48,7	51,3	45,2	54,8

→ En d'autres termes, il n'y a pas d'écart majeur entre le nombre de dislocations dont le vecteur de Burgers pointe plutôt vers le haut et celles ayant un vecteur de Burgers pointant plutôt vers le bas, et ceci pour les deux directions  $\langle 110 \rangle$  de leur ligne. A l'exception de l'échantillon 941201, **la part de chacune des deux familles est de l'ordre de 50 %** (voir les quatre dernières colonnes du tableau V.4).

Compte-tenu des caractéristiques des systèmes de glissement de ces matériaux (voir l'annexe 3) et du faible pourcentage de dislocations responsables des rotations cristallographiques, il est raisonnable de penser que **la relaxation des contraintes dans ces structures s'est déroulée en activant de façon équivalente tous les systèmes de glissement** (échantillon 941201 excepté).

Il est intéressant de comparer ces résultats à ceux qu'a apporté la microscopie à champ proche (A.F.M.) dans l'analyse quantitative de la rugosité de surface des échantillons 960241 (plateau sans décrochement) et 960311 (plateau avec décrochement). Les figures V.9 et V.10 montrent, pour ces deux cas, les profils obtenus (Nanoscope III de Digital Instruments) dans les deux directions  $\langle 110 \rangle$  du plan de la surface, en mode "Tapping".

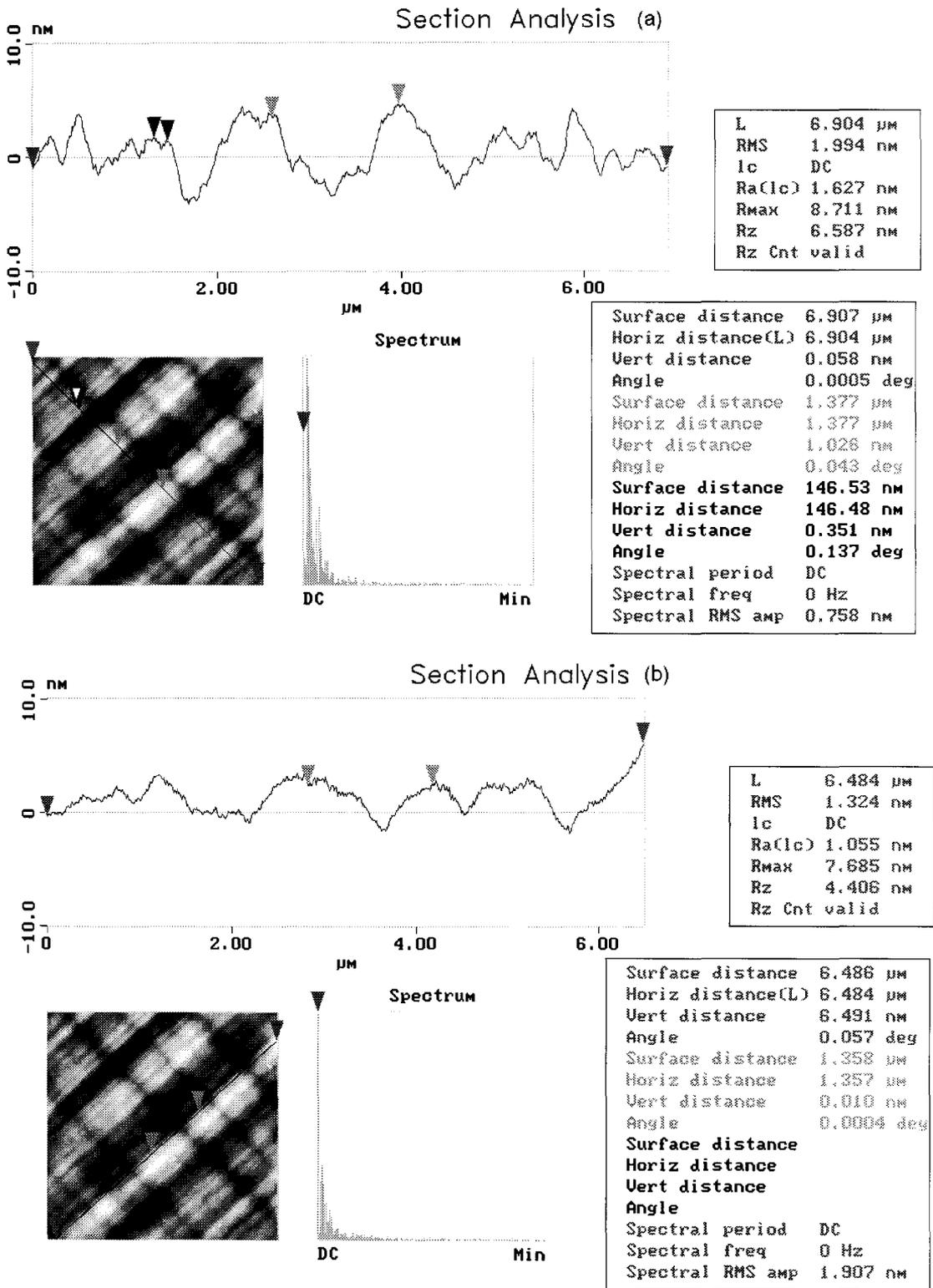


FIGURE V.9: Profils en microscopie à champ proche (A.F.M.) de la rugosité de surface de l'échantillon 960241: a) dans la direction [110], b) dans la direction  $[\bar{1}10]$ .

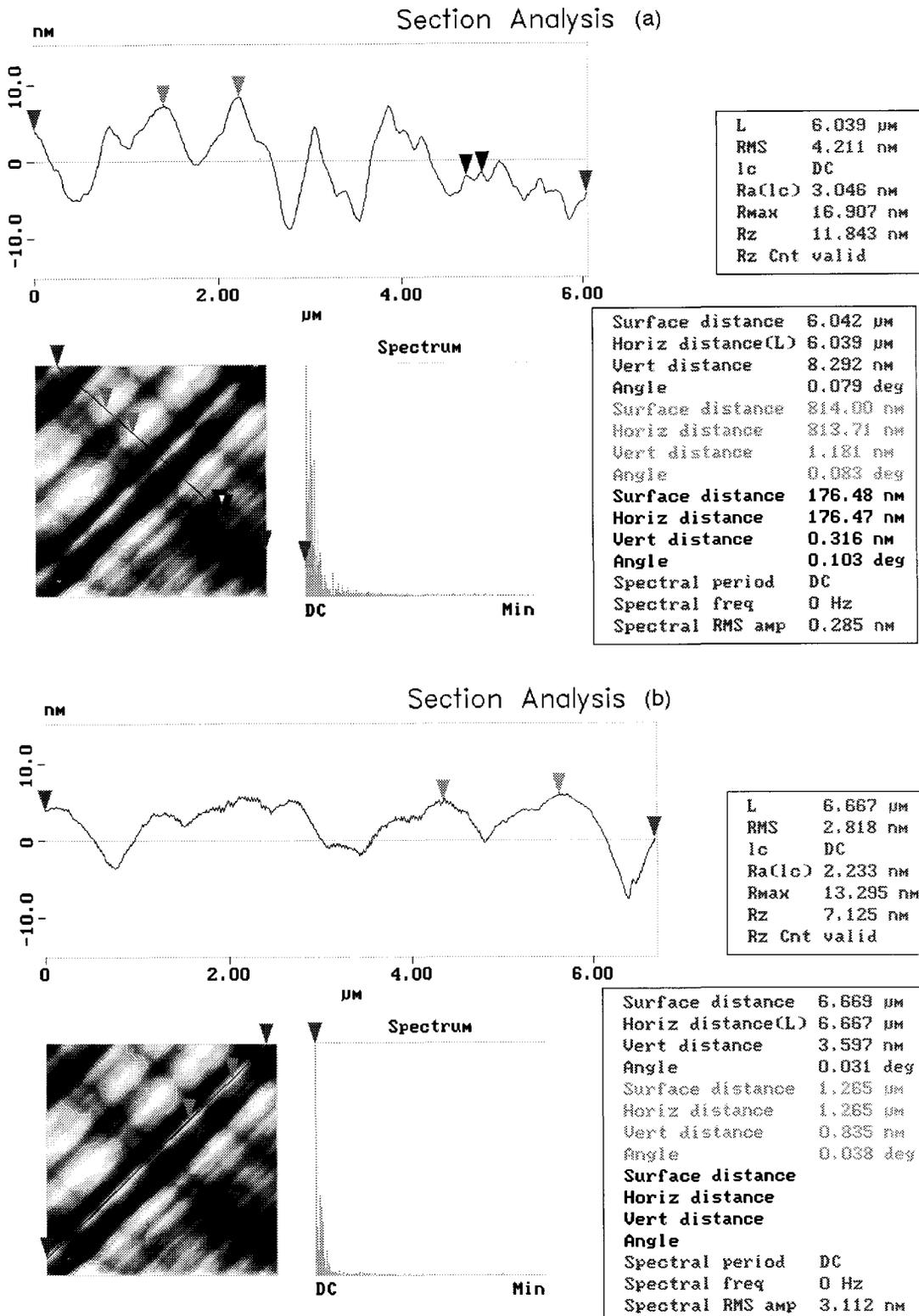


FIGURE V.10: Profils en microscopie à champ proche (A.F.M.) de la rugosité de surface de l'échantillon 960311: a) dans la direction [110], b) dans la direction  $\bar{1}\bar{1}0$ .

On n'observe pas, globalement, de différence importante entre les deux échantillons. Ceci est en accord avec les résultats du tableau V.4 qui montrent des caractéristiques en densités de dislocations très comparables dans les deux cas. Toutefois, des petites différences apparaissent, notamment une certaine "anisotropie" des profils dans les deux directions  $\langle 110 \rangle$ , associée à l'existence dans les oscillations de deux périodes, l'une longue de l'ordre de  $1,5 \mu\text{m}$ , qui apparaît dans les deux directions, l'autre courte, variant de  $150 \text{ nm}$  à  $400 \text{ nm}$ , qui n'apparaît que dans une direction, celle qui est parallèle au petit méplat des substrats, i.e.  $[110]$ . Les écarts quadratiques moyens déduits des oscillations (R.M.S.) sont aussi de l'ordre de  $4,2 \text{ nm}$  et  $2,8 \text{ nm}$  pour l'échantillon 960311,  $2 \text{ nm}$  et  $1,3 \text{ nm}$  pour l'échantillon 960241, dans les directions  $[110]$  et  $[\bar{1}\bar{1}0]$  respectivement. Ces valeurs sont caractéristiques de la rugosité moyenne des échantillons (échantillonnée sur une longueur de  $6 \mu\text{m}$ ). On note à la fois l'anisotropie dans les amplitudes de la modulation de surface, de rapport  $1,5$  environ dans les deux directions  $\langle 110 \rangle$ , également bien observée en microscopie optique en contraste interférentiel Nomarski, et surtout la différence de rugosité selon les échantillons, un peu plus marquée dans l'échantillon 960311 (plateau avec décrochement) que dans l'échantillon 960241 (plateau sans décrochement).

Ces observations de périodes dans les oscillations sont à rapprocher de celles, très caractéristiques aussi, des surfaces des échantillons semiconducteurs massifs déformés en compression, où l'essentiel de la déformation apparaît se canaliser dans des bandes de glissement étroites et très perturbées (bandes de Lüders) séparées par des zones de glissement fin, hétérogène.

Dans le cas présent, la petite période, observée uniquement dans la direction  $[110]$ , peut de fait matérialiser des marches en surface parallèles à la direction  $[\bar{1}\bar{1}0]$ , créées par l'activité de sources localisées fonctionnant selon un mécanisme de type double glissement dévié. La direction  $[\bar{1}\bar{1}0]$  est aussi celle qui est associée au caractère  $\alpha$  des dislocations à  $60^\circ$ , les plus mobiles dans ces structures.

La relation oscillations de surface  $\leftrightarrow$  bandes de glissement a été proposée par S. Shiryayev *et al.* [74] dans le cas de "rampes"  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$ . Dans leur interprétation, les bandes de glissement étroites sont associées à l'auto-organisation en réseau tridimensionnel des dislocations de désadaptation de réseau, en quantités égales dans les quatre plans de glissement  $\{111\}$  actifs, le relief en creux et en bosse étant lui relié au glissement dans les différents plans de dislocations de vecteurs de Burgers de signe contraire.

L'origine physique de la rugosité dans les structures relaxées plastiquement a été très discutée et reste controversée, en particulier le fait de savoir si le "cross-hatch" est dû aux marches créées à la surface par les dislocations au cours de leur glissement, ou est la manifestation, à travers la modulation de la vitesse de dépôt des espèces en cours de croissance, des champs de contrainte à grande distance du réseau de dislocations sous-

jacent. La question a été adressée par Fitzgerald *et al.* [132], dans le cas de  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$ , et par Beanland *et al.* [133], dans le cas d'une couche de composition constante  $\text{In}_{0,15}\text{Ga}_{0,85}\text{As}/\text{GaAs}$ . Nous n'entrerons pas ici dans le détail de leurs interprétations, argumentées toutes deux par une comparaison M.E.T./A.F.M.. Elles concluent à une modulation de la surface induite par une variation locale de la vitesse de croissance due aux champs de déformation des dislocations de désadaptation de réseau (les plus proches de la surface selon Beanland *et al.*), la présence de ces champs de contrainte modifiant la durée de diffusion des espèces avant incorporation dans le réseau. Nos observations qualitatives et quantitatives (par A.F.M.) sur les "rampes" de composition et plateau avec ou sans décrochement de composition sont en assez bon accord avec les conclusions de ces auteurs.

### b) Processus de relaxation

Dans ce qui suit, nous discuterons des valeurs des rotations des couches plateaux en se référant à deux modèles qui sont celui de Ayers *et al.* [99] et celui de LeGoues *et al.* [100, 120]. Ces deux modèles s'opposent l'un à l'autre au niveau du processus de relaxation mis en jeu [134].

Ayers *et al.* [99] considèrent que la relaxation des contraintes élastiques est contrôlée par le glissement des dislocations. En créant une surface vicinale, certains systèmes de glissement sont plus contraints que d'autres. Des dislocations ayant certaines orientations de vecteurs de Burgers sont alors préférentiellement introduites, provoquant un déséquilibre du nombre d'entre elles ayant des composantes de rotation opposées.

Ayers *et al.* proposent une limite haute et une limite basse à la valeur de l'angle de rotation d'une couche épitaxiée, la valeur exacte dépendant de la dynamique de la relaxation des contraintes. Ces deux limites correspondent à deux types totalement différents de processus de relaxation:

→ Dans le cas d'une relaxation de "**type I**", les huit systèmes de glissement (voir annexe 3) sont actifs et une large part de l'accommodation plastique des déformations élastiques initiales se produit bien au-delà de l'épaisseur critique. La cinétique de la relaxation est essentiellement contrôlée par la force agissant sur les dislocations, laquelle est d'amplitude différente suivant les différents systèmes de glissement.

Le modèle prévoit que l'angle de rotation de la couche varie alors linéairement avec l'angle d'inclinaison du substrat. La surface de nos substrats étant involontairement vicinale (i.e.  $\alpha^s$  très petit), la valeur de l'angle de rotation d'une couche totalement relaxée suivant un régime de type I est alors très bien décrite par:

$$\alpha^c \approx \alpha^s f \quad (7)$$

où  $f$  est le taux de désadaptation de paramètres de maille entre la couche et le substrat.

