

jan 2000 6157

N° d'ordre : 2216

# THESE

Présentée à

L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES DE LILLE

pour l'obtention d'un

**Doctorat**

Spécialité Science des matériaux

par

**Damien JACOB**



## **RELAXATION HÉTÉROGÈNE DES CONTRAINTES DANS LES HÉTÉROSTRUCTURES SEMICONDUCTRICES III-V: CARACTÉRISATION PAR MICROSCOPIE ÉLECTRONIQUE EN TRANSMISSION ET SIMULATION**

Soutenue le 6 février 1998

Membres du jury :	Président	J.- P. MORNIROLI
	Rapporteurs	R. PORTIER G. VANDERSCHAEVE
	Examineurs	Y. ANDROUSSI M. GENDRY A. LEFEBVRE

## REMERCIEMENTS

Ce travail a été réalisé au Laboratoire de Structure et Propriétés de l'Etat Solide, (LSPES, URA CNRS 234), sous la direction de Monsieur Alain Lefebvre. Je tiens à le remercier sincèrement pour la qualité constante de l'encadrement qu'il m'a apporté tout au long de la thèse. Ses compétences, sa rigueur et sa disponibilité n'ont cessé de me motiver pour l'accomplissement de ce travail. Son implication et son soutien pendant la phase de rédaction ont été pour moi d'une aide précieuse.

Je remercie Monsieur le Professeur J. P. Morniroli (LSPES), qui m'a fait l'honneur de présider le jury d'examen.

Je suis très sensible à l'intérêt que Messieurs les Professeurs R. Portier (Laboratoire de Métallurgie Structurale, ENSCP, Paris) et G. Vanderschaeve (CEMES-CNRS, Toulouse) ont porté à mon travail en acceptant d'être rapporteurs de ce mémoire.

L'étude présentée dans le chapitre III a été entreprise en collaboration avec Monsieur Michel Gendry, du Laboratoire d'Electronique Automatique et de Mesures Electriques (LEAME, UMR CNRS 5512) de l'Ecole Centrale de Lyon. C'est lui qui nous a fourni l'ensemble des échantillons d' $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As} / \text{InP}$ . Il a toujours su répondre rapidement à nos besoins et ses compétences dans le domaine de la croissance des hétérostructures ont été capitales pour l'interprétation des résultats. Je le remercie de l'intérêt qu'il a montré pour mon travail, ainsi que de sa présence parmi les membres du jury. Je remercie également ses collaborateurs, Messieurs Y. Robach, P. Krapf et L. Porte d'avoir bien voulu mes transmettre les images de microscopie à effet tunnel qu'ils avaient obtenus sur certains échantillons.

Je remercie Monsieur Y. Druelle, de l'Institut d'Electronique et de Microélectronique du Nord (IEMN) d'avoir bien voulu élaboré l'hétérostructure GaAs / InGaAs / GaAs étudié dans le chapitre IV.

Je tiens à remercier chaleureusement Monsieur Yidir Androussi (LSPES) qui, depuis le DEA, m'a transmis ses compétences en microscopie électronique en transmission. Il m'a souvent conseillé pour guider l'évolution des études entreprises et il a toujours été un interlocuteur privilégié pour l'interprétation des résultats. Je suis très sensible à sa présence parmi les membres du jury.

Plusieurs personnes du laboratoire ont également collaboré à ce travail. Monsieur Tarik Benabbas a réalisé l'ensemble des calculs par éléments finis. Ses compétences en la matière ont été pour moi d'un grand secours pour l'interprétation des résultats et je l'en remercie.

Monsieur Philippe François a réalisé les programmes de simulation d'image. C'est également lui qui, en sa qualité de responsable informatique du laboratoire, m'a appris à me débrouiller avec les outils informatiques. Je tiens à lui exprimer ma reconnaissance pour sa disponibilité et sa patience.

Madame Denise Ferré a réalisé les observations en microscopie à force atomique sur de nombreux échantillons et s'est impliquée à plusieurs reprises dans l'interprétation des résultats. Son avis éclairé m'a toujours été utile. Qu'elle en soit ici remerciée.

Je remercie également Monsieur Dominique Vignaud pour avoir réalisé les mesures en rayons X et en photoluminescence citées dans ce manuscrit.

Enfin, les personnes précédemment évoquées, ainsi que de nombreuses autres personnes du laboratoire, ont contribué, par leur bonne humeur, à l'ambiance agréable dans laquelle s'est déroulé ce travail. Qu'elles en soient ici chaleureusement remerciées.

# TABLE des MATIERES

<b><u>INTRODUCTION</u></b>	p 3
<b><u>CHAPITRE I :</u></b> <b><u>LES CONTRAINTES DANS LES HETEROSTRUCTURES SEMI- CONDUCTRICES. GENERALITES.</u></b>	
<b><u>Introduction</u></b>	p 11
<b><u>I, 1) Les composés III-V</u></b>	
<u>I, 1, 1) Cristallographie</u>	p 15
<u>I, 1, 2) Les dislocations dans les composés III-V</u>	p 15
<b><u>I, 2) Origine des contraintes dans les hétérostructures III-V</u></b>	p 17
<b><u>I, 3) Relaxation des contraintes</u></b>	
<u>I, 3, 1) Relaxation plastique des couches 2D</u>	p 21
<u>I, 3, 2) Relaxation élastique des couches 3D</u>	p 23
<u>I, 3, 3) Relaxation plastique des couches 3D</u>	p 25
<b><u>I, 4) Calcul des contraintes: la méthode des Eléments Finis</u></b>	p 29
<b><u>I, 5) Mesure des contraintes dans les hétérostructures</u></b>	p 33
<b><u>Références du chapitre I</u></b>	p 37

**CHAPITRE II:**  
**METHODE de CARACTERISATION des CHAMPS de CONTRAINTE**  
**HETEROGENES par MICROSCOPIE ELECTRONIQUE en**  
**TRANSMISSION: PRINCIPES et EXPERIMENTATION**

**Introduction** p 47

**II, 1) Simulation des images**

II, 1, 1) Les équations de la théorie dynamique de la diffraction des électrons p 49

II, 1, 2) Les paramètres

II, 1, 2, a) La distance d'extinction p 55

II, 1, 2, b) L'écart à la condition de Bragg p 57

II, 1, 2, c) Les coefficients d'absorption p 59

II, 1, 2, d) L'épaisseur de la lame mince p 61

II, 1, 3) Les champs de déplacement p 63

II, 1, 4) Intégration des équations différentielles p 63

**II, 2) Procédures expérimentales**

II, 2, 1) Préparation des lames minces p 67

II, 2, 2) Acquisition des images p 67

II, 2, 3) Microscopie en faisceaux convergents p 71

II, 2, 3, 1) Mesure de l'épaisseur de l'échantillon p 73

II, 2, 3, 2) Mesure de l'écart à la condition de Bragg p 75

II, 2, 4) Analyse des images p 79

**Références du chapitre II** p 81

**CHAPITRE III:**  
**CARACTERISATION de la RELAXATION ELASTIQUE de COUCHES**  
**d' $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$  CONTRAINTES en TENSION sur InP (001)**

**Introduction** p 89

### **III, 1) Présentation des échantillons étudiés**

<u>III, 1, 1) Conditions de croissance</u>	p 93
<u>III, 1, 2) Conditions d'observation en microscopie à champ proche</u>	p 95
<u>III, 1, 3) Préparation des échantillons pour les observations MET</u>	p 95

### **III, 2) Observations en microscopie à champ proche**

<u>III, 2, 1) Echantillons de type A</u>	p 97
<u>III, 2, 2) Echantillon B</u>	p 101
<u>III, 2, 3) Conclusion</u>	p 101

### **III, 3) Observations en MET**

<u>III, 3, 1) Echantillons de type A</u>	p 103
<u>III, 3, 2) Echantillon B</u>	p 105
<u>III, 3, 3) Analyse des contrastes</u>	p 105
<u>III, 3, 4) Conclusion</u>	p 109

### **III, 4) Calculs par éléments finis**

<u>III, 4, 1) Modèles utilisés</u>	p 111
<u>III, 4, 2) Résultats des calculs</u>	p 113

### **III, 5) Résultats des simulations MET**

<u>III, 5, 1) Résultats des simulations: échantillons A<sub>5</sub> et B</u>	p 117
<u>III, 5, 2) Sensibilité des profils simulés à la forme des défauts</u>	p 119

### **III, 6) Discussion et conclusion**

<u>III, 6, 1) Validité de la méthode</u>	p 123
<u>III, 6, 2) Morphologie de surface 3D des couches en tension et des couches en compression</u>	p 123
<u>III, 6, 3) Limites de la méthode</u>	p 127

### **Références du chapitre III**

	p 129
--	-------

**CHAPITRE IV:**  
**ETUDE de la RELAXATION en SURFACE d'un Puits CONTRAINT**  
**d' $\text{In}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$  dans une MATRICE GaAs**

<b><u>Introduction</u></b>	p 135
<b><u>IV, 1) Position du problème et revue bibliographique</u></b>	p 139
<b><u>IV, 2) Présentation de l'hétérostructure étudiée</u></b>	
<u>IV, 2,1) Conditions de croissance</u>	p 145
<u>IV, 2, 2) Préparation des échantillons pour les observations en MET</u>	p 145
<b><u>IV, 3) Résultats des calculs par éléments finis</u></b>	
<u>IV, 3, 1) Modèles utilisés pour les calculs</u>	p 147
<u>IV, 3, 2) Résultats des calculs</u>	p 147
<b><u>IV, 4) Résultats des observations MET</u></b>	p 153
<b><u>IV, 5) Résultats des simulations de contraste</u></b>	
<u>IV, 5, 1) Résultats des simulations pour <math>t = 225</math> nm et <math>t = 360</math> nm</u>	p 159
<u>IV, 5, 2) Sensibilité des simulations aux paramètres <math>t</math>, <math>w</math> et <math>x</math></u>	p 161
<u>IV, 5, 3) Influence du paramètre d'absorption anormale <math>A_g</math></u>	p 165
<b><u>IV, 6) Discussion et conclusion</u></b>	p 169
<b><u>Références du chapitre IV</u></b>	p 171
<b><u>CONCLUSION</u></b>	p 175
<b><u>ANNEXE</u></b>	p 181

# **INTRODUCTION**



## INTRODUCTION

Les composants utilisés dans l'industrie électronique sont généralement réalisés à partir d'hétérostructures composées de matériaux semi-conducteurs épitaxiés en couches minces sur des substrats monocristallins. La recherche de nouveaux composants pour améliorer les performances électroniques ou optoélectroniques conduit à l'association de substrats et de couches épitaxiées présentant des différences de paramètres cristallins de plus en plus grandes, différences qui sont à l'origine de fortes contraintes de désadaptation de réseau. Cette recherche s'est traduite par une nette amélioration de la maîtrise des conditions de croissance épitaxiale. Cette amélioration fait que les hétérostructures de semiconducteurs constituent souvent de véritables matériaux modèles pour lesquels on observe un très bon contrôle de paramètres essentiels, tels que la géométrie des hétérostructures, ainsi que la densité et la nature des défauts créés lors de la croissance.

L'évolution des recherches se traduit également par la mise au point de composants présentant des dimensions de plus en plus faibles (effets de confinement quantique), ce qui a pour conséquence d'amplifier le rôle joué par les interfaces et les surfaces libres : les phénomènes de relaxation élastique des contraintes qui en résultent aboutissent à des hétérogénéités des champs de déformation qui modifient, à leur tour, les propriétés électroniques. De façon générale, on peut chercher soit à utiliser les effets des contraintes, soit à les limiter, mais il est dans tous les cas nécessaire de les caractériser avec précision.

C'est pourquoi notre attention s'est portée sur la détermination des champs de contrainte hétérogènes associés à deux types de relaxation de surface. Le premier problème étudié porte sur la relaxation élastique des contraintes associées à la croissance tridimensionnelle de couches contraintes en tension d' $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$  épitaxiées sur un substrat d' $\text{InP}$ . Cette étude, réalisée en collaboration avec le Laboratoire d'Electronique Automatique et Mesures Electriques (LEAME, UMR CNRS 5512) de l'Ecole Centrale de Lyon, a été motivée par le fait que, contrairement au cas des couches en compression, les phénomènes de relaxation des contraintes associés à la croissance tridimensionnelle des couches ont été encore assez peu étudiés sur les systèmes en tension. La deuxième étude porte sur la détermination des champs de contrainte hétérogènes associés à la relaxation d'un puits contraint en compression d' $\text{In}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$  enterré dans une matrice de  $\text{GaAs}$  et émergeant à la surface de l'échantillon. La méthode de caractérisation utilisée pour déterminer les champs de contrainte hétérogènes dans ces hétérostructures est basée sur



l'observation des contrastes de diffraction qu'ils produisent en Microscopie Electronique en Transmission (MET). L'interprétation des contrastes se fait grâce à des simulations réalisées à partir de calculs par éléments finis des champs de déplacement, et on peut ainsi quantifier les champs de déformation responsables des contrastes.

Le plan de la thèse est le suivant:

Dans le premier chapitre, nous revenons sur l'importance des contraintes dans les hétérostructures semi-conductrices. Nous décrivons les différents modes de relaxation possibles et faisons un bref état des connaissances acquises dans ce domaine. La méthode de calcul par éléments finis des champs de contrainte, utilisée dans le cadre de cette thèse, y est décrite ainsi que l'apport de la MET pour l'étude des hétérostructures de basse dimensionnalité.

Dans le deuxième chapitre, nous décrivons de façon détaillée la méthode de caractérisation des champs de contrainte utilisant la MET et les simulations. Nous présentons les aspects théoriques de la diffraction des électrons par un cristal ainsi que les procédures expérimentales utilisées pour obtenir les informations nécessaires à la réalisation des simulations.

Les deux derniers chapitres sont consacrés aux résultats expérimentaux et aux simulations effectuées à propos de l'étude des hétérogénéités de contrainte associées à :

- la croissance tridimensionnelle de couches contraintes en tension d' $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$  épitaxiées sur un substrat d' $\text{InP}$  (chapitre III) : la confrontation des résultats obtenus par microscopie en champ proche et par MET permet d'identifier les sites de relaxation élastique et d'évaluer les champs de contrainte associés,

- la relaxation d'un puits contraint en compression d' $\text{In}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$  enterré dans une matrice de  $\text{GaAs}$  et émergeant à la surface de l'échantillon (chapitre IV) : la géométrie de la structure étant dans ce cas mieux connue et plus simple, l'étude permet de déterminer les champs de contrainte de façon plus précise tout en interprétant de façon plus fine la complexité des contrastes MET observés.



**CHAPITRE I :**  
**LES CONTRAINTES DANS LES**  
**HETEROSTRUCTURES SEMI-CONDUCTRICES.**  
**GENERALITES.**



**CHAPITRE I:**  
**LES CONTRAINTES DANS LES HÉTÉROSTRUCTURES**  
**SEMI-CONDUCTRICES. GENERALITES.**

**Introduction**

**I, 1) Les composés III-V**

I, 1, 1) Cristallographie

I, 1, 2) Les dislocations dans les composés III-V

**I, 2) Origine des contraintes dans les hétérostructures III-V**

**I, 3) Relaxation des contraintes**

I, 3, 1) Relaxation plastique des couches 2D

I, 3, 2) Relaxation élastique des couches 3D

I, 3, 3) Relaxation plastique des couches 3D

**I, 4) Calcul des contraintes: la méthode des Éléments Finis**

**I, 5) Mesure des contraintes dans les hétérostructures**



## Introduction

Les contraintes jouent un rôle important dans les hétérostructures réalisées avec des composés III-V, comme dans celles réalisées avec le germanium et le silicium (hétérostructures GeSi/Si). De nombreux dispositifs utilisant ces hétérostructures ont été conçus et possèdent des propriétés électroniques et optoélectroniques intéressantes<sup>1</sup>. Les contraintes dans ces systèmes constituent un degré de liberté supplémentaire pour maîtriser et modifier leur structure de bande, leurs propriétés optiques ainsi que leurs propriétés de transport. Il est alors évident qu'une connaissance précise des champs de contrainte présents dans les couches est nécessaire pour comprendre leurs propriétés. Ceci ne pose pas de problème tant que les champs de contrainte sont homogènes, comme dans le cas des couches présentant une surface libre plane (couches 2D) et pseudomorphiques (n'ayant pas subi de relaxation plastique).

Il n'en est pas de même lorsque les couches présentent des hétérogénéités de contrainte. C'est le cas par exemple lorsque les couches 2D ont subi une relaxation plastique. Les hétérogénéités de contrainte sont dues :

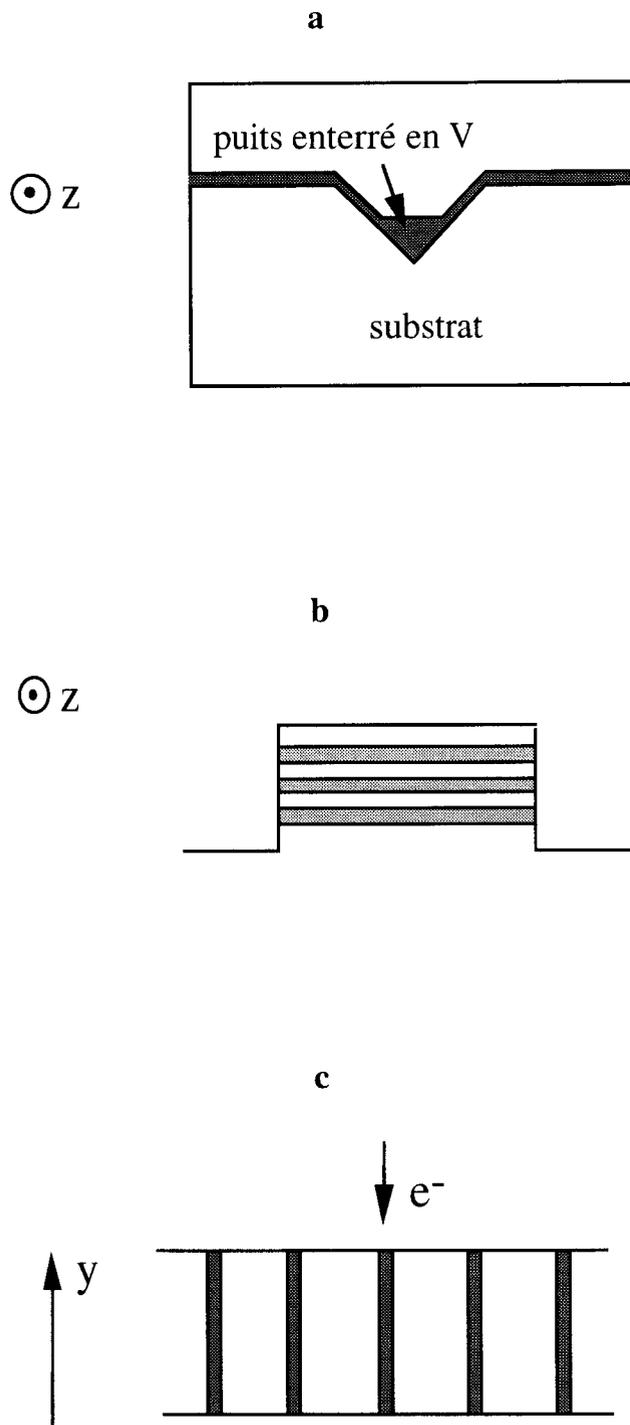
- soit au champ de contrainte associé à chaque dislocation, que celle-ci soit confinée au niveau de l'interface substrat-couche épitaxiée (dislocation de désadaptation) ou qu'elle traverse la couche épitaxiée (dislocation émergente),
- soit aux marches de cisaillement de surface correspondant à ces dislocations.

Des hétérogénéités de contrainte peuvent également être liées au mode de croissance qui ne conduit pas nécessairement à une couche 2D. Pour des taux de contrainte importants, cette croissance peut se faire suivant le mode tridimensionnel de Stranski-Krastanov. Elle conduit à la formation d'îlots ou d'ondulations de surface et on parle alors de couches 3D. Ces défauts conduisent à de fortes hétérogénéités de contrainte : par exemple dans le cas d'une ondulation de surface, il y a relaxation des contraintes aux sommets et concentration des contraintes dans les creux. On peut soit chercher à éviter ce mode de croissance, soit au contraire à le favoriser de façon à réaliser des structures auto-organisées de basse dimensionnalité (fils et boîtes quantiques).

Une autre façon d'élaborer des structures de basse dimensionnalité consiste à utiliser des techniques de croissance sélective (croissance sur surface vicinale, utilisation de masques....) conduisant à des structures aux géométries complexes (voir par exemple la **figure I, 1** dans le cas de fils quantiques en V ou de rubans contraints). Dans le cas des rubans contraints, les hétérogénéités proviennent de la relaxation observée à l'émergence en surface de chaque puits contraint. C'est le même phénomène qui est mis

---

<sup>1</sup> Citons par exemple les transistors bipolaires et les transistors à effet de champ, les diodes à effet tunnel et les détecteurs optiques.



**figure I. 1:** a) Fil quantique en V allongé suivant l'axe z. b) Structure en rubans allongés suivant l'axe z. c) Observation sur la tranche de puits contraints par microscopie électronique en transmission; lame mince perpendiculaire à l'axe y.

en avant dans le cas de la microscopie électronique à transmission lors de l'observation sur la tranche de puits pseudomorphiques enterrés (**figure I, 1, c**). Il est alors indispensable de pouvoir quantifier ces phénomènes de relaxation afin d'apprécier leur influence sur les observations réalisées.

On comprend ainsi l'importance du rôle joué par les contraintes dans les récents développements de la technologie des hétérostructures semi-conductrices et les efforts réalisés ces dernières années pour quantifier de manière fiable les champs de contrainte présents dans ces structures. C'est pourquoi, ce chapitre est dédié à la caractérisation des champs de contrainte dans les hétérostructures III-V. Après un bref rappel sur la cristallographie des composés III-V, nous reviendrons en détail sur l'origine des contraintes dans les dispositifs utilisant ces matériaux ainsi que sur leurs différents modes de relaxation. Dans le cadre de ce travail de thèse, c'est la Méthode des Eléments Finis qui a été utilisée pour le calcul des contraintes dans les dispositifs étudiés. Ce choix sera ici justifié, après une rapide présentation de la méthode. Enfin, nous décrirons l'intérêt de la microscopie électronique en transmission pour mesurer les contraintes dans nos échantillons, après avoir passé en revue les autres techniques existantes.

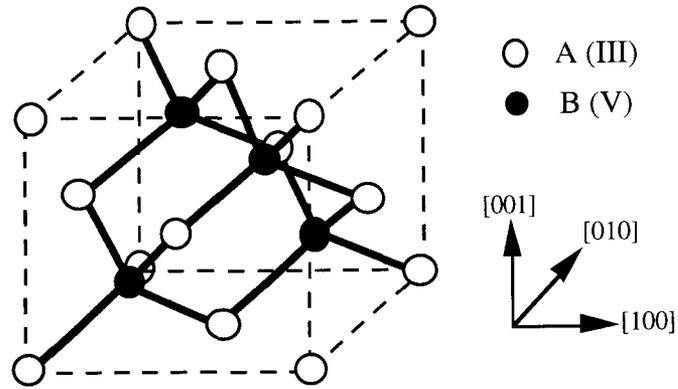


figure I. 2 : Maille élémentaire de la structure sphalérite.

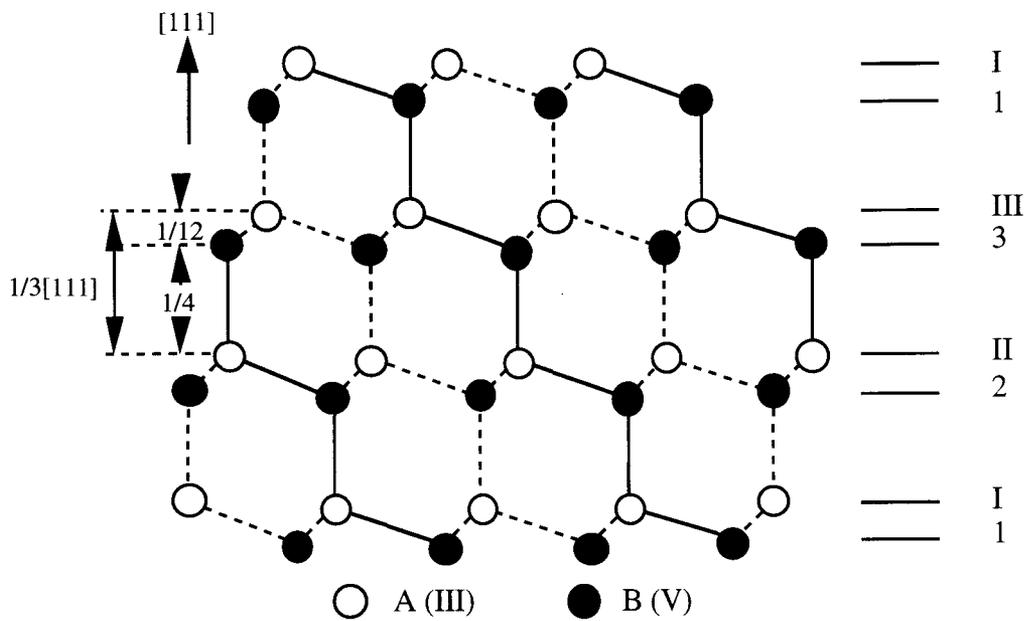


figure I. 3 : Empilement des plans (111), projection parallèle à  $[1 \bar{0}]$ . Par convention, la direction positive est celle joignant un atome A à un atome B.

## I, 1) Les composés III-V

### I, 1, 1) Cristallographie

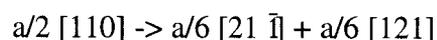
Les matériaux III-V, constitués d'un élément de la colonne III (Al, Ga, In) et d'un élément de la colonne V (As, P) du tableau de Mendeleiev cristallisent pour la plupart dans la structure sphalérite (encore appelée Zinc-Blende). Le réseau est cubique à faces centrées et le motif est constitué de deux atomes : un atome trivalent (A) en position (0, 0, 0) et un atome pentavalent (B) en position (1/4, 1/4, 1/4) (**figure I, 2**).

La structure a pour groupe d'espace  $F\bar{4}3m$  et ne possède pas de centre de symétrie, ce qui la différencie de la structure diamant dans laquelle cristallisent les semi-conducteurs élémentaires tel que le silicium ou le germanium. L'absence de centre de symétrie dans cette structure conduit à des propriétés mécaniques et électriques différentes de celles des semi-conducteurs de structure diamant. En particulier les plans {111} ne sont pas tous équivalents, comme le montre la projection de l'empilement de plans (111) parallèlement à la direction  $[1\bar{1}0]$  (**figure I, 3**). Ils sont soit uniquement constitués d'atomes de type A, soit uniquement constitués d'atome de type B. Ceci confère un caractère polaire aux surfaces {111} des matériaux de structure sphalérite, ce qui les distingue des matériaux de structure diamant.

### I, 1, 2) Les dislocations dans les composés III-V

Dans la structure zinc-blende, les dislocations parfaites ont des vecteurs de Burgers du type  $\mathbf{b} = a/2 \langle 110 \rangle$ , correspondant à la plus petite translation du réseau. Les plans de glissement sont les plans les plus denses du réseau, de type {111}, et les directions privilégiées sont les directions de type  $\langle 110 \rangle$ . Les dislocations glissiles ont donc un caractère vis ou  $60^\circ$  et les dislocations de caractère coin sont sessiles. L'anisotropie de plans de glissement confère aux dislocations de signe opposé des structures de coeur et des mobilités différentes.

Les dislocations présentes dans ces matériaux, comme dans les autres structures cubiques à face centrées, sont souvent dissociées: les parfaites, de vecteurs de Burgers  $1/2 \langle 110 \rangle$ , se dissocient en deux dislocations partielles de Shockley, de vecteur de Burgers de type  $\mathbf{b} = a/6 \langle 211 \rangle$ . Par exemple, dans le plan (1  $\bar{1}$ 1), cette réaction s'écrit de la façon suivante pour le vecteur de Burgers  $a/2 [110]$ :



	Paramètre de maille a (Angströms)	Module d'Young E (Gigapascal)	Coefficient de Poisson $\nu$
GaAs	5,6532	85,3	0,31
InAs	6,0583	51,4	0,35
In <sub>0,13</sub> Ga <sub>0,87</sub> As	5,7058	80,9	0,31
In <sub>0,25</sub> Ga <sub>0,75</sub> As	5,7544	76,8	0,35
InP	5,8689	60,7	0,36

tableau I. 1: Caractéristiques des composés III-V étudiés.

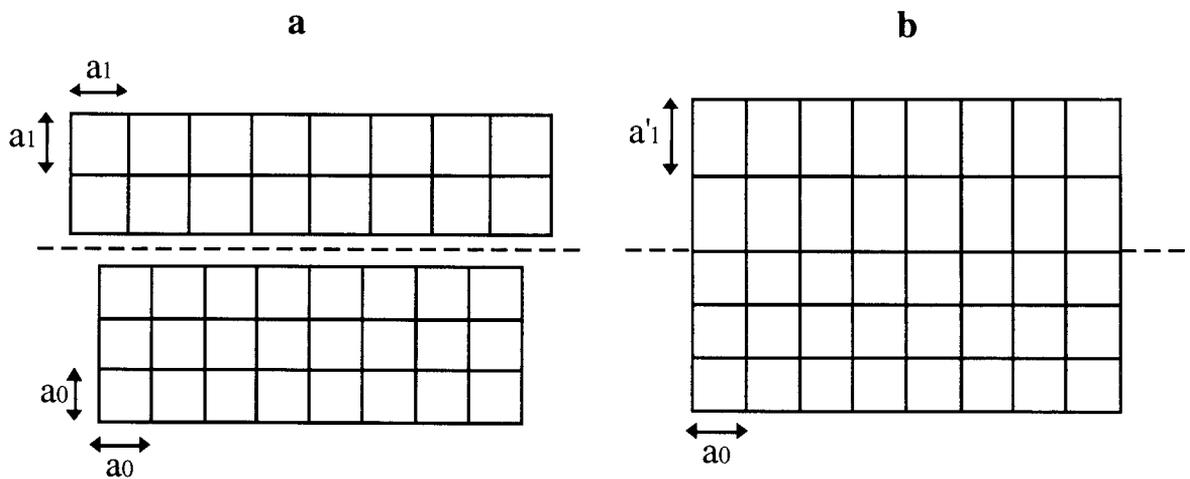


figure I. 4 : Croissance pseudomorphique

- a) les matériaux avant accollement avec leurs paramètres respectifs,  $a_0$  pour le substrat et  $a_1$  pour la couche. b) l'accolement des deux matériaux provoque la déformation quadratique de la couche.

## I, 2) Origine des contraintes dans les hétérostructures

Les hétérostructures III-V sont des structures complexes composées d'alliages binaires, ternaires ou quaternaires déposés en couche mince (quelques nm à quelques  $\mu\text{m}$ ) par épitaxie sur des substrats binaires épais (200 à 500  $\mu\text{m}$ ). Les techniques d'épitaxie modernes (épitaxie par jets moléculaires, MBE en anglais) permettent de contrôler avec une très bonne précision les compositions et les épaisseurs désirées pour les couches.

La présence de contraintes dans les couches 2D est inhérente à leur réalisation et possède deux origines:

- la différence de paramètre de maille entre la couche (de paramètre  $a_1$ ) et le substrat (de paramètre  $a_0$ ). Le désaccord paramétrique est alors défini comme :

$$\Delta a/a = (a_0 - a_1) / a_1$$

Pour les matériaux ternaires de type  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ , la valeur du paramètre de maille est donnée par la loi de Végard :

$$a_{\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}} = a_{\text{GaAs}} + X (a_{\text{InAs}} - a_{\text{GaAs}})$$

Le **tableau I, 1** regroupe les valeurs des paramètres de maille des matériaux étudiés dans le cadre de cette thèse. Sont également indiquées dans ce tableau les valeurs des constantes élastiques isotropes  $E$  (module d'Young) et  $\nu$  (coefficient de Poisson) de ces matériaux\* [1]. Pour les matériaux ternaires, ces valeurs sont calculées suivant la loi de Végard.

- la différence de coefficient de dilatation thermique entre la couche et le substrat. Cette différence provoque un désaccord paramétrique supplémentaire au cours du refroidissement qui suit l'épitaxie de l'hétérostructure. Formellement, les contraintes dites thermiques issues de ce phénomène, correspondent encore à une désadaptation du paramètre de maille et sont traitées de la même façon que les contraintes précédentes.

Si le désaccord paramétrique entre les deux matériaux n'est pas trop important, la croissance de la couche est plane (couche 2D) et celle-ci se déforme tétraгонаlement de façon à ce que son paramètre de maille dans le plan de l'interface soit égal à celui du substrat. On parle alors de croissance pseudomorphique (**figure I, 4**).

---

\* Les valeurs des constantes élastiques isotropes pour les matériaux III-V considérés dans le cadre de ce travail sont celles qui sont communément utilisées dans les calculs d'élasticité. Ces derniers montrent en effet que la prise en compte de l'anisotropie des matériaux n'a que peu d'influence sur les valeurs des champs de déformation et de contrainte calculés pour les hétérostructures.

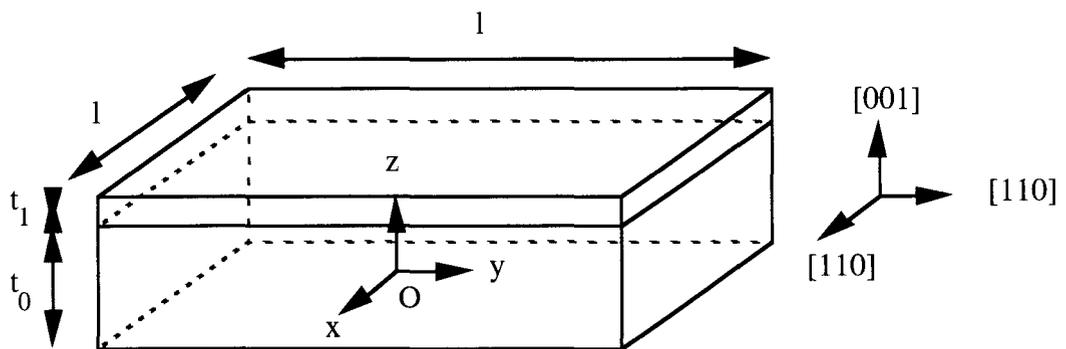


figure I, 5 : Modèle de couche pseudomorphique utilisé pour le calcul des contraintes.

Dans ces conditions, un calcul rapide permet d'évaluer les valeurs des contraintes, en utilisant les hypothèses simplificatrices suivantes, sur le modèle représenté **figure I, 5** :

- la désadaptation est entièrement accomodée par la déformation de la couche
- la courbure de l'ensemble couche / substrat est négligée.

Ces hypothèses sont valables tant que l'épaisseur de la couche  $t_1$  est très inférieure à celle du substrat  $t_0$ , ce qui est le cas dans la majorité des applications. Alors, en considérant des dimensions infinies suivant  $x$  et  $y$ , la couche est soumise à un système de contraintes planes ( $\sigma_{zz} = 0$ , et  $\sigma_{xx} = \sigma_{yy}$ ). Dans les directions  $x$  et  $y$ , les déformations correspondant à la désadaptation entre les deux matériaux valent :

$$\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_0 = \Delta a/a$$

Si le paramètre de maille initial de la couche est supérieur à celui du substrat, le système est en compression (cas de  $\text{In}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As} / \text{GaAs}$ ,  $\Delta a/a = - 0,92 \%$ ). Si le paramètre de maille initial de la couche est inférieur à celui du substrat, le système est en tension (cas de  $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As} / \text{InP}$ ,  $\Delta a/a = 1,99 \%$ ).

L'application de la loi de Hooke reliant le tenseur des déformations à celui des contraintes donne :

$$\epsilon_{zz} = - 2\nu \epsilon_0 / (1-\nu)$$

$$\text{et : } \sigma_{xx} = \sigma_{yy} = \sigma_0 = E \epsilon_0 / (1-\nu)$$

A titre d'exemple, le résultat numérique dans le cas du système  $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As} / \text{InP}$ , vaut avec les valeurs du tableau I, 1:

$$\sigma_0 = 2,36 \text{ GPa.}$$

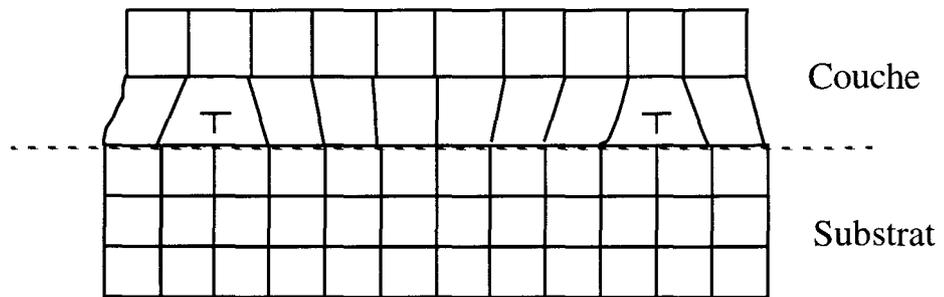


figure I, 6 : Relaxation plastique par introduction de dislocations à l'interface.

## I, 3) Relaxation des contraintes

Lorsque l'épaisseur d'une couche 2D contrainte augmente, l'énergie élastique emmagasinée dans cette couche atteint des valeurs suffisamment importantes pour la rendre instable et conduire à des phénomènes de relaxation. Historiquement, ce sont d'abord les croissances bidimensionnelles, réalisées avec des matériaux faiblement désadaptés, qui ont été étudiées. Le mécanisme de relaxation alors observé est un mécanisme de relaxation plastique qui se manifeste par l'introduction de dislocations à l'interface couche-substrat. Pour les matériaux plus fortement désadaptés, la relaxation plastique est précédée par une relaxation élastique car la croissance des couches n'est plus bidimensionnelle mais se fait suivant le mode tridimensionnel décrit par Stranski-Krastanov (couches 3D). La force motrice de cette transition réside dans la diminution de l'énergie élastique assurée par la relaxation des contraintes aux sommets des ondulations. Nous rappelons ci-dessous les principales connaissances acquises à ce jour sur ces différents modes de relaxation.

### I. 3. 1) Relaxation plastique des couches 2D

La croissance de couches 2D ne se fait sans générer de défauts qu'en dessous d'une certaine épaisseur dite critique, au delà de laquelle des dislocations de désadaptation se développent dans l'interface couche-substrat (**figure I, 6**). Les dislocations peuvent influencer de manière catastrophique le fonctionnement des dispositifs semi-conducteurs. C'est pourquoi de nombreuses études ont été consacrées à leur formation et à leur influence sur les propriétés électroniques des dispositifs (voir les articles de revue de Jain et al pour les récents développements sur ce sujet, [2, 3]).

La notion d'épaisseur critique a été introduite par Frank et Van der Merve [4] dans les années cinquante. Ces auteurs ont développé un calcul de balance énergétique considérant, d'une part l'énergie élastique emmagasinée dans la couche pseudomorphique, et d'autre part l'énergie élastique d'un réseau de dislocations situé à l'interface. Ils ont montré que la configuration d'énergie minimum correspondait à celle de la couche relaxée plastiquement au delà d'une épaisseur critique, pour laquelle l'énergie élastique emmagasinée dans la couche était suffisante pour générer les dislocations. Depuis, plusieurs modèles ont été développés pour déterminer l'épaisseur critique des couches pseudomorphiques [5-7]. Nous ne mentionnerons ici que le modèle dynamique de Matthews et Blakeslee [8], largement utilisé pour le calcul des épaisseurs critiques dans les hétérostructures. Dans ce modèle, on considère que les dislocations de désadaptation assurant la relaxation à l'interface proviennent du mouvement de dislocations émergentes dans la couche. Ces dislocations sont issues de

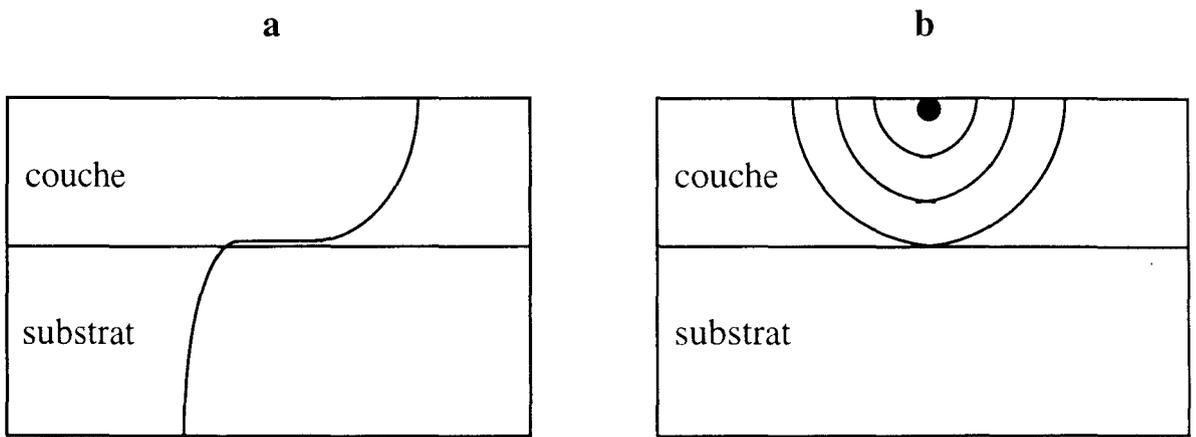


figure I. 7 : Nucléation de dislocations de désadaptation de réseau:  
 a) à partir d'une dislocation de croissance du substrat, b) à partir de demi-boucles de dislocation nucléées en surface.

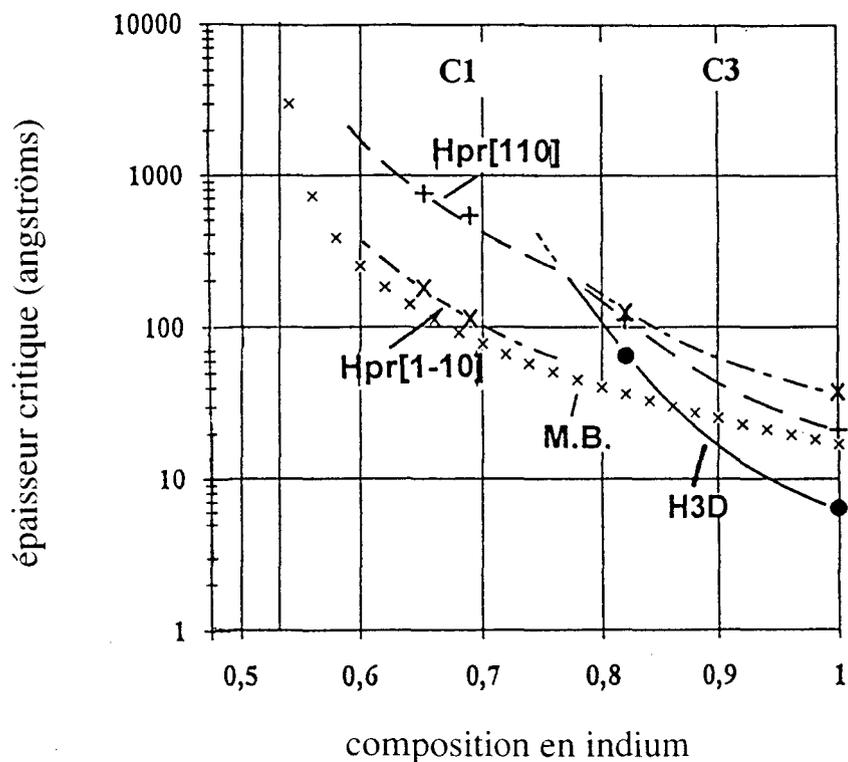


figure I. 8 : Courbes RHEED d'épaisseur critique pour le système  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As} / \text{InP}$  en fonction de la composition en indium  $x$  [9].  $H_{pr}$ : relaxation plastique suivant  $[1\bar{1}0]$  ou  $[110]$ .  $H_{3D}$ : mode de croissance 3D. MB: modèle de Matthews et Blakeslee.

répliques de dislocations présentes dans le substrat (**figure I, 7, a**) ou de demi-boucles de surface, nucléées au voisinage d'un défaut (marche, petit précipité, **figure I, 7, b**). Chaque segment de dislocation émergent est soumis à deux forces opposées: la force de Peach et Koehler résultant de la désadaptation du réseau et la tension de ligne de la dislocation. L'épaisseur critique est l'épaisseur à partir de laquelle la force de Peach et Koehler l'emporte sur la tension de ligne : la dislocation peut alors se propager dans la couche en laissant à l'interface une dislocation de désadaptation.

Les observations expérimentales ne sont pas toujours en bon accord avec les prédictions du modèle de Matthews et Blakeslee. Deux raisons sont souvent invoquées: d'une part, les mécanismes de nucléation invoqués par Matthews et Blakeslee sont peu actifs dans les couches de bonne qualité (peu de défauts de surface pour initier les demi-boucles et peu de dislocations venant du substrat). Les énergies alors requises pour nucléer les dislocations sont bien supérieures à celles considérées dans les calculs, ce qui retarde leur apparition et augmente la valeur de l'épaisseur critique. D'autre part, la précision de la technique utilisée pour détecter les premières dislocations peut se révéler insuffisante [3]. Sur la **figure I, 8** sont reportées les mesures expérimentales d'épaisseurs critiques, réalisées en Diffraction d'Electrons de Haute Energie en incidence rasante (en anglais, RHEED) sur le système  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As} / \text{InP}$  [9] en fonction de  $x$  ( $x \geq 0,53$ , température de croissance  $525^\circ\text{C}$ ), ainsi que la courbe calculée à partir du modèle de Matthews et Blakeslee. On constate que les mesures correspondent aux prédictions théoriques, pour la relaxation suivant la direction  $[1 \bar{1}0]$ , tant que la concentration d'indium est inférieure à 0,77 ( $\Delta a/a = -1,7\%$ , domaine C1). Au delà, le désaccord avec le modèle de Matthews s'explique par l'apparition d'un autre mécanisme de relaxation: la relaxation élastique par ondulation de la surface (domaine C3). Cette relaxation retarde alors la mise en place de la relaxation plastique.

### I. 3. 2 ) Relaxation élastique des couches 3D

Il est aujourd'hui bien connu que lorsque la désadaptation entre la couche et le substrat est importante (supérieure à 2% dans le cas du système  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As} / \text{GaAs}$  [10]), la croissance des couches se fait suivant le mode décrit par Stranski-Krastanov. Dans ce mode, quand l'épaisseur de la couche dépasse une valeur critique, la croissance ne se fait plus de façon bidimensionnelle (2D) mais devient tridimensionnelle (3D, formation d'îlots) (**figure I, 9**) [11-14]. La force motrice de cette transition est la diminution d'énergie élastique assurée par les sommets des îlots [15-18] et la transition a lieu quand cette diminution compense l'augmentation de l'énergie de surface associée à la formation des îlots. Cette épaisseur critique peut-être très faible, et bien inférieure à l'épaisseur critique de formation des dislocations. Par exemple, dans le système  $\text{InAs} /$

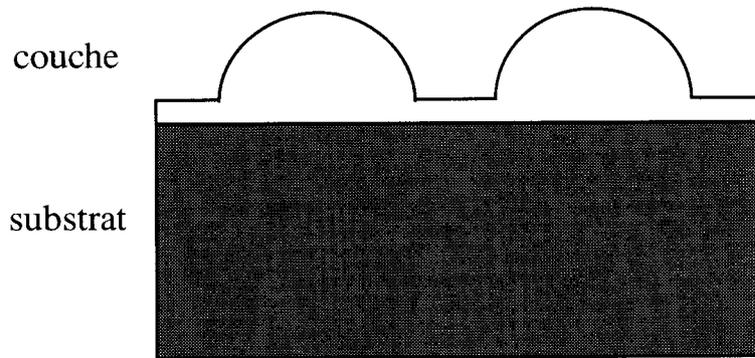


figure I, 9: Mode de croissance Stranski-Krastanov.

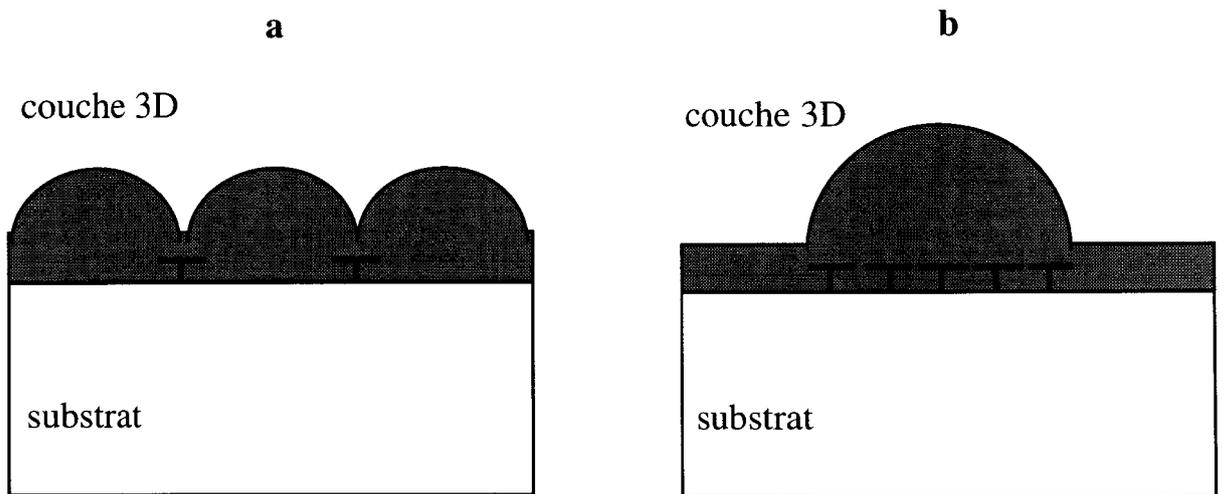


figure I, 10: Relaxation plastique des îlots:  
a) au niveau des zones de coalescence, b) avant coalescence.

GaAs, désadapté à - 6,7%, la transition 2D-3D a lieu après le dépôt de 1,7 monocouches (MC, pour un plan (001): 1 MC = un plan d'atomes d'éléments III + un plan d'atomes d'éléments V, soit la moitié du paramètre de maille de la structure sphalérite  $\approx 0,3$  nm), alors que l'épaisseur critique de relaxation plastique prévue par le modèle de Matthews et Blakeslee (cas bidimensionnel) est de 5 MC [10].

De façon générale, les calculs analytiques réalisés à propos de la morphologie des couches contraintes montrent que la configuration d'énergie minimum n'est pas celle associée à une surface plane mais celle associée à une surface qui ondule avec une longueur d'onde supérieure à une longueur d'onde critique  $\lambda_c$  [19-21]. Cette longueur d'onde est fonction de l'énergie de surface de la couche, de ses constantes élastiques et du taux de désadaptation [22].

Expérimentalement, des îlots ont été observés dans de nombreux systèmes (InGaAs / GaAs [23-25], InGaAs / InP [26] et GeSi / Si [27]). Leur taille, leur distribution en taille ainsi que l'espacement moyen entre îlots dépendent énormément des conditions de croissance [28]. Les champs de contrainte y sont très hétérogènes, et ces hétérogénéités se propagent dans le substrat, qui participe ainsi à la relaxation des contraintes, contrairement au cas des croissances pseudomorphiques. Pour les systèmes en compression, les calculs par Eléments Finis montrent que la relaxation des contraintes se fait principalement au sommet des îlots, tandis qu'une concentration des contraintes a lieu près des bords de l'îlot [29]. Comme nous le verrons dans le prochain paragraphe, ces zones de concentration de contrainte constituent des sites privilégiés pour la nucléation de dislocations.

### I, 3, 3) Relaxation plastique des couches 3D

Dans les systèmes fortement désadaptés ayant subi une croissance tridimensionnelle, on observe un changement de nature des dislocations de désadaptation par rapport aux couches 2D. Alors que ces dernières présentent essentiellement des dislocations à  $60^\circ$ , les couches 3D présentent plutôt des dislocations de caractère coin. La formation de ces dislocations sessiles, situées loin de la surface de la couche, n'a pu être expliquée qu'en considérant les sites de nucléation propres aux couches 3D que sont les zones de concentration de contrainte localisées sur les bords des îlots.

Plusieurs auteurs ont mis en évidence la corrélation entre ces sites et le réseau de dislocations finalement observé dans la couche. Dans le cas du système  $\text{In}_{0,30}\text{Ga}_{0,70}\text{As}$  sur GaAs ( $\Delta a/a = - 2 \%$ ), la transition 3D a lieu quand l'épaisseur déposée dépasse 9 MC. Au dessus de cette épaisseur, les îlots croissent de façon cohérente (sans dislocation) jusqu'au moment de leur coalescence. L'observation en MET de dislocations de caractère coin à l'aplomb des zones de coalescence (**figure 1 , 10, a**), suggère que

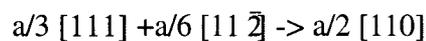


ces dislocations se sont formées directement au moment de la coalescence des îlots, pour relaxer les fortes concentrations de contrainte induites dans ces zones de coalescence [30]. D'autres auteurs [31] ont observé dans le cas du système  $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As} / \text{GaAs}$  la présence de dislocations de Frank, de vecteur de Burgers de type  $a/3 \langle 111 \rangle$ , localisées sur le bords des îlots. Ils ont alors proposé un autre mécanisme de nucléation des dislocations coins dont voici les étapes successives:

- nucléation d'une dislocation de Frank en surface près du bord des îlots, sous l'effet de la forte concentration de contrainte, et extension d'une faute d'empilement quand l'épaisseur de la couche augmente,

- nucléation d'une partielle de Shockley de type  $a/6 \langle 11 \bar{2} \rangle$  à l'intersection de la faute de Frank avec la surface,

- glissement de cette partielle sous l'effet de la contrainte dans le plan de faute vers la dislocation partielle de Frank et recombinaison des deux dislocations pour former une parfaite coin de vecteur de Burgers  $a/2 \langle 110 \rangle$ , suivant la réaction



Dans le cas de la croissance de matériaux encore plus fortement désadaptés ( $\text{InAs} / \text{GaAs}$ ,  $\Delta a/a = -6,7\%$ ), les îlots atteignent rapidement un volume critique au delà duquel ils relaxent plastiquement, avant même de coalescer [32]. On observe alors de nombreuses dislocations de caractère coin situées sous les îlots, près de l'interface (**figure 1, 10, b**). Le mécanisme invoqué pour la formation de ces dislocations est alors le même que précédemment, impliquant des fautes de Frank également observées sur le bord des îlots. Cependant, les études sont peu nombreuses et la corrélation entre concentration de contrainte sur le bord des îlots et nucléation des dislocations est moins bien établie que dans le cas précédent.



## **I, 4) Calcul des contraintes: la méthode des éléments finis**

Le calcul des contraintes dans les dispositifs à base de semi-conducteurs se fait généralement en utilisant la théorie de l'élasticité linéaire des milieux continus. Dans le cas d'objets de très petite taille (quelques dizaines d'Angströms, pour les îlots ou les films très minces), on peut également utiliser des méthodes atomistiques, basées sur l'utilisation de potentiels d'interaction entre atomes voisins [33, 34]. Faux et al ont entrepris la comparaison des résultats des deux types de calcul sur un modèle représentant une couche mince de 5 Å enterrée dans une matrice désadaptée de 1% [34]. Leurs résultats montrent que même pour ces très petites dimensions, le calcul des champs de déformation par les méthodes basées sur les milieux continus restent valables. C'est pourquoi ces méthodes sont largement utilisées pour le calcul des contraintes dans les hétérostructures: les valeurs des constantes élastiques des matériaux en couches minces sont alors prises identiques à celles du matériau massif correspondant (voir le tableau I, 1).

L'utilisation de la méthode des éléments finis, exprimée dans sa forme actuelle, remonte à la fin des années soixante et a trouvé ses premières applications dans le domaine de l'aérospatiale [35]. L'application de cette méthode au calcul des contraintes dans les hétérostructures semi-conductrices est cependant très récente: les premiers travaux datent de 1994 [36]. Cette méthode constitue un puissant moyen de calcul, qui permet en principe de calculer les champs de déformation et de contrainte sur des objets de géométrie quelconque, sans restrictions particulières. C'est ainsi que son utilisation se généralise dans le domaine des semi-conducteurs, qui, comme nous l'avons vu, utilisent des structures aux géométries de plus en plus complexes, donnant lieu à des champs de contrainte très hétérogènes. En particulier, l'apport de cette méthode a été déterminant dans les calculs des champs de contrainte associés à des structures de basse dimensionnalité, pour lesquelles les surfaces libres jouent un rôle important, comme les boîtes ou les fils quantiques [2, 29,36].

### **Principe du calcul**

La méthode des éléments finis permet de traiter les problèmes liés à des milieux continus en les discrétisant à l'aide d'un nombre fini de paramètres inconnus. Les calculs correspondants sont basés sur une subdivision du domaine continu en sous-domaines de forme géométrique simple, que l'on appelle les *éléments*, interconnectés en des points appelés *noeuds*.