L'équation (7) n'est autre qu'une formulation du modèle géométrique de Nagai [92] (Equ. III.15) dans laquelle la désadaptation de paramètres de maille perpendiculaire est remplacée par  $f$ .

→ Dans le cas d'une relaxation de "**type II**", seuls les deux systèmes les plus contraints immédiatement après l'épaisseur critique sont actifs. L'angle de rotation de la couche est alors proportionnel au taux de désadaptation  $f$  et il est indépendant de l'inclinaison du substrat. Ce deuxième cas est en fait celui que décrivaient Olsen et Smith [95] (Equ. III.17). Chaque famille de dislocations produit alors une rotation de  $f\sqrt{2}$ , l'angle de rotation maximum dans la direction intermédiaire est donc:

$$\alpha^c \approx 2f \quad (8)$$

→ Le taux de désadaptation de paramètres de maille  $f$  des couches plateaux est de l'ordre de 2,1 % et l'angle d'inclinaison des substrats  $\alpha^s$  est environ **0,15°** pour tous les échantillons 96... sauf 960241 où il est sensiblement inférieur (0,1°). Par conséquent, si les structures accommodent leur déformation élastique suivant un régime de relaxation de type I ou de type II, alors les valeurs de  $\alpha^c$  sont respectivement de:

$$\text{relaxation de type I: } \alpha^c \approx 11'' \quad (9a)$$

$$\text{relaxation de type II: } \alpha^c \approx 2,4^\circ \quad (9b)$$

→ Avec des angles de rotation des couches de 200" (voire 430"), **la nature du processus de relaxation de nos échantillons à structure de composition graduelle linéaire est beaucoup plus proche du type I que du type II**. Cette conclusion est bien cohérente avec celle déduite des valeurs de densités de dislocations déterminées dans ces échantillons et regroupées dans le tableau V.4.

LeGoues *et al.* [100, 120] proposent que la relaxation des couches déposées au-dessus d'une couche de composition graduelle s'effectue par un mécanisme limité par la nucléation des dislocations. L'inclinaison d'un substrat a pour effet de modifier les barrières d'énergie pour la nucléation des dislocations dans le matériau provoquant une asymétrie de densités de celles-ci responsable de la valeur observée de la rotation de la couche.

Soit  $N_i$  le nombre de dislocations générées par le système MFR<sub>i</sub> (Moulines de Frank-Read modifiés, voir annexe 3). En supposant que seuls les systèmes MFR1 et MFR2 puissent être affectés par l'inclinaison du substrat et que le nombre de dislocations pour chaque système est proportionnel à sa loi de nucléation, laquelle est en retour proportionnelle à l'exponentielle de l'énergie d'activation pour la nucléation, les relations suivantes peuvent être déduites:

$$N_1 = N_3 \exp(-\Delta w_n / kT) \quad N_2 = N_3 \exp(\Delta w_n / kT) \quad N_3 = N_4 \quad (10)$$

où  $\Delta w_n$  est la variation de l'énergie d'activation due à l'inclinaison du substrat. La formulation de  $N_1$  et de  $N_2$  suppose que la variation d'énergie d'activation est égale, en valeur absolue, pour les deux systèmes MFR1 et MFR2, ce qui est vrai quand l'inclinaison du substrat est très faible.

Le nombre de dislocations responsables de la rotation de la couche est:  $N_\alpha = \tan \alpha^c / b_\alpha$ , et est dû à une différence du nombre de dislocations nucléées par les systèmes MFR1 et MFR2, soit:

$$N_\alpha = N_1 - N_2 \quad (11)$$

Le nombre de dislocations responsables de la relaxation de la couche épitaxiée est:  $N_t = \epsilon / b_e = \epsilon_0 R_{moy} / b_e$ , et est dû à la contribution de tous les systèmes, soit:

$$N_t = N_1 + N_2 + N_3 + N_4 \quad (12)$$

En combinant les équations (10), (11) et (12), LeGoues *et al.* expriment la fraction de dislocations responsables d'une rotation d'une couche en fonction de la variation d'énergie d'activation pour la nucléation, soit:

$$\frac{N_\alpha}{N_t} = \frac{\sinh\left(-\frac{\Delta w_n}{kT}\right)}{1 + \cosh\left(-\frac{\Delta w_n}{kT}\right)} \quad (13)$$

$N_1, N_2, N_3, N_4$  peuvent tous être calculés à partir de cette équation, une fois que  $N_t$  et  $N_\alpha$  sont déterminés expérimentalement.

LeGoues *et al.* sont allés un peu plus loin en déterminant non plus la variation d'énergie d'activation  $\Delta w_n$  par rapport au cas où  $\alpha^s = 0$ , mais l'énergie d'activation absolue  $w_0$ . Ceci n'est rendu possible qu'en exprimant phénoménologiquement la barrière d'énergie à la nucléation de dislocation,  $w_n$ , dans les hétérostructures épitaxiées sur un substrat vicinal [120]:

$$w_n = \frac{w_0 \frac{\sqrt{2}}{3}}{\cos \varphi \sin \varphi} \quad (14)$$

où  $\varphi$  est l'angle entre le plan de glissement et le plan d'interface:

$$\cos \varphi = (\cos \alpha^s \pm \sin \alpha^s) / \sqrt{3} \quad (15)$$

→ Nous avons appliqué la méthode de LeGoues *et al.* à nos propres résultats. Ces auteurs ont mesuré des angles de rotation de couches toujours dans la direction

opposée à celle de l'inclinaison des substrats, c'est à dire dans la direction  $[\bar{1}00]$ . Il n'en est pas de même pour nos échantillons. C'est pourquoi nous avons calculé la composante de rotation  $\alpha^c$  dans les deux directions  $[100]$  et  $[010]$  et appliqué séparément la méthode de LeGoues *et al.* dans chaque direction. Nous avons donc pu déterminer le pourcentage de dislocations  $N_i/N_t$  nucléées par chaque système MFRi ainsi que les barrières d'énergie pour la nucléation de ces dislocations. Les résultats sont regroupés dans le tableau V.5. Les valeurs d'énergie d'activation surimprimées ont été calculées dans la direction  $\langle 100 \rangle$  pour laquelle la composante de  $\alpha^c$  est maximale.

→ A l'exception de l'échantillon 941201, le nombre de dislocations nucléées par chaque système tourne autour de **25 %**. Cette méthode d'analyse confirme une troisième fois les conclusions précédentes, à savoir que **les dislocations ont été nucléées par chaque système de glissement de façon équivalente**.

→ Les valeurs de  $w_0$  sont du même ordre de grandeur que celles déterminées par LeGoues *et al.*  $[120]$  pour le système SiGe/Si (l'échantillon 941201 excepté).

**TABLEAU V.5:** Calcul des barrières d'énergie pour la nucléation de dislocations,  $w_0$ , et du pourcentage d'entre elles nucléées dans chaque systèmes MFR,  $N_i/N_t$ . La température de croissance est  $T = 673$  °K.

Echantillon	$w_0$ ( $N_1, N_2$ ) [ eV ]	$w_0$ ( $N_3, N_4$ ) [ eV ]	$N_1 / N_t$ [ % ]	$N_2 / N_t$ [ % ]	$N_3 / N_t$ [ % ]	$N_4 / N_t$ [ % ]
960241 ✓	0,9	<b>5,1</b>	25,2	24,9	24,1	26,0
960311 ↙	<b>3,0</b>	1	25,9	24,2	24,7	25,3
941201* ↙	49,7	33,6	29,1	20,9	29,1	20,9
960312 ↙	<b>2,9</b>	0,7	25,8	24,3	25,2	24,8
960317 ✓	1,27	<b>8,0</b>	24,6	25,3	27,2	23,0
960318 ↙	<b>5,1</b>	0,3	26,5	23,6	24,9	25,1

\* Pour cet échantillon, non seulement la rotation de la couche a été décomposée suivant les deux directions  $[100]$  et  $[010]$ , mais aussi l'angle d'inclinaison du substrat.

→ On note que la valeur de la barrière d'énergie de nucléation est plus grande pour les échantillons ayant une couche plateau sans décrochement de composition (96024-0317). La couche superficielle de ces échantillons est de fait moins relaxée que celle ayant subi un décrochement de composition (960311-0312-0318). Il ne faut pas

pour autant en conclure qu'il est plus difficile de nucléer des dislocations dans les structures à "rampe" + couche plateau sans décrochement de composition que dans les structures avec décrochement de composition. En effet, le raisonnement conduisant au calcul de  $w_0$  est faussé dans ce dernier cas car si la hauteur du décrochement est bien ciblée la couche plateau n'a pas besoin de générer des dislocations. **Il est par conséquent normal de déterminer une valeur de la barrière d'énergie de nucléation plus faible dans ce cas puisqu'une partie de la relaxation n'est pas due aux dislocations mais simplement à l'existence d'un décrochement de composition.**

→ On peut maintenant expliquer la différence de comportement entre les échantillons 941201 et 960311. Ces deux échantillons ont en effet la même structure et pourtant on a mesuré pour le premier une rotation de la couche plateau très grande ( $\alpha^c \approx 1200''$ ) et un taux de relaxation relativement faible ( $R \approx 85\%$ ). Nous avons estimé, à l'aide du modèle de LeGoues *et al.*, la valeur de l'énergie d'activation pour la nucléation de dislocations dans cet échantillon, soit environ **42 eV**, valeur qui est sans commune mesure avec les autres. Là est probablement l'explication. Pour une raison inconnue, **la génération de dislocations a été "plus difficile" dans l'échantillon 941201 que dans l'échantillon 960311. Elle a occasionné une rotation plus importante et une relaxation plus faible de la couche superficielle.**

### V.2.2 RELAXATION A L'EQUILIBRE D'UNE "RAMPE" SIMPLE (Prise en compte des interactions entre dislocations)

Tersoff [29] a développé un calcul d'énergie élastique dans les couches de composition graduelle en supposant que les dislocations de désadaptation de réseau ont la même énergie quel que soit l'endroit où elles se trouvent dans la couche. Les interactions entre dislocations sont donc négligées, ou encore plus précisément, qu'elles sont traitées dans une approximation de champ moyen correspondant à une densité fixée. L'un des résultats principaux de son calcul est que dans une couche de composition graduelle linéaire, la densité à l'équilibre de dislocations est une constante, ce qui justifie d'après l'auteur l'approximation de départ. Nous allons montrer au contraire que **ce résultat est une conséquence de l'hypothèse initiale** et que, si les dislocations ont une énergie différente selon l'endroit où elles sont localisées, non seulement leur densité à l'équilibre ne sera plus une constante (i.e. indépendante de l'épaisseur) mais cette densité ne sera plus suffisante pour relâcher les variations de déformations élastiques dans la couche.

Nous adoptons la trame du calcul de Tersoff, c'est à dire nous écrivons l'énergie élastique totale d'une couche de composition graduelle linéaire et nous déterminons la

densité de dislocations qui minimise cette énergie, sauf que l'énergie élastique des dislocations est supposée différente suivant l'endroit dans l'épaisseur où elles sont localisées. Nous considérons la "rampe" simple dans son approximation lamellaire et généralisons à cette structure multi-couche l'expression de l'énergie élastique totale écrite pour une simple couche de composition constante, soit:

$$E = 2 \sum_{i=1}^{i=N} E_{d,i} \rho_i + c \sum_{i=1}^{i=N} \left( \varepsilon_{o,i} - b_e \sum_{j=1}^{j=i} \rho_j \right)^2 h_i \quad (16)$$

$i$  désigne le  $i^{\text{ème}}$  interface entre la  $i^{\text{ème}}$  et la  $i-1^{\text{ème}}$  couche,  $N$  est le nombre total de lamelles.  $E_{d,i}$  et  $\rho_i$  sont respectivement l'énergie moyenne d'une dislocation et la densité linéaire des dislocations dans l'interface  $i$ .  $\varepsilon_{o,i}$  et  $h_i$  sont respectivement la déformation élastique initiale et l'épaisseur de la  $i^{\text{ème}}$  couche. L'énergie totale  $E$  étant une fonction des  $\rho_i$ , on peut donc trouver une distribution de dislocations aux différentes interfaces telle qu'elle minimise  $E$ . Cette situation d'équilibre est obtenue en satisfaisant à la condition suivante:

$$\forall L, \quad \frac{\partial E}{\partial \rho_L} = 0 \quad (17)$$

Ce qui conduit à:

$$\forall L, \quad \sum_{i=L}^{i=N} h_i \left( \varepsilon_{o,i} - b_e \sum_{j=1}^{j=i} \rho_j \right) = k_L \quad (18a)$$

$$k_L = \frac{E_{d,L}}{b_e c} \quad (18b)$$

La relation (18) est vraie quelque soit  $L$ , donc elle est vraie en particulier pour  $L = 1$ .

→ Dans ce cas, **la relation obtenue entre les déformations résiduelles et les épaisseurs des couches constituant la structure en "escalier" est identique à celle écrite par Dunstan *et al.* [49] (Equ. II.26) si on assimile leur "constante de relaxation"  $k$  à  $k_1$  c'est à dire à  $E_{d,1}/b_e c$ .** La formule de Dunstan *et al.* est une conséquence de la minimisation de l'énergie élastique totale d'une structure multicouche.

La relation (18) représente en fait un système de  $N$  équations à  $N$  inconnues qui sont les densités de dislocations aux  $N$  interfaces. Dans un cas général, les  $\rho_i$  sont déterminées à partir de ce système. Dans le cas particulier d'une structure en "escalier" parfaite, c'est à dire:

$$\varepsilon_{o,i} = (i - 1/2) \varepsilon_{o,max} / N \text{ et } \forall i, h_i = \text{const.} = h,$$

le système se simplifie:

$$\forall L, (N-L+1) \sum_{i=1}^{i=L} \delta_i + \sum_{i=L+1}^{i=N} \delta_i (N-i+1) = \frac{\epsilon_{0max}}{2N} (N^2 - (L-1)^2) - \frac{k_L}{h} \quad (19)$$

où  $\delta_i = b_e \rho_i$  et  $\epsilon_{0max}$  est la déformation élastique initiale maximale à la fin de la structure graduelle. Ce système d'équations peut être représenté sous la forme matricielle  $\bar{\bar{T}} \delta = V$  où les éléments du vecteur  $V$  sont identifiables aux membres droits des équations et le tenseur  $\bar{\bar{T}}$  d'ordre  $N$  a une forme simple, soit par exemple pour  $N = 4$ :

$$\bar{\bar{T}}_{(N=4)} = \begin{bmatrix} 4 & 3 & 2 & 1 \\ 3 & 3 & 2 & 1 \\ 2 & 2 & 2 & 1 \\ 1 & 1 & 1 & 1 \end{bmatrix} \quad (20)$$

La résolution de ce système d'équations permet de déterminer les niveaux d'accommodation plastique des déformations initiales de chaque lamelle et ils sont donnés par:

$$\delta_1 = V_1 - V_2 = \frac{\epsilon_{0max}}{2N} - \frac{k_1 - k_2}{h} \quad (21a)$$

$$= \frac{\epsilon_{0max}}{2N} \quad \text{si } \forall i, k_i = k = \text{const.} \quad (21b)$$

$$\delta_L = 2V_L - (V_{L+1} - V_{L-1}) = \frac{\epsilon_{0max}}{N} - \frac{2k_L - k_{L+1} - k_{L-1}}{h}, \quad L=2, \dots, N-1 \quad (21c)$$

$$= \frac{\epsilon_{0max}}{N} \quad \text{si } \forall i, k_i = k = \text{const.} \quad (21d)$$

$$\delta_N = 2V_N - V_{N-1} = \frac{\epsilon_{0max}}{N} - \frac{2k_N - k_{N-1}}{h} \quad (21e)$$

$$= \frac{\epsilon_{0max}}{N} - \frac{k}{h} \quad \text{si } \forall i, k_i = k = \text{const.} \quad (21f)$$

→ Les équations (21) qui sont déduites d'un critère de minimisation montrent que **si et seulement si les  $k_i$  sont constants alors les densités de dislocations de désadaptation de réseau sont suffisantes à chaque interface pour relaxer complètement toutes les couches sauf celle qui est en surface**. Prendre  $k_i = \text{const.}$ , c'est prendre pour chaque dislocation la même énergie moyenne quelle que soit l'interface. C'est une approximation qui est couramment employée, y compris par Tersoff [29], car elle permet d'énormes simplifications dans les calculs. D'un autre côté, prendre  $k_i \neq \text{const.}$  c'est prendre en compte à travers ce paramètre les interactions entre dislocations ou plus précisément les variations de celles-ci. Les interactions modifient en effet le terme logarithmique dans l'expression de l'énergie des dislocations (en moyenne elles sont de nature répulsive, voir le chapitre II, et donc elles augmentent les valeurs des  $k_i$ ) et on peut supposer qu'elles ne sont pas équivalentes d'une interface à l'autre (donc

les  $k_i$  peuvent être différents).