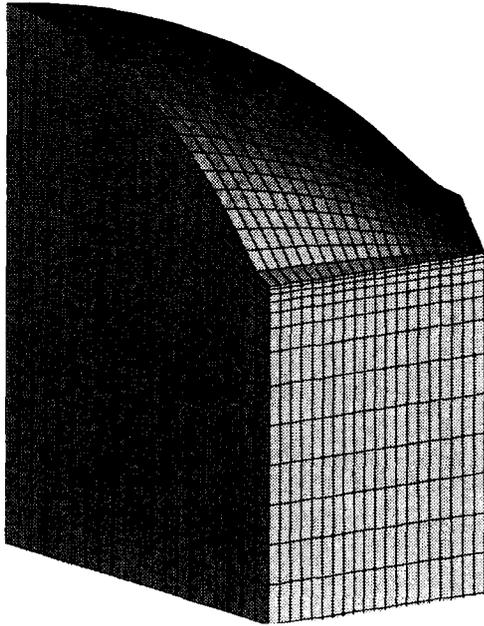


figure I,11 : Modèle d'ondulation cycloïdale utilisé pour les calculs par Eléments Finis.

Dans le cas de la détermination des champs de contrainte associés à des hétérostructures, une des conditions importantes à respecter pour s'assurer de la validité du calcul [3] est que le maillage de noeuds doit être suffisamment serré aux endroits où la géométrie est susceptible de conduire à de fortes hétérogénéités de contrainte, c'est à dire là où les rayons de courbure locaux sont faibles. Le nombre d'éléments étant en pratique limité par le temps de calcul, le volume de matériau sur lequel sont réalisés les calculs est réduit au minimum en tenant compte des périodicités et des symétries. Sur la **figure I, 11** est représenté à titre d'exemple un modèle correspondant à l'ondulation cycloïdale d'une couche épitaxiée sur un substrat épais. Les conditions aux limites associées aux symétries et à la périodicité de la structure sont ensuite imposées: par exemple, pour un plan de symétrie, les déplacements dans la direction perpendiculaire à ce plan sont nuls pour tous les noeuds appartenant à ce plan.

La désadaptation entre les matériaux est simulée dans le cadre de la thermo-élasticité: on attribue aux matériaux en présence des coefficients de dilatation thermique différents et on augmente la température de façon à imposer aux matériaux des écarts de paramètres de maille correspondant à leur désadaptation. Sous l'effet de cette "charge", les noeuds du maillage se déplacent tout en respectant les équations d'équilibre des contraintes des lois de l'élasticité linéaire. On obtient ainsi en sortie de calcul les déplacements des noeuds correspondant au minimum d'énergie élastique du système. Le champ de déplacement est ensuite calculé en tout point à l'aide de fonctions d'interpolation généralement quadratiques. Enfin, les tenseurs des déformations sont calculés par dérivation des champs de déplacement et les tenseurs des contraintes sont déduits de ceux des déformations par l'application de la loi de Hooke.

Nos calculs ont été réalisés à l'aide de la version 5.1 du logiciel ANSYS.



## I, 5) Mesure des contraintes dans les hétérostructures

Il existe de nombreuses méthodes de mesure des contraintes dans les hétérostructures semi-conductrices. Nous décrivons brièvement dans ce paragraphe les méthodes les plus utilisées, à savoir la photoluminescence, la spectroscopie Raman et la diffraction des rayons X, avant de présenter les avantages, sur ces techniques, de la microscopie électronique en transmission.

La photoluminescence est la méthode la plus couramment employée pour la mesure des contraintes dans les composés III-V. L'échantillon est éclairé par un rayonnement monochromatique d'énergie supérieure à celle séparant la bande de conduction de la bande de valence du composé ("gap") et on recueille le spectre des recombinaisons radiatives qui se produisent au sein du matériau. Parmi les recombinaisons intrinsèques, caractéristiques du matériau, on observe les recombinaisons de la bande de conduction vers la bande de valence. Les contraintes, en brisant les symétries du réseau, modifient la forme de ces bandes et créent un décalage des énergies de transition bande à bande. La mesure de ces décalages permet de calculer le taux de déformation des matériaux. Cette technique, rapide et non destructive, permet ainsi de mesurer avec précision les taux de déformation et, dans le cas de couches pseudomorphiques, de donner la valeur exacte de la composition de la couche [37]. Elle permet également de juger de la qualité des interfaces et de l'homogénéité de la répartition des contraintes.

En spectroscopie Raman, le matériau est caractérisé par son spectre de diffusion de la lumière, induit par les interactions photons-phonons [38]. L'échantillon est là encore éclairé par un rayonnement monochromatique et la profondeur jusqu'à laquelle il peut être sondé dépend de la longueur d'onde du rayonnement incident. Dans les composés III-V, le spectre se caractérise au centre de la zone de Brillouin par la présence de deux branches de phonons optiques: une branche longitudinale simple (polarisée dans la même direction que le faisceau incident) et une branche transverse doublement dégénérée (polarisée dans la direction perpendiculaire). Les contraintes créent un décalage en fréquence de ces branches et le dédoublement des branches longitudinales et transverses. La mesure de ces décalages permet alors de calculer le tenseur de déformation du matériau contraint.

La diffraction des rayons X permet de mesurer directement le paramètre de maille des matériaux observés [39]. L'échantillon est éclairé par un rayonnement X monochromatique de longueur d'onde  $\lambda$ , sous l'angle d'incidence de Bragg  $\theta_b$  (pour la famille de plans réticulaires (hkl)) défini par la relation:

$$2d_{hkl}\sin\theta_b = \lambda$$



où  $d_{hkl}$  est la distance inter-réticulaire pour la famille de plans (hkl). On recueille, grâce à un détecteur situé dans le plan d'incidence, les faisceaux diffractés émergeant sous l'incidence  $\theta_b \pm \Delta\theta$ . L'écart  $\Delta\theta$  à la condition stricte de Bragg est associé à une variation de la distance inter-réticulaire de la famille de plans (hkl) considérée, par rapport à celle du matériau non contraint. Dans les structures constituées de couches épitaxiées sur un substrat épais, cet écart est mesuré à partir du pic de diffraction associé au substrat. On mesure ainsi directement le désaccord paramétrique entre la couche et le substrat.

Pour l'ensemble de ces techniques, on obtient avec une bonne précision le taux de contrainte moyen des échantillons observés, et dans le cas de couches pseudomorphiques, la composition du matériau. Elles constituent des moyens rapides et non destructifs de caractérisation des hétérostructures. Cependant, quand les hétérostructures présentent des hétérogénéités de contrainte dues à la présence de défauts structuraux, tels que des dislocations ou des défauts de surface (ondulation de surface, îlots....), ces techniques ne permettent que de quantifier le taux moyen de relaxation associé à ces défauts. Cette moyenne est réalisée sur l'extension spatiale de la sonde, qui est de l'ordre de quelques micromètres pour la spectroscopie Raman et la photoluminescence, et de quelques centaines de micromètres pour la diffraction X.

Lorsqu'il s'agit de déterminer le champ de contrainte associé à un seul défaut, seule la microscopie électronique en transmission peut être utilisée. En effet, la caractéristique principale de cette technique est de produire une image des défauts observés, avec une très bonne résolution spatiale (inférieure à la centaine d'Angströms en microscopie conventionnelle). Le contraste en microscopie électronique en transmission provient de la variation des conditions locales de diffraction du faisceau électronique incident, variation due au champ de déplacement du défaut observé (ce champ inclut les effets d'une éventuelle hétérogénéité de composition chimique au niveau du défaut). L'interprétation précise de ce contraste peut se faire grâce à des simulations réalisées à partir de ce champ de déplacement qui peut être lui-même calculé, par exemple à l'aide de la méthode des éléments finis. Ce champ de déplacement est injecté dans les équations de la théorie dynamique des électrons, de façon à calculer les contrastes simulés des défauts étudiés. Enfin ces contrastes simulés sont comparés aux contrastes expérimentaux : l'obtention d'un bon accord entre les deux types de contraste permet de tester les champs de contrainte injectés et par la même occasion la validité de la méthode des éléments finis pour le calcul des champs de déplacement. C'est précisément l'objet du chapitre II de décrire la mise en oeuvre de cette démarche.



## REFERENCES du CHAPITRE I

- [1] A. Adachi, J. Appl. Phys. **53**, 8875 (1982).
- [2] S. C. Jain, M. Willander et H. Maes, Semicond. Sci. Technol. **11**, 641 (1996).
- [3] S. C. Jain, A. H. Harker et R. A. Cowley, Phil. Mag. **A75**, 1461 (1997).
- [4] F.C. Frank et J. Van Der Merwe, Proc. Roy. Soc. London, **A198**, 205 (1949).
- [5] R. People et J. C. Bean, Appl. Phys. Lett. **47**, 322 (1985).
- [6] J. W. Matthews, J. Vac. Sci. Technol. **12**, 126 (1975).
- [7] J. W. Matthews, Epitaxial Growth, édité par J. W. Matthews, Academic Press New York, Part B, Chap. 8 (1975).
- [8] J. W. Matthews et A. E. Blakeslee, J. Cryst. Growth **27**, 118 (1974).
- [9] M. Gendry et G. Hollinger, Proc. Int. Conf. on Semic. Heteroepitaxy, Montpellier, édité par World Scientific (1995).
- [10] N. Grandjean, thèse de troisième cycle, Université de Nice-Sophia Antipolis, 1994.
- [11] B.F. Lewis, T.C. Lee, F.J. Grunthaler, A. Madhukar, R. Fernandez and J. Maserjian, J. Vac. Sci. Technol. **B2**, 419 (1984).
- [12] F. Houzay, C. Guille, J.M. Moison, P. Hénoc et F. Barthe, J. Cryst. Growth **81**, 67 (1987).
- [13] P.R. Berger, K. Chang, P. Bhattacharya and J. Singh, J. Vac. Sci. Technol. **B5**, 1162 (1987).
- [14] J.Y. Yao, T.G. Andersson and G.L. Dunlop, Appl. Phys. Lett. **53**, 1420 (1988).
- [15] S.V. Ghaisas and A. Madhukar, J. Vac. Sci. Technol. **B7**, 264 (1989).
- [16] C.W. Snyder, B.G. Orr, D. Kessler and L.M. Sander, Phys. Rev. Lett. **66**, 3032 (1991).
- [17] P.R. Berger, K. Chang, P. Bhattacharya, J. Singh and K.K. Bajaj, Appl. Phys. Lett. **53**, 684 (1988).
- [18] J. Massies and N. Grandjean, Phys. Rev. Lett. **71**, 1411 (1993).
- [19] D.J. Srolovitz, Acta Metall. **37**, 621 (1989).
- [20] J. Grilhé, Acta Metall. Mater. **41**, 909 (1993).



- [21] B.G. Orr, D. Kessler, C.W. Snyder and L. Sander, *Europhys. Lett.* **19**, 33 (1992).
- [22] A.J. Pidduck, D.J. Robbins, A.G. Cullis, W.Y. Leong and A.M. Pitt, *Thin Solid Films* **222**, 78 (1992).
- [23] S. Guha, A. Madhukar and K.C. Rajkumar, *Appl. Phys. Lett.* **57**, 2110 (1990).
- [24] J.Y. Yao, T.G. Andersson and G.L. Dunlop, *J. Appl. Phys.* **69**, 2224 (1991).
- [25] N. Grandjean, J. Massies, C. Delamarre, L.P. Wang, A. Dubon and J.Y. Laval, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 66 (1993).
- [26] A. Ponchet, A. Le Corre, A. Godefroy, S. Salaün and A. Poudoulec, *J. Cryst. Growth* **153**, 71 (1995).
- [27] D.J. Eaglesham et M. Cerullo, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1943 (1990).
- [28] A. Ponchet, A. Le Corre, H. Larridon, B. Lambert et S. Salaün, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1850 (1995).
- [29] T. Benabbas, P. François, Y. Androussi et A. Lefebvre, *J. Appl. Phys.* **80**, 2763 (1996).
- [30] Y. Androussi, A. Lefebvre, T. Benabbas, P. François, C. Delamarre, J. Y. Laval et A. Dubon, *J. Cryst. Growth* **169**, 209 (1996).
- [31] A. G. Cullis, A. J. Pidduck et M. T. Emeny, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2368(1995).
- [32] Y. Chen, X. Win, Z. Liliebtal, J. Wasburn, J. F. Klem et J. Y. Yao, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 111 (1996).
- [33] C. Priester, I. Lefebvre, G. Allan, et M. Lannoo, Mechanisms of Thin Film Evolution, édité by S. M. Yalisove, C.V. Thompson and D. J. Eaglesham (MRS Proc. **317**, Pittsburgh, PA, pp 131-136, 1993).
- [34] D. A. Faux, G. Jones, et E. P. O'Reilly, *Modelling. Simul. Mater. Sci. Eng.* **2**, 9, (1994).
- [35] J. F. Imbert, Analyse des Structures par Eléments Finis, CEPADUES Editions, troisième édition (1991).
- [36] S. Christiansen, M. Albrecht, H. P. Strunk, P. O. Hanson et E. Bauser, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 3617 (1994).



[37] Y. Cordier, thèse de troisième cycle, Université des Sciences et Technologies de Lille (1992).

[38] N. Matrullo, thèse de troisième cycle, Université des Sciences et Technologies de Lille (1993).

[39] S. Trüdel, thèse de troisième cycle, Université des Sciences et Technologies de Lille (1997).



**CHAPITRE II:**  
**METHODE de CARACTERISATION des**  
**CHAMPS de CONTRAINTE HETEROGENES par**  
**MICROSCOPIE ELECTRONIQUE en**  
**TRANSMISSION: PRINCIPES et**  
**EXPERIMENTATION**



**CHAPITRE II:**  
**METHODE de CARACTERISATION des CHAMPS de**  
**CONTRAINTES HETEROGENES par MICROSCOPIE**  
**ELECTRONIQUE en TRANSMISSION: PRINCIPES et**  
**EXPERIMENTATION**

**Introduction**

**II, 1) Simulation des images**

II, 1, 1) Les équations de la théorie dynamique de la diffraction des électrons

II, 1, 2) Les paramètres

II, 1, 2, a) La distance d'extinction

II, 1, 2, b) L'écart à la condition de Bragg

II, 1, 2, c) Les coefficients d'absorption

II, 1, 2, d) L'épaisseur de la lame mince

II, 1, 3) Les champs de déplacement

II, 1, 4) Intégration des équations différentielles

**II, 2) Procédures expérimentales**

II, 2, 1) Préparation des lames minces

II, 2, 2) Acquisition des images

II, 2, 3) Microscopie en faisceaux convergents

II, 2, 3, 1) Mesure de l'épaisseur de l'échantillon

II, 2, 3, 2) Mesure de l'écart à la condition de Bragg

II, 2, 4) Analyse des images



## **Introduction**

Ainsi que nous l'avons vu au chapitre précédent, la très bonne résolution spatiale de la microscopie électronique en transmission (MET), ainsi que sa grande sensibilité aux variations locales des champs de déplacement, font de cette technique d'observation un outil de choix pour la caractérisation des champs de contrainte hétérogènes.

La méthode de mesure consiste à comparer les intensités des images expérimentales des sites d'hétérogénéités de contrainte avec celles d'images simulées. Ces dernières sont calculées par un programme de résolution numérique des équations de la théorie dynamique de la diffraction des électrons. Dans le cadre de cette thèse, les champs de déplacement injectés dans ces équations sont calculés par la méthode des éléments finis. La comparaison des images simulées et expérimentales permet, dans le cas d'un bon accord entre les images, de valider la méthode employée pour réaliser ces calculs ainsi que les résultats qu'elle fournit (détermination des champs de contrainte).

Ce chapitre est dédié à la présentation complète de la mise en oeuvre de cette méthode. Dans une première partie, nous présentons les éléments théoriques nécessaires à la simulation des images de microscopie électronique. Les équations de la diffraction des électrons par un cristal fauté y sont décrites, ainsi que les paramètres intervenant dans ces équations. La façon dont les champs de déplacement sont introduits dans les équations est ensuite discutée, avant de décrire la méthode utilisée par les programmes de simulation pour résoudre les équations différentielles.

Cette présentation mettra en évidence la nécessité de connaître précisément les conditions de diffraction et l'épaisseur de l'échantillon à l'endroit de l'observation, avant d'entreprendre les simulations correspondantes. Dans la deuxième partie, consacrée aux techniques expérimentales, nous décrirons comment ces paramètres sont obtenus. La préparation des échantillons en vue de leur observation, les moyens d'acquisition et d'analyse des images expérimentales y seront également présentés.

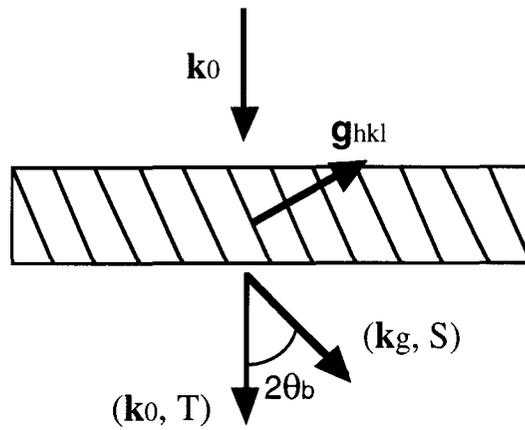


figure II. 1: Cristal en position de diffraction pour la famille de plans réticulaires (hkl).

## II, 1) Simulation des images

Nous présentons dans cette partie les éléments théoriques nécessaires à la compréhension de la méthode de calcul utilisée pour la simulation des images de microscopie électronique en transmission. Dans un premier temps, nous décrivons les équations de la théorie dynamique de la diffraction des électrons de Howie et Whelan, formulées dans l'approximation de la colonne, équations qui ont été utilisées pour nos calculs. La description qui en est faite est similaire à celle présentée par A. K. Head et al dans leur ouvrage dédié à l'identification des défauts par simulation d'images de MET [1].

### II, 1, 1) Les équations de la théorie dynamique de la diffraction des électrons

L'analyse du contraste des défauts cristallins en MET est basée sur la théorie dynamique à deux ondes de la diffraction des électrons, formulée dans l'approximation de la colonne par Howie et Whelan en 1961 [2, 3], théorie issue elle-même de la théorie de la diffraction des rayons X développée par Darwin en 1914 [4].

Considérons un faisceau électronique monochromatique de vecteur d'onde  $\mathbf{k}_0$  arrivant sur un cristal orienté en position de Bragg pour la famille de plans réticulaires (hkl) désignée dans l'espace réciproque par le vecteur  $\mathbf{g}_{hkl}$  (**figure II, 1**). La traversée du cristal par ce faisceau génère un faisceau diffracté de vecteur d'onde  $\mathbf{k}_g$  tel que:

$$(II, 1) \quad \mathbf{k}_g - \mathbf{k}_0 = \mathbf{g}_{hkl} \text{ (loi de Bragg)}$$

Cette relation s'exprime de manière équivalente par celle reliant l'angle  $2\theta_b$  entre les faisceaux incidents et diffractés à la distance inter-réticulaire  $d_{hkl} = 1 / g_{hkl}$ :

$$(II,2) \quad 2d_{hkl} \sin \theta_b = n\lambda$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde du rayonnement incident.

Le faisceau diffracté peut être lui-même re-diffracté dans la direction du faisceau incident au cours de la traversée du cristal et on assiste ainsi à des échanges dynamiques entre les faisceaux transmis et diffractés, aboutissant à des faisceaux d'amplitudes T et S respectivement à la sortie du cristal.

La formulation de Howie et Whelan utilise, pour le calcul de S et T en chaque point de la surface de sortie du cristal, l'approximation de la colonne. Dans cette approximation, le cristal est divisé en colonnes indépendantes, parallèles à la direction du faisceau incident. Des échanges dynamiques d'électrons ont lieu au sein des colonnes mais pas entre les colonnes voisines. Cette approximation, suggérée par la faiblesse des angles de Bragg impliqués dans la diffraction des électrons (de l'ordre du demi-degré),



considère que les faisceaux appartenant à une même colonne restent pratiquement parallèles entre eux pendant la traversée du cristal. Grâce à cette approximation, on peut calculer l'intensité d'une image point par point, c'est à dire colonne par colonne. Notons que la validité de cette approximation suppose que le cristal ne soit pas trop distordu, c'est à dire qu'au sein d'une même colonne, les champs de déplacement varient peu dans les directions perpendiculaires à cette colonne (quelques études réalisées, sans utiliser l'approximation de la colonne, ont conduit à des résultats très voisins de ceux obtenus dans le cadre de cette approximation [5, 6]).

Les équations utilisées pour décrire la diffraction dynamique à deux ondes des électrons par une colonne isolée du cristal constituent une paire d'équations différentielles couplées du premier ordre en S et T qui s'écrivent de la façon suivante [1]:

$$(II, 3) \quad \begin{cases} \frac{dT}{dz} = i\pi \frac{1}{\xi_0} T + i\pi \frac{1}{\xi_g} S \exp(2i\pi sz + 2i\pi \mathbf{g} \cdot \mathbf{R}) \\ \frac{dS}{dz} = i\pi \frac{1}{\xi_0} S + i\pi \frac{1}{\xi_g} T \exp(-2i\pi sz - 2i\pi \mathbf{g} \cdot \mathbf{R}) \end{cases}$$

- où:
- z est la coordonnée relative à l'altitude dans la colonne,
  - $\mathbf{R}$  est le champ de déplacement à l'altitude z dans la colonne\*,
  - s est le paramètre mesurant l'orientation du cristal par rapport à la position exacte de diffraction de Bragg; on l'appelle "paramètre d'excitation" ou "écart à la condition de Bragg",
  - $\xi_0$  est un paramètre lié à l'indice de réfraction moyen du cristal,
  - $\xi_g$  est la distance d'extinction du cristal pour la diffraction  $\mathbf{g}$ .

Pour tenir compte des phénomènes d'absorption à travers le cristal, les quantités  $1/\xi_0$  et  $1/\xi_g$  doivent être remplacées par les quantités complexes  $1/\xi_0 + i/\xi'_0$  et  $1/\xi_g + i/\xi'_g$  respectivement. La quantité  $\xi'_0$  détermine le coefficient d'absorption moyen du cristal. Bien que les électrons ne soient pas physiquement absorbés par le cristal, ce paramètre prend en compte la perte des électrons diffusés à grand angle par les atomes du cristal et qui sont bloqués par le diaphragme objectif, diaphragme inséré dans le plan focal image de l'objectif pour former les images. La quantité  $\xi'_g$  est relative au phénomène d'absorption "anomal", dont l'importance sera discutée ultérieurement. Les équations deviennent alors:

---

\* Quand le cristal est parfait, R est nul.



$$(II, 4) \begin{cases} \frac{dT}{dz} = i\pi\left(\frac{1}{\xi_0} + \frac{i}{\xi'_0}\right)T + i\pi\left(\frac{1}{\xi_g} + \frac{i}{\xi'_g}\right)S \exp(2i\pi sz + 2i\pi \mathbf{g} \cdot \mathbf{R}) \\ \frac{dS}{dz} = i\pi\left(\frac{1}{\xi_0} + \frac{i}{\xi'_0}\right)S + i\pi\left(\frac{1}{\xi_g} + \frac{i}{\xi'_g}\right)T \exp(-2i\pi sz - 2i\pi \mathbf{g} \cdot \mathbf{R}) \end{cases}$$

Ces équations peuvent également être écrites pour d'autres couples de solutions ( $T'$ ,  $S'$ ) reliées à  $T$  et  $S$  par un facteur de phase dépendant de  $z$  et conduisant aux mêmes intensités ( $|T|^2 = |T'|^2$  et  $|S|^2 = |S'|^2$ ). Par exemple, en prenant:

$$(II, 5) \begin{cases} T' = T \exp(-i\pi \frac{z}{\xi_0}) \\ S' = S \exp(2i\pi sz - i\pi \frac{z}{\xi_0}) \end{cases}$$

on obtient le système :

$$(II, 6) \begin{cases} \frac{dT'}{dz} = -\frac{\pi}{\xi'_0} T' + i\pi \left(\frac{1}{\xi_g} + \frac{i}{\xi'_g}\right) S' \exp(2i\pi \mathbf{g} \cdot \mathbf{R}) \\ \frac{dS'}{dz} = i\pi \left(\frac{1}{\xi_g} + \frac{i}{\xi'_g}\right) T' \exp(-2i\pi \mathbf{g} \cdot \mathbf{R}) + (2i\pi s - \frac{\pi}{\xi'_0}) S' \end{cases}$$

Ces équations peuvent encore s'écrire, avec  $w = s\xi_g$ ,  $N_g = \xi_g / \xi'_0$  et  $A_g = \xi_g / \xi'_g$ , et en abandonnant les primes :

$$(II, 7) \begin{cases} \frac{dT}{dz} = -\frac{\pi}{\xi_g} \{N_g T - i(1 + iA_g)S \exp(2i\pi \mathbf{g} \cdot \mathbf{R})\} \\ \frac{dS}{dz} = \frac{\pi}{\xi_g} \{(i - A_g)T \exp(-2i\pi \mathbf{g} \cdot \mathbf{R}) + (2iw - N_g)S\} \end{cases}$$

Dans ces équations,  $w$  est un paramètre sans dimension utilisé dans la formulation usuelle de cette théorie,  $N_g$  est appelé paramètre d'absorption normale et  $A_g$  paramètre d'absorption anormale. C'est cette formulation de la théorie dynamique à deux ondes qui est utilisée pour calculer les intensités des faisceaux transmis et diffractés sur la face de sortie de l'échantillon. Dans le prochain paragraphe nous discutons des différents paramètres de microscopie électronique intervenant dans ces équations, à savoir la distance d'extinction  $\xi_g$ , l'écart à la position de Bragg  $s$ , les paramètres d'absorption  $N_g = \xi_g / \xi'_0$  et  $A_g = \xi_g / \xi'_g$ , et l'épaisseur  $t$  de l'échantillon.

	GaAs	In <sub>0,13</sub> Ga <sub>0,87</sub> As	In <sub>0,25</sub> Ga <sub>0,75</sub> As	InP
<220>	75	74	73	75
<400>	111	109	108	113
<200>	1006	2420	9845	175
<113>	126	124	122	118
<224>	145	143	141	152

tableau II.1: Valeurs des distances d'extinction  $\xi_g$  (nm) à 300 kV pour les principaux vecteurs de diffraction, calculées à l'aide du logiciel EMS [7].

## II, 1, 2) Les paramètres

### II, 1, 2, a) La distance d'extinction

L'expression littérale de la distance d'extinction  $\xi_g$  intervenant dans le système d'équations (II, 7) de la théorie dynamique est la suivante:

$$(II, 8) \quad \xi_g = \frac{\pi V_c}{\lambda |F_g|} \cos \theta_b$$

où:  $V_c$  est le volume de la maille élémentaire ( $V_c = a^3$  pour les systèmes cubiques),  
 $\theta_b$  est l'angle défini par la relation de Bragg (II, 2),  
 $\lambda$  est la longueur d'onde du rayonnement incident,  
 $F_g$  est le facteur de structure de la maille cristalline, défini par:

$$(II, 9) \quad F_g = \sum_{j=1}^N f_j \exp[2\pi i(\mathbf{r}_j \cdot \mathbf{g})] \exp(-M_g)_j$$

où:  $f_j$  est le facteur de diffusion atomique des électrons pour le  $j^{\text{ème}}$  atome de la maille situé en  $\mathbf{r}_j$  par rapport à l'origine de la maille,  
 $(M_g)_j$  est le facteur de Debye-Waller pour ce même  $j^{\text{ème}}$  atome,  
 $N$  est le nombre d'atomes dans la maille élémentaire.

Les valeurs des paramètres intervenant dans ces expressions ont été calculées et tabulées par différents auteurs (P. A. Doyle et P. S. Turner pour les facteurs de diffusion atomiques  $f_j$  [7], J. S. Reid pour les coefficients de Debye-Waller  $(M_g)_j$  [8]), pour les atomes qui nous concernent, à savoir: le gallium Ga, l'indium In, l'arsenic As, et le phosphore P. On peut donc, connaissant ces paramètres et la structure des mailles élémentaires des cristaux, calculer le facteur de structure et la distance d'extinction pour les vecteurs de diffraction utilisés. Cependant, en pratique, les valeurs de  $\xi_g$  ont été obtenues grâce au logiciel "Electron Microscopy Simulation (EMS)" conçu par P. Stadelmann [9]. Ce logiciel permet d'obtenir les paramètres nécessaires aux simulations des images de microscopie électronique en transmission, à partir des caractéristiques des mailles élémentaires des cristaux. Le **tableau II, 1** regroupe les valeurs des distances d'extinction des vecteurs de diffraction les plus couramment utilisés, calculées à 300 kV à l'aide du logiciel EMS et pour les composés qui nous concernent. Ce sont ces valeurs de distance d'extinction qui seront introduites dans les programmes de simulation d'image.

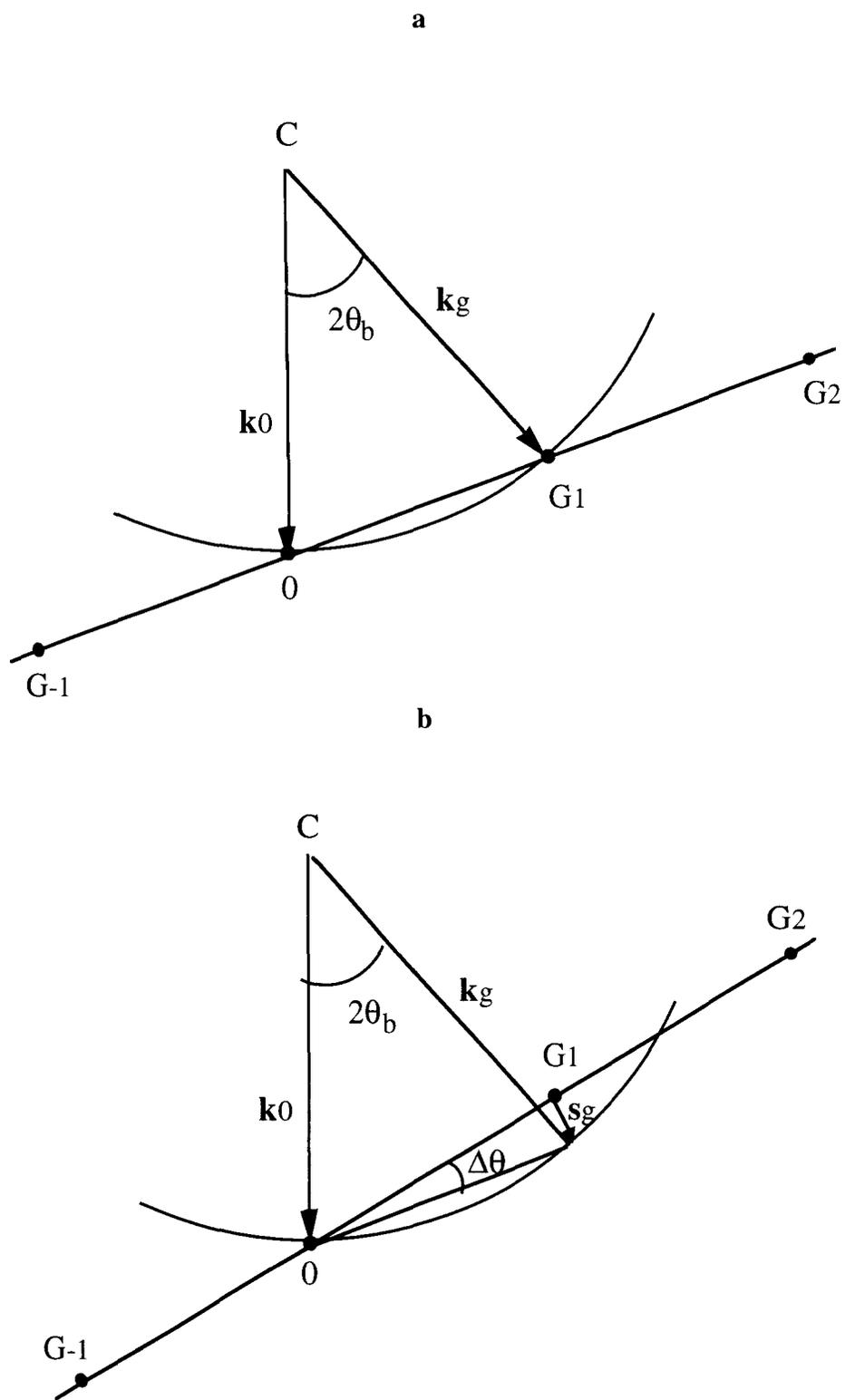


figure II, 2: Construction d'Ewald pour le cristal en position exacte de Bragg (a) et désorienté de  $\Delta\theta > 0$  (b).

## II, 1, 2, b) L'écart à la condition de Bragg

La diffraction des électrons par une famille de plans réticulaires d'un cristal peut se produire même si le cristal n'est pas exactement orienté en position de Bragg. Ceci provient du fait qu'en microscopie électronique on observe des échantillons de très faible épaisseur (au maximum de l'ordre de quelques centaines de nanomètres). Quand une des dimensions du cristal est faible, comme c'est le cas pour l'épaisseur des lames minces, on observe dans l'espace réciproque un élargissement des noeuds suivant la direction correspondante. La relation stricte de Bragg (II, 1) devient alors:

$$(II, 10) \quad \mathbf{k}_g - \mathbf{k}_0 = \mathbf{g}_{hkl} + \mathbf{s}_g$$

$\mathbf{s}_g$  est appelé vecteur écart à la condition de Bragg et il est défini grâce à la construction d'Ewald représentée sur la **figure II, 2**. A l'extrémité du vecteur  $\mathbf{k}_0$ , de norme  $1/\lambda$ , est positionné l'origine O du réseau réciproque du cristal. Dans cette représentation, le cristal est en position de diffraction pour la famille des plans (hkl) (figure II, 2, a) si le noeud  $G_1$  défini dans l'espace réciproque par le vecteur  $\mathbf{g}_{hkl} = \mathbf{OG}_1$  intercepte la sphère de rayon  $1/\lambda$  centrée sur l'origine C du vecteur  $\mathbf{k}_0$  (sphère d'Ewald). Le faisceau est alors diffracté dans la direction  $\mathbf{k}_g$  vérifiant la relation de Bragg (II, 1). Sur la figure II, 2, b, le cristal a subi une légère désorientation  $\Delta\theta$  par rapport à la position de Bragg, la rotation se faisant en gardant pratiquement constant l'angle  $2\theta_b$  entre les vecteurs  $\mathbf{k}_0$  et  $\mathbf{k}_g$ . Par définition, le vecteur excitation  $\mathbf{s}_g$  est le vecteur joignant le noeud  $G_1$  à l'extrémité du vecteur  $\mathbf{k}_g$  situé sur la sphère d'Ewald. Du fait de la faiblesse des angles de Bragg,  $\mathbf{k}_0$  et  $\mathbf{k}_g$  sont pratiquement parallèles et ainsi  $\mathbf{s}_g$  est-il aussi quasiment parallèle à  $\mathbf{k}_0$ . C'est pourquoi dans la formulation de la théorie n'apparaît que la quantité  $s$ , composante de  $\mathbf{s}_g$  suivant la direction du faisceau incident. Par convention,  $s$  est pris positif si le noeud du réseau réciproque se situe à l'intérieur de la sphère, négatif s'il est à l'extérieur. Ainsi, sur la figure II, 2, b,  $s$  est positif pour le noeud  $G_1$  mais il est négatif pour les autres noeuds  $G_n$  de la rangée. Compte tenu de la faiblesse de  $\theta_b$  et de  $\Delta\theta$ , on peut écrire:

$$(II, 11) \quad s = g \Delta\theta$$



## II. 1. 2. c) Les coefficients d'absorption

### II. 1. 2. c. $\alpha$ ) le paramètre d'absorption normale $N_g$

Le paramètre d'absorption  $N_g = \xi_g / \xi'_0$  prend en compte la diminution du nombre d'électrons dans la colonne en fonction de l'épaisseur  $z$  dans le cristal. Cette diminution est due à la diffusion inélastique à grand angle des électrons par les atomes du cristal. Les électrons diffusés sont bloqués par le diaphragme objectif inséré dans le plan focal image du microscope et ils ne participent donc pas à la formation des images. Pour un cristal d'épaisseur constante, le paramètre  $N_g$  exprimant cette perte d'électrons agit comme un facteur d'échelle constant pour les intensités sur toute la zone imagée. Le contraste, exprimé par le rapport des intensités  $(I - I_0) / I_0$ , où  $I$  est l'intensité du point considéré et  $I_0$  celle du fond avoisinant, est donc indépendant de ce facteur d'échelle et on peut imposer une valeur arbitraire à  $N_g$ . Dans la pratique,  $N_g$  sera pris égal au coefficient d'absorption anormale  $A_g$ . On diminue ainsi le nombre de paramètres à introduire dans les simulations.

### II. 1. 2. c. $\beta$ ) Le paramètre d'absorption anormale $A_g$

Suivant la théorie de Howie et Whelan, la prise en compte des phénomènes d'absorption dans le cristal se fait de façon phénoménologique en remplaçant les quantités  $1/\xi_0$  et  $1/\xi_g$  par les quantités complexes  $1/\xi_0 + i/\xi'_0$  et  $1/\xi_g + i/\xi'_g$  respectivement. Dans la formulation quantique de la théorie dynamique (qui se propose de résoudre l'équation de Schrödinger pour la fonction d'onde  $\psi(r)$  d'un électron se déplaçant dans le cristal de potentiel  $V(r)$ ), les phénomènes d'absorption sont introduits en remplaçant le potentiel réel du cristal  $V(r)$  par un potentiel complexe  $V(r) + iV'(r)$ . On montre alors que le coefficient  $A_g$  est égal à  $V'_g / V_g$  où  $V_g + iV'_g$  est la  $g^{\text{ème}}$  composante de Fourier du potentiel cristallin :  $A_g$  dépend donc, par l'intermédiaire des coefficients  $V_g$  et  $V'_g$ , de la structure cristalline du matériau observé, du vecteur de diffraction utilisé et de l'énergie des électrons (tension d'accélération).

La valeur précise de  $A_g$  n'est toutefois pas facilement accessible. En effet, si  $V_g$  peut être directement calculé à partir des paramètres du cristal [10], il n'en est pas de même pour  $V'_g$ . Ce terme provient des formes variées de la diffusion inélastique des électrons dans le cristal, principalement dues aux interactions électrons-phonons, et il est donc très dépendant de la température. Certains auteurs ont proposé des calculs de  $A_g = V'_g / V_g$  en tenant compte de cette interaction, à plusieurs températures [10, 11]. Cependant, dans ces calculs, on considère que les électrons diffusés ne participent pas à la formation des images (diaphragme objectif infiniment petit). Or, ceci n'est pas le cas

	GaAs	InAs	In <sub>0,13</sub> Ga <sub>0,87</sub> As	In <sub>0,25</sub> Ga <sub>0,75</sub> As	InP
<220>	0,045	0,059	0,047	0,049	0,054
<400>	0,061	0,078	0,063	0,065	0,072
<200>	0,044	0,128	0,054	0,065	0,106
<113>	0,052	0,071	0,054	0,057	0,073
<224>	0,071	0,092	0,074	0,076	0,130

tableau II.2: Valeurs des paramètres d'absorption anormale  $A_g = \xi_g / \xi'_g$  pour les principaux vecteurs de diffraction à 300 kV (valeurs extrapolées).

expérimentalement car une partie des électrons diffusés se retrouve au voisinage des taches de diffraction et, compte tenu des dimensions non nulles du diaphragme objectif, participe à la formation de l'image. Les valeurs de  $A_g$  calculées par ces auteurs ne peuvent donc être qu'indicatives et devront être augmentées si l'on veut tenir compte de la contribution des électrons inélastiques à l'image [12]. De plus,  $A_g$  n'ayant pas été calculé pour des tensions supérieures à 200 kV, il faut pouvoir extrapoler, à 300 kV, les valeurs calculées à 200 kV.

La dépendance de  $A_g$  à la tension d'accélération  $E$  des électrons a été étudiée par Metherell et Whelan [12] ainsi que par Hashimoto et al [13]. Ces auteurs ont mis en évidence la variation linéaire de  $A_g$  avec  $E^{-1/2}$ , pour des valeurs de  $E$  allant jusque 300 kV. Nous avons donc extrapolé les valeurs données par Bird et King à 200 kV [11] en les multipliant par le coefficient correctif  $\alpha = (300/200)^{-1/2} = 0,81$ . Le **tableau II, 2** regroupe les valeurs de  $A_g$  ainsi calculées pour les cristaux étudiés\*, pour les réflexions les plus couramment utilisées et à température ambiante (300 K). Ce sont ces valeurs qui seront introduites dans les programmes de simulation. Rappelons cependant que, compte tenu de la remarque concernant la contribution des électrons inélastiques à la formation de l'image, ces valeurs ne sont qu'indicatives et qu'il faudra en tenir compte lors de la comparaison des images simulées et des images expérimentales\*\*.

Notons enfin qu'il est possible de déterminer expérimentalement les valeurs de  $A_g$ , en mesurant les intensités des contours d'épaisseur sur les bords de la lame [13]. Cependant, cette expérience délicate, qui suppose de disposer d'échantillons non déformés et d'épaisseur connue sur de larges zones, n'a pas pu être réalisée dans le cadre de cette thèse.

#### II. 1. 2. d ) L'épaisseur de la lame mince

Le dernier paramètre de microscopie à considérer pour la simulation des images est la valeur de l'épaisseur  $t$  de l'échantillon. Ce paramètre a une influence très importante sur l'allure des contrastes des défauts. Les phénomènes d'absorption sont en effet d'autant plus influents que l'épaisseur du cristal est importante. C'est pourquoi les simulations d'images ne pourront être entreprises qu'à condition de connaître avec précision la valeur de l'épaisseur de l'échantillon à l'endroit de l'observation.

Lors de nos observations, l'épaisseur de la lame sera mesurée par la méthode de la diffraction en faisceaux convergents qui est décrite dans la deuxième partie de ce chapitre.

---

\* Pour les composés ternaires, les valeurs sont obtenues par interpolation linéaire (loi de Végard) des valeurs associées aux composés binaires.

\*\* Ces valeurs pourraient être utilisées telles quelles pour la comparaison avec des images filtrées en énergie.



La valeur obtenue sera introduite dans les programmes de simulation qui intégreront alors les équations différentielles du système (II, 7) depuis la surface de l'échantillon, caractérisée par la position  $z = 0$  (face d'entrée des électrons), jusqu'à l'altitude  $z$  correspondant à l'épaisseur  $t$  mesurée (face de sortie des électrons).

### II, 1, 3) Les champs de déplacement

Les paramètres que nous avons présentés jusqu'ici s'appliquent à des cristaux parfaits aussi bien qu'à des cristaux déformés. La déformation du cristal, c'est à dire la déviation des plans atomiques par rapport à leur position dans l'état parfait, est introduite dans la théorie de la diffraction par le vecteur champ de déplacement  $\mathbf{R}$ . C'est donc par leurs champs de déplacement que les sites d'hétérogénéités de contrainte sont caractérisés en microscopie électronique.

On voit dans les expressions du système (II, 7), que le champ de déplacement entre dans les équations de la diffraction sous forme d'un produit scalaire avec le vecteur de diffraction  $\mathbf{g}$ . Comme  $\mathbf{g}$  est perpendiculaire à la direction du faisceau incident (donc à la direction des colonnes dans l'approximation de Howie et Whelan), les électrons qui traversent le cristal n'expérimentent le champ de déplacement que par sa composante perpendiculaire à la direction de propagation et parallèle au vecteur de diffraction.

Dans le cadre de cette thèse, les champs de déplacement sont calculés par la méthode des éléments finis décrite dans le premier chapitre. La façon dont les champs de déplacement issus de ces calculs sont intégrés dans les équations différentielles ne sera pas détaillée dans le cadre de ce rapport. Notons simplement que la valeur du champ de déplacement en tout point d'altitude  $z$  au sein d'une colonne particulière est obtenue par interpolation linéaire des valeurs prises aux noeuds du modèle d'éléments finis les plus proches du point considéré. Cette tâche est effectuée au cours du programme de simulation par un sous-programme propre à chaque modèle de défaut utilisé par le logiciel d'éléments finis.

### II, 1, 4) Intégration des équations différentielles

Grâce à l'approximation de la colonne, il est possible de résoudre numériquement les équations différentielles qui expriment les intensités des faisceaux transmis et diffractés au cours de la traversée du cristal fauté. Les équations du système (II, 7) se présentent en effet comme un système d'équations différentielles du premier ordre à une seule variable: l'altitude  $z$  au sein de la colonne.

L'algorithme de calcul utilisé par les programmes de simulation pour la résolution de ces équations est celui de Runge-Kutta développé au quatrième ordre, originellement



employé par Head [14, 15]. Pour toute fonction impliquée dans un système d'équations différentielles couplées du premier ordre, cet algorithme détermine la valeur prise par la fonction en  $z$ , connaissant la valeur prise en  $z - p$ , où  $p$  est le pas d'intégration (un des paramètres du programme de simulation). C'est ainsi qu'à partir des conditions initiales suivantes:

$$\begin{aligned}T(z=0) &= 1 \\S(z=0) &= 0,\end{aligned}$$

le programme calcule de proche en proche la valeur des intensités transmises et diffractées sur la face de sortie de la lame ( $z = t$ ).

Pour réaliser ce calcul, le pas d'intégration  $p$  est optimisé de façon à limiter au maximum le temps de calcul, tout en sauvegardant la précision de ce calcul : il suffit pour cela de diminuer progressivement la valeur de  $p$  jusqu'à obtention de résultats convergents. On obtient alors, les valeurs des intensités transmises et diffractées pour chaque colonne sur la face de sortie des électrons.

### Conclusion

Nous avons décrit dans cette partie l'ensemble des éléments théoriques nécessaires à la compréhension de la méthode de simulation des images de microscopie électronique en transmission. Ces simulations utilisent les équations de la théorie de la diffraction des électrons par un cristal fauté, formulées par Howie et Whelan dans l'approximation de la colonne. Nous avons mis en évidence le rôle joué par les différents paramètres de microscopie électronique intervenant dans ces équations. Certains de ces paramètres, comme les distances d'extinction ou les coefficients d'absorption, sont issus de calculs que nous avons présentés et dont les résultats sont regroupés dans les tableaux II, 1, et II, 2. Les autres paramètres, à savoir l'écart à la position de Bragg et l'épaisseur de l'échantillon, doivent être obtenus expérimentalement au moment des observations. Ce n'est qu'à condition de disposer des informations les plus précises possibles concernant ces paramètres que la comparaison des images simulées et expérimentales pourra être entreprise, et ainsi valider les valeurs des champs de déplacement utilisés pour réaliser les simulations. Dans la prochaine partie de ce chapitre, nous présentons l'ensemble des techniques expérimentales utilisées pour l'obtention des images et des paramètres de microscopie accessibles à l'expérience. La façon dont les images sont finalement analysées en vue des comparaisons avec les images simulées sera également présentée.

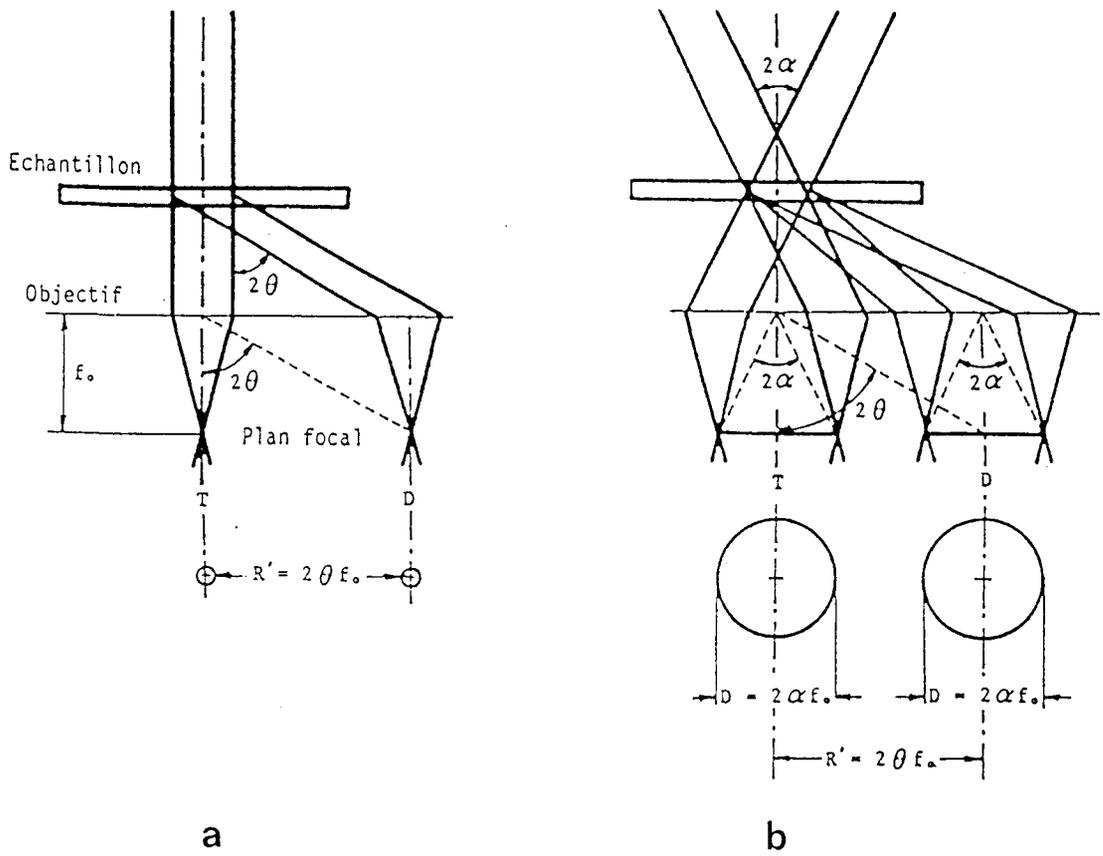


figure II.3: Géométrie de la diffraction électronique.(a) : en faisceau incident parallèle.  
 (b) : en faisceaux convergents. D'après B. J. Thomas [17]

## II, 2) Procédures expérimentales

### II, 2, 1) Préparation des lames minces

Pour nos observations, deux types de lames minces ont été préparées, à savoir:

- des échantillons amincis sur la tranche (observations en "cross-section")
- des échantillons amincis parallèlement aux interfaces (observations en "plan view")

Les observations en "plan view" ont été réalisées pour la caractérisation de la relaxation élastique associée à l'ondulation de surface d'une couche contrainte en tension ( $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As} / \text{InP}$ , chapitre III). Les observations en "cross-section" ont été réalisées pour l'étude de la relaxation d'un puits contraint émergent en surface ( $\text{GaAs} / \text{In}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As} / \text{GaAs}$ , chapitre IV).

Les techniques de préparation de ces deux types d'échantillons sont celles qui sont couramment employées dans notre laboratoire pour l'observation des hétérostructures semi-conductrices. Elle sont décrites de façon détaillée dans le thèse de C. Herbeaux [16]. Les échantillons sont abrasés mécaniquement par polissages successifs jusqu'à des épaisseurs de 60  $\mu\text{m}$ , puis amincis par bombardement ionique sur un amincisseur Gatan 600. L'orientation des lames à l'intérieur du microscope sera décrite au moment de la présentation des résultats (chapitres III et IV).

### II, 2, 2) Acquisition des images

Les lames minces sont étudiées dans un microscope PHILIPS CM 30 opérant à 300 kV. Les images peuvent être enregistrées sur des films Kodak Electron Image Film SO-163 ou directement acquises sur une caméra SSCCD à balayage lent et refroidie par effet Peltier, de marque Gatan. Les avantages de cette caméra sont nombreux. Elle se caractérise par une très grande sensibilité et sa réponse est linéaire dans toute la gamme d'intensité (contrairement au cas des films argentiques). Ce moyen d'acquisition est donc particulièrement bien adapté à l'analyse quantitative des contrastes. De plus, les images obtenues peuvent être analysées sur place avec le logiciel (Digital Micrograph 2.5) qui pilote la caméra et l'enregistrement des images numériques. Ceci facilite grandement l'acquisition d'images immédiatement exploitables. Enfin, le gain de temps obtenu avec ce type d'acquisition est également appréciable.

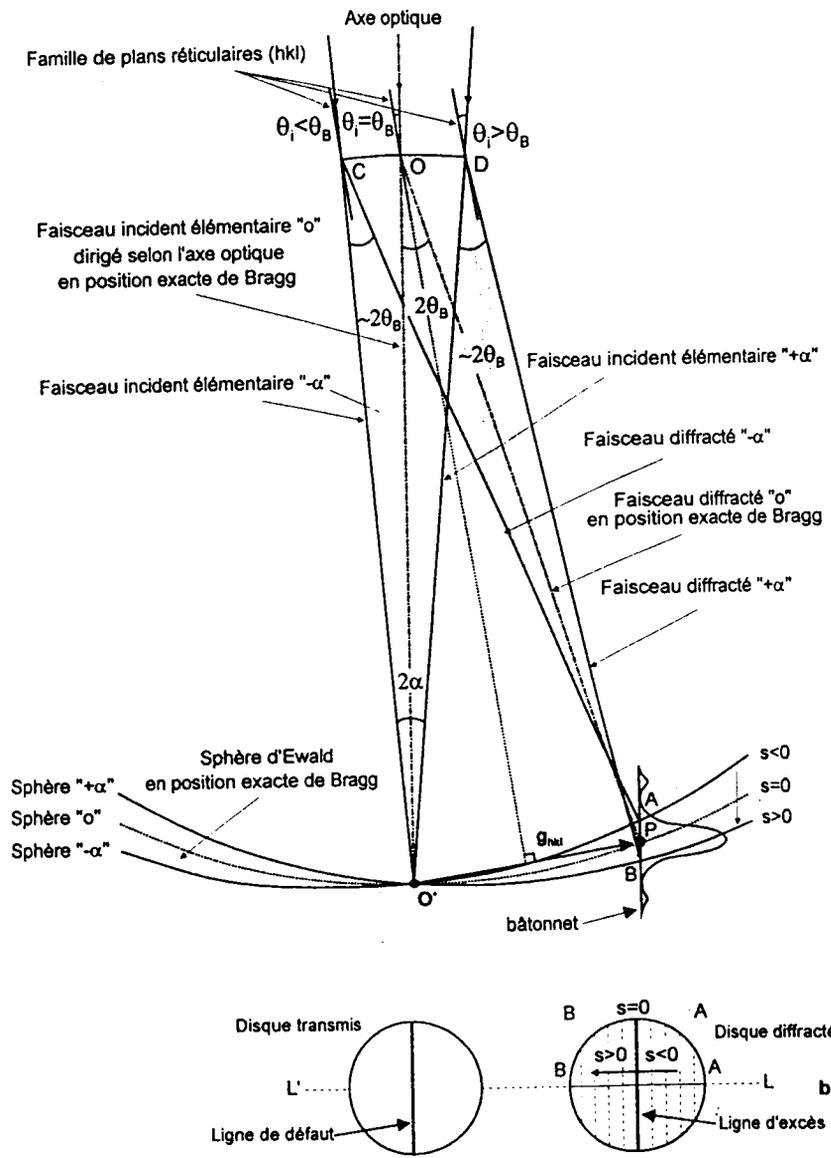


figure II.4 : Construction de la sphère d'Ewald en faisceau convergent;  $s$  : écart aux conditions de Bragg. D'après J. P. Morniroli [18].

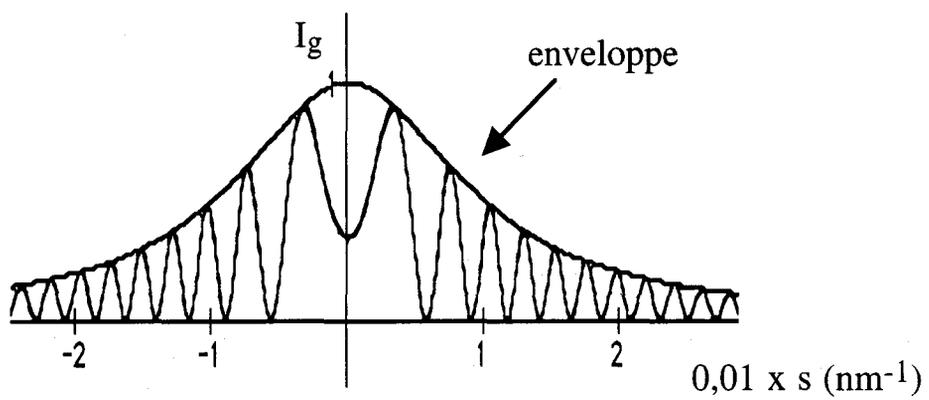


figure II. 5: Intensité diffractée  $I_g$  en fonction de  $s$  (théorie dynamique à deux ondes).