→ Si on envisage que les  $k_i$  puissent être différents les uns des autres alors l'accommodation plastique à chaque interface n'est plus suffisante pour rattraper les écarts des déformations élastiques des couches de part et d'autre de chaque interface. Par conséquent, il existera même dans la zone disloquée des déformations élastiques résiduelles et celles-ci ne feront qu'augmenter au fur et à mesure que l'on va du substrat vers la surface.

Olsen *et al.* [131] ont montré que leurs structures de composition graduelle linéaire sont dans un **état stable** bien que les niveaux des déformations résiduelles sont plus importants que ceux prévus par le modèle de Tersoff. Ces auteurs pensent que la relaxation des contraintes dans ces structures est limitée par les interactions entre dislocations. Il en est de même de l'échantillon Var1440 pour lequel nous avons mesuré par diffraction des rayons X (voir le chapitre IV) des déformations élastiques résiduelles anormalement élevées. Ceci peut expliquer cela. On peut remarquer aussi que des événements d'interactions tels que des annihilations de points de croisement entre dislocations orthogonales ont été observés sur les micrographies électroniques de cet échantillon aminci par le substrat (vue plane, figure IV.16).

Il est possible d'estimer l'accroissement de déformations résiduelles avec l'épaisseur. L'accommodation plastique à l'interface entre la couche  $i+1$  et  $i$  peut s'écrire de la manière suivante:

$$\delta_{i+1} = (\varepsilon_{o,i+1} - \varepsilon_{o,i}) - \varepsilon_{nr} \quad (22)$$

$\varepsilon_{nr}$  est la déformation élastique qui n'a pas été relaxée plastiquement.  $\varepsilon_{nr}$  dépend des  $k_i$ :

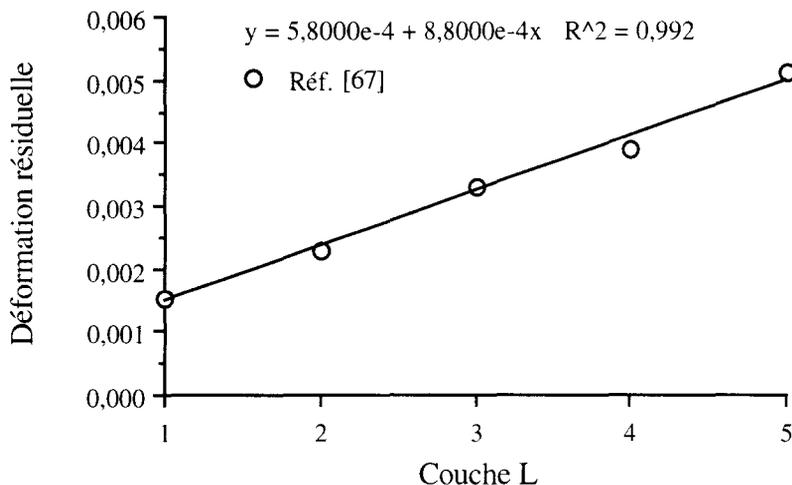
$$\varepsilon_{nr} = \frac{k_{i+1} - \langle k_{i+1} \rangle}{2h} \quad (23)$$

où  $\langle k_{i+1} \rangle$  est la moyenne entre  $k_{i+2}$  et  $k_i$  (Equ. 21). Connaissant la part de la relaxation à chaque interface, la déformation élastique résiduelle dans une couche  $L$  est alors donnée par:

$$\varepsilon_L = \varepsilon_{o,L} - \sum_{i=1}^L \delta_i = L\varepsilon_{nr} \quad \text{si } \varepsilon_{nr} = \text{const.} \quad (24)$$

→ L'équation (24) prévoit un **accroissement linéaire des déformations résiduelles** des couches constituant "l'escalier" en fonction de la position de celles-ci, numérotées à partir du substrat.

Gonzalez *et al.* [67] ont observé que les déformations résiduelles variaient de façon linéaire dans l'épaisseur de leur structure en "escalier" (voir la figure ci-dessous).



**FIGURE V.11:** Déformations élastiques résiduelles dans une hétérostructure InGaAs/GaAs dite en "escalier" [67]. Les couches sont numérotées dans l'ordre croissant à partir du substrat.

Le coefficient de proportionnalité est égal à la quantité de déformation élastique qui n'a pas été relaxée plastiquement à chaque interface (i.e.  $\epsilon_{nr}$ ). Des données expérimentales de Gonzalez *et al.* [67] nous déduisons pour cette structure  $\epsilon_{nr} = 8,8 \cdot 10^{-4}$ .

Les dislocations sont-elles présentes dans toutes les interfaces ? Dans la mesure où on pourrait augmenter considérablement le nombre de couches constituant une structure en "escalier" afin de modéliser la relaxation d'une "rampe" simple, peut-on envisager qu'il n'y ait plus une mais plusieurs interfaces proches de la surface qui seraient dépeuplées de ddr ? Pour répondre à cette question, nous exprimons les solutions du système (21) sous la forme récurrente suivante:

$$\delta_N = 2V_N - V_{N-1} \quad (25a)$$

$$\delta_{N-L(=N-1, \dots, 2)} = \frac{1}{L+1} \left\{ (L+2)V_{N-L} - (L+1)V_{N-L-1} - \sum_{i=1}^{i=L} i \delta_{N-i+1} \right\} \quad (25b)$$

$$\delta_1 = \frac{1}{N} \left\{ V_1 - \sum_{i=1}^{i=N-1} i \delta_{N-i+1} \right\} \quad (25c)$$

Les équations (21) et (25) donnent les mêmes résultats. Par contre, il est possible avec les dernières de "coller" à la réalité en imposant  $\delta_i = 0$  si mathématiquement  $\delta_i$  est négatif. Ceci permet de faire apparaître une zone de l'échantillon proche de la surface où il n'y a plus de dislocations. On détermine un nombre  $N_c (= N - L_c - 1)$  tel que  $\forall i \leq N_c$  nous avons  $\delta_i \neq 0$  et  $\forall i > N_c$  nous avons  $\delta_i = 0$ .  $N_c$  est, à la structure multicouche, l'équivalent de  $z_c$  d'une couche de composition graduelle linéaire.  $N_c$  est donc la dernière interface  $i$  où peuvent se localiser les ddr dans la structure. En posant  $\delta_{N-L_c} = 0$ , l'équation (25b)

devient:

$$(L_c+2) \left[ \frac{\epsilon_{\text{omax}}}{2N} (N^2 - (N-L_c-1)^2 - \frac{k_{N-L_c}}{h}) \right] - (L_c+1) \left[ \frac{\epsilon_{\text{omax}}}{2N} (N^2 - (N-L_c-2)^2 - \frac{k_{N-L_c-1}}{h}) \right] = 0 \quad (26)$$

Après développement et simplifications,  $N_c$  est donné par:

$$N_c = N - \sqrt{\frac{2 N k_{N_c}}{h \epsilon_{\text{omax}}} + \frac{1}{4}} + \frac{1}{2} \quad (27)$$

Pour simuler une "rampe", il faut faire tendre  $N$  vers l'infini et  $h$  vers zéro.  $N$  et  $L_c$  sont tous les deux grands devant 1, c'est pourquoi nous posons  $k_{N-L_c-1} = k_{N-L_c} = k_{N_c}$ . En multipliant par  $h$  à gauche et à droite de l'équation (27), en posant  $z_c = N_c h$ ,  $w = N h$  et  $\epsilon' = \epsilon_{\text{omax}} / w$ , la dernière "interface" où se situent à l'équilibre les dislocations de désadaptation de réseau dans la "rampe" est alors donnée par:

$$z_c = w - \sqrt{\frac{2 k z_c}{\epsilon'}} \quad (28)$$

→ L'expression de  $z_c$  (28) est semblable à celle obtenue par Tersoff (Equ. II.35). Cela montre qu'il y a toujours une partie de la "rampe" simple qui reste libre de dislocations. En exprimant  $z_c$  de cette façon,  **$k z_c$  joue le rôle d'un paramètre** que l'on ajuste afin de rendre compte d'une valeur expérimentale de  $z_c$ . Dutarte *et al.* [62], par exemple, déterminent une valeur de  $0,0313 \mu\text{m}^{1/2}$  pour  $(2E_d/b_{ec})^{1/2}$ , soit une valeur de  $0,49 \text{ nm}$  pour  $E_d/b_{ec}$ . Il est clair qu'une application numérique de ce dernier terme pour des valeurs raisonnables de l'énergie d'une dislocation ne donne pas  $0,49 \text{ nm}$  mais plutôt **0,1 à 0,2 nm**, par conséquent l'application rigoureuse du modèle de Tersoff [29] ne permet pas de rendre compte des valeurs expérimentales, sauf à considérer  $E_d/b_{ec} = k$  comme un paramètre.

### V.2.3 MECANISMES DE GLISSEMENT OU DE NUCLEATION D'UNE DISLOCATION DANS L'ÉPAISSEUR D'UNE "RAMPE" SIMPLE

Le modèle de Tersoff qui est basé sur un critère de minimisation de l'énergie élastique totale d'une couche de composition graduelle linéaire conduit à une valeur de  $w_c$  que l'on peut qualifier d'épaisseur critique à l'équilibre de cette structure. N'ayant pas tenu compte d'un mécanisme particulier de génération des dislocations et considérant une disponibilité à tout instant de ces dernières (i.e. aucune barrière à la nucléation),

l'épaisseur  $w_c$  représente de fait la limite inférieure à laquelle des dislocations peuvent apparaître dans chaque expérience. Il nous a paru intéressant, pour conclure ce travail, de donner les conditions d'apparition de dislocations dans une "rampe" simple suivant deux mécanismes concrets qui sont la courbure et le glissement d'une dislocation de croissance (mécanisme de Matthews et Blakeslee [16]), et la nucléation à la surface libre, et l'expansion, d'une demi-boucle de dislocation, puis de discuter des différences éventuelles avec la valeur de  $w_c$  précédente. Chaque mécanisme sera traité suivant deux critères, l'un mécanique, l'autre énergétique, sachant que ces deux critères doivent conduire aux mêmes conclusions [17]. Par analogie avec le premier mécanisme, **nous montrerons que la taille critique d'une demi-boucle et l'épaisseur critique d'une "rampe" ne sont pas égales contrairement à toute attente.** Il semble enfin que les valeurs expérimentales de  $w_c$  créditent le modèle de la demi-boucle.

### a) Glissement: Cas d'une dislocation de croissance

#### *Critère mécanique*

Nous appliquons le premier modèle de Matthews [16] à la "rampe" simple. Ce calcul a été développé en détail au chapitre I, nous en faisons ici un traitement plus synthétique. On détermine l'épaisseur de la couche nécessaire pour déplacer une dislocation émergente en laissant à l'interface une dislocation de désadaptation de réseau (ddr). On écrit la force effective qui agit sur le segment émergent comme la différence entre la force de Peach et Koehler,  $F_E$ , qui tend à le faire se déplacer, et la tension de ligne  $F_S$  de la ddr qui tend à le retenir, soit:

$$F_{\text{eff}} = b_e c \varepsilon' \frac{w^2}{2} - E_d \left[ \ln \left( \frac{w}{b} \right) + 1 \right] \quad (29)$$

On rappelle que  $b_e$  est la composante du vecteur de Burgers efficace pour relaxer les contraintes ( $b_e = b/2$  pour une ddr de caractère  $60^\circ$ ),  $w$  est l'épaisseur de la couche de composition graduelle linéaire,  $c$  est une constante élastique appropriée pour un régime de contraintes planes, et  $E_d$  est le terme pré-logarithmique dans l'expression de la tension de ligne ( $c = 2\mu(1+\nu)/(1-\nu)$  et  $E_d = \mu b^2(1-\nu/4)/4\pi(1-\nu)$ ).

Si  $F_{\text{eff}} < 0$  alors la force motrice n'est pas suffisante pour déplacer le segment de dislocation émergente. Si  $F_{\text{eff}} > 0$  alors ce dernier est libre de se déplacer en laissant à l'interface un segment de ddr. La condition portant sur l'épaisseur de la couche nécessaire pour déplacer la dislocation émergente s'exprime donc par:

$$F_{\text{eff}}(w) \geq 0, \text{ pour } w \geq w_M \quad (30a)$$

et

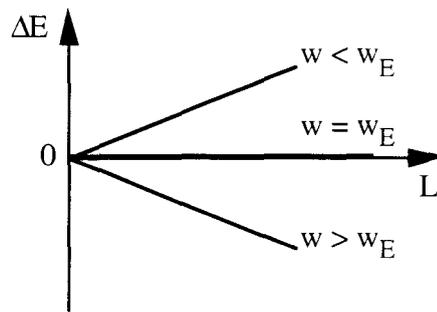
$$w_M = \left( \frac{2E_d}{b_e c \epsilon'} \left[ \ln \left( \frac{w_M}{b} \right) + 1 \right] \right)^{1/2} = w_c^{\text{Tersoff}} \quad (30b)$$

*Critère énergétique*

Nous exprimons la variation d'énergie élastique de la couche quand un segment de ddr apparait. Cette variation d'énergie est égale à l'énergie propre d'un segment de ddr, de longueur L, moins le travail effectuée par les forces appliquées pour introduire se défaut, soit:

$$\Delta E = E_\delta L - F_\epsilon L \quad (31)$$

où  $E_\delta$  est l'énergie élastique d'une ligne de dislocation par unité de longueur ( $E_\delta$  a la même expression que  $F_\delta$ ).  $\Delta E$  dépend à la fois de L et de w (à un niveau de déformation élastique donné). La figure V.12 représente l'évolution de  $\Delta E$  avec L pour trois valeurs d'épaisseur de la couche graduelle.