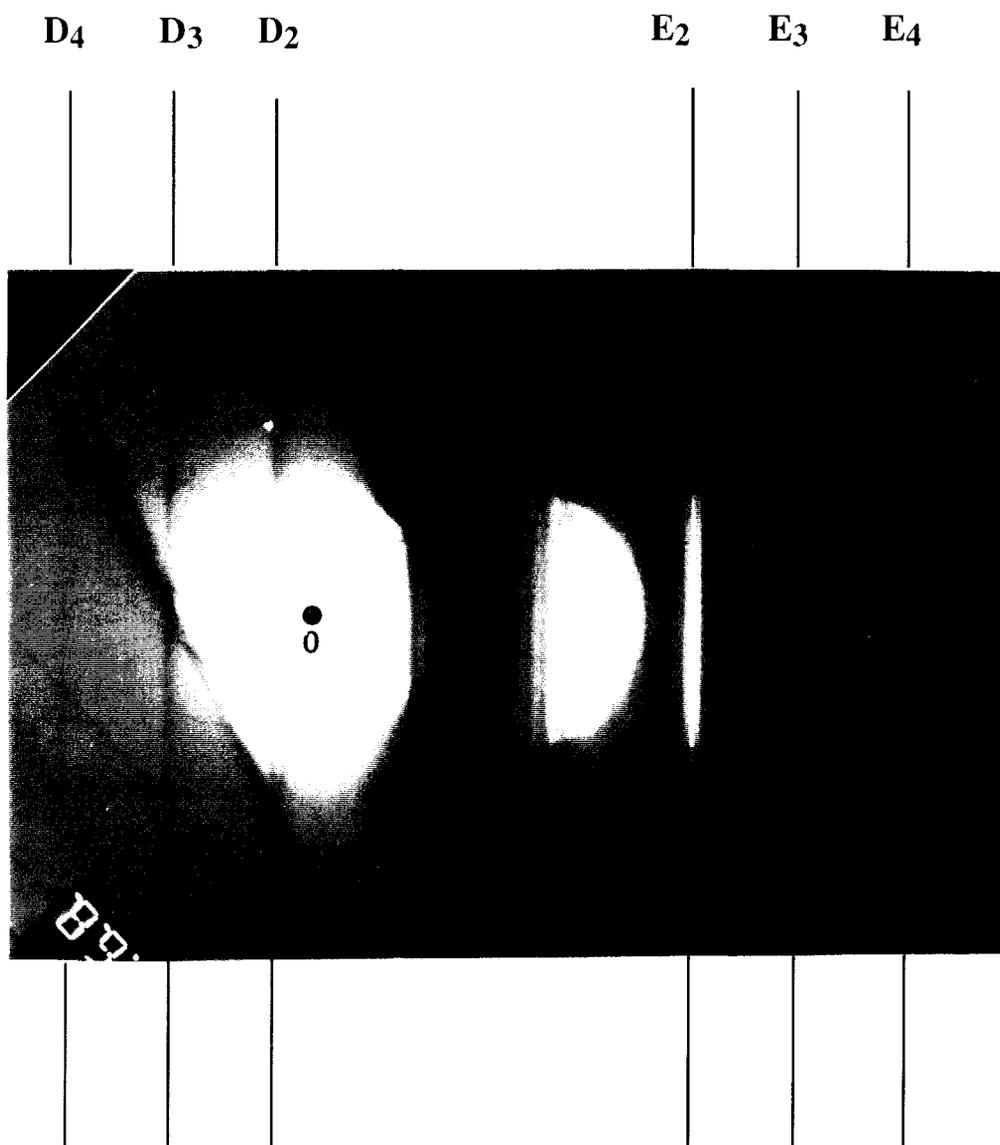


figure II. 6: Cliché de diffraction CBED en rangée systématique  $[nn0]^*$ . InGaAs.  
 $g = 220$ .

## II, 2, 3) Microscopie en faisceaux convergents

La **figure II, 3** permet de comparer les figures de diffraction obtenues dans le plan focal image de l'objectif, soit dans le cas où l'échantillon est irradié par un faisceau parallèle d'électrons, soit dans le cas où il est irradié par un faisceau électronique convergent. Dans le premier cas, l'objectif (supposé parfait) fait converger le faisceau incident en un point sur son axe optique et dans le plan focal; les électrons diffractés à un angle  $2\theta$  convergent en un autre point du plan focal à une distance  $R' \sim 2 f_0 \theta$  (figure II, 3, a). Dans le second cas, on peut décomposer ce faisceau incident en une suite continue de pincesaux répartis dans un cône de demi-angle  $\alpha$  (figure II, 3, b). Chaque pinceau incident  $i$  incliné d'un angle  $\alpha_i$  par rapport à l'axe optique converge dans le plan focal image à une distance  $r'_i = f_0 \alpha_i$  de cet axe : la tache centrale est ainsi élargie en un disque de diamètre  $D = 2 f_0 \alpha$  et il en est de même pour les faisceaux diffractés.

La construction d'Ewald peut être appliquée à chacun des faisceaux élémentaires constituant le faisceau incident, de sorte que le vecteur  $s$  varie à l'intérieur de chacun des disques correspondants dans le plan focal de l'objectif (**figure II, 4**). Les disques de diffraction constituent ainsi des cartes d'intensité transmise ou diffractée en fonction de l'écart  $s$  à l'angle de Bragg.

Si on se place dans le cas de la diffraction dynamique à deux ondes, l'intensité diffractée s'écrit :

$$I_g \div (1/\xi_g s')^2 \sin^2(\pi t s') \quad \text{avec } s' = (s^2 + 1/\xi_g^2)^{1/2}$$

Les variations de  $I_g$  en fonction de  $s$  sont représentées sur la **figure II, 5**. Le système de franges admet une fonction-enveloppe  $(1/\xi_g s')^2$  de largeur à mi-hauteur  $2/\xi_g$ . Lorsque la distance d'extinction  $\xi_g$  est petite (c'est à dire pour les réflexions intenses, généralement les plus proches de l'origine de l'espace réciproque), la fonction-enveloppe présente une largeur à mi-hauteur importante et de nombreuses franges sont visibles, ce qui permet de mesurer l'épaisseur de la lame : c'est le cas par exemple pour  $g = 220$  dans le cas de GaAs (**figure II, 6**).

Lorsque la distance d'extinction  $\xi_g$  est grande, la largeur à mi-hauteur de la fonction-enveloppe est faible et on observe donc peu de franges : voir par exemple le cas de  $g = 440$  sur la figure II, 6. L'intensité de ces franges présente une contribution inélastique qui peut être observée seule, en dehors des disques transmis ou diffractés, sous la forme de lignes de Kikuchi (lignes d'excès  $E_i$  et lignes de défaut  $D_j$  sur la figure II, 6) : c'est la finesse de ces lignes qui permet une mesure précise de  $s$  (voir l'annexe 1).

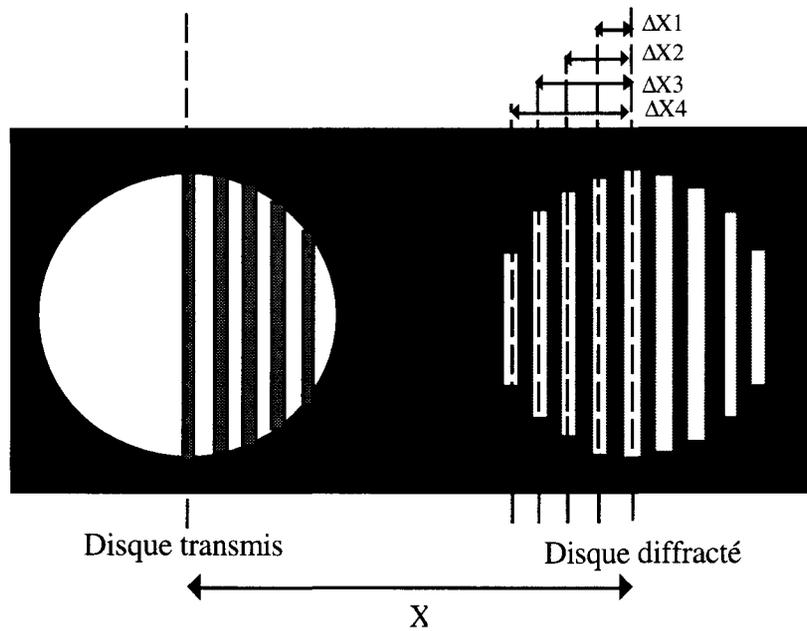


figure II, 7 : Représentation schématique d'un diagramme de diffraction en faisceaux convergents à deux ondes : franges associées à la variation de l'intensité avec  $s$  ("rocking curves").

## II. 2. 3. 1) Mesure de l'épaisseur de l'échantillon

Nous avons souligné dans le premier chapitre l'influence de l'épaisseur de l'échantillon sur l'allure du contraste des défauts. C'est pourquoi l'épaisseur  $t$  de la lame doit être mesurée avec soin lors des observations. Quand les échantillons contiennent des défauts qui traversent l'épaisseur de la lame, il est possible de mesurer cette dernière à partir de la longueur du défaut, vu en projection sur le plan d'observation, connaissant l'orientation précise du défaut et celle du faisceau incident. Cependant, nos échantillons ne contenant pas de tels défauts, nous avons eu recours à une autre méthode de mesure, d'ailleurs plus précise, utilisant la diffraction en faisceaux convergents (en anglais, CBED). Cette méthode est décrite dans la suite de ce paragraphe.

Pour réaliser la mesure de l'épaisseur, il est nécessaire d'obtenir un diagramme de diffraction en faisceaux convergents à deux ondes (d'autres réflexions peuvent être excitées, mais il ne faut pas que le disque de diffraction utilisé pour la mesure soit perturbé par les lignes associées à ces réflexions). La figure de diffraction (**figure II, 7**) est alors constituée des disques transmis et diffracté présentant des franges : ces franges correspondent aux variations de l'intensité transmise ou diffractée en fonction de  $s$  ("rocking-curves"). Par exemple, dans le disque diffracté, chaque frange est repérée par un indice  $n_i$  et sa distance  $\Delta x_i$  au centre de la frange de référence, distance qui dépend de l'épaisseur de l'échantillon (la frange de référence correspond à  $s = 0$  et elle peut correspondre, soit à un maximum d'intensité, soit à un minimum, suivant l'épaisseur de la lame).

Le principe de la mesure de  $t$  à partir du diagramme CBED est basé sur les équations suivantes [19]:

$$(II, 12) \quad s_i = 2g\theta_b \Delta x_i / x$$

où  $x$  la distance entre les disques transmis et diffracté,

$$(II, 13) \quad (s_i/n_i)^2 + (1/n_i)^2 (1/\xi_g^2) = 1/t^2$$

La qualité des franges dépend de la taille de la sonde utilisée pour réaliser la diffraction (plus cette taille est petite et plus on a de chances d'éviter de prendre en compte des défauts qui altèreraient cette qualité). On a également intérêt à utiliser une convergence importante du faisceau incident, de façon à obtenir de grands disques et donc un nombre important de franges (il faut toutefois éviter que les différents disques ne se chevauchent trop).

L'équation (II, 12) permet de déterminer l'écart à la condition de Bragg  $s_i$  en mesurant  $\Delta x_i$  pour chaque frange  $n_i$ . L'équation (II, 13) montre qu'en traçant ensuite la courbe  $(s_i/n_i)^2$  en fonction de  $(1/n_i)^2$ , on obtient une droite de pente  $-1/\xi_g^2$  et d'ordonnée



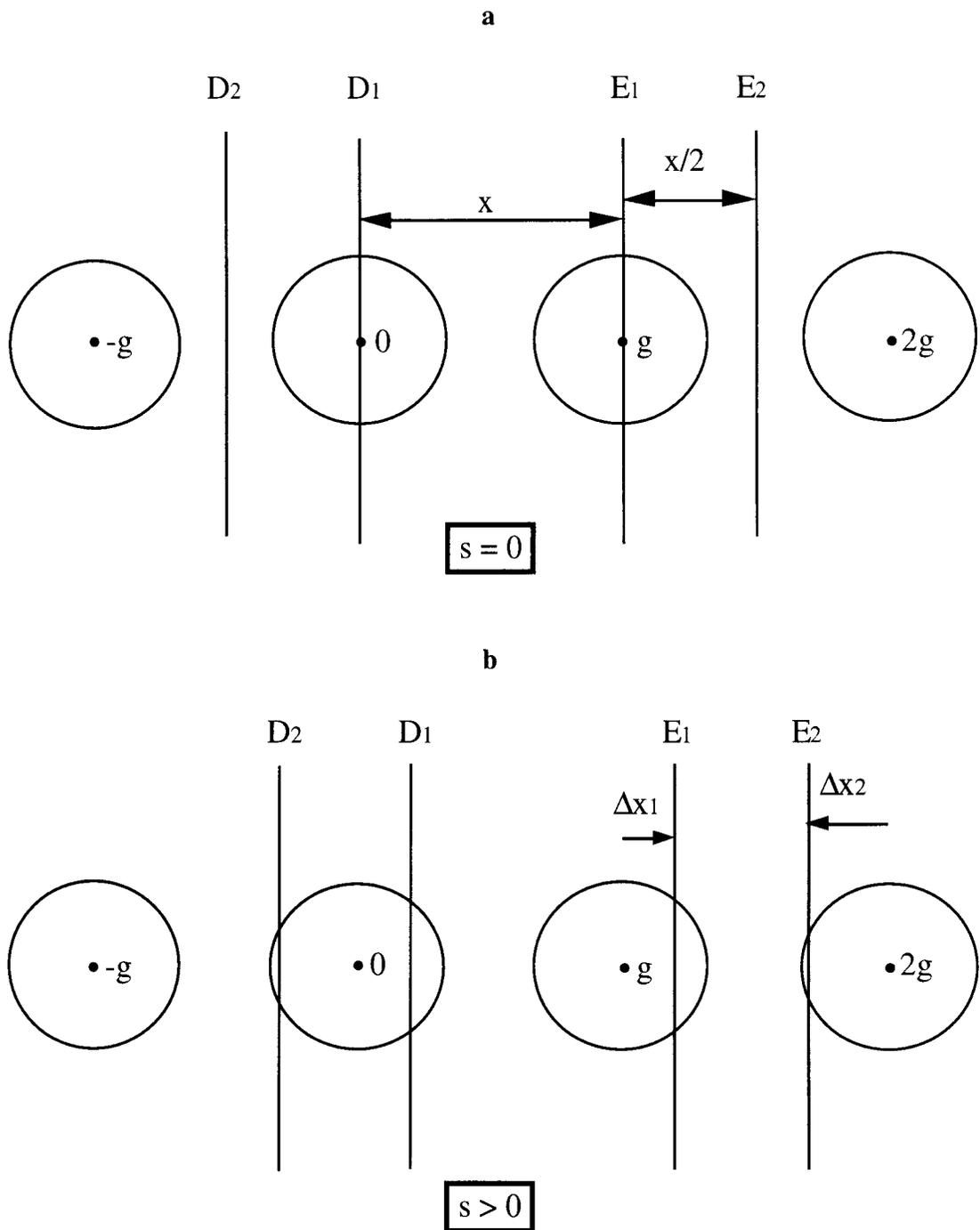
à l'origine  $1/t^2$ . Tout le problème consiste à déterminer la première valeur de  $n$  ( $i = 1$ ). Pour un échantillon d'épaisseur  $t < \xi_g$ , on a  $n_1 = 1$ ; lorsque  $\xi_g < t < 2\xi_g$ , on a  $n_1 = 2$  et ainsi de suite :  $n_1$  est donc le premier nombre entier plus grand que  $t/\xi_g$ . En pratique, on essaie plusieurs valeurs successives de  $n_1$  jusqu'à obtenir une droite avec une pente correspondant à une valeur raisonnable de  $\xi_g$ . Cette opération a été réalisée dans notre cas à l'aide d'un logiciel conçu par M. T. Otten (Off-line CBED thickness, 1996), dans lequel il suffit d'introduire les valeurs de  $x$ , de  $\Delta x_i$  pour chaque frange, et de la distance inter-réticulaire  $d_{hkl}$  de la réflexion utilisée.

La précision de la méthode est délicate à évaluer de façon générale, car elle dépend beaucoup de la qualité des franges, du cristal observé, du vecteur de diffraction et de l'épaisseur [19]. Dans les meilleurs conditions, elle peut être de 1%. Pour les épaisseurs importantes, les électrons inélastiques créent cependant une distorsion des diagrammes de diffraction et les résultats sont moins précis (le filtrage en énergie, dont nous ne disposons pas pour réaliser nos travaux, permet d'éviter cet inconvénient). Pour les faibles épaisseurs, l'excitation simultanée de plusieurs réflexions perturbe l'exploitation des disques qui sont alors traversés par de nombreuses lignes parasites. La distorsion des lames minces contraintes de faible épaisseur est également un facteur limitant pour l'obtention de bons clichés de diffraction. Il ressort de nos observations que l'on peut, pour les matériaux à base de GaAs et InP, mesurer à l'aide de cette méthode des épaisseurs comprises entre 150 nm et 600 nm avec une précision moyenne de l'ordre de quelques %, à condition d'utiliser des tailles de sonde suffisamment petites, de l'ordre de 10 nm.

### II. 2. 3. 2) Mesure de l'écart à la condition de Bragg

Nous avons vu dans la première partie de ce chapitre que l'écart à la condition de Bragg  $s$ , intervenant dans les équations de la diffraction des électrons, était un paramètre important à déterminer. Une bonne comparaison des contrastes expérimentaux et simulés implique que la valeur de ce paramètre reste constante sur toute la zone de l'image où est réalisée cette comparaison : ceci est d'autant plus facilement réalisé que les échantillons observés sont épais. Dans le cas des semiconducteurs III-V observés sous 200 ou 300 kV, cette épaisseur ne peut cependant pas dépasser quelques centaines de nanomètres. C'est pourquoi nous avons toujours choisi des épaisseurs comprises entre 100 et 600 nm, de façon à éviter des variations trop importantes de  $s$  au sein des zones observées.

La mesure de l'écart à la condition de Bragg se fait grâce aux lignes de Kikuchi visibles sur le diagramme de diffraction associé à l'image. Ces lignes proviennent de la diffusion inélastique des électrons dans le cristal et sont couramment utilisées pour la mesure de l'orientation précise du cristal par rapport au faisceau électronique incident.



**figure II. 8:** Représentation schématique des diagrammes de diffraction associés au cristal en position exacte de Bragg ( $s=0$ ) (a) et au cristal désorienté de  $\Delta\theta$  ( $s > 0$ ) (b).  $E_1, E_2$ : lignes de Kikuchi d'excès de premier et de second ordre;  $D_1, D_2$ : lignes de Kikuchi de défaut de premier et de second ordre.

Nous avons là encore utilisé la technique CBED qui permet d'utiliser, sans difficulté particulière, des petites tailles de sonde (de l'ordre de 10 nm) et d'obtenir des lignes de Kikuchi très fines qui conduisent à une bonne précision sur la détermination de  $s$ .

Cette valeur de  $s$  peut être mesurée directement à partir de la distance séparant les lignes de Kikuchi aux centres des disques de diffraction correspondants, comme indiqué sur la représentation schématique des diagramme de diffraction de la **figure II, 8**. Sur la **figure II, 8, a** est représenté le diagramme de diffraction associé au cristal en position de Bragg pour la réflexion  $\mathbf{g}$  ( $s=0$ ). Dans ce cas, la ligne d'excès de premier ordre  $E_1$  passe par le centre du disque  $\mathbf{g}$  tandis que la ligne d'excès de deuxième ordre est équidistante des disques  $\mathbf{g}$  et  $2\mathbf{g}$ . Quand le cristal est désorienté de  $\Delta\theta$  (**figure II, 8, b**) la ligne  $E_1$  se déplace de la distance  $\Delta x_1$  vers le disque  $2\mathbf{g}$ , tandis que la ligne  $E_2$  se déplace de la même façon, et se retrouve ainsi à la distance  $\Delta x_2$  du centre du disque  $2\mathbf{g}$ . Il ressort de façon évidente de cette description que:

$$(II, 14) \quad \Delta x_1 + \Delta x_2 = x / 2,$$

où  $x$  est la distance mesurée sur le cliché de diffraction entre les centres des disques  $\mathbf{0}$  et  $\mathbf{g}$ . Compte tenu de la géométrie de la diffraction, on a entre  $\Delta\theta$  et  $\Delta x_1$  la relation suivante:

$$(II, 15) \quad \Delta\theta / 2\theta_b = \Delta x_1 / x$$

On a alors, en combinant (II, 11) et (II, 15):

$$(II, 16) \quad s = 2g\theta_b (\Delta x_1 / x)$$

Pour les valeurs de  $s$  très faibles ( $\Delta x_1$  petit), il vaut mieux mesurer  $\Delta x_2$  et déterminer  $s$  à l'aide de la relation :

$$(II, 17) \quad s = g\theta_b (1 - 2 \Delta x_2 / x)$$

Dans le cas des vecteurs de diffraction les plus courts ( $\mathbf{g} = 111$  ou  $220$  pour les structures cubiques à faces centrées), on peut utiliser des lignes d'excès ou de défaut d'ordre supérieur à 2, de façon à améliorer la précision sur la détermination de  $s$  : l'optimisation de cette procédure permet d'atteindre des incertitudes  $\Delta s$  de l'ordre de  $10^{-3} \text{ nm}^{-1}$  (voir l'annexe 1 pour plus de précisions).



## II. 2. 4) Analyse des images

La comparaison des images expérimentales et simulées peut se faire soit sur les images bidimensionnelles, soit sur des profils d'intensité le long de directions particulières. Lorsque les défauts responsables du contraste sont allongés suivant une direction donnée, comme ce sera le cas dans le cadre de cette thèse, on peut utiliser la deuxième méthode. Il est donc nécessaire de pouvoir acquérir de tels profils d'intensité sur les images expérimentales. Pour ce faire, nous avons utilisé un logiciel de traitement d'images disponible dans le domaine public, développé par le National Institute of Health, USA (NIH Image). Ce logiciel permet en particulier d'obtenir des profils d'intensité d'images numériques, le long de directions quelconques. Ces valeurs d'intensité peuvent être recueillies sous forme de fichier pour les traiter avec d'autres logiciels, du type tableur, et calculer à partir de ces données les valeurs du contraste  $C$  défini par:

$$C = (I - I_0) / I_0,$$

où  $I_0$  est l'intensité du fond (loin du défaut) et  $I$  l'intensité au point considéré. Ce sont généralement ces quantités qui seront utilisées pour comparer les images expérimentales et simulées dans le cadre de cette thèse.



## REFERENCES du CHAPITRE II

- [1] A. K. Head, P. Humble, L. M. Clarebrough, A. J. Morton et C. T. Forwood, Defects in crystalline solids, volume 7, pp 12-26 (1973)
- [2] A. Howie et M. J. Whelan, Proc. Roy. Soc. **A263**, 217 (1961)
- [3] P. B. Hirsch, A. Howie, R.B. Nicholson, R.B. Pashley and M.J. Whelan, Electron Microscopy of Thin Crystals , London Butterworths, chapitre 8 (1965)
- [4] C. G. Darwin, Phil. Mag. **27**, 315 (1914)
- [5] A. Howie and Z.S. Basinski, Phil. Mag. **17**, 1039 (1968).
- [6] F. Glas, Phys. Rev. **B51**, 825 (1995).
- [7] P. A. Doyle et P. S. Turner, Acta Cryst. **A24**, 390 (1968)
- [8] John S. Reid, Acta Cryst. **A39**, 1 (1983)
- [9] P. A. Stadelmann, Ultramicroscopy **21**, 131 (1987)
- [10] G. Radi, Acta Cryst. **A26**, 41 (1970)
- [11] D.M. Bird and Q.A. King, Proc. 47th Annual Meeting of the Electron Microscopy Society of America, San Francisco Press, San Francisco, p. 486 (1989)
- [12] J. F. Metherell et M. J. Whelan, Phil. Mag. **15**, 755 (1967)
- [13] H. Hashimoto, T. Naiki, T. Mannami et K. Fujita, Proc. Fifth. Int. Conf. on Electron Microscopy, Philadelphia (Ed S. S. Breese), paper **GG9**, New York, Academic Press (1962)
- [14] A. K. Head, Aust. J. Phys. **20**, 557 (1967)
- [15] J. P. Pelletier, Techniques Numériques Appliquées au Calcul Scientifique, Masson (1971)
- [16] C. Herbeaux, Thèse de troisième cycle, Université des Sciences et Technologies de Lille (1990)
- [17] B. J. Thomas, dans Microscopie Electronique en Sciences des Matériaux, Editions du CNRS (1983).
- [18] J. P. Morniroli, Diffraction Electronique en Faisceau Convergent à Grand Angle (LACBED), Applications aux Défauts Cristallins. Editions de la SFμ (1998)
- [19] P. Kelly, R. G. Blake, J. G. Napier, Phys. Stat. Sol. **A31**, 771 (1975)
- [19] M. T. Otten, Microbeam Analysis **344** (1990)



**CHAPITRE III:**  
**CARACTERISATION de la RELAXATION**  
**ELASTIQUE de COUCHES d' $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$**   
**CONTRAINTES en TENSION sur InP (001)**



**CHAPITRE III:**  
**CARACTERISATION de la RELAXATION ELASTIQUE de**  
**COUCHES d'In<sub>0,25</sub>Ga<sub>0,75</sub>As CONTRAINTES en TENSION sur**  
**InP (001)**

**Introduction**

**III, 1) Présentation des échantillons étudiés**

III, 1, 1) Conditions de croissance

III, 1, 2) Conditions d'observation en microscopie à champ proche

III, 1, 3) Préparation des échantillons pour les observations MET

**III, 2) Observations en microscopie à champ proche**

III, 2, 1) Echantillons de type A

III, 2, 2) Echantillon B

III, 2, 3) Conclusion

**III, 3) Observations en MET**

III, 3, 1) Echantillons de type A

III, 3, 2) Echantillon B

III, 3, 3) Analyse des contrastes

III, 3, 4) Conclusion

**III, 4) Calculs par éléments finis**

III, 4, 1) Modèles utilisés

III, 4, 2) Résultats des calculs



### **III, 5) Résultats des simulations MET**

III, 5, 1) Résultats des simulations: échantillons A5 et B

III, 5, 2) Sensibilité des profils simulés à la forme des défauts

### **III, 6) Discussion et conclusion**

III, 6, 1) Validité de la méthode

III, 6, 2) Morphologie de surface 3D des couches en tension et des couches en compression

III, 6, 3) Limites de la méthode



## **Introduction**

Le mode de croissance tridimensionnel des couches fortement contraintes (voir chapitre I) a surtout été étudié sur des systèmes en compression ( $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As} / \text{GaAs}$  [1, 2, 3], GeSi / Si [4]). Peu d'informations expérimentales ont été recueillies à propos de la transition 2D / 3D du mode de croissance pour les couches en tension. A notre connaissance, seules les hétérostructures GaAs / InAs [5] et  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As} / \text{InP}$  [6] ont été étudiées. Ces dernières ont la propriété d'être contraintes en compression pour  $x \geq 0,53$  et en tension pour  $x \leq 0,53$ . C'est pourquoi elles sont particulièrement étudiées pour la compréhension des différences existant entre les mécanismes de relaxation des systèmes en tension et des systèmes en compression [7]. Dans ce cadre, et en collaboration avec M. Gendry du Laboratoire d'Electronique Automatique et Mesures Electriques (LEAME, UMR CNRS 5512), nous nous sommes proposés de déterminer la relaxation élastique des contraintes associée aux morphologies de surface 3D des couches d' $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$  contraintes en tension sur substrat InP (001).

Pour réaliser cette étude nous avons disposé de plusieurs échantillons. Les premiers types d'échantillons sont issus de croissances réalisées dans des conditions identiques et interrompues pour diverses épaisseurs de la couche d' $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$  (de façon à étudier l'évolution de la morphologie de surface en fonction de la quantité de matière déposée). Un autre type d'échantillon, pour lequel les conditions de croissance ont abouti à une morphologie de surface différente de celle des premiers échantillons, a également été utilisé. Afin de déterminer les morphologies de surface, les échantillons ont d'abord été observés en microscopie à champ proche. La plupart de ces observations ont été réalisées au LEAME, par les collaborateurs de M. Gendry (Y. Robach, P. Krapf, L. Porte), en microscopie à effet tunnel. Pour certains échantillons, des observations complémentaires ont pu être réalisées en microscopie à champ proche au LSPES par D. Ferré. Dans tous les cas, les surfaces se sont révélées être caractérisées par la présence de trous et d'îlots, de forme et de dimensions variables. Pour deux échantillons en particulier, les défauts se sont montrés suffisamment développés pour produire des contrastes de MET exploitables. Les champs de contrainte et de déplacement associés à ces défauts ont alors pu être calculés par la méthode des éléments finis, en utilisant les données issues des observations en microscopie à champ proche, et ces calculs ont été utilisés pour interpréter les images de MET réalisées sur les échantillons. Nous avons pu ainsi identifier des sites de relaxation différents en fonction du degré de développement de la morphologie 3D et déterminer les champs de déplacement associés à ces sites.



La présentation des résultats se déroulera de la façon suivante: dans une première partie nous présenterons les échantillons étudiés (conditions de croissance et conditions expérimentales d'observation). Puis nous présenterons les résultats de microscopie à champ proche révélant les morphologies de surface des échantillons. Les images de microscopie électronique en transmission réalisées sur l'ensemble des échantillons seront alors décrites. Nous présenterons ensuite les calculs par éléments finis réalisés pour calculer les champs de contraintes associées aux morphologies de surface de deux échantillons et utilisés pour simuler les contrastes de MET associés à ces morphologies. Les résultats de ces simulations seront alors décrits et nous verrons comment ils nous ont permis d'interpréter correctement les images MET. La sensibilité de ces simulations aux divers paramètres expérimentaux sera également décrite. Dans la dernière partie de ce chapitre, nous discuterons de la validité de la méthode employée pour caractériser les champs de contrainte et de ses limites dans le cas des structures étudiées.

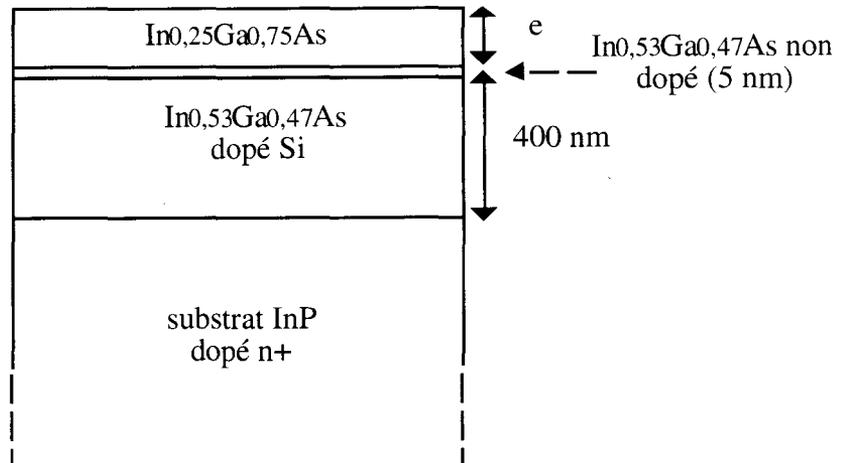


figure III. 1: Représentation schématique des échantillons étudiés. La couche tampon d' $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}$  est adaptée au substrat  $\text{InP}$ .

	échantillons A	échantillon B
stabilisation	arsenic	arsenic
température de croissance	525 °C	525 °C
rapport V/III	85	23
vitesse de croissance (µm/h)	0,225	1,75
épaisseur e (nm)	A1: 1,5 A2: 2,7 A3: 3,3 A4: 3,9 A5 : 5,1 A6 : 10	3,6

tableau III. 1: Conditions de croissance des échantillons étudiés. L'échantillon B a été maintenu pendant 2 mn à 525°C sous pression réduite d'arsenic, juste après la croissance.

### III, 1) Présentation des échantillons étudiés

#### III, 1, 1) Conditions de croissance

Les échantillons étudiés ont été élaborés par Epitaxie par Jets Moléculaires (EJM ou MBE en anglais) au Laboratoire d'Electronique Automatique et Mesures Electriques (LEAME) de l'Ecole Centrale de Lyon. Les épitaxies ont été réalisées dans un bâti RIBER 2300 équipé d'un système in situ de Diffraction d'Electrons de Haute Energie en incidence rasante (en anglais, RHEED) et connecté sous ultravide à une chambre d'analyse de microscopie à effet tunnel (en anglais STM). Les couches d' $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$  ont été épitaxiées sur une couche tampon d' $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}$  (400 nm, dopée Si excepté pour les 5 derniers nm) adaptée au substrat d'InP (001) (dopé  $n^+$ ) (voir la **figure III, 1**). Le taux de désadaptation entre la couche et le substrat vaut:  $\Delta a/a = 0,0198$ . Le choix de ce taux de désadaptation correspond à la volonté d'étudier des couches suffisamment contraintes pour subir une croissance 3D, mais de façon à ce que celle-ci se développe de façon suffisamment lente pour qu'elle puisse être étudiée à divers stades de la croissance.

Deux types d'échantillon A et B ont été étudiés. Leurs conditions de croissance sont reportées dans le **tableau III, 1**. La température de croissance ( $T = 525^\circ \text{C}$ ) correspond à la température standard pour la croissance des couches d'InGaAs. Pour les échantillons de type A, les paramètres de croissance (vitesse et rapport des pressions équivalentes dans les flux des éléments V et III) sont tels que les conditions s'approchent le plus possible de celles de l'équilibre thermodynamique\* (faible vitesse de croissance). Pour ces échantillons, les observations en RHEED et en STM n'ont pas permis de détecter une transition 2D / 3D franche mais ont mis en évidence une évolution progressive de la surface : pour des épaisseurs comprises entre 1,5 et 10 monocouches (MC, 1 MC = 0,3 nm), on observe une rugosification de la surface, puis, pour des épaisseurs de couches supérieures à 10 MC, on observe l'ondulation de la surface. Nous avons observé, pour la série A, plusieurs échantillons correspondant à différentes valeurs de l'épaisseur de la couche: pour l'échantillon A<sub>1</sub>, la croissance a été interrompue à 5 MC (1,5 nm). Les échantillons A<sub>2</sub> et A<sub>3</sub> correspondent à des épaisseurs de 9 et 11 MC (2,7 et 3,3 nm). La croissance de l'échantillon A<sub>4</sub> a été interrompue à 13 MC (3,9 nm), celle de l'échantillon A<sub>5</sub> à 17 MC. Pour l'échantillon A<sub>6</sub>, la croissance a été interrompue plus tardivement, à l'épaisseur de 33 MC (10 nm). Pour l'échantillon B, les paramètres sont

---

\* Ces échantillons ont également fait l'objet d'une étude mettant en évidence les différences de morphologie de surface 3D des couches en tension et des couches en compression ( $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{As} / \text{InP}$ ,  $\Delta a / a = - 2 \%$ ) épitaxiées dans les mêmes conditions [8].

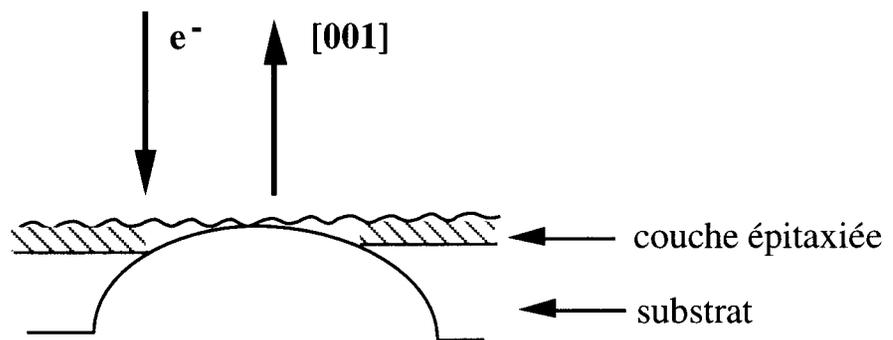


figure III, 2: Représentation schématique d'un échantillon aminci d' $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As} / \text{InP}$  montrant les conditions d'observation dans le microscope électronique à transmission.

tels que la croissance s'est déroulée dans des conditions dites "hors-équilibre" (vitesse de croissance élevée), ce qui nous permettra d'apprécier l'influence des conditions d'enclenchement du mode de croissance 3D sur la morphologie de surface des échantillons. Dans ce cas, la croissance s'est faite de façon bidimensionnelle jusqu'à l'épaisseur de 12 MC, épaisseur à laquelle elle a été interrompue. L'échantillon a alors été maintenu à la température de 525°C en baissant progressivement le flux d'arsenic pour provoquer la transition 2D / 3D du mode de croissance. L'échantillon a ensuite été maintenu à la même température pendant 2 mn, de façon à laisser la croissance 3D se développer complètement.

### III. 1. 2) Conditions d'observation en microscopie à champ proche

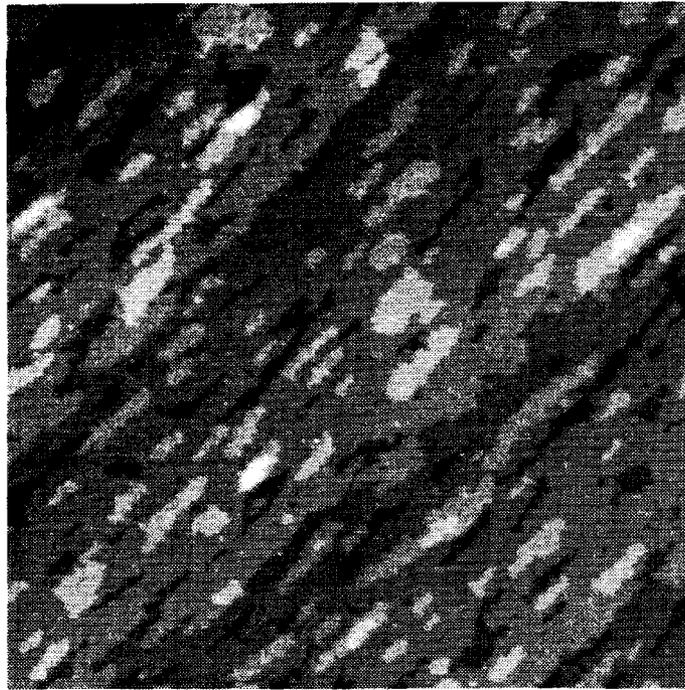
Pour les échantillons de type A (excepté pour l'échantillon A<sub>6</sub>) les observations en microscopie à champ proche ont été réalisées en STM in-situ immédiatement après la croissance (Y. Robach et P. Krapf). Les images ont été acquises avec un courant tunnel de 0,2 nA et sous une tension d'échantillon de + 2,5 V. La pointe est une pointe de Pt<sub>0,8</sub>Ir<sub>0,2</sub> gravée électrochimiquement. L'échantillon A<sub>6</sub>, qui a été élaboré indépendamment des échantillons précédents, n'a pas pu être observé en STM. Il en est de même pour l'échantillon B, qui provient d'une série de croissance antérieure à la série A. C'est pourquoi nous avons observé ces échantillons en Microscopie à force Atomique ex-situ au LSPES, en collaboration avec D. Ferré. Les observations ont été réalisées sur un appareil de marque Digital Instrument travaillant en mode "tapping" et avec des pointes de silicium. Pour toutes les observations, les images caractéristiques ont été acquises à divers endroits de la surface des échantillons et suivant plusieurs directions de balayage afin de s'assurer de leur représentativité.

### III. 1. 3) Préparation des échantillons pour les observations MET

Pour les observations en MET (plan-view), les échantillons ont été amincis par bombardement ionique du côté du substrat (InP) dans les conditions suivantes: tension d'accélération ionique: 3,5 kV, courant ionique: 0,25 mA, angle d'inclinaison du faisceau: 13°. Il a été vérifié sur des échantillons de substrat d'InP que ces conditions d'amincissement permettaient d'obtenir des lames minces de bonne qualité et sans artefacts.

Les échantillons sont orientés dans le microscope comme indiqué sur la **figure III, 2**: le faisceau électronique est parallèle à la direction de croissance des échantillons et la surface de la couche épitaxiée est située du côté de la face d'entrée des électrons. Les vecteurs de diffraction utilisés pour l'observation des contrastes sont les vecteurs de type

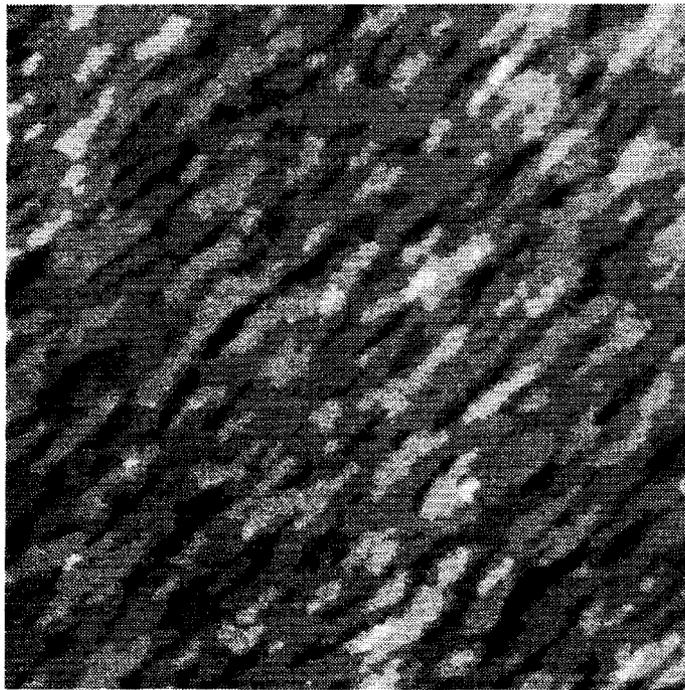
a



50 nm

$[1\bar{1}0]$  ↗

b



50 nm

figure III, 3: Images STM des échantillons A<sub>1</sub> (5 MC, a) et A<sub>2</sub> (9 MC, b). D'après Y. Robach et P. Krapf [8].

$\langle 220 \rangle$  et  $\langle 400 \rangle$  du plan (001). Ainsi que nous le verrons, ces vecteurs sont en effet très sensibles aux variations des champs de déplacement.

### **III, 2) Observations en microscopie à champ proche**

#### **III, 2, 1) Echantillons de type A**

Sur les **figures III, 3, a et b** sont reproduites les images STM obtenues sur les échantillons  $A_1$  (5 MC) et  $A_2$  (9 MC) respectivement. Ces images montrent l'augmentation progressive de la rugosité 3D anisotrope. Pour l'épaisseur de 5 MC, on observe des plateaux, de hauteur 0,6 nm (2 MC), allongés suivant la direction  $[1 \bar{1} 0]$  et séparés par des vallées à fond plat. Pour l'épaisseur de 9 MC, les plateaux ont des hauteurs de 0,9 nm (3 MC) et on commence à observer entre les plateaux des trous isolés allongés suivant la direction  $[1 \bar{1} 0]$ .

Sur la **figure III, 4, a** est reproduite une image STM caractéristique de la surface de l'échantillon  $A_5$  (17 MC). On constate la présence de trous (en noir), à présent bien définis et allongés suivant la direction  $[1 \bar{1} 0]$ . Ces trous sont isolés les uns des autres par des surfaces planes apparaissant en blanc sur cette figure. Comme on peut le constater sur l'image de la figure III, 4, a, les trous ne sont pas très réguliers et leurs dimensions sont assez variables. On peut cependant définir leurs dimensions moyennes qui sont les suivantes:

hauteur:  $h = 3,5 \pm 0,5 \text{ nm}$ ,

largeur suivant la direction  $[110]$ :  $l_x = 30 \pm 5 \text{ nm}$ ,

longueur suivant la direction  $[1 \bar{1} 0]$ :  $l_y = 100 \pm 25 \text{ nm}$ .

L'angle  $\alpha$  fait par les faces latérales des trous et le plan de la surface (001) est en moyenne de  $14^\circ$ . Nous avons procédé à une étude détaillée des profils des trous et des îlots le long de la direction  $[110]$ . Le profil représenté sur la **figure III, 4, b** est représentatif de l'ensemble des profils obtenus. On voit sur ce profil que les trous ont une forme en "V" et que les zones les séparant sont planes. Ainsi, on peut schématiser la surface dans la direction  $[110]$  par le modèle représenté sur la **figure III, 4, c**. L'espacement moyen  $p_x$  entre les trous est de l'ordre du double de leur largeur  $l_x$ .

Ce type de morphologie 3D bien définie se rencontre sur les échantillons de la série A dès l'épaisseur de 11 MC et l'image présentée sur la figure III, 4, a est en fait représentative de la morphologie de surface des couches à partir de cette épaisseur. Pour l'épaisseur de 11 MC (échantillon  $A_3$ ), la profondeur moyenne des trous relevée en STM est de 1,5 nm et pour l'épaisseur de 13 MC (échantillon  $A_4$ ), elle est de 2,1 nm.

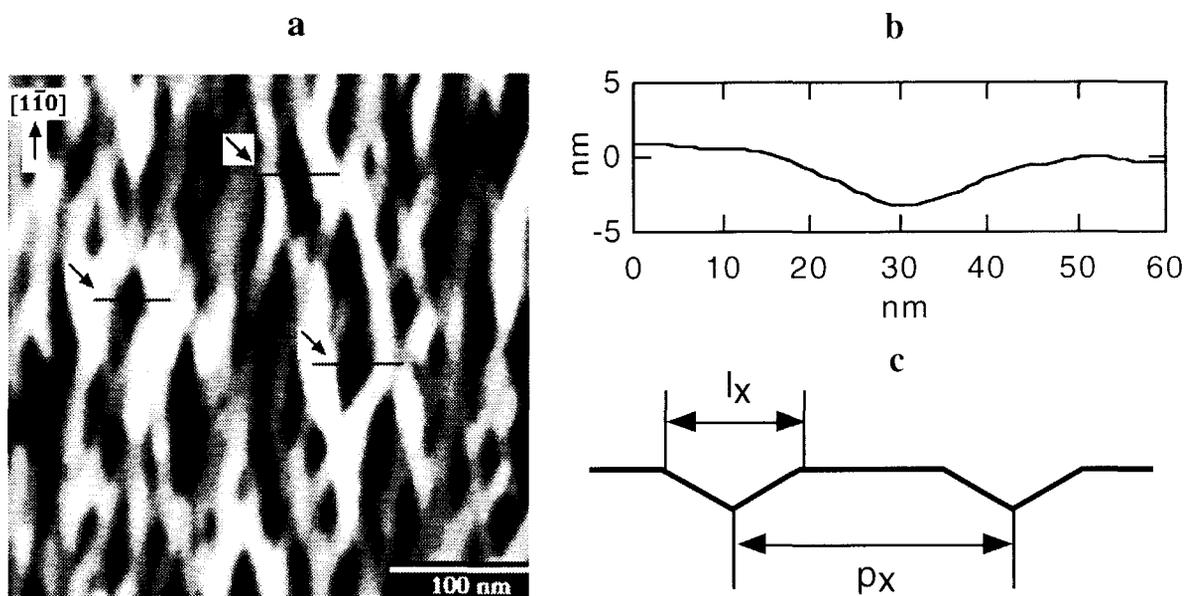


figure III. 4: (a): Image STM de l'échantillon A<sub>5</sub> (17 MC) (d'après P. Krapf, Y. Robach, M. Phaner et L. Porte, résultats non publiés). Les flèches indiquent les endroits où les profils ont été relevés. (b): Profil caractéristique des profils relevés en (a). (c): Représentation schématique de la topographie de surface de l'échantillon A<sub>5</sub>.

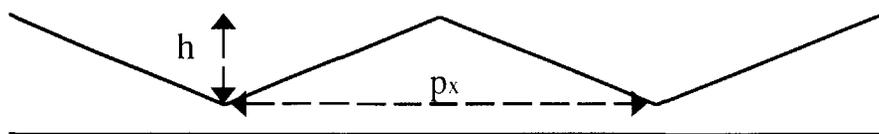


figure III. 5: Représentation schématique de la surface de l'échantillon A<sub>6</sub> (33 MC), déduite des observations AFM.  $h = 6 \text{ nm}$ ,  $p_x = 60 \text{ nm}$ .

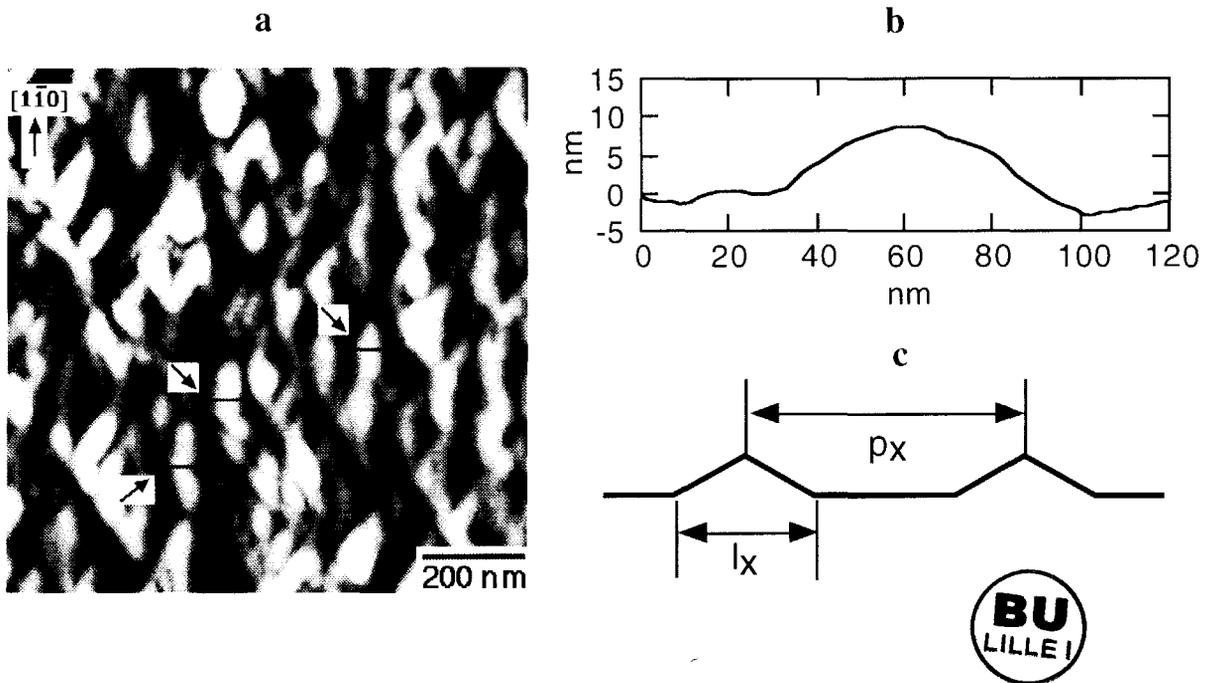


figure III, 6: (a): Image AFM de l'échantillon B (12 MC). Les flèches indiquent les endroits où les profils ont été relevés. (b): Profil caractéristique des profils relevés en (a). (c): Représentation schématique de la topographie de surface de l'échantillon B.



Pour une épaisseur de couche plus importante (échantillon A<sub>6</sub>, 33 MC), on observe toujours la présence de trous allongés suivant la direction [1 10] (longueur moyenne 150 nm). Cependant, les observations montrent que la morphologie de surface suivant la direction [110] se caractérise à présent par une ondulation régulière qui peut être représentée schématiquement par le profil de la **figure III, 5**. Les dimensions caractéristiques de cette ondulation sont les suivantes: hauteur 6 nm, période 60 nm.

### III. 2. 2) Echantillon B

La surface de l'échantillon B est caractérisée pour sa part par des îlots, comme on peut le voir sur l'image AFM de la **figure III, 6, a**. Les dimensions de ces îlots sont en moyenne les suivantes:

hauteur:  $h = 6 \pm 1 \text{ nm}$ ,

largeur :  $l_x = 50 \pm 10 \text{ nm}$ ,

longueur :  $l_y = 150 \pm 25 \text{ nm}$ .

Le profil représenté sur la **figure III, 6, b** est caractéristique de l'ensemble des profils de la surface le long de la direction [110]. Ce profil montre que pour cet échantillon, les surfaces entre les îlots sont planes, tandis que les îlots présentent des formes en "V" (l'angle  $\alpha$  entre les faces des îlots et la surface (001) est encore de l'ordre de 14°). La surface peut donc être schématisée dans la direction [110] par le profil représenté sur la **figure III, 6, c** (avec  $p_x / l_x \approx 2$ ).

### III. 2. 3) Conclusion

Les observations en microscopie à champ proche montrent que pour ces deux types d'échantillons (A et B), les conditions de croissance ont abouti, à ces stades de la croissance, à des morphologies 3D de surface différentes : pour les échantillons de type A, ce sont les trous qui sont isolés et séparés par des surfaces planes (à partir de l'épaisseur de 11 MC), tandis que pour l'échantillon B, ce sont les îlots qui sont isolés et séparés par des zones planes. Les défauts présents à la surface de ces deux échantillons (trous ou îlots) ont des formes assez irrégulières mais nous avons pu cependant déterminer les dimensions moyennes de ces défauts ainsi que les profils représentatifs de la surface des deux échantillons. Ces données pourront être exploitées pour calculer les champs de déformation associés aux morphologies de surface des couches par la méthode des éléments finis.

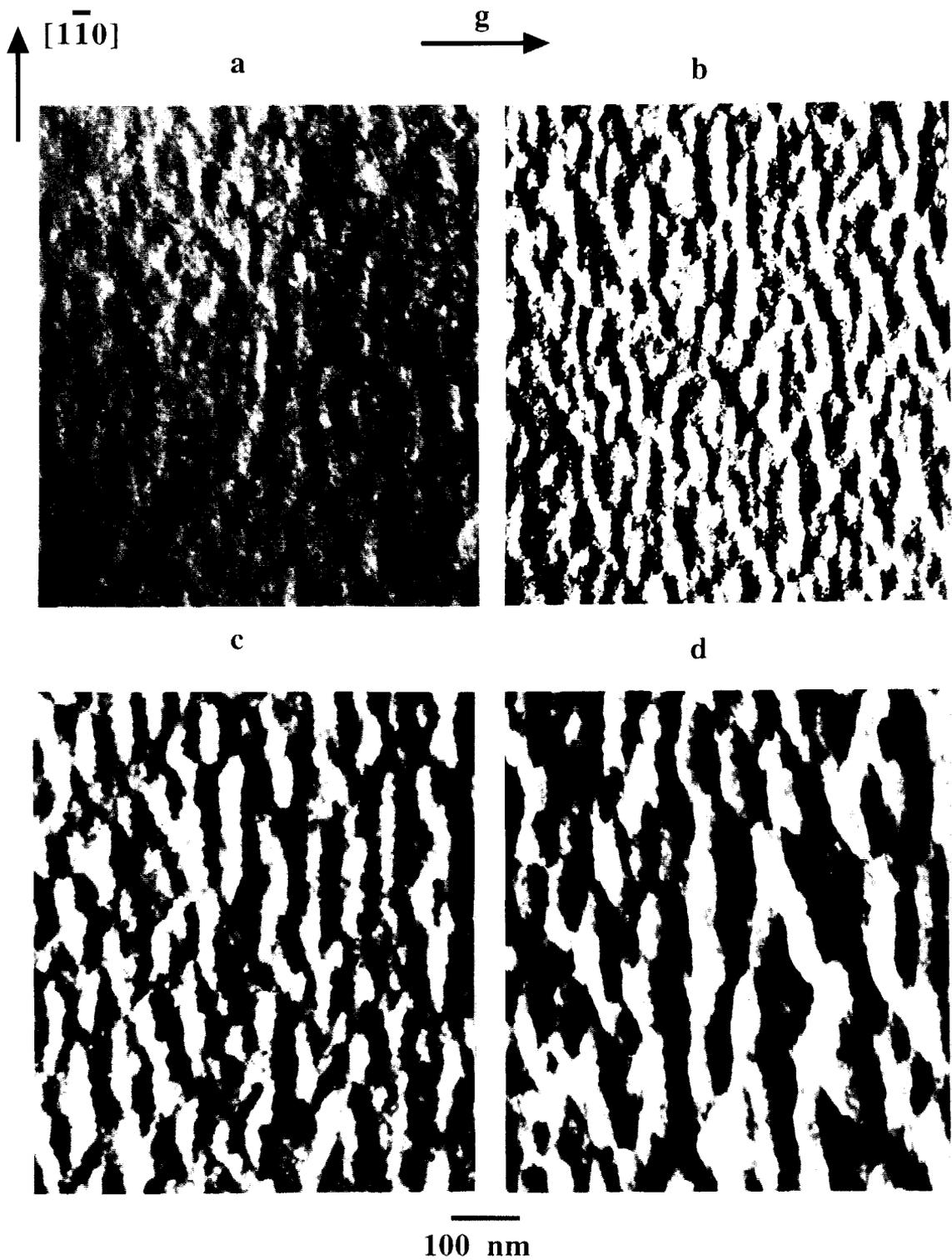


figure III. 7: Micrographies MET des échantillons A<sub>3</sub> (a), A<sub>4</sub> (b), A<sub>5</sub> (c) et A<sub>6</sub> (d).  
Champs noirs,  $g = 220$ .

### III, 3) Observations en MET

Nous présentons dans cette partie l'ensemble des résultats de microscopie électronique en transmission obtenus sur les échantillons de la série A et sur l'échantillon B. Ainsi que nous l'avons décrit dans le deuxième chapitre de ce rapport, le but de ces observations est d'enregistrer les contrastes MET associés aux défauts présents à la surface des échantillons, afin de les comparer à des résultats de simulation issus de calculs par éléments finis. Pour que cette comparaison soit possible, il faut disposer de contrastes expérimentaux remplissant certaines conditions: ils doivent être suffisamment intenses pour pouvoir être acquis dans de bonnes conditions (sensibilité de la caméra CCD) et ils doivent être isolés, c'est à dire être entourés par des zones non déformées et présentant donc une intensité constante qui sert de référence pour calculer les contrastes. Comme nous allons le voir par la suite, ces conditions ne seront remplies que pour deux échantillons.