**FIGURE V.12:** Variation de l'énergie élastique  $\Delta E$  d'une couche épitaxiée en fonction de la longueur L d'un segment de dislocation de désadaptation de réseau apparu à l'interface pour une valeur d'épaisseur de la couche inférieure, égale et supérieure à l'épaisseur critique  $w_E$ . (Variations schématiques).

Pour  $w < w_E$ , l'existence d'un segment de ddr dans la couche augmente l'énergie élastique de celle-ci, ce défaut ne peut pas apparaître de façon homogène. Par contre il diminue cette énergie pour  $w > w_E$  et il apparaît donc spontanément dans ce cas. **A  $w = w_E$ , l'introduction d'un segment de ddr ne coûte rien.** De plus  $d(\Delta E)/dL = 0$  dans ce cas, si bien que l'accroissement d'énergie élastique dû à un accroissement de la longueur du segment est toujours compensé par le travail des forces appliquées. La condition portant sur l'épaisseur de la couche graduelle nécessaire pour introduire une longueur dL de ddr par le déplacement conséquent d'une dislocation émergente s'écrit alors:

$$\Delta E ( w = w_E ) = 0 \quad (32a)$$

et

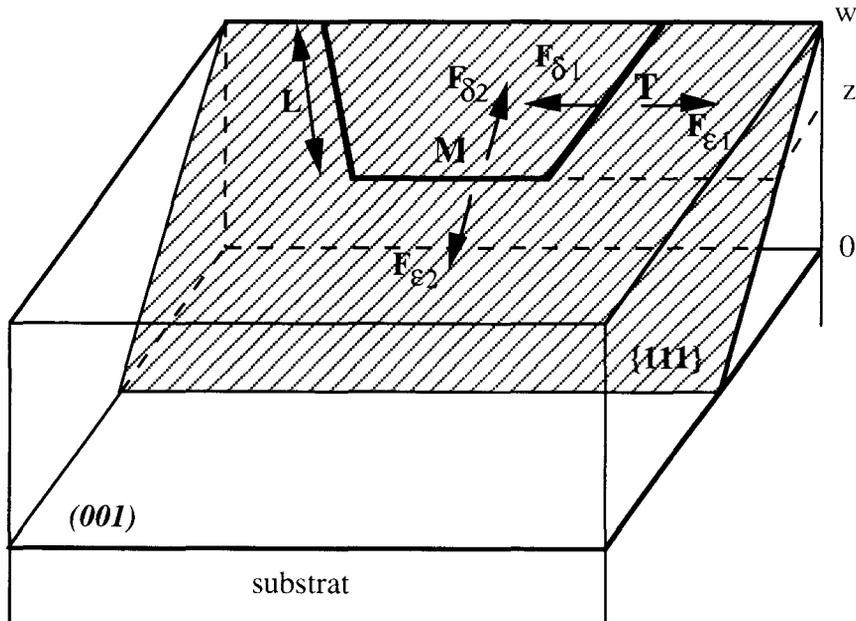
$$w_E = \left( \frac{2E_d}{b_e c E'} \left[ \ln \left( \frac{w_E}{b} \right) + 1 \right] \right)^{1/2} = w_M \quad (32b)$$

→ **Les critères mécanique et énergétique conduisent au même résultat.** Ce n'est pas surprenant en soi car les forces dérivent des énergies. Ce que l'on doit surtout retenir c'est la condition pour laquelle l'approche énergétique et mécanique convergent: **il faut que la variation de l'énergie élastique de la couche due à l'introduction du défaut soit nulle pour que celui-ci puisse effectivement être introduit.** Si cette condition s'applique à un segment de dislocation de désadaptation de réseau (qui est un défaut comme un autre), il n'y a aucune raison pour que cela ne s'applique pas à une demi-boucle de dislocation (qui est un autre défaut).

### b) Nucléation et expansion dans le cas d'une demi-boucle de dislocation

#### Critère mécanique

Soit une demi-boucle hexagonale de dislocation qui a été nucléée à la surface libre d'une couche de composition graduelle linéaire en cours de croissance et qui se propage en direction de l'interface (voir la figure V.13 ci dessous).



**FIGURE V.13:** Nucléation en surface, et expansion, d'une demi-boucle de dislocation hexagonale. Chaque segment de la demi-boucle est soumis à deux forces dont la nature et la direction sont représentées sur la figure.

La géométrie de cette demi-boucle prend en compte les directions privilégiées des lignes de dislocations dans une structure sphalérite. La demi-boucle se compose donc d'un

segment M de dislocation parallèle au plan d'interface et localisé à une côte z au-dessus de ce plan, et de deux segments T émergeant vers la surface de la couche épitaxiée. Cette demi-boucle n'est qu'une autre vue de la boucle semi-circulaire, par conséquent la façon dont elle se propage n'en est nullement modifiée, à savoir que le rapport des longueurs M/T reste constant et égal à 1 pendant son expansion (au moins jusqu'à une taille critique qui sera discutée plus loin). La longueur L de chaque segment de dislocation croît donc linéairement avec w - z, c'est à dire au fur et à mesure que la demi-boucle s'enfonce vers l'interface. On suppose par ailleurs que la boucle semi-hexagonale de dislocation se propage de la même façon que se propage une boucle semi-circulaire de **même surface** et de rayon R (le travail effectué par les contraintes étant proportionnel aux surfaces balayées par les dislocations [25]). Ceci nous conduit à relier L à R par:

$$L = \Gamma R, \quad \Gamma = \left( \frac{2\pi}{3\sqrt{3}} \right)^{1/2} \quad (33a)$$

Le rayon R peut lui même être exprimé en fonction de w - z par  $R = (w - z) / \sin \varphi$ , où  $\varphi$  est l'angle entre le plan de glissement de la demi-boucle et la surface ( $\sin \varphi = \sqrt{2/3}$ ). La relation (33a) devient:

$$L = \Gamma' (w - z), \quad \Gamma' = \left( \frac{\pi}{\sqrt{3}} \right)^{1/2} \quad (33b)$$

La demi-boucle de dislocation peut s'étendre latéralement et verticalement. Chacun de ces deux mouvements est gouverné par un critère d'équilibre de forces. Elle ne peut se propager *librement* dans l'épaisseur de la couche graduelle que si les deux critères sont vérifiés en même temps.

Les segments T sont soumis à deux forces principales  $F_{\epsilon 1}$  et  $F_{\delta 1}$ .  $F_{\epsilon 1}$  est une force motrice induite par les contraintes élastiques de désadaptation de réseau:

$$F_{\epsilon 1} = \int_z^w \frac{1}{2} \sigma(z) b \, dz = b c \epsilon' \frac{w^2 - z^2}{4} \quad (34)$$

$F_{\delta 1}$  est une force de rappel qui est égale à la tension de ligne d'une boucle semi-hexagonale de dislocation, soit [25]:

$$F_{\delta 1} \approx E_d' \left[ \ln \left( \frac{2L}{r_0} \right) + 0,16 \right] \quad (35a)$$

et

$$E_d' = \frac{2 - \nu}{2(1 - \nu)} \frac{\mu b^2}{4\pi} \quad (35b)$$

Il faut que la force effective qui agit sur le segment T soit supérieure ou égale à zéro pour que ce dernier puisse se déplacer latéralement. Cette condition se traduit par:

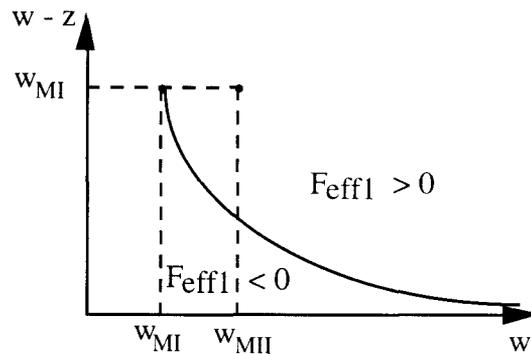
$$z \leq (w^2 - w_{MI}^2)^{1/2} \quad (36a)$$

et

$$w_{MI} = \left( \frac{4F_{\delta 1}(w_{MI})}{bc\epsilon'} \right)^{1/2} = w_c^{Tersoff} \quad (36b)$$

→ L'épaisseur de la couche de composition graduelle linéaire doit être supérieure ou égale à  $w_{MI}$  pour que les segments émergents T puissent se déplacer latéralement.

De plus, la distance  $w - z$  au-dessus du segment M nécessaire pour faire déplacer les bras T diminue avec l'épaisseur totale de la couche (figure V.14). Ce n'est pas sans importance comme nous le verrons par la suite.



**FIGURE V.14:** Tracé de la longueur minimale des segments T nécessaire pour les faire se déplacer latéralement en fonction de l'épaisseur totale de la couche graduelle. (Tracé schématique).

De même, le segment M de la demi-boucle est soumis à deux forces principales qui sont données par:

$$F_{\epsilon 2} = \frac{1}{\sqrt{6}} \sigma(z)bL = \frac{\Gamma'}{\sqrt{6}} bc \epsilon' z (w - z) \quad (37)$$

et

$$F_{\delta 2} \approx \sqrt{3} F_{\delta 1} \quad (38)$$

$F_{\delta 2}$  est égale à la projection suivant  $F_{\epsilon 2}$  de la somme des tensions de ligne des deux segments T. La condition pour faire déplacer M en direction de l'interface est donnée par  $F_{\epsilon 2} - F_{\delta 2} = 0$ , soit:

$$z = \frac{w - (w^2 - w_{MII}^2)^{1/2}}{2} \quad (39a)$$

et

$$w_{MII} = \left( \frac{12\sqrt{2} F_{\delta I}(w_{MII})}{\Gamma'bc\epsilon'} \right)^{1/2} \quad (39b)$$

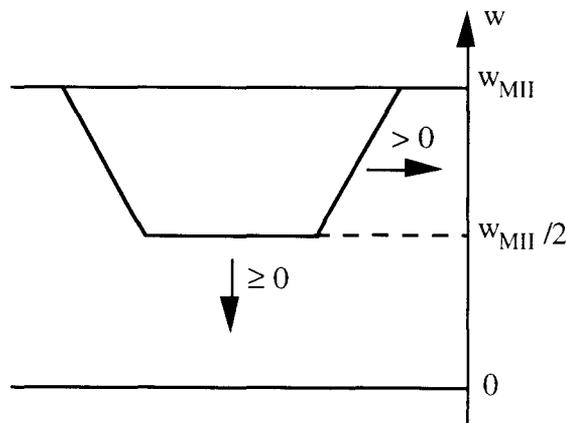
→ L'épaisseur de la couche graduelle doit être supérieure à  $w_{MII}$  pour que le segment M soit en équilibre. Quand l'épaisseur de la couche est égale à  $w_{MII}$ , alors **la première position d'équilibre du segment M est située à la côte  $z = w_{MII} / 2$ .**

Pour que la demi-boucle de dislocation puisse se propager librement jusqu'à l'interface, il faut que l'épaisseur de la "rampe" simple soit à la fois supérieure à  $w_{MI}$  et à  $w_{MII}$ . Une estimation du rapport de ces deux quantités donne:

$$\frac{w_{MII}}{w_{MI}} \approx \left( \frac{3\sqrt{2}}{(\pi\sqrt{3})^{1/2}} \right)^{1/2} \approx 1,8 \quad (40)$$

→  $w_{MII}$  est environ deux fois plus grand que  $w_{MI}$ . Par conséquent, **il faut que l'épaisseur de la couche graduelle soit au moins égale à  $w_{MII}$  pour qu'une demi-boucle de dislocation qui a été nucléée en surface puisse atteindre l'interface.** Cette condition sur  $w$  est une condition nécessaire mais elle n'est pas suffisante.

Puisque la première position d'équilibre du segment M est à  $z = w_{MII} / 2$ , l'épaisseur de la couche doit être égale à  $w_{MII}$  pour contenir entièrement la boucle semi-hexagonale (voir la figure V.15).



**FIGURE V.15:** Configuration critique d'une demi-boucle de dislocation nucléée en surface. C'est la taille minimale de la boucle au-delà de laquelle les forces effectives (flèches sur le schéma) agissant sur chacun des segments sont supérieures ou égales à zéro.

Quand on reporte sur la figure V.14 le point correspondant à la situation décrite sur la figure V.15 (i.e.  $w = w_{MII}$  et  $w - z = w_{MII} / 2 \approx w_{MI}$ ), on se situe dans le domaine où  $F_{effI}$  est supérieure à zéro. **Cette configuration n'est donc pas stable** puisque les bras émergents peuvent se déplacer latéralement, provoquant le glissement progressif du

segment M vers l'interface. La taille de la demi-boucle décrite sur la figure V.15 est **la taille critique** dans la mesure où les forces effectives deviennent toutes positives. A ce stade, la demi-boucle est **libre** de s'étendre jusqu'à l'interface. Il faut noter que le modèle d'équilibre cesse ici d'être valide puisqu'il ne peut pas décrire à quelle vitesse cette demi-boucle, qui a atteint sa taille critique, va se diriger vers l'interface. Des considérations dynamiques pures doivent être retenues à ce niveau (température, mobilité des segments,...), par conséquent la géométrie de la demi-boucle sera sans doute modifiée.

→ En conclusion, L'épaisseur  $w = w_{MII}$  de la couche de composition graduelle linéaire est une épaisseur nécessaire pour qu'une demi-boucle hexagonale (ou même circulaire) de dislocation, qui a été au préalable nucléée en surface, puisse se propager en direction de l'interface couche-substrat, à condition qu'une telle demi-boucle ait eu une taille suffisante ( $L = \Gamma' w_{MII} / 2$ ) pour se propager.

### Critère énergétique

Nous exprimons la variation d'énergie élastique de la couche graduelle pendant l'expansion d'une demi-boucle de dislocation. Cette énergie est égale à l'énergie élastique propre de la demi-boucle hexagonale  $E_{\delta'}$  moins le travail effectué par les contraintes  $W_{\epsilon}$ :

$$\Delta E = E_{\delta'} - W_{\epsilon} \quad (41)$$

L'énergie élastique d'une boucle semi-hexagonale de dislocation est donnée par [25]:

$$E_{\delta'} = 3 L E_d' \left[ \ln \left( \frac{2L}{r_0} \right) - 0,84 \right] \quad (42)$$

où  $E_d'$  a été définie précédemment (Equ. 35b). Le travail des contraintes est calculé à partir de l'expression suivante:

$$W_{\epsilon} = b \iint_S \tau \, dS \quad (43)$$

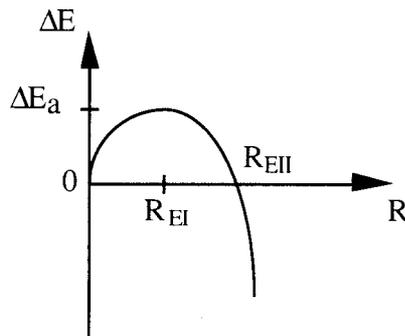
où  $\tau$  est la contrainte résolue et  $S$  est la surface balayée par la demi-boucle. Afin d'évaluer  $W_{\epsilon}$ , nous considérons momentanément la boucle semi-hexagonale comme une boucle semi-circulaire de même surface ce qui conduit au même résultat de  $W_{\epsilon}$ . Cette demi-boucle est donc nucléée en surface ( $R = 0$ ) et se propage par glissement jusqu'à l'interface ( $R = R_w = w / \sin \varphi$ ). Tout au long de son trajet, elle est soumise à des contraintes élastiques qui diminuent au fur et à mesure qu'elle s'approche de l'interface. La variation des contraintes avec le rayon de la demi-boucle peut s'écrire ainsi:

$$\sigma (R) = c \epsilon' w \left( 1 - \frac{R}{R_w} \right) \quad (44)$$

Le travail effectué par les contraintes lors de cet événement est donc:

$$W_{\varepsilon} = b \int_0^{R_w} \frac{1}{\sqrt{6}} c \varepsilon' w \left(1 - \frac{R}{R_w}\right) \pi R \, dR = \frac{\pi}{18} b c \varepsilon' \left(\frac{L}{\Gamma}\right)^3 \quad (45)$$

$\Delta E$  croit de zéro, quand il n'y a pas encore de boucle ( $R = 0$ ), jusqu'à une valeur maximale pour  $R = R_{EI}$  avant de décroître pour des valeurs de  $R$  supérieures à  $R_{EI}$  (voir la figure V.16). Quand le rayon de la boucle passe  $R_{EII}$  à laquelle  $\Delta E$  est de nouveau nulle, le système est dans un état de plus basse énergie qu'avant la formation de la boucle. Chaque état pour lequel une boucle a un rayon plus petit que  $R_{EII}$  n'est pas un état de plus basse énergie possible car l'énergie du système sans la boucle est plus faible.