#### III, 3, 1) Echantillons de la série A

Sur la **figure III, 7** sont reproduites les images MET obtenues sur les échantillons A<sub>3</sub> (11 MC), A<sub>4</sub> (13 MC), A<sub>5</sub> (17 MC) et A<sub>6</sub> (33 MC) (figures III, 7, a, b, c, et d respectivement), en champ noir et avec le vecteur de diffraction  $g = 220$ . Sur l'échantillon A<sub>3</sub> (11 MC, **figure III, 7, a**), on n'observe que des variations d'intensité faibles et irrégulières. De même, pour les observations réalisées sur les échantillons A<sub>1</sub> (5 MC) et A<sub>2</sub> (9 MC), nous n'avons pas pu relever de contrastes suffisamment importants et qui auraient pu être associés à l'ondulation de la surface à ces stades de la croissance. La sensibilité de la MET est donc ici insuffisante pour que l'on puisse caractériser les champs de déformation associés à l'ondulation de la surface à ce stade de la croissance. Pour l'épaisseur de 13 MC (échantillon A<sub>4</sub>, **figure III, 7, b**), on observe des contrastes noir / blanc allongés suivant la direction  $[1 \bar{1} 0]$ . Ces contrastes sont caractéristiques de défauts 3D situés à la surface des échantillons [9, 10, 11] et ils sont dus aux champs de déformation hétérogènes créés par ces défauts suivant la direction parallèle à  $g$ . Sur l'échantillon A<sub>5</sub> (17 MC, **figure III, 7, c**) les contrastes sont plus forts que sur l'échantillon précédent et ils sont cernés par un fond gris plus ou moins étendu. Pour cet échantillon, nous avons pu procéder à une analyse plus détaillée des contrastes. Cette analyse sera présentée dans le dernier paragraphe de cette partie. Pour l'épaisseur de 33 MC (échantillon A<sub>6</sub>, **figure III, 7, d**), on ne distingue plus de contrastes noir / blanc isolés mais des variations continues d'intensité. Sur cet échantillon, on ne peut donc plus associer un contraste à un défaut particulier et l'étude en MET des champs de déformation ne pourra pas être approfondie.

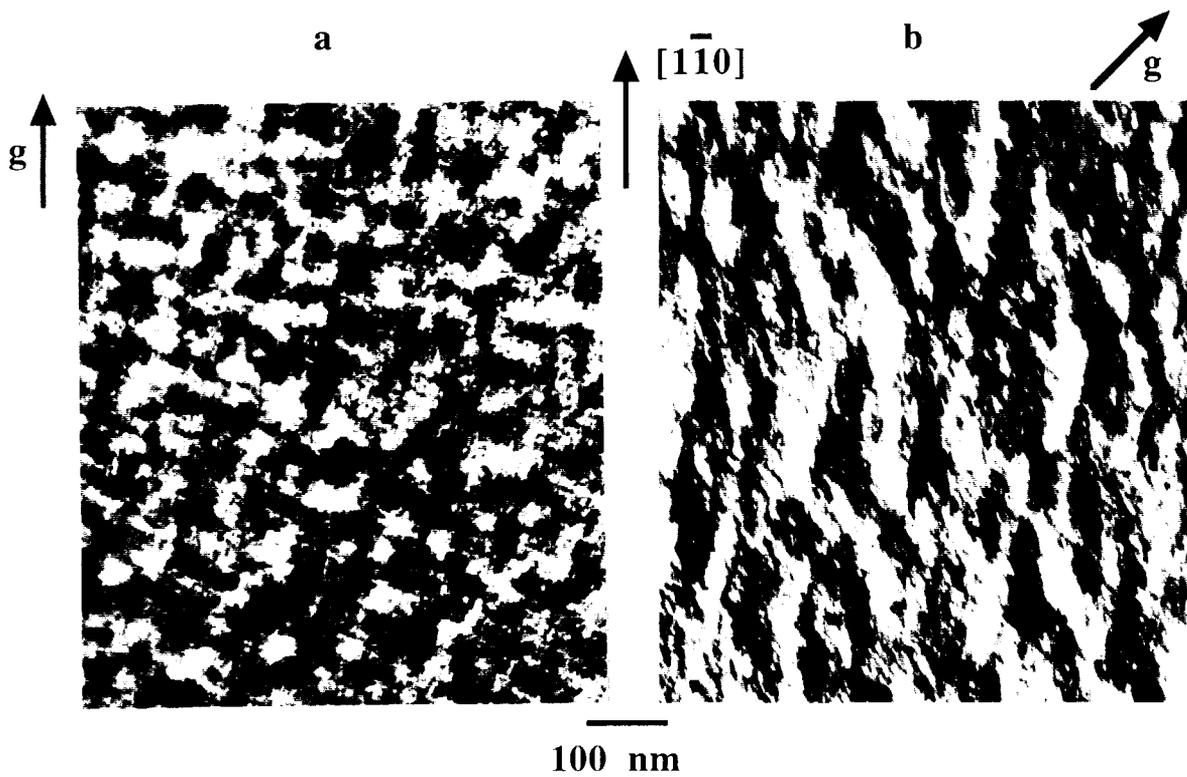


figure III, 8: Micrographie MET en champ noir de l'échantillon A5. (a)  $g = \bar{2}20$ , (b)  $g = 400$ .

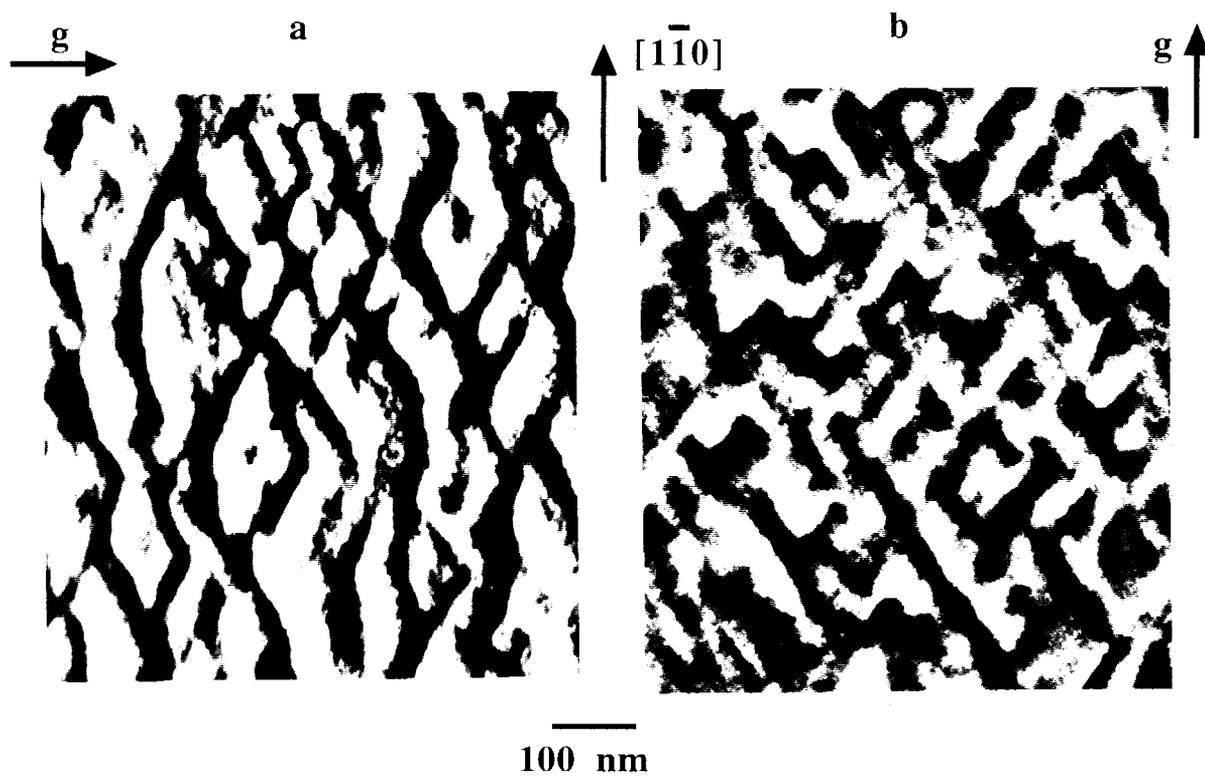


figure III, 9: Micrographie MET en champ noir de l'échantillon B. (a)  $g = 220$ , (b)  $g = \bar{2}20$ .

Sur les **figures III, 8 a et b** sont regroupées les observations réalisées sur l'échantillon A<sub>5</sub>, avec les vecteurs de diffraction  $\mathbf{g} = 2\bar{2}0$  et 400 respectivement. Avec le vecteur de diffraction  $\mathbf{g} = 2\bar{2}0$ , les contrastes allongés suivant la direction  $[1\bar{1}0]$  précédemment observés sont pratiquement éteints. On en conclue donc que les champs de déformation créés par l'ondulation de surface sur ces échantillons sont négligeables dans la direction  $[1\bar{1}0]$  ( $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R} \approx 0$  avec  $\mathbf{g} = 2\bar{2}0$ ). Avec le vecteur  $\mathbf{g} = 400$ , on observe encore des contrastes allongés suivant la direction  $[1\bar{1}0]$  mais ils sont nettement moins intenses que ceux observés avec le vecteur de diffraction  $\mathbf{g} = 220$ . Ceci confirme le fait que les composantes les plus importantes du champ de déformation sont essentiellement parallèles à la direction  $[110]$ .

### III. 3. 2) Echantillon B

Sur les **figures III, 9 a et b** sont reproduites les observations réalisées sur l'échantillon B, en champ noir et avec les vecteurs de diffraction  $\mathbf{g} = 220$  et  $\mathbf{g} = 2\bar{2}0$  respectivement. Avec le vecteur de diffraction  $\mathbf{g} = 220$ , on observe des contrastes noir / blanc intenses, allongés suivant la direction  $[1\bar{1}0]$  et cernés par un fond gris. Avec le vecteur de diffraction  $\mathbf{g} = 2\bar{2}0$ , on constate que les contrastes allongés suivant  $[1\bar{1}0]$  précédemment observés sont pratiquement éteints. On observe toutefois des contrastes noir / blanc en forme de chevrons irréguliers. Ces contrastes s'avèrent trop compliqués pour pouvoir être analysés de façon plus précise (on pourra toutefois en rendre compte grâce aux calculs des champs de contrainte associés aux défauts sur cet échantillon). Nous notons cependant que l'extension spatiale de ces contrastes est nettement moins grande que celle des contrastes observés avec  $\mathbf{g} = 220$  et que pour cet échantillon encore, nous pouvons estimer que les composantes les plus importantes du champ de déformation sont essentiellement parallèles à la direction  $[110]$ .

### III. 3. 3) Analyse des contrastes (échantillons A<sub>5</sub> et B)

Dans le but de les comparer avec des résultats de simulation, nous avons procédé à une analyse plus détaillée des contrastes obtenus avec le vecteur de diffraction  $\mathbf{g} = 220$ . Pour les échantillons de la série A, cette analyse a pu se faire pour l'échantillon A<sub>5</sub> (17 MC), pour lequel les contrastes noir / blanc sont intenses et généralement séparés entre eux par un fond gris.

La micrographie de la **figure III, 10, a** est une image obtenue à 300 kV sur l'échantillon A<sub>5</sub>, en condition deux ondes et en champ noir avec le vecteur de diffraction

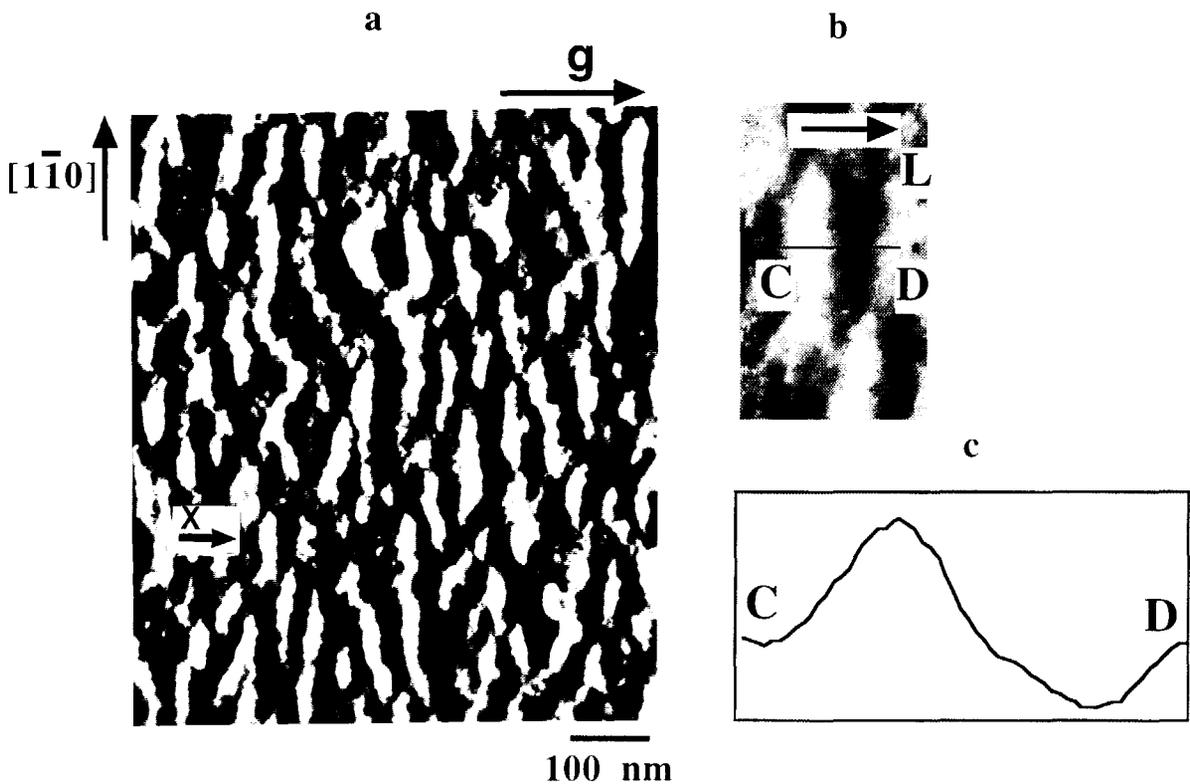


figure III, 10: (a): Micrographie MET en champ noir de l'échantillon A<sub>5</sub>.  $g = 220$ ,  $w = -0,74$ , épaisseur de l'échantillon  $t = 260$  nm.(b): Agrandissement de la zone repérée par la lettre X sur (a). Par définition, le vecteur  $L$  pointe du lobe blanc vers le lobe noir. (c): Profil d'intensité le long de la ligne CD définie sur (b).

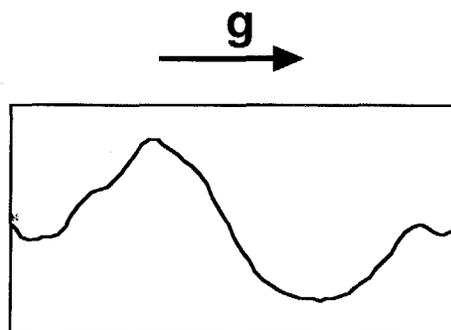


figure III, 11: Autre exemple de profil d'intensité obtenu sur l'échantillon A<sub>5</sub> (même zone et mêmes conditions d'observation que pour celui de la figure III, 10), montrant l'hétérogénéité des contrastes associés aux défauts sur l'échantillon A<sub>5</sub>.

$g = 220$ . L'échantillon est incliné de façon à ce que l'écart à la diffraction s'aille ( $- 1,00 \pm 0,03$ )  $\times 10^{-2}$  nm<sup>-1</sup>, soit  $w = s\xi_g = - 0,74 \pm 0,02$ . L'épaisseur de l'échantillon mesurée par diffraction en faisceaux convergents à l'endroit de l'observation vaut  $t = 260 \pm 5$  nm. Sur cette image, on observe très nettement des contrastes noir / blanc isolés. Pour chaque contraste noir / blanc, la ligne de séparation entre le lobe noir et le lobe blanc est perpendiculaire à la direction de  $g$  et on peut définir un vecteur  $L$  pointant du lobe blanc vers le lobe noir, comme indiqué sur l'agrandissement de la **figure III, 10, b**. Sur cet échantillon, on remarque que les contrastes présentent la caractéristique suivante: le vecteur  $L$  est systématiquement parallèle au vecteur  $g$ , aussi bien en champ clair qu'en champ noir. Sur la **figure III, 10, c**, nous avons reproduit un profil d'intensité relevé sur les contrastes noir / blanc parallèlement à la direction de  $g$ . Un autre profil obtenu sur la même zone d'observation et dans les mêmes conditions est présenté sur la **figure III, 11**. On voit que ces profils ne sont pas très reproductibles dans leur détail, la forme des lobes clairs ou sombres variant d'un profil à l'autre. Ce manque de reproductibilité des profils MET est à associer à l'irrégularité des formes des défauts de surface relevée en STM sur cet échantillon et ce point constituera une limite importante à la comparaison des profils expérimentaux et des profils simulés.

La **figure III, 12, a** représente l'image de l'échantillon B obtenue en champ noir avec le vecteur de diffraction  $g = 220$  dans les conditions d'observation suivantes:  $w = - 0,52 \pm 0,02$ , épaisseur de l'échantillon  $t = 210 \pm 5$  nm. On y retrouve des contrastes noir / blanc allongés suivant la direction  $[1 \bar{1}0]$ . Ces contrastes présentent avec les contrastes obtenus sur l'échantillons A<sub>5</sub> la différence importante suivante: pour chaque contraste noir / blanc, le vecteur  $L$ , repéré sur l'agrandissement de la **figure III, 12, b**, est ici systématiquement antiparallèle à  $g$  (inversion du contraste entre les échantillons A<sub>5</sub> et B). Un profil d'intensité relevé parallèlement au vecteur  $g$  sur ces contrastes est reproduit sur la **figure III, 12, c**. De la même façon que dans le cas de l'échantillon A<sub>5</sub>, les profils obtenus sont assez peu reproductibles. On remarque cependant une légère modulation du lobe clair sur ce profil. Cette modulation se retrouve fréquemment sur les profils expérimentaux mais on la trouve indifféremment sur les lobes clairs ou sombres.

*Remarques: Caractéristiques des contrastes noir / blanc ( $g = 220$ )*

1°) Le comportement des contrastes élastiques obtenus sur les échantillons A<sub>5</sub> et B avec le vecteur de diffraction  $g = 220$  ( $L$  parallèle à  $g$  pour A et anti-parallèle à  $g$  pour B) est valable pour des épaisseurs de lame suffisamment grandes (contrastés "dynamiques") et dans les conditions d'observation décrites par la figure III, 2 (couche épitaxiée située du côté de la face d'entrée des électrons). Si on retourne l'échantillon dans le microscope,

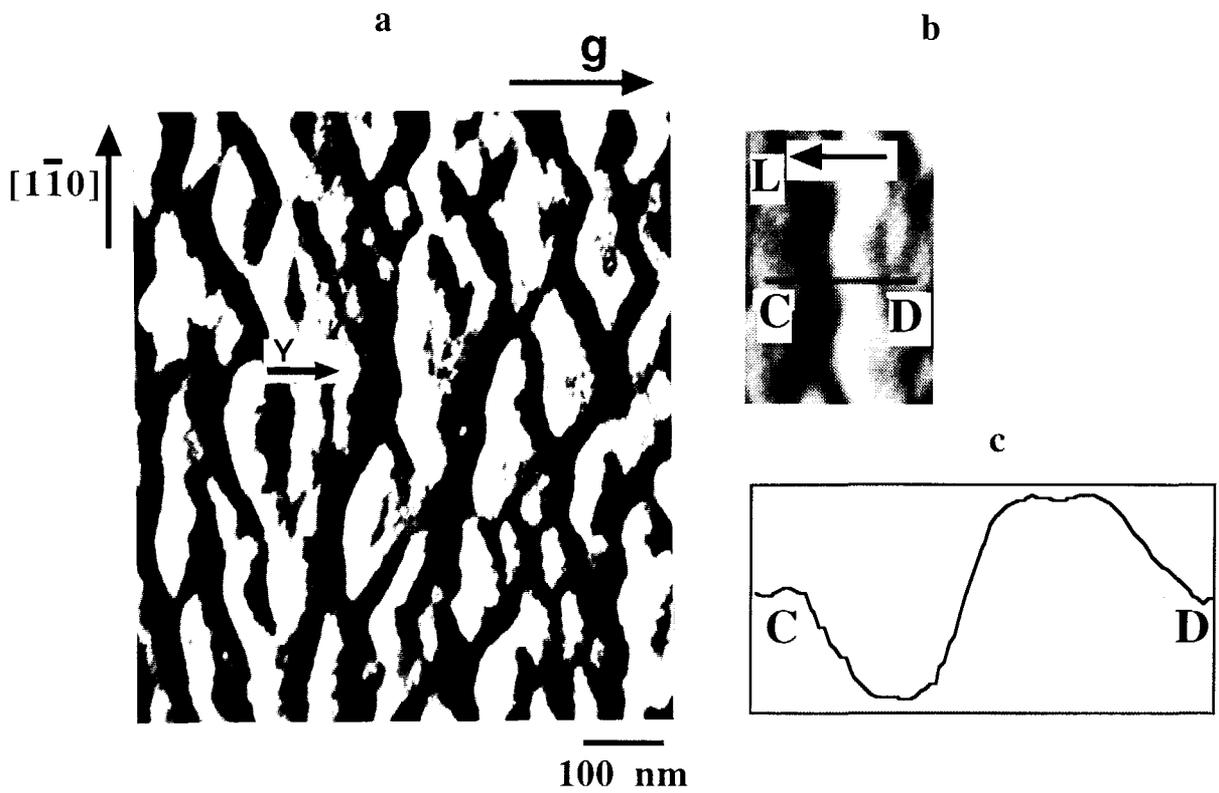


figure III, 12: (a): Micrographie MET en champ noir de l'échantillon B.  $g = 220$ ,  $w = -0,52$ ,  $t = 210$  nm. (b): Agrandissement de la zone repérée par Y sur (a). (c): Profil d'intensité le long de la ligne CD définie sur (b)

ces caractéristiques sont encore valables en champ noir mais plus en champ clair. Ce point sera discuté dans la dernière partie de ce chapitre.

2°) Les images des figures III, 10 et 12 ont été obtenues en champ noir, avec des valeurs de  $s$  légèrement négatives ( $s = - 1,0 \times 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$  et  $s = - 0,7 \times 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$  respectivement). Ces conditions correspondent aux conditions expérimentales pour lesquelles les contrastes associés aux défauts sont les plus grands (en champ clair, les contrastes sont moins forts). Ces caractéristiques proviennent du fait que les défauts responsables des contrastes sont situés sur la surface de la lame, du côté de la face d'entrée des électrons [12]. Si l'on retourne l'échantillon dans le microscope, les contrastes les plus forts en champ noir sont obtenus avec des valeurs de  $s$  positives.

### III, 3, 4) Conclusion

Les observations en MET réalisées sur les échantillons A et B montrent que les défauts de surface relevés en microscopie à champ proche créent des champs de déplacement hétérogènes dans les échantillons. Ces hétérogénéités des champs de déplacement sont responsables des contrastes noir / blanc allongés suivant la direction  $[1 \bar{1}0]$  et visibles avec le vecteur de diffraction  $\mathbf{g} = 220$ . La comparaison des images obtenues avec ce vecteur de diffraction et le vecteur  $\mathbf{g} = 2\bar{2}0$  montre que les variations des champs de déplacement se font essentiellement dans les plans (110). Sur deux échantillons (échantillons A<sub>5</sub> et B) nous avons pu isoler les profils caractéristiques des contrastes noir / blanc obtenus avec le vecteur  $\mathbf{g} = 220$ . Pour ces profils, nous avons relevé les conditions expérimentales précises (valeurs de  $s$  et  $t$ ) avec lesquelles les images avaient été obtenues. Ce sont ces profils qui seront comparés aux simulations pour valider les calculs par éléments finis des champs de déplacement associés aux morphologies de surface des échantillons A<sub>5</sub> et B.

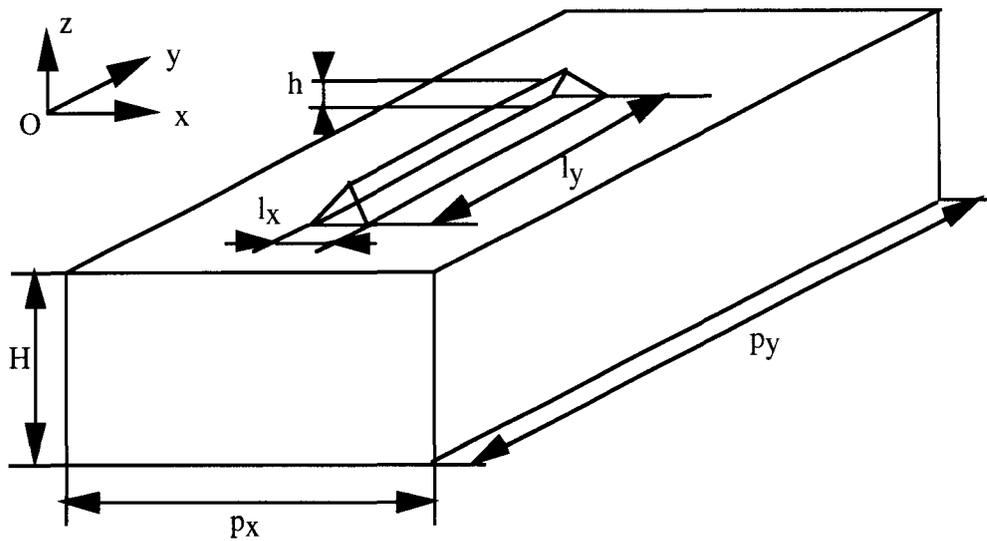


figure III, 13: Représentation de la cellule utilisée dans les calculs par éléments finis pour les îlots. Les facettes font un angle  $\alpha$  par rapport au plan de la surface. Pour les trous,  $h$  est inversé par rapport à la direction  $[0z]$ . Une troncature peut être introduite au sommet des îlots (ou dans le fond des trous).

### III, 4) Calculs par éléments finis

Les calculs par éléments finis des champs de déplacement associés à l'ondulation de la surface des échantillons A<sub>5</sub> et B ont été réalisés sur des modèles tridimensionnels de trous et d'îlots dont les rapports d'aspect sont issus des observations en microscopie à champ proche. Avant de décrire les résultats des calculs de champ de déformation, nous décrivons les modèles utilisés pour réaliser ces calculs.

#### III, 4, 1) Modèles utilisés

Pour réaliser les calculs des champs de contrainte et de déformation associés aux morphologies de surface des échantillons A<sub>5</sub> et B, ces derniers sont modélisés à l'aide d'une structure périodique incluant les défauts 3D (trous ou îlots) distribués sur un maillage rectangulaire à la surface 2D (001). Si cette approximation est justifiée dans la direction [110] par les profils de surface représentés sur les figures III, 4, c et III, 6, c, elle peut paraître grossière pour décrire la topographie de surface des échantillons suivant la direction [1  $\bar{1}$ 0]. Dans cette direction en effet, les observations en microscopie à champ proche (figures III, 4 a et III, 6, a) montrent que les défauts sont plutôt disposés en quinconce. Cependant, compte tenu de la faiblesse des variations des champs de déplacement dans la direction [1  $\bar{1}$ 0] (variations indiquées par les observations MET avec  $g = 2\bar{2}0$ , figures III, 8, a et III, 9, b), nous pouvons estimer que l'arrangement des défauts dans cette direction influe peu sur les champs de déplacement et c'est pourquoi l'approximation de l'arrangement des défauts sur un maillage rectangulaire a été utilisée. On peut alors définir une cellule rectangulaire construite sur deux axes perpendiculaires ([Ox] // [110] et [Oy] // [1  $\bar{1}$ 0]), de dimensions  $p_x$ ,  $p_y$ , H (H est l'épaisseur de l'ensemble substrat / couche tampon / couche d'InGaAs 2D. De façon générale,  $H \gg h$ ) et centrée sur le défaut. Le défaut (trou ou îlot) est modélisé à l'aide d'une pyramide allongée dans la direction [Oy], et dont les faces sont inclinées de l'angle  $\alpha$  par rapport au plan de la surface (001) (voir la **figure III, 13** dans le cas d'un îlot). Les dimensions du défaut à l'intérieur de la cellule sont  $l_x$ ,  $l_y$ , h (h est la hauteur des îlots ou la profondeur des trous). Une troncature peut également être introduite au sommet des îlots (ou dans le fond des trous) en faisant varier l'angle  $\alpha$  et en gardant le rapport d'aspect  $h / l_x$  constant. Nous pourrions ainsi tenir compte des variations possibles de la forme des défauts par rapport aux profils schématisés des défauts représentés sur les figures III, 4, c et III, 6, c.