**FIGURE V.16:** Variation de l'énergie élastique d'une couche épitaxiée pendant le développement d'une demi-boucle de dislocation de rayon  $R$  (tracé schématique).

L'épaisseur de la couche nécessaire pour la formation et l'expansion d'une demi-boucle est alors donnée par la condition  $\Delta E = 0$  [135], soit:

$$w_{EII} = \left( \frac{12\sqrt{2}}{\Gamma'} \frac{E_d'}{bc\varepsilon'} \left[ \ln \left( \frac{2\Gamma' w_{EII}}{r_0} \right) - 0,84 \right] \right)^{1/2} \approx w_{MII} \quad (46)$$

Encore une fois, cette valeur de l'épaisseur est une valeur nécessaire mais pas suffisante. La courbe  $\Delta E = f(R)$  admet un maximum  $\Delta E_a$  pour  $R = R_{EI}$ .  $\Delta E_a$  représente l'énergie d'activation associée à ce type de mécanisme. L'épaisseur de la couche graduelle pour laquelle une demi-boucle de dislocation de rayon  $R_{EI}$  y est totalement contenue est:

$$w_{EI} = \left( \frac{4\sqrt{2}}{\Gamma'} \frac{E_d'}{bc\varepsilon'} \left[ \ln \left( \frac{2\Gamma' w_{EI}}{r_0} \right) + 0,16 \right] \right)^{1/2} \approx w_{MI} \quad (47)$$

L'énergie d'activation est alors donnée par:

$$\Delta E_a = L_{EI} E_d' \left[ 2 \ln \left( \frac{2L_{EI}}{r_0} \right) - 2,68 \right] \quad (48)$$

où  $L_{EI} = \Gamma' w_{EI}$ . Cette énergie d'activation a une grande importance et fournit une condition supplémentaire pour qu'une demi-boucle puisse traverser toute l'épaisseur de la couche graduelle  $w_{EII}$  définie précédemment: **il faut franchir ce col**. Or la position au point de col est une position particulière pour la demi-boucle puisque pour  $R < R_{EI}$  nous avons  $d(\Delta E) / dR > 0$  et pour  $R > R_{EI}$  nous avons  $d(\Delta E) / dR < 0$ . Ceci veut dire qu'une demi-boucle de dislocation de rayon  $R$  inférieur à  $R_{EI}$  subit une force effective qui tend à la faire disparaître, tandis que celle dont le rayon est supérieur à  $R_{EI}$  subit une force qui tend à la faire se développer. La condition supplémentaire imposée par  $\Delta E_a$  peut s'exprimer de la manière suivante: **il faut que la demi-boucle puisse avoir un rayon  $R$  supérieur ou égal à  $R_{EI}$** . Cette situation est décrite sur la figure V.15: là encore, un critère mécanique et un critère énergétique conduisent au même résultat.

#### d) Conclusion

→ L'épaisseur critique à l'équilibre d'une couche de composition graduelle linéaire, qui est la plus petite valeur d'épaisseur à laquelle une dislocation de désadaptation de réseau peut apparaître, est donnée par le modèle de Tersoff [29] et correspond à l'épaisseur de la couche à partir de laquelle une dislocation de croissance commence à se déplacer (Equ. 30 et 32).

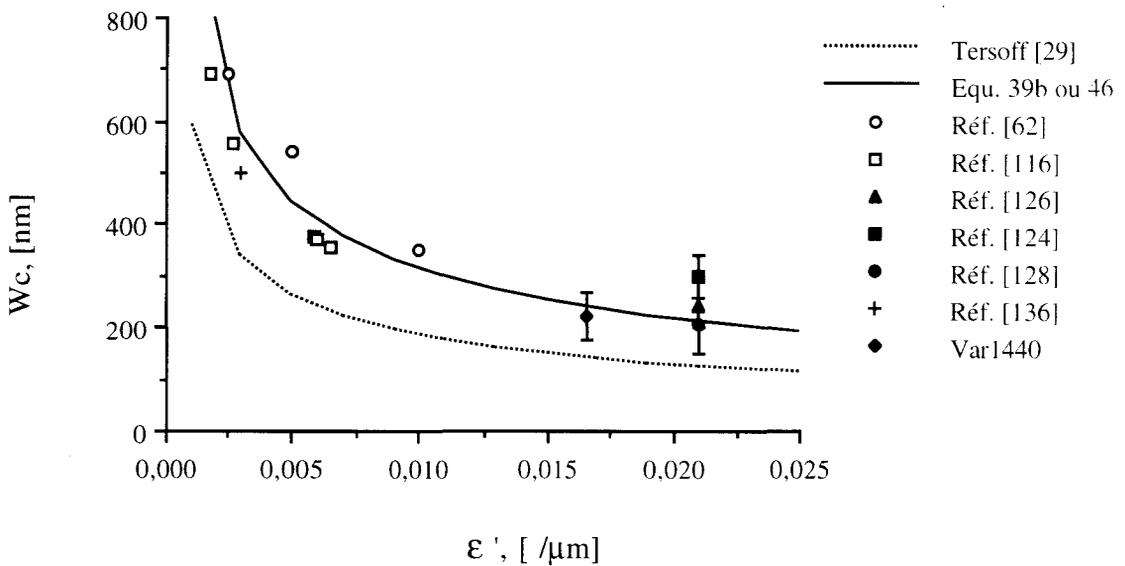
→ Considérant séparément deux mécanismes particuliers de formation de ddr, nous avons montré qu'un critère mécanique et un critère énergétique conduisent bien aux mêmes résultats.

→ Considérant le mécanisme de nucléation d'une demi-boucle de dislocation, nous avons montré, avec ces deux critères, que l'épaisseur de la couche graduelle nécessaire pour la formation d'une ddr suivant ce mécanisme est environ deux fois plus grande que celle prévue par le modèle de Tersoff. Le mécanisme de formation d'une ddr par le glissement d'une dislocation de croissance et celui par la nucléation en surface et expansion d'une demi-boucle de dislocation sont deux mécanismes différents et conduisent à des résultats différents.

La figure V.17 montre que le modèle de la nucléation d'une demi-boucle rend mieux compte des valeurs expérimentales des  $w_c$  que ne le fait le modèle de Tersoff.

Kightley *et al.* [136] ont étudié en microscopie électronique en transmission la distribution des dislocations dans l'épaisseur d'une "rampe" InGaAs épaisse ( $w \approx 8 \mu\text{m}$ ) et de faible gradient de déformation ( $\epsilon' \approx 3 \cdot 10^{-3} / \mu\text{m}$ ). Ils ont observé en particulier une distribution plane des dislocations tous les  $0,5 \mu\text{m}$  environ, jusqu'à une distance de  $3 \mu\text{m}$  au dessus de l'interface avec le substrat InP. La distance entre deux réseaux plans de dislocations est environ 1,5 fois supérieure à la valeur de  $w_c$  (Equ. II.36) calculée pour ce

type de structure. Ce résultat est représenté sur la figure V.17 par une croix.



**FIGURE V.17:** Epaisseurs libres de dislocations ( $w_c$ ) observées dans quelques couches de composition graduelle linéaire. Les symboles creux sont déduits de caractérisations par diffraction X en divisant la valeur de la déformation résiduelle mesurée en fin d'épaisseur par le gradient de déformation. Les symboles pleins sont issus de mesures directes en MET.

L'énergie d'activation étant très importante, la nucléation d'une demi-boucle se fait plutôt de manière hétérogène pour les systèmes faiblement désadaptés. Jain *et al.* [137] montrent qu'à des désadaptations de 1% et plus, et avec des défauts de dimensions de 1,5 nm et plus, une nucléation hétérogène d'une demi-boucle de dislocation devient possible aux températures d'épitaxies.

## **CONCLUSION GENERALE**

→ La croissance des structures à "rampe" de composition engendre par nature, comme pour les autres structures à forts désaccords de paramètres, des contraintes élastiques énormes. Ces contraintes sont accommodées plastiquement par l'apparition au-delà d'une épaisseur critique de dislocations de désadaptation de réseau (ddr). Nous avons déterminé suivant un critère mécanique l'épaisseur critique à l'équilibre d'une couche de composition graduelle linéaire possédant une déformation élastique initiale nulle ou non nulle à l'interface avec le substrat. Cette expression générale a permis de retrouver celle bien connue de l'épaisseur critique à l'équilibre d'une couche de composition constante établie par Matthews et ses collaborateurs, quand le rapport de la déformation initiale à l'interface et du gradient de déformation élastique de la couche graduelle tend vers l'infini. Cette première étape dans l'étude de la relaxation des contraintes dans une "rampe" simple (i.e. sans marche abrupte à l'interface) a aussi permis de montrer que la relaxation plastique commence à l'interface de la couche épitaxiée avec le substrat, même pour des matériaux de composition graduelle linéaire n'ayant pas de déformation initiale à l'interface.

→ Les nombreuses études faites sur les couches de composition constante directement épitaxiées sur des substrats nous ont permis de tirer des enseignements pour pouvoir par la suite proposer une (ou plusieurs) structure(s) visant au caractère métamorphique d'une couche plateau. Il a été montré expérimentalement qu'une couche de composition constante ne relaxe que partiellement ses contraintes, même pour des valeurs importantes de son épaisseur. Il est possible, et nous l'avons montré, de recouper les valeurs expérimentales publiées des degrés de relaxation, en appliquant des modèles d'équilibre qui tiennent compte des interactions entre dislocations. Nous avons déduit que l'origine du comportement médiocre des couches de composition constante est liée à l'existence dans ces cas d'une interface unique où doivent se localiser toutes les dislocations si ces matériaux sont à même de relâcher leurs contraintes. En multipliant le nombre d'interfaces on passe d'un système très désadapté au départ à une succession de systèmes qui le sont faiblement l'un par rapport à l'autre. De ce point de vue, les couches de composition graduelle linéaire sont de parfaits exemples: la multiplicité des interfaces est ici quasi infinie, à l'échelle des monocouches.

→ L'application du modèle de Tersoff de la relaxation à l'équilibre d'une "rampe" simple a montré qu'il existait, même pour cette structure, des déformations élastiques résiduelles en surface. La persistance de telles déformations a été exploitée avec profit en réalisant des "décrochements" de composition. L'idée force qui a guidé notre démarche

est qu'en abaissant convenablement la valeur de la composition de la couche plateau par rapport à celle de la fin de la couche graduelle, on "gèle" à cette interface les déformations résiduelles contenues dans le matériau sous-jacent. C'est cette stratégie que nous nous sommes proposés de vérifier expérimentalement.

→ L'aspect quantitatif du problème a mis en jeu une caractérisation structurale poussée par diffraction des rayons X. Nous avons montré que la technique de la triple diffraction des rayons X, basée sur une véritable cartographie d'intensité diffractée autour de nœuds du réseau réciproque, est essentielle et incontournable dans l'analyse de ces structures très fortement contraintes, car elle permet de séparer, dans le faisceau réfléchi, les composantes de rotation induites par les dislocations de désadaptation de réseau et les composantes de translation pure dues à la stricte différence des paramètres de réseau. Une méthode de dépouillement des cartes liée à leur représentation particulière dans le réseau réciproque a été donnée.

→ Nous avons mesuré dans le cas d'une association "rampe" + plateau avec décrochement de composition de 5 % d'In un taux de relaxation de 92 % pour la couche superficielle d'InGaAs. Si on compare ce résultat avec celui obtenu pour une association "rampe" + plateau sans décrochement de composition ( $R = 85\%$ ), il est indéniable que le décrochement conduit à des taux de relaxation meilleurs. Mais étant donné le trop petit nombre d'échantillons étudiés, une discussion sur l'aspect métamorphique proprement dit n'a pu être engagée. L'accent a de ce fait été mis sur la façon qu'ont en général les structures à "rampe" de composition à relaxer leurs contraintes.

→ L'étude combinée des rotations cristallographiques des plateaux et des degrés de relaxation de ces derniers a montré qu'une telle structure relaxe en activant de façon équitable tous les systèmes de glissement.

→ L'application de la technique de cartographie X a montré, pour ce qui concerne la "rampe" simple sans plateau, d'une part une anisotropie marquée de la relaxation entre les deux directions  $\langle 110 \rangle$  du plan d'interface, d'autre part des densités de dislocations non constantes dans l'épaisseur et de surcroît en nombre insuffisant pour relâcher les incréments de déformations élastiques dans l'épaisseur. Ces observations n'ont pas pu être interprétées par le modèle de relaxation de Tersoff, ce modèle reposant sur l'hypothèse que les dislocations ont la même énergie quel que soit l'endroit où elles se trouvent dans la couche. Nous avons montré au contraire que cette hypothèse n'était pas juste.

→ L'étude en microscopie électronique en transmission d'échantillons amincis sur la tranche a confirmé qu'il existait pour l'association "rampe" + plateau avec décrochement de composition une partie de l'épaisseur de la fin de la couche graduelle qui restait dépourvue de dislocations, celles-ci restant confinées dans les régions proches du substrat. En ce qui concerne la "rampe" simple, cette épaisseur libre de dislocations est

environ deux fois supérieure à celle prévue par le modèle de Tersoff. Nous avons donné, en nous appuyant à la fois sur un critère mécanique et sur un critère énergétique, les conditions d'apparition d'une dislocation dans une "rampe" simple par nucléation en surface, et expansion, d'une demi-boucle de dislocation. Nous avons montré que la taille critique d'une demi-boucle, définie comme celle au-delà de laquelle une demi-boucle est libre de se propager dans l'épaisseur de la couche, n'est pas égale (au facteur géométrique près) à l'épaisseur critique de la couche définie comme celle nécessaire pour qu'une demi-boucle qui a été nucléée en surface puisse se propager vers l'interface. L'épaisseur nécessaire pour l'apparition d'une telle demi-boucle à partir de la surface est environ deux fois supérieure à celle d'une ddr créée par un mécanisme de glissement d'une dislocation préexistante. Ce calcul a permis de recouper les valeurs expérimentales des épaisseurs "libres" de dislocations des "rampes" simples.

# **ANNEXES**

# ANNEXE 1

## CALCUL DES INTEGRALES $I_n$ ( $n = 0,1,2$ ) ET $J_m$ ( $m = 0,1$ ) INTERVENANT DANS LE CALCUL DES CONTRAINTES ELASTIQUES INTERNES D'HETEROSTRUCTURES EPITAXIEES (Chapitre I)

### Rappel

Les contraintes élastiques dans l'épaisseur d'une hétérostructure, dues à la désadaptation de paramètres de maille entre une couche épitaxiée et le substrat sur lequel elle est déposée, sont données par l'équation suivante:

$$\sigma(z) = E^*(z) [ \kappa ( z^* - z ) - \Delta\alpha(z)\Delta T(z) + \varepsilon_0(z) ]$$

où  $E^*(z) = E(z) / (1-\nu(z))$  est le module d'Young réduit. Le premier terme de l'équation décrit la courbure de la structure sous l'effet des contraintes liées à l'épitaxie. Le plan  $z = z^*$  est appelé plan neutre et possède un rayon de courbure  $R=1/\kappa$ . Le second terme correspond aux contraintes d'origine thermique ( $\alpha$  désigne un coefficient de dilatation thermique). Le troisième terme est égal aux contraintes induites par l'épitaxie de deux matériaux de paramètres différents, soit  $\varepsilon_0 = ( a(0) - a(z) ) / a(z)$ .

$\kappa$  et  $z^*$  sont exprimés en fonction des intégrales  $I_0, I_1, I_2$  et  $J_0, J_1$ :

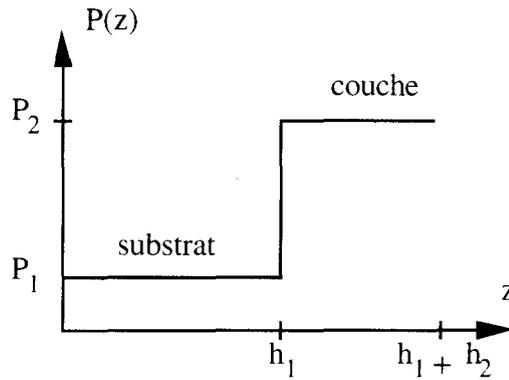
$$z^* = \frac{I_1 J_1 - I_2 J_0}{I_0 J_1 - I_1 J_0} \quad , \quad \kappa = \frac{I_0 J_1 - I_1 J_0}{I_1^2 - I_2 I_0}$$

Ces intégrales sont définies par:

$$I_n = \int_0^h z^n E^*(z) dz \quad , \quad n = 0, 1, 2$$
$$J_m = \int_0^h z^m E^*(z) [ \Delta\alpha(z)\Delta T(z) - \varepsilon_0(z) ] dz \quad , \quad m = 0, 1$$

### Cas d'une couche de composition constante directement épitaxiée sur un substrat

Une couche d'épaisseur  $h_1$  est déposée sur un substrat d'épaisseur  $h_2$ . La figure A.1 montre l'évolution d'une propriété, appelons-la P, des ces deux matériaux en fonction de l'épaisseur. P représente, par exemple, un paramètre de maille ou un module élastique.



**FIGURE A.1:** Evolution dans l'épaisseur  $z$  de la structure d'une propriété  $P(z)$  du substrat et de la couche épitaxiée.

Les intégrales  $I$  et  $J$  sont données en fonction des épaisseurs  $h_1$  et  $h_2$  et des propriétés des différents matériaux, soit:

$$I_0 = E_1^* h_1 + E_2^* h_2$$

$$2I_1 = E_1^* h_1^2 + E_2^* h_2 (2h_1 + h_2)$$

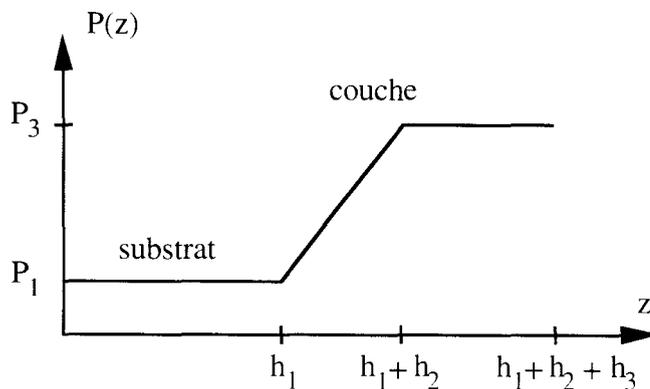
$$3I_2 = E_1^* h_1^3 + E_2^* h_2 (3h_1^2 + 3h_1 h_2 + h_2^2)$$

$$J_0 = E_2^* h_2 (\Delta\alpha_2 \Delta T - \varepsilon_2)$$

$$2J_1 = E_2^* h_2 (\Delta\alpha_2 \Delta T - \varepsilon_2) (2h_1 + h_2)$$

### Cas d'une association couche plateau \couche de composition graduelle linéaire \substrat

La figure A.2 montre l'évolution de la propriété  $P$  des matériaux en fonction de l'épaisseur  $z$  de la structure.



**FIGURE A.2:** Evolution dans l'épaisseur  $z$  de la structure d'une propriété  $P(z)$  du substrat et des deux couches épitaxiées.

Les intégrales I et J sont données par:

$$2I_0 = E_1^* (2h_1 + h_2) + E_3^* (h_2 + 2h_3)$$

$$6I_1 = E_1^* (3h_1^2 + 3h_1h_2 + h_2^2) + E_3^* (2h_2^2 + 3h_1h_2 + 6h_1h_3 + 6h_2h_3 + 3h_3^2)$$

$$12I_2 = E_1^* (4h_1^3 + 6h_1^2h_2 + 4h_1h_2^2 + h_2^3) + E_3^* (3h_2^3 + 4h_3^3 + 6h_1^2h_2 + 8h_1h_2^2 + 12h_1h_3^2 + 12h_2^2h_3 + 12h_2h_3^2 + 12h_1^2h_3 + 24h_1h_2h_3)$$

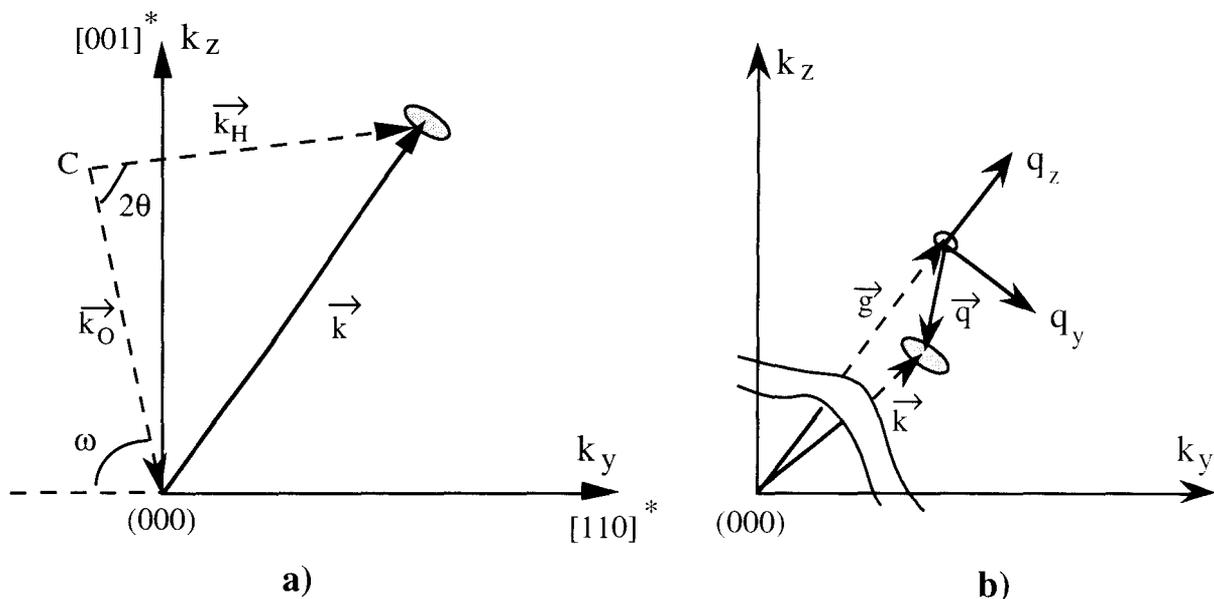
$$6J_0 = (E_1^* h_2 + E_3^* (2h_2 + 6h_3)) (\Delta\alpha_3 \Delta T - \varepsilon_3)$$

$$12J_1 = [E_1^* h_2 (2h_1 + h_2) + E_3^* (3h_2^2 + 4h_1h_2 + 6h_3^2 + 12h_1h_3 + 12h_2h_3)] (\Delta\alpha_3 \Delta T - \varepsilon_3)$$

## ANNEXE 2

### EQUATIONS DE PASSAGE ENTRE $(\Delta\omega, \Delta\theta)$ et $(\mathbf{q}_y, \mathbf{q}_z)$

(chapitre IV)



**FIGURE A.3:** Position d'un nœud de diffraction dans le réseau réciproque (figures non mises à l'échelle pour plus de clarté). a) coupe de l'espace réciproque suivant le plan  $\{110\}$  b) changement de référentiel.

La position d'un nœud de diffraction est repérée, dans le réseau réciproque, par les coordonnées  $k_y$  et  $k_z$  données par (figure A.3a):

$$\begin{pmatrix} k_y = \frac{2}{\lambda} \sin\theta_c \sin(\omega_c - \theta_c) \\ k_z = \frac{2}{\lambda} \sin\theta_c \cos(\omega_c - \theta_c) \end{pmatrix}$$

où l'indice  $c$  désigne la couche.

Pour passer du repère  $\{0, \mathbf{k}_y, \mathbf{k}_z\}$ , qui est lié à l'origine (000) du réseau réciproque, au repère  $\{S, \mathbf{q}_y, \mathbf{q}_z\}$ , qui est lié à la position du nœud de diffraction du substrat (figure A.3b), il faut d'abord effectuer une rotation du premier repère d'un angle  $\phi$ ,  $\phi$  étant l'angle que fait le plan réflecteur du substrat avec le plan (001).

La position du nœud d'une couche dans ce repère transitoire  $\{0, \mathbf{q}_y, \mathbf{q}_z\}$  est donnée par:

$$\begin{pmatrix} q_y = k_y (\mathbf{k}_y \cdot \mathbf{q}_y) + k_z (\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{q}_y) \\ q_z = k_y (\mathbf{k}_y \cdot \mathbf{q}_z) + k_z (\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{q}_z) \end{pmatrix}$$

avec les différents cosinus directeurs qui sont donnés par:

$$\left[ \begin{array}{ll} (\mathbf{k}_y \cdot \mathbf{q}_y) = \cos(\omega_s - \theta_s) & (\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{q}_y) = -\sin(\omega_s - \theta_s) \\ (\mathbf{k}_y \cdot \mathbf{q}_z) = \sin(\omega_s - \theta_s) & (\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{q}_z) = \cos(\omega_s - \theta_s) \end{array} \right]$$

où  $s$  désigne le substrat et  $\omega = \theta + \varphi$ . Après diverses simplifications, les coordonnées du nœud d'une couche dans le repère  $\{0, \mathbf{q}_y, \mathbf{q}_z\}$  sont données par:

$$\left( \begin{array}{l} q_y = \frac{2}{\lambda} \sin(\theta_s + \Delta\theta) \sin(\Delta\omega - \Delta\theta) \\ q_z = \frac{2}{\lambda} [\sin(\theta_s + \Delta\theta) \cos(\Delta\omega - \Delta\theta)] \end{array} \right)$$

tandis que celles du substrat sont données par:

$$\left( \begin{array}{l} q_y = 0 \\ q_z = \frac{2}{\lambda} \sin\theta_s \end{array} \right)$$

avec  $\Delta\theta = \theta_c - \theta_s$  et  $\Delta\omega = \omega_c - \omega_s$ .

Enfin, nous devons effectuer un changement d'origine pour passer au repère  $\{S, \mathbf{q}_y, \mathbf{q}_z\}$  désiré. Nous devons pour cela opérer une translation  $\mathbf{T} = -\frac{2}{\lambda} \sin\theta_s \mathbf{q}_z$  pour

chaque point du précédent repère.

La position, dans le réseau réciproque, du nœud d'une couche dans le nouveau repère  $\{S, \mathbf{q}_y, \mathbf{q}_z\}$  centré sur la position du nœud du substrat (voir figure A.3b) est localisée par les coordonnées suivantes:

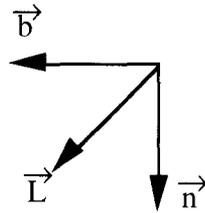
$$\left( \begin{array}{l} q_y = \frac{2}{\lambda} \sin(\theta_s + \Delta\theta) \sin(\Delta\omega - \Delta\theta) \\ q_z = \frac{2}{\lambda} [\sin(\theta_s + \Delta\theta) \cos(\Delta\omega - \Delta\theta) - \sin\theta_s] \end{array} \right)$$

Ces deux équations représentent les équations de passage liant les variations angulaires  $\Delta\omega$  et  $\Delta\theta$  d'une couche épitaxiée par rapport à son substrat aux coordonnées du réseau réciproque  $q_y$  et  $q_z$  de cette couche, dans un repère centré sur la position du nœud de diffraction du substrat.

## ANNEXE 3

### SYSTEMES DE GLISSEMENT POUR UNE DISLOCATION DE CARACTERE 60° DANS UNE COUCHE EPITAXIEE EN COMPRESSION (Chapitre V)

Nous rappelons dans le tableau A.1 le nombre de systèmes de glissement dans les matériaux à structure sphalérite. Nous nous limitons aux dislocations de caractère 60° introduites dans des couches épitaxiées en compression. Par conséquent, **le demi-plan supplémentaire doit être toujours dirigé vers le substrat**. Le vecteur de Burgers de chaque ligne de dislocation est déterminé de telle manière que les vecteurs unitaires  $\mathbf{L}$ ,  $\mathbf{b}$  et  $\mathbf{n}$  respectivement de la ligne, de la direction du glissement et du demi-plan supplémentaire forment un trièdre direct ( $\mathbf{L}$ ,  $\mathbf{b}$ ,  $\mathbf{n}$ ):



**TABEAU A.1:** Systèmes de glissement d'une dislocation à caractère 60° introduite dans une couche en compression épitaxiée sur un substrat d'orientation [001] et de structure cristalline sphalérite.

N°	Direction de la ligne $\mathbf{L}$	Vecteur de Burgers $\mathbf{b}$	Compo- sante de relaxation $\mathbf{b}_e$	Compo- sante vis $\mathbf{b}_v$	Compo- sante de rotation $\mathbf{b}_\alpha$	Plan de glissement (hkl)
S <sub>1</sub>	[1 $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{2}$ [0 $\bar{1}$ 1]	$\frac{a}{4}$ [1 $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{4}$ [1 $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{2}$ [001]	(111)
S <sub>2</sub>	[1 $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{2}$ [ $\bar{1}$ 01]	$\frac{a}{4}$ [1 $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{4}$ [ $\bar{1}$ 10]	$\frac{a}{2}$ [001]	(111)
S <sub>3</sub>	[1 $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{2}$ [0 $\bar{1}$ $\bar{1}$ ]	$\frac{a}{4}$ [1 $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{4}$ [1 $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{2}$ [0 0 $\bar{1}$ ]	(11 $\bar{1}$ )
S <sub>4</sub>	[1 $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{2}$ [ $\bar{1}$ 0 $\bar{1}$ ]	$\frac{a}{4}$ [1 $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{4}$ [ $\bar{1}$ 10]	$\frac{a}{2}$ [0 0 $\bar{1}$ ]	(11 $\bar{1}$ )
S <sub>5</sub>	[110]	$\frac{a}{2}$ [0 $\bar{1}$ 1]	$\frac{a}{4}$ [1 $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{4}$ [ $\bar{1}$ $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{2}$ [001]	( $\bar{1}$ 11)
S <sub>6</sub>	[110]	$\frac{a}{2}$ [101]	$\frac{a}{4}$ [1 $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{4}$ [110]	$\frac{a}{2}$ [001]	( $\bar{1}$ 11)
S <sub>7</sub>	[110]	$\frac{a}{2}$ [0 $\bar{1}$ $\bar{1}$ ]	$\frac{a}{4}$ [1 $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{4}$ [ $\bar{1}$ $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{2}$ [0 0 $\bar{1}$ ]	( $\bar{1}$ 1 $\bar{1}$ )
S <sub>8</sub>	[110]	$\frac{a}{2}$ [1 0 $\bar{1}$ ]	$\frac{a}{4}$ [1 $\bar{1}$ 0]	$\frac{a}{4}$ [110]	$\frac{a}{2}$ [0 0 $\bar{1}$ ]	( $\bar{1}$ 1 $\bar{1}$ )

## Les systèmes MFR

Les couches épitaxiées sont supposées relaxer en activant des sources de dislocations qui sont des moulins de Frank-Read modifiés (MFR) [58]. Une source MFR génère des demi-boucles de dislocations qui sont le produit d'une réaction à l'intersection de deux lignes orthogonales de dislocations de même vecteur de Burgers. Dans une couche de structure cristalline sphalérite, il existe quatre systèmes indépendants pour une relaxation de type MFR:

**TABLEAU A.2:** Systèmes indépendants pour une relaxation de type MFR (**b** représente un vecteur de Burgers, **L** représente une direction de la ligne d'une dislocation et (hkl) sont les indices de Miller d'un plan de glissement)

Système	<b>b</b>	<b>L</b>	(hkl)
MFR1	$1/2 [101]$	$[110]$	$(1\bar{1}\bar{1})$
		$[\bar{1}10]$	$(11\bar{1})$
MFR2	$1/2 [10\bar{1}]$	$[110]$	$(1\bar{1}1)$
		$[\bar{1}10]$	$(111)$
MFR3	$1/2 [011]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$	$(1\bar{1}1)$
		$[\bar{1}10]$	$(11\bar{1})$
MFR4	$1/2 [01\bar{1}]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$	$(1\bar{1}\bar{1})$
		$[\bar{1}10]$	$(111)$

Remarque importante: Le tableau ci-dessus étant intégralement repris de l'article de LeGoues *et al.* [58], la convention prise par ces auteurs américains pour l'orientation des vecteurs de Burgers est différente de la précédente. Ici, **b** est tel que (**L**,**b**,**-n**) est un trièdre direct.

**REFERENCES**

**BIBLIOGRAPHIQUES**

- [1] C. Ulhaq-Bouillet and A. Lefebvre, *Philos. Mag. A* 68, 1273 (1993).  
*On the formation of edge dislocations in  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  heterostructures with  $x < 0.20$ .*
- [2] A. George and J. Rabier, *Revue. Phys. Appl.* 22, 941 (1987) et réf. internes.  
*Dislocations and plasticity in semiconductors. I - Dislocation structures and dynamics.*
- [3] P.M.J. Marée *et al.*, *J. Appl. Phys.* 62, 4413 (1987).  
*Generation of misfit dislocations in semiconductors.*
- [4] C. Herbeaux, Thèse de Doctorat de l'Université de Lille I (1990).  
*Etude par microscopie électronique en transmission des défauts structuraux induits par les contraintes dans les hétérostructures  $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{As}/\text{InP}$  et  $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{As}/\text{GaAs}$ .*
- [5] L.B. Freund, *J. Cryst. Growth* 132, 341 (1993).  
*The stress distribution and curvature of a general compositionally graded semiconductor layer.*
- [6] K. Nakajima, *J. Cryst. Growth* 137, 667 (1994).  
*Stress calculation based on three-dimensional deformation of  $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$  heterostructures with a graded layer.*
- [7] S.N.G. Chu *et al.*, *J. Appl. Phys.* 57, 249 (1985).  
*Misfit stress in  $\text{InGaAs}/\text{InP}$  heteroepitaxial structures grown by vapor-phase epitaxy.*
- [8] N.N. Davidenkov, *Sov. Phys. Solid State* 2, 2595 (1961).  
*Measurement of residual stresses in electrolytic deposits.*
- [9] E. Suhir, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* 91, 73 (1987).  
*Stresses in multilayered thin films on a thick substrate.*
- [10] W.A. Brantley, *J. Appl. Phys.* 44, 534 (1973).  
*Calculated elastic constants for stress problems associated with semiconductor devices.*
- [11] P.J. Orders and B.F. Usher, *Appl. Phys. Lett.* 50, 980 (1987).  
*Determination of critical layer thickness in  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  heterostructures by x-ray diffraction.*
- [12] J. Grilhé, *Acta. Metall. Mater.* 41, 909 (1993).  
*Study of roughness formation induced by homogeneous stress at the free surfaces of solids.*
- [13] Y. Androussi *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 65, 1162 (1994).  
*Elastic misfit stress relaxation in highly strained  $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$  structures.*  
T. Benabbas *et al.*, *J. Appl. Phys.* 80, 1 (1996).  
*Stress relaxation in highly strained  $\text{InAs}/\text{GaAs}$  structures as studied by finite element analysis and transmission electron microscopy.*
- [14] D.E. Jesson *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 71, 1744 (1993).  
*Direct imaging of surface cusp evolution during strained-layer epitaxy and implications for strain relaxation.*  
Y. Androussi *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 66, 3450 (1995).  
*Plastic stress relaxation in highly strained  $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}/\text{GaAs}$  structures.*
- [15] J.H. van der Merwe and W.A. Jesser, *J. Appl. Phys.* 64, 4968 (1988).  
*The prediction and confirmation of critical epitaxial parameters.*
- [16] J.W. Matthews, in *Epitaxial Growth*, edited by J.W. Matthews (Academic, New York, 1975), Chap. 8.  
*Coherent interfaces and misfit dislocations.*  
J.W. Matthews, in *Dislocations in Solids*, edited by F. R. Nabarro (North-Holland, Amsterdam, 1979), Chap. 7.

- [17] S.M. Hu, J. Appl. Phys. 69, 7901 (1991); 70, 4009 (1991).  
*Misfit dislocations and critical thickness of heteroepitaxy.*
- [18] F.C. Frank and J.H. van der Merwe, Proc. Roy. Soc. London A 198, 205 (1949); A 198, 216 (1949); A 200, 125 (1949).  
*One-dimensional dislocations.*
- [19] J.H. van der Merwe, Surf. Sci. 31, 198 (1972).  
*Structure of epitaxial crystal interfaces.*
- [20] J. Frenkel and T. Kontorowa, Phys. Z. Sowjetunion 13, 1 (1938).
- [21] E. Kasper and H.-J. Herzog, Thin Solid Films 44, 357 (1977).  
*Elastic strain and misfit dislocation density in  $\text{Si}_{0.92}\text{Ge}_{0.08}$  films on silicon substrates.*
- [22] J.H. van der Merwe and W.A. Jesser, J. Appl. Phys. 63, 1509 (1988); 63, 1928 (1988).  
*An exactly solvable model for calculating critical misfit and thickness in epitaxial superlattices I: Layers of equal elastic constants and thicknesses; II: Layers of unequal elastic constants and thicknesses.*
- [23] J.H. van der Merwe, J. Electron. Mater. 20, 793 (1991).  
*Strain relaxation in epitaxial overlayers.*
- [24] T-Y. Zhang, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 356, 325 (1995).  
*Elastic constant effect on the critical thickness of an epilayer.*
- [25] J.P. Hirth and J. Lothe, *Theory of dislocations*, 2nd ed. (Wiley-Interscience, New York, 1982).
- [26] T.G. Andersson *et al.*, Appl. Phys. Lett. 51, 752 (1987).  
*Variation of the critical layer thickness with In content in strained  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -GaAs quantum wells grown by molecular beam epitaxy.*
- [27] D.C. Houghton *et al.*, Appl. Phys. Lett. 56, 460 (1990).  
*Equilibrium critical thickness for  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  strained layers on (100) Si.*
- [28] C.A.B. Ball and C. Laird, Thin Solid Films 41, 307 (1977).  
*A calculation of the energy of misfit dislocations and the critical thickness in graded epitaxial layers.*
- [29] J. Tersoff, Appl. Phys. Lett. 62, 693 (1993); 64, 2748 (1994).  
*Dislocations and strain relief in compositionally graded layers.*
- [30] M.S. Abrahams *et al.*, J. Mater. Sci. 4, 223 (1969).  
*Dislocation morphology in graded heterojunctions:  $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ .*
- [31] G. Heigl and G. Span, E. Kasper, Thin Solid Films 222, 184 (1992).  
*Elastic strain energy of graded  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  buffer layers.*
- [32] J.Y. Tsao *et al.*, Phys. Rev. Lett. 59, 2455 (1987).  
*Critical stresses for  $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$  strained-layer plasticity.*
- [33] B.A. Fox and W.A. Jesser, J. Appl. Phys. 68, 2801 (1990).  
*The effect of frictional stress on the calculation of critical thickness in epitaxy.*
- [34] W.A. Jesser and B.A. Fox, J. Electron. Mater. 19, 1289 (1990).  
*On the generation of misfit dislocations.*

- [35] W.A. Jesser and J. Kui, *Mater. Sci. Eng. A* 164, 101 (1993).  
*Misfit dislocation generation mechanisms in heterostructures.*
- [36] H. Alexander and P. Haasen, *Solid State Physics* 22, 27 (1968).  
*Dislocations and plastic flow in the diamond structure.*
- [37] W.A. Jesser and J.W. Matthews, *Philos. Mag.* 17, 461 (1968).  
*Pseudomorphic deposits of Cobalt on Copper.*
- [38] I.J. Fritz, *Appl. Phys. Lett.* 51, 1080 (1987).  
*Role of experimental resolution in measurements of critical layer thickness for strained-layer epitaxy.*
- [39] J. Kui and W.A. Jesser, *J. Electron. Mater.* 20, 827 (1991).  
*Thermal relaxation in strained InGaAs/GaAs heterostructures.*
- [40] J.W. Matthews, S. Mader and T.B. Light, *J. Appl. Phys.* 41, 3800 (1970).  
*Accommodation of misfit across the interface between crystals of semiconducting elements or compounds.*
- [41] J.C. Bean *et al.*, *J. Vac. Sci. Technol. A* 2, 436 (1984).  
*Ge<sub>x</sub>Si<sub>1-x</sub>/Si strained-layer superlattices grown by molecular beam epitaxy.*
- [42] D.C. Houghton, *J. Appl. Phys.* 70, 2136 (1991)  
*Strain relaxation kinetic in Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>/Si heterostructures.*
- [43] B.W. Dodson and J.Y. Tsao, *Appl. Phys. Lett.* 51, 1325 (1987); 52, 852 (1988).  
*Relaxation of strained-layer semiconductor structures via plastic flow.*
- [44] B.W. Dodson and J.Y. Tsao, *Phys. Rev. B* 38, 12383 (1988).  
*Stress dependence of dislocation glide activation energy in single-crystal silicon-germanium-alloys up to 2.6 GPa.*
- [45] R. People, *Appl. Phys. Lett.* 53, 1127 (1988).  
*Comment on "Relaxation of strained-layer semiconductor structures via plastic flow".*
- [46] A.V. Drigo *et al.*, *J. Appl. Phys.* 66, 1975 (1989).  
*On the mechanisms of strain release in molecular-beam-epitaxy-grown In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As/GaAs single heterostructures.*
- [47] M. Mazzer *et al.*, *J. Cryst. Growth* 126, 125 (1993).  
*Mechanisms of strain relaxation in III-V semiconductor heterostructures.*
- [48] D.J. Dunstan *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 59, 3390 (1991).  
*Plastic relaxation of InGaAs grown on GaAs.*
- [49] D.J. Dunstan *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 65, 839 (1994).  
*Plastic relaxation of metamorphic single layer and multilayer InGaAs/GaAs.*
- [50] V. Krishnamoorthy *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 61, 2680 (1992).  
*Residual strain analysis of In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As/GaAs heteroepitaxial layers.*
- [51] B.W. Dodson, *Appl. Phys. Lett.* 53, 37 (1988).  
*Work hardening and strain relaxation in strained-layer buffers.*
- [52] S.R. Stiffler *et al.*, *J. Appl. Phys.* 71, 4814 (1992).  
*The role of dislocation-dislocation interactions in the relaxation of pseudomorphically strained semiconductors. I. Theory*

- [53] V.T. Gillard and W.D. Nix, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* 356, 283 (1995).  
*Role of dislocation interactions in decreasing mobile threading dislocation density and limiting strain relaxation in  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  heteroepitaxial films.*
- [54] L.B. Freund, *J. Appl. Phys.* 68, 2073 (1990).  
*A criterion for arrest of a threading dislocation in a strained epitaxial layer due to an interface misfit dislocation in its path.*
- [55] V. Krishnamoorthy, Y.W. Lin and R.M. Park, *J. Appl. Phys.* 72, 1752 (1992).  
*Application of "critical compositional difference" concept to the growth of low dislocation density ( $<10^4/\text{cm}^2$ )  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x \leq 0.5$ ) on GaAs.*
- [56] V. Krishnamoorthy *et al.*, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* 263, 439 (1992).  
*Strain relief in  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  multiple layer systems.*
- [57] V. Krishnamoorthy *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 58, 2000 (1991).  
*Strain relief study concerning the  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  ( $0.07 < x < 0.5$ ) material system.*
- [58] F.K. LeGoues *et al.*, *J. Appl. Phys.* 71, 4230 (1992).  
*Mechanism and conditions for anomalous strain relaxation in graded thin films and superlattices.*
- [59] A. Lefebvre, C. Herbeaux and J. Di Persio, *Phil. Mag. A* 63, 471 (1991).  
*Interactions of misfit dislocations in  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  interfaces.*
- [60] D.J. Dunstan *et al.*, *J. Cryst. Growth* 126, 589 (1993).  
*Growth and characterization of relaxed epilayers of InGaAs on GaAs.*
- [61] J. Tersoff and F.K. LeGoues, *Phys. Rev. Lett.* 72, 3570 (1994).  
*Competing relaxation mechanisms in strained layers.*
- [62] D. Dutartre *et al.*, *J. Vac. Sci. Technol. A* 12, 1009 (1994).  
*Fabrication of relaxed  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  layers on Si substrates by rapid thermal chemical vapor deposition.*
- [63] G. Kissinger *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 66, 2083 (1995).  
*Stepwise equilibrated graded  $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$  buffer with very low threading dislocation density on Si (001).*
- [64] D.J. Dunstan, S. Young and R.H. Dixon, *J. Appl. Phys.* 70, 3038 (1991).  
*Geometrical theory of crystal thickness and relaxation in strained-layer growth.*
- [65] D. Gonzalez *et al.*, *I.C.E.M.* 13, 607 (1994).  
*Multilayer strain relaxation determination by XTEM in InGaAs step graded structures.*
- [66] C. Ferrari *et al.*, *Mater. Sci. Eng. B* 28, 510 (1994).  
*Mechanisms of strain release in molecular beam epitaxy grown InGaAs/GaAs buffer heterostructures.*
- [67] D. Gonzalez *et al.*, *Mater. Sci. Eng. B* 28, 497 (1994).  
*Step-graded buffer layer study of the strain relaxation by transmission electron microscopy.*
- [68] P.M. Mooney *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 66, 3642 (1995).  
*Evolution of strain relaxation in step-graded SiGe/Si structures.*
- [69] P.M. Mooney *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 67, 2373 (1995).  
*Relaxed  $\text{Si}_{0.7}\text{Ge}_{0.3}$  buffer layers for high-mobility devices.*

- [70] K.L. Kavanagh *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. B 10, 1820 (1992).  
*Lattice tilt and dislocations in compositionally step-graded buffer layers for mismatched InGaAs/GaAs heterointerfaces.*
- [71] S.Yu. Shiryayev, Philos. Mag. Lett. 68, 195 (1993).  
*Self-adjustment of misfit dislocations in compositionally graded  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  layers.*
- [72] F.K. LeGoues, Phys. Rev. Lett. 72, 876 (1994).  
*Self-aligned sources for dislocation nucleation: the key to low threading dislocation densities in compositionally graded thin films grown at low temperature.*
- [73] S.Yu. Shiryayev *et al.*, Appl. Phys. Lett. 64, 3305 (1994).  
*On the nature of cross-hatch patterns on compositionally graded  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  alloy layers.*
- [74] S.Yu. Shiryayev *et al.*, J. Cryst. Growth 157, 132 (1995).  
*Dislocation patterning and nanostructure engineering in compositionally graded  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$  layer systems.*
- [75] D.S. Cao *et al.*, J. Appl. Phys. 65, 2451 (1989).  
*Strained-layer superlattices for reduction of dislocation density in  $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$  on GaAs by organometallic vapor-phase epitaxy.*
- [76] P. Win *et al.*, Appl. Phys. Lett. 61, 922 (1992).  
*Metamorphic  $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}/\text{In}_{0.29}\text{Al}_{0.71}\text{As}$  layer on GaAs: A new structure for high performance high electron mobility transistor realization.*
- [77] J.C. Harmand *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. 28, L1101 (1989).  
*Lattice-mismatched growth and transport properties of InAlAs/InGaAs heterostructures on GaAs substrates.*
- [78] K. Inoue, J.C. Harmand and T. Matsuno, J. Cryst. Growth 111, 313 (1991).  
*High-quality  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{InAlAs}$  modulation-doped heterostructures grown lattice-mismatched on GaAs substrates.*
- [79] J.C. Harmand, T. Matsuno and K. Inoue, J. Appl. Phys. 66, 2633 (1989).  
*InGaAs/InAlAs(Si) modulation-doped heterostructures intentionally lattice mismatched to InP substrates.*
- [80] A. Fischer-Colbrie *et al.*, J. Cryst. Growth 127, 560 (1993).  
*Non-lattice matched growth of  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $0.53 < x < 0.80$ ) on InP.*
- [81] S.M. Lord *et al.*, J. Cryst. Growth 127, 759 (1993).  
*1.3  $\mu\text{m}$  exciton resonances in InGaAs quantum wells grown by molecular beam epitaxy using a slowly graded buffer layer.*
- [82] S.D. Kim, H. Lee and J.S. Harris, Jr., J. Cryst. Growth 141, 37 (1994).  
*Molecular beam epitaxial growth of  $\text{In}_{0.65}\text{Ga}_{0.35}\text{As}$  quantum wells on GaAs substrates for 1.5  $\mu\text{m}$  exciton resonance.*
- [83] T.P. Chin *et al.*, Appl. Phys. Lett. 62, 2369 (1993).  
*Gas-source molecular beam epitaxial growth, characterization, and light-emitting diode application of  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$  on GaP(100).*
- [84] W.J. Bartels, J. Vac. Sci. Technol. B1, 338 (1983).  
*Characterization of thin layers on perfect crystals with a multipurpose high resolution x-ray diffractometer.*
- [85] C.R. Wie, Mater. Sci. Eng. R 13, 1 (1994).  
*High resolution X-ray diffraction characterization of semiconductor structures.*

- [86] B.K. Tanner and D.K. Bowen, *J. Cryst. Growth* 126, 1 (1993).  
*Advanced X-ray scattering techniques for the characterization of semiconducting materials.*
- [87] J.W.M. DuMond, *Phys. Rev.* 52, 872 (1937).  
*Theory of the use of more than two successive X-ray crystal reflections to obtain increased resolving power.*
- [88] Bede Scientific Instruments Ltd., Lindsey Park, Bowburn, Durham DH6 5PF, United Kingdom.
- [89] P.F. Fewster, *J. Appl. Cryst.* 22, 64 (1989).  
*A high-resolution multiple-crystal multiple-reflection diffractometer.*
- [90] J. Hornstra and W.J. Bartels, *J. Cryst. Growth* 44, 513 (1978).  
*Determination of the lattice constant of epitaxial layers of III-V compounds.*
- [91] W.J. Bartels and W. Nijman, *J. Cryst. Growth* 44, 518 (1978).  
*X-ray double-crystal diffractometry of Ga<sub>1-x</sub>Al<sub>x</sub>As epitaxial layers.*
- [92] H. Nagai, *J. Appl. Phys.* 45, 3789 (1974).  
*Structure of vapor-deposited Ga<sub>x</sub>In<sub>1-x</sub>As crystals.*
- [93] P. Auvray, M. Baudet and A. Regreny, *J. Cryst. Growth* 95, 288 (1989).  
*X-ray diffraction effects in Ga and Al arsenide structures MBE-grown on slightly misoriented GaAs (001) substrates.*
- [94] A. Leiberich and J. Levkoff, *J. Cryst. Growth* 100, 330 (1990).  
*The crystal geometry of Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As grown by MOCVD on offcut GaAs (100) substrates.*
- [95] G.H. Olsen and R.T. Smith, *Phys. Stat. Sol. (a)* 31, 739 (1975).  
*Misorientation and tetragonal distortion in heteroepitaxial vapor-grown III-V structures.*
- [96] W.A. Jesser, *Phys. Stat. Sol. (a)* 20, 63 (1973).  
*On the extension of Frank's formula to crystals with different lattice parameters.*
- [97] A. Pesek *et al.*, *Semicond. Sci. Technol.* 6, 705 (1991).  
*Lattice misfit and relative tilt of lattice planes in semiconductor heterostructures.*
- [98] J.C.P. Chang and K.L. Kavanagh, *Mat. Res. Symp. Proc.* 263, 457 (1992).  
*The effect of substrate surface orientation and epilayer thickness on InGaAs/GaAs epilayer tilt and tilt direction.*
- [99] J.E. Ayers *et al.*, *J. Cryst. Growth* 113, 430 (1991).  
*Crystallographic tilting of heteroepitaxial layers.*
- [100] F.K. LeGoues, P.M. Mooney and J.O. Chu, *Appl. Phys. Lett.* 62, 140 (1993).  
*Crystallographic tilting resulting from nucleation limited relaxation.*
- [101] M.J. Hordon and B.L. Averbach, *Acta Metal.* 9, 237 (1961).  
*X-ray measurements of dislocation density in deformed copper and aluminum single crystals.*
- [102] W.H. Zachariasen, *Theory of X-rays diffraction in crystals* (Dover, New York, 1967).
- [103] W.F. Flanagan, Sc.D. Thesis, Metallurgy Department, Massachusetts Institute of Technology, (1959). (Référence 8 de [101]).
- [104] J.E. Ayers, *J. Cryst. Growth* 135, 71 (1994).  
*The measurement of threading dislocation densities in semiconductor crystals by X-ray diffraction.*

- [105] J. Lee, W.E. Mayo and T. Tsakalakos, *J. Electron. Mater.* 21, 867 (1992).  
*Elastic and plastic contributions to X-ray line broadening of InGaAsP/InP heterostructures.*
- [106] P.F. Fewster, *Semicond. Sci. Technol.* 8, 1915 (1993).  
*X-ray diffraction from low-dimensional structures.*
- [107] P. van der Sluis, *J. Appl. Cryst.* 27, 1015 (1994).  
*Slits and high-resolution x-ray diffraction.*
- [108] A. Iida and K. Kohra, *Phys. Stat. Sol. (a)* 51, 533 (1979).  
*Separate measurements of dynamical and kinematical X-ray diffractions from silicon crystals with a triple crystal diffractometer.*
- [109] P. Zaumseil and U. Winter, *Phys. Stat. Sol. (a)* 70, 497 (1982).  
*Triple crystal diffractometer investigations of silicon crystal with different collimator-analyser arrangement.*
- [110] M.A.G. Halliwell, *Adv. X-Ray Analysis* 38, 151 (1995).  
*Diffraction space mapping of heteroepitaxial layers.*
- [111] P. van der Sluis, *Appl. Phys. A* 58, 129 (1994).  
*Determination of strain in epitaxial semiconductor structures by high-resolution X-ray diffraction.*
- [112] P. van der Sluis, *J. Appl. Cryst.* 27, 50 (1994).  
*The three-dimensional resolution function of the four-reflection monochromator: a route to a higher intensity.*
- [113] P.F. Fewster, *Appl. Phys. A* 58, 121 (1994).  
*High-resolution diffraction-space mapping and topography.*
- [114] P.F. Fewster and N.L. Andrew, *J. Appl. Phys.* 74, 3121 (1993).  
*Determining the lattice relaxation in semiconductor layer systems by x-ray diffraction.*
- [115] E. Koppensteiner *et al.*, *J. Appl. Phys.* 75, 3489 (1994).  
*Investigation of strain-symmetrized and pseudomorphic  $\text{Si}_m\text{Ge}_n$  superlattices by x-ray reciprocal space mapping.*
- [116] J.H. Li *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 67, 223 (1995).  
*Evolution of strain relaxation in compositionally graded  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  films on Si (001).*
- [117] J.H. Li *et al.*, *J. Cryst. Growth* 157, 137 (1995).  
*Strain relaxation and misfit dislocations in compositionally graded  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  layers on Si (001).*
- [118] J.H. Li *et al.*, *Semicond. Sci. Technol.* 10, 1621 (1995).  
*Investigation of strain relaxation of  $\text{Ge}_{1-x}\text{Si}_x$  epilayers on Ge (001) by high-resolution x-ray reciprocal space mapping.*
- [119] Z. Yang, *Jpn. J. Appl. Phys.* 33, 6496 (1994).  
*Transmission electron microscopy study of the compositionally graded InGaAs layer.*
- [120] F.K. LeGoues, P.M. Mooney and J. Tersoff, *Phys. Rev. Lett.* 71, 396 (1993).  
*Measurement of the activation barrier to nucleation of dislocations in thin films.*
- [121] J.C.P. Chang *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 60, 1129 (1992).  
*Strain relaxation of compositionally graded  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  buffer layers for modulation-doped  $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}/\text{In}_{0.29}\text{Al}_{0.71}\text{As}$  heterostructures.*

- [122] P. Maigne and A.P. Roth, *Semicond. Sci. Technol.* 7, 1 (1992).  
*X-ray diffraction of relaxed InGaAs heterostructures grown on misoriented (100) GaAs substrates.*
- [123] F. Riesz, *J. Appl. Phys.* 79, 4111 (1996).  
*Crystallographic tilting in lattice-mismatched heteroepitaxy: A Dodson-Tsao relaxation approach.*
- [124] A. Sacedon *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 66, 3334 (1995).  
*Design of InGaAs linear graded buffer structures.*
- [125] K. Häusler, K. Eberl and W. Sigle, *Semicond. Sci. Technol.* 10, 167 (1995).  
*Properties of graded  $\text{In}_{x_0 \leq x \leq 0.5} \text{Ga}_{1-x} \text{As}$  layers grown by molecular beam epitaxy.*
- [126] S.I. Molina *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 65, 2460 (1994).  
*Strain relief in linearly graded composition buffer layers: A design scheme to grow dislocation-free ( $< 10^5 \text{ cm}^{-2}$ ) and unstrained epilayers.*
- [127] C. Ulhaq-Bouillet, Thèse de Doctorat de l'Université de Lille I (1993).  
*Etude par microscopie électronique en transmission des mécanismes de relaxation plastique dans les hétérostructures GaInAs/GaAs.*
- [128] F.J. Pacheco *et al.*, *I.C.E.M.* 13, 609 (1994).  
*TEM study of dislocation distribution in linearly-graded composition InGaAs layers on GaAs (001).*
- [129] J.C.P. Chang *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 63, 500 (1993).  
*Multiple dislocation loops in linearly graded  $\text{In}_x \text{Ga}_{1-x} \text{As}$  ( $0 \leq x \leq 0.53$ ) on GaAs and  $\text{In}_x \text{Ga}_{1-x} \text{P}$  ( $0 \leq x \leq 0.32$ ) on GaP.*
- [130] M. Tamura *et al.*, *J. Appl. Phys.* 72, 3398 (1992).  
*Threading dislocations in  $\text{In}_x \text{Ga}_{1-x} \text{As}/\text{GaAs}$  heterostructures.*
- [131] J.A Olsen *et al.*, *J. Appl. Phys.* 79, 3578 (1996).  
*X-ray reciprocal-space mapping of strain relaxation and tilting in linearly graded InAlAs buffers.*
- [132] E.A. Fitzgerald *et al.*, *J. Vac. Sci. Technol. B* 10, 1807 (1992).  
*Relaxed  $\text{Ge}_x \text{Si}_{1-x}$  structures for III-V integration with Si and high mobility two-dimensional electron gases in Si.*
- [133] R. Beanland *et al.*, *J. Cryst. Growth* 149, 1 (1995).  
*A study of surface cross-hatch and misfit dislocation structure in  $\text{In}_{0.15} \text{Ga}_{0.85} \text{As}/\text{GaAs}$  grown by chemical beam epitaxy.*
- [134] J.E. Ayers and L.J. Schowalter, *Phys. Rev. Lett.* 72, 4055 (1994).  
*Comment on "Measurement of the activation barrier to nucleation of dislocations in thin films".*  
F.K. LeGoues, P.M. Mooney and J. Tersoff, *Phys. Rev. Lett.* 72, 4056 (1994).  
*LeGoues, Mooney and Tersoff reply.*
- [135] R.H.M. van de Leur *et al.*, *J. Appl. Phys.* 64, 3043 (1988).  
*Critical thickness for pseudomorphic growth of Si/Ge alloys and superlattices.*
- [136] P. Kightley *et al.*, *Inst. Phys. Conf. Ser.* 100, 187 (1989).  
*Dislocation engineering in advanced III-V device structures.*
- [137] U. Jain *et al.*, *J. Appl. Phys.* 77, 103 (1995).  
*Nucleation of dislocation loops in strained epitaxial layers.*