Les calculs sont réalisés en appliquant les conditions aux limites suivantes, associées à la périodicité le long de [Ox] et [Oy]: les noeuds appartenant aux faces latérales (Ox) et (Oy) de la cellule sont fixes dans les directions [Ox] et [Oy]

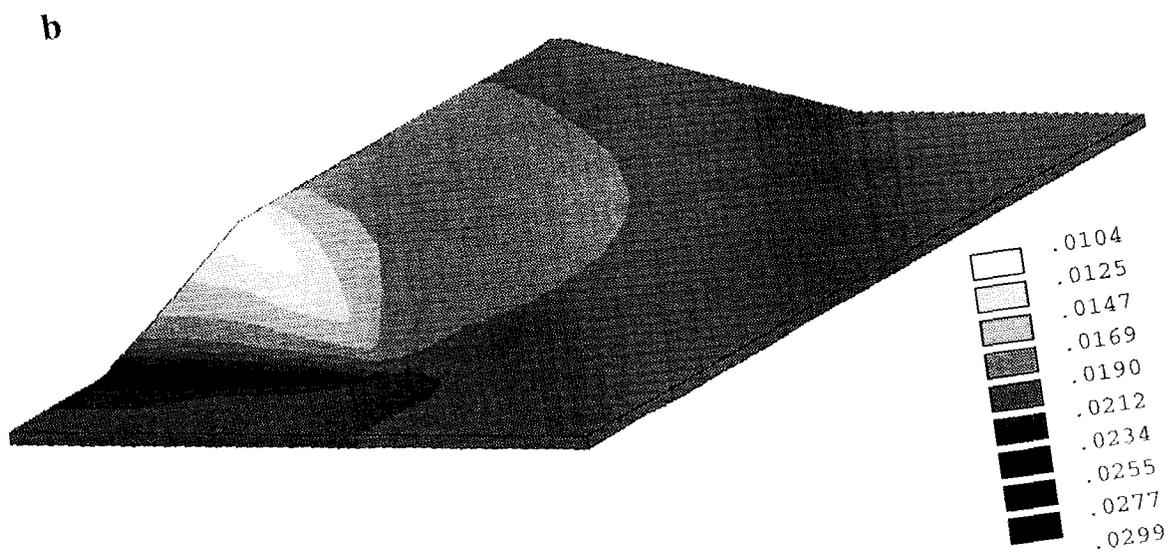
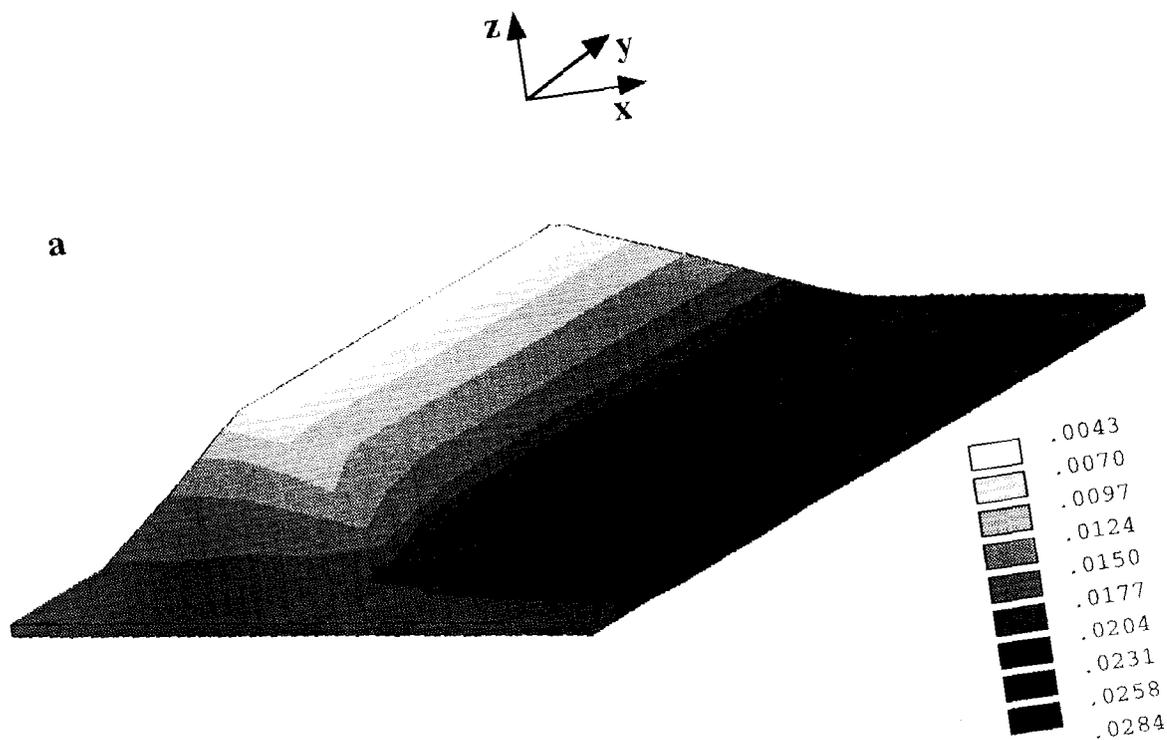


figure III. 14: Champs de déformation calculés par la méthode des éléments finis sur le modèle d'îlot dans la couche d' $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$  ( $x, y, z \geq 0$ ).  $\alpha = 14^\circ$ ,  $h / l_x = 0,12$ ,  $p_x / l_x = 2$ ,  $l_x / l_y = 0,33$ ,  $p_x / p_y = 0,66$ . (a):  $\epsilon_{xx}$ . (b):  $\epsilon_{yy}$ . Le substrat n'est pas représenté.

respectivement. Le maillage d'éléments finis est réalisé avec des éléments cuboïdes à 8 noeuds.

### III, 4, 2) Résultats des calculs

Les calculs présentés dans cette partie ont été réalisés avec des modèles de trous et d'îlots dont les rapports d'aspect sont ceux des défauts observés en microscopie à champ proche dans le cas des échantillons A<sub>5</sub> et B. Dans les deux cas, ces rapports sont en moyenne les suivants:

$$h / l_x = 0,12$$

$$p_x / l_x = 2$$

$$l_x / l_y = 0,33$$

$$p_x / p_y = 0,66$$

$$\alpha = 14^\circ$$

L'épaisseur H du substrat considérée dans les calculs est de 100 nm et il a été vérifié que les résultats d'éléments finis n'étaient pas affectés par l'interaction des champs de contrainte avec les surfaces libres (supérieure et inférieure) tant que l'épaisseur du substrat restait supérieure à 50 nm.

Sur la **figure III, 14** sont représentés les champs de déformation  $\epsilon_{xx}$  (a) et  $\epsilon_{yy}$  (b) obtenus dans le cas de l'îlot (x, y et z positifs). On voit sur ce modèle que les champs de déformation  $\epsilon_{xx}$  (**figure III, 14, a**) sont très faibles au sommet de l'îlot ( $\epsilon_{xx} = 0,0043$ ), sur toute la longueur de l'îlot. Les îlots assurent donc une relaxation importante en leur sommet, de l'ordre de 80 % de la déformation nominale ( $\epsilon_0 = 0,0198$ ). Cette relaxation décroît progressivement avec l'altitude dans l'îlot. Sur les bords de l'îlot, parallèlement à la direction [Oy], il existe une concentration de contrainte (surtension). Les champs de déformation y sont environ de 40 % supérieurs à la valeur de la déformation nominale ( $\epsilon_0 = 0,0198$ ). On constate d'autre part que les champs de déplacement  $\epsilon_{xx}$  sont invariants par translation suivant la direction [Oy] dans pratiquement tout le volume de l'îlot, excepté près des bords. Par la suite, on pourra donc se contenter de coupes perpendiculaires à la direction [Oy] pour décrire les déformations au sein de la couche. L'examen de la **figure III, 14, b**, montre que les variations des champs de déformation  $\epsilon_{yy}$  sont très faibles (valeurs proches de la valeur nominale:  $\epsilon_0 = 0,0198$ ) dans pratiquement tout le volume de l'îlot, excepté sur les bords parallèles à la direction [Ox]. Sur ces bords, il existe une relaxation de 50 % ( $\epsilon_{yy} \approx 0,010$ ) au sommet et une surtension à la base du même ordre de grandeur ( $\epsilon_{yy} \approx 0,030$ ). Pour ce type d'îlot allongé, on voit donc que les variations des champs de déformation concernent essentiellement la composante  $\epsilon_{xx}$ . Ces résultats sont également valables dans les cas des trous.

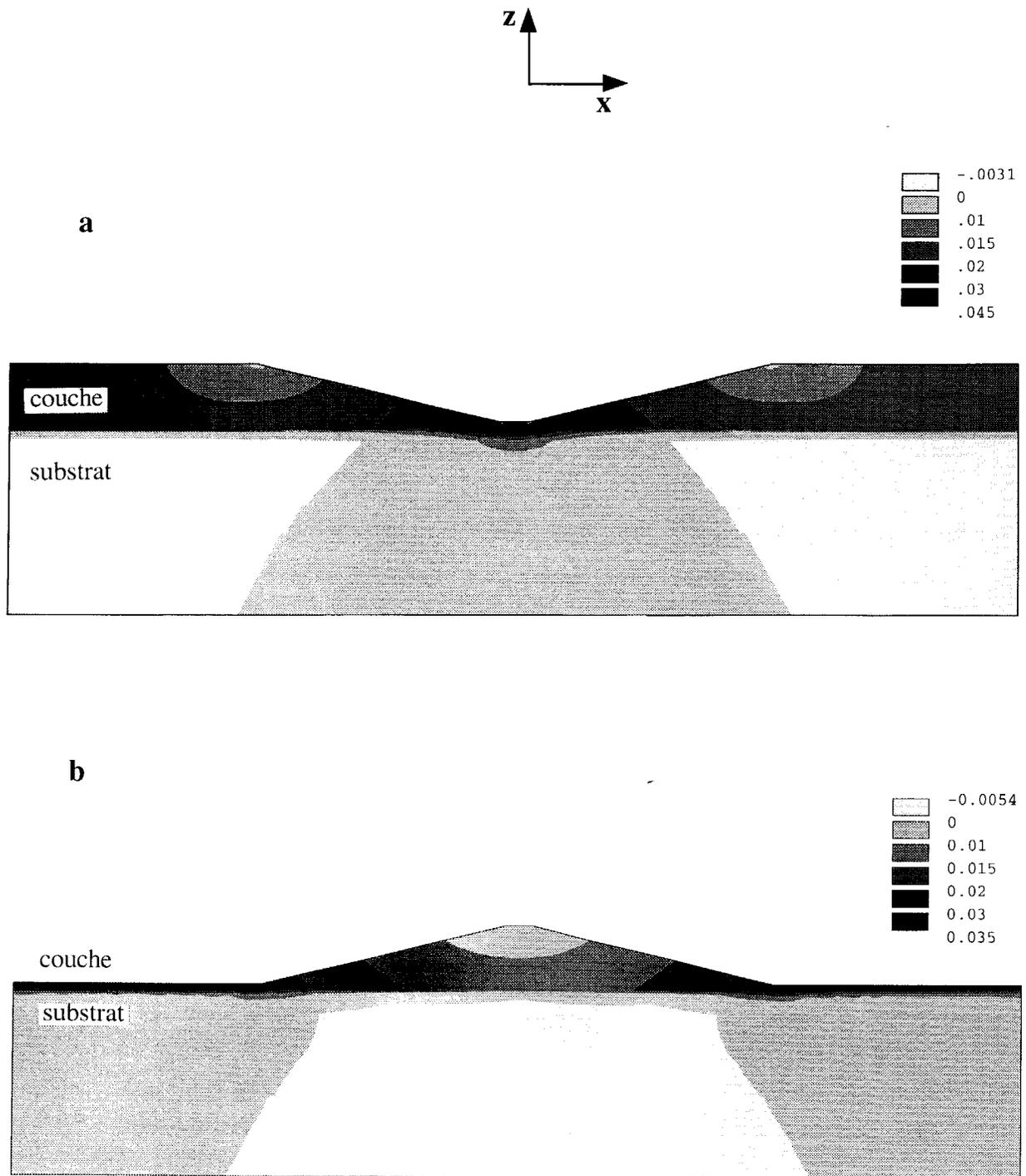


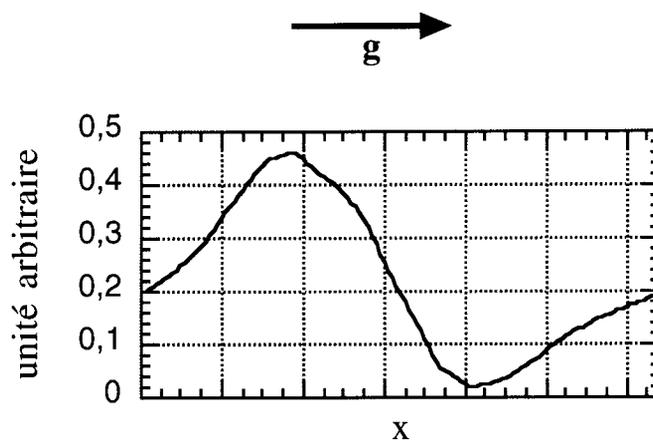
figure III, 15: Champs de déformation  $\epsilon_{xx}$  calculés par éléments finis dans le plan  $y = 0$   
 (a): Trou dans la couche d' $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ . (b): Ilot sur la couche d' $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ .

Sur la **figure III, 15** sont représentées les cartes des déformations  $\epsilon_{xx}$ , dans les plans médians des défauts ( $y = 0$ ), pour les trous (a) et les îlots (b). Dans les deux cas, une relaxation des contraintes se produit dans les régions les plus épaisses de la couche (sommet des îlots et bords des trous) tandis qu'une concentration des contraintes a lieu dans les régions les plus minces (bords des îlots et fond des trous). Le substrat encasse une partie des déformations et se retrouve en (légère) tension ( $\epsilon_{xx} > 0$ ) à l'aplomb des zones où la couche est en surtension et en (légère) compression ( $\epsilon_{xx} < 0$ ) à l'aplomb des zones où la couche est relaxée. Notons que l'existence de cette participation du substrat à la relaxation des couches 3D avait déjà été mise en évidence par d'autres auteurs sur des couches en compression [1, 4, 6, 11, 13].

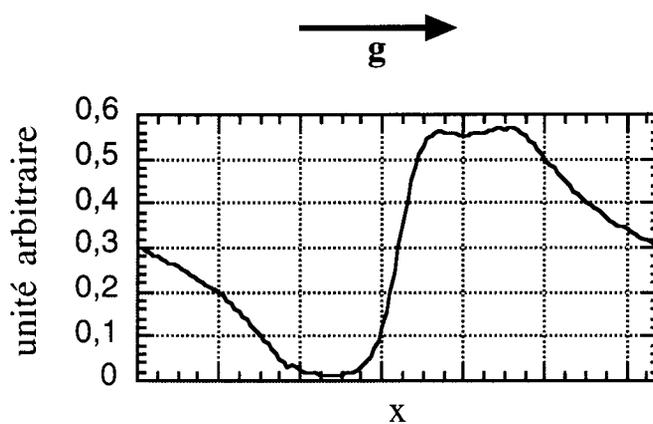
Ces calculs par éléments finis montrent que les trous et les îlots observés en microscopie à champ proche sur les échantillons A5 et B relaxent efficacement les contraintes dans la direction  $[Ox] // [110]$ . Pour les trous, cette relaxation a lieu sur les bords du défaut tandis que pour les îlots, elle a lieu au niveau du sommet du défaut. Dans les deux cas, on note une participation du substrat à la relaxation de la couche. Suivant la direction  $[Oy] // [1\bar{1}0]$ , les variations des champs de déformation sont faibles et il y a peu de relaxation des contraintes dans cette direction.

Afin de valider ces calculs, nous avons utilisé les résultats obtenus sur les champs de déplacement associés aux modèles de défaut précédemment décrits pour simuler les contrastes MET associés à ces défauts. Dans la prochaine partie, nous présentons ces résultats de simulation.

**a**



**b**



**figure III, 16:** Profils d'intensité MET en champ noir ( $A_g = 0,054$ ) calculés avec les modèles de la figure III,15. (a): Dans le cas du trou.  $g = 220, w = - 0,74$  ,  $t = 260$  nm. (b): Dans le cas de l'îlot.  $g = 220, w = - 0,52, t = 210$  nm.

### III, 5) Résultats des simulations des images MET

Les résultats d'éléments finis - mettant en évidence des variations des champs de déformation importantes suivant la direction [Ox] et faibles suivant la direction [Oy] - expliquent pourquoi les contrastes de MET associés à ces défauts sont intenses avec le vecteur de diffraction  $\mathbf{g} = 220$  parallèle à la direction [Ox] (figures III, 7, c et III, 9, a) et faibles avec le vecteur de diffraction  $\mathbf{g} = 2\bar{2}0$  parallèle à la direction [Oy] (figures III, 8, a et III, 9, b). Dans ce dernier cas, les contrastes sont dus aux variations localisées des déformations  $\epsilon_{yy}$  près des bords des défauts.

Dans cette partie, nous allons voir comment nous avons pu valider les calculs d'éléments finis, en comparant les profils d'intensité MET simulés à partir de ces calculs et ceux obtenus expérimentalement avec le vecteur de diffraction  $\mathbf{g} = 220$ . Pour ce faire, les simulations doivent être réalisées avec les paramètres de microscopie correspondant aux observations expérimentales. Dans le cas présent, les images utilisées sont celles réalisées sur les échantillons A<sub>5</sub> et B, présentées dans le paragraphe III, 3, 3 (figures III, 10 et III, 12). Notons que, compte tenu du manque de reproductibilité des contrastes relevés sur ces échantillons, la comparaison entre les profils simulés et expérimentaux ne pourra se faire que de façon qualitative. Nous nous limiterons donc, lors de cette comparaison, à la description de l'allure globale des profils obtenus.

#### III, 5, 1) Résultats des simulations: échantillons A<sub>5</sub> et B

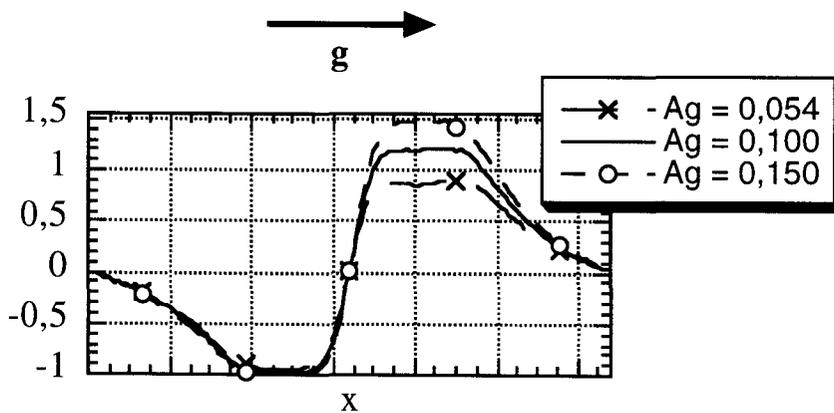
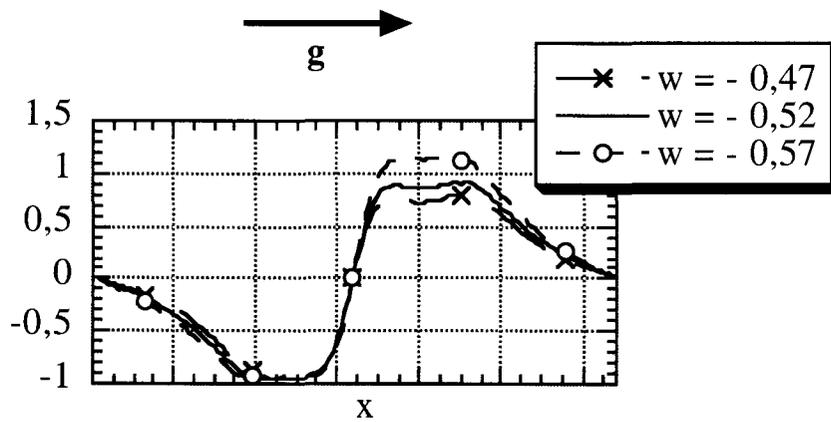
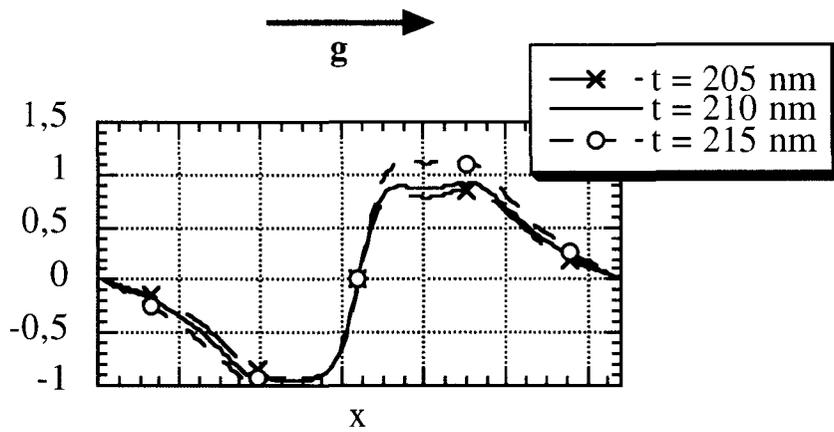
Les simulations des image MET des trous et des îlots ont été réalisées sur les modèles de défauts précédemment présentés avec les paramètres de microscopie suivant:

-  $\mathbf{g} = 220$ ,  $w = -0,74$ ,  $t = 260$  nm. Ces paramètres correspondent aux conditions d'observation de l'image de la figure III, 10 (échantillon A<sub>5</sub>)

-  $\mathbf{g} = 220$ ,  $w = -0,52$ ,  $t = 210$  nm. Ces paramètres correspondent aux conditions d'observation de l'image de la figure III, 12 (échantillon B).

Les profils obtenus dans le plan médian ( $y = 0$ ) et parallèlement à la direction [Ox] sont reproduits sur les **figures III, 16 a** et **b** (cas du trou et de l'îlot respectivement). Comme on pouvait l'espérer, ces profils sont constitués de lobes blancs et noirs dont la position relative par rapport au sens de  $\mathbf{g}$  s'inverse pour les deux défauts. La comparaison des profils expérimentaux des figures III, 10, c et III, 12, c avec ces profils montre que pour l'échantillon A<sub>5</sub>, le profil expérimental doit être associé à celui obtenu avec le modèle de trou (figure III, 16, a), tandis que pour l'échantillon B, il doit être associé à celui obtenu avec l'îlot (figure III, 16, b).

Afin de valider pleinement ces comparaisons entre les profils expérimentaux et les profils simulés, il nous faut tester la sensibilité des profils simulés aux différents



paramètres de microscopie, compte tenu des incertitudes expérimentales liées à la valeur de ces paramètres. Ces paramètres sont : l'écart  $s$  aux conditions de Bragg, l'épaisseur  $t$  de la lame à l'endroit de l'observation et la valeur du coefficient d'absorption anormale  $A_g$ . Les résultats que nous décrivons à présent ont été obtenus dans le cas de l'îlot et ils sont également valables dans le cas du trou.

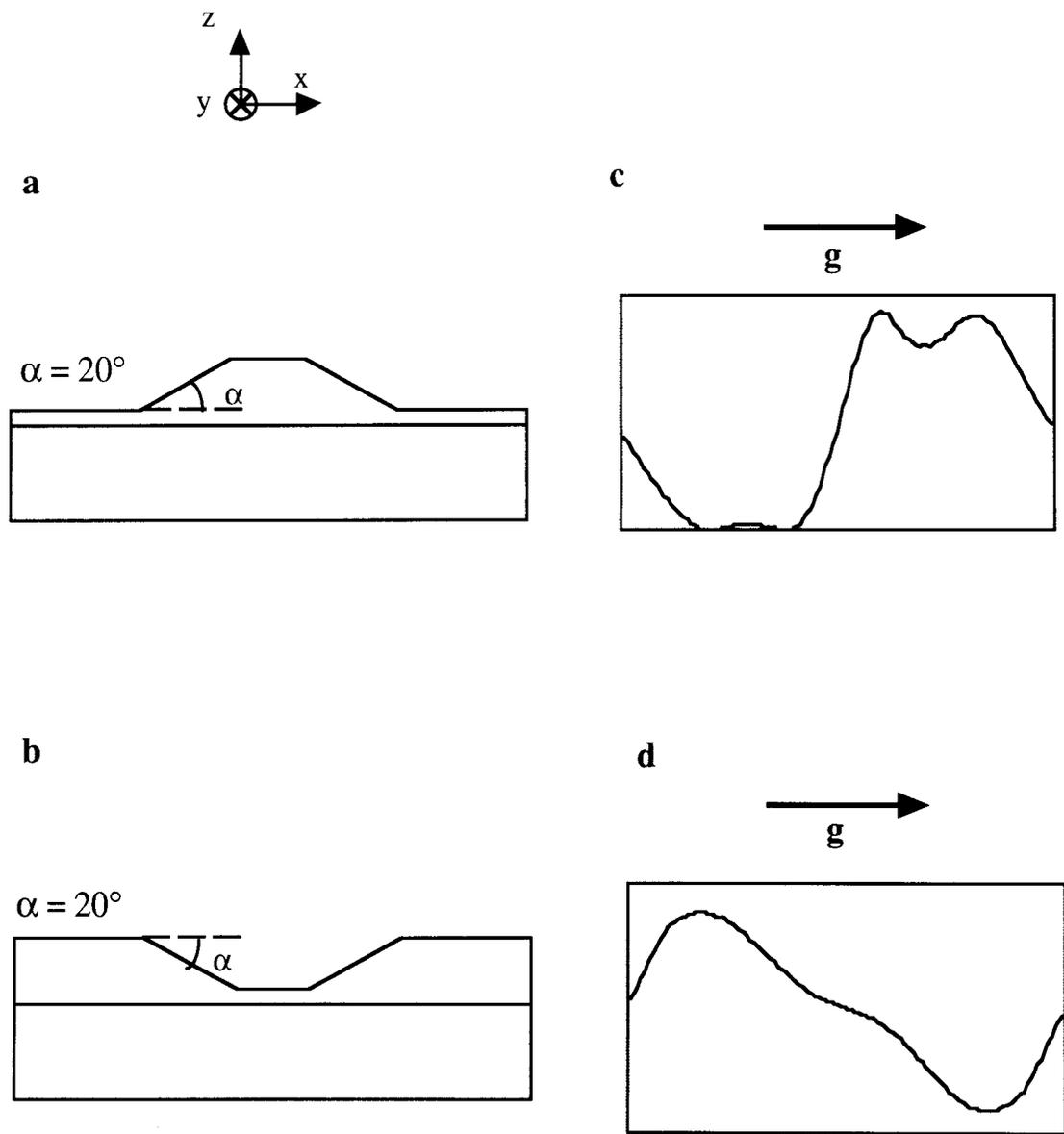
Sur la **figure III, 17** sont représentés les profils de contraste calculés avec diverses valeurs de  $t$ . Les variations de  $t$  considérées sont celles associées à l'incertitude expérimentale, estimée à  $\pm 5$  nm pour  $t = 210$  nm. On voit que, pour les variations d'épaisseur considérées, les profils simulés varient peu.

De même, en ce qui concerne l'incertitude expérimentale sur la valeur de  $w$  ( $w = -0,52 \pm 0,02$ ), les résultats regroupés sur la **figure III, 18** montrent que des variations de  $w$ , autour de la valeur moyenne, plus importantes que celles correspondant aux incertitudes expérimentales, ont peu d'influence sur les profils simulés. Ainsi, les incertitudes liées aux valeurs expérimentales de  $w$  et  $t$ , ne peuvent pas remettre en cause le bon accord qualitatif entre les profils simulés et les profils expérimentaux.

En ce qui concerne le coefficient d'absorption anormale  $A_g$ , la valeur utilisée pour calculer les profils d'intensité précédemment présentés est  $A_g = 0,054$ . Cette valeur, issue des calculs de Bird et King présentés dans le chapitre II, ne tient pas compte de la contribution des électrons diffusés inélastiquement à la formation de l'image. Pour tenir compte de cet effet (dimension non nulle du diaphragme objectif), cette valeur doit être augmentée et c'est pourquoi nous avons calculé les profils d'intensité obtenus (dans le cas de l'îlot) avec d'autres valeurs de  $A_g$  :  $A_g = 0,100$  et  $A_g = 0,150$ . Ces valeurs sont arbitraires mais elles sont toutefois celles couramment utilisées dans la littérature quand la valeur de  $A_g$  n'est pas connue avec précision. Les résultats sont présentés sur la **figure III, 19**. On voit que, si  $A_g$  a une influence importante sur les valeurs du contraste, l'allure globale des profils est préservée. Dans le cadre d'une comparaison qualitative, l'incertitude sur la valeur de  $A_g$  ne pose donc pas de problème.

### III, 5, 2 ) Sensibilité des profils simulés à la forme des défauts

Les contrastes MET des îlots sont de façon générale très sensibles à la forme de ces défauts [10, 11]. Même en tenant compte du manque de reproductibilité des profils expérimentaux, le bon accord qualitatif entre les profils expérimentaux et les profils simulés précédemment présentés nous suggère que les formes des modèles utilisés pour les calculs des champs de déplacement par éléments finis sont proches de celles des défauts responsables des contrastes MET observés sur les échantillons A<sub>5</sub> et B. Pour le vérifier, nous avons réalisé des simulations d'intensité MET avec d'autres formes de modèles de défauts, et notamment des formes tronquées. L'utilisation de ces formes de



**figure III, 20:** Représentations schématiques des autres formes de modèle utilisées pour les simulations et profils simulés correspondants. (a): Ilot tronqué ( $\alpha = 20^\circ$ ,  $h / l_x = 0,12$ ), (b): Trou tronqué ( $\alpha = 20^\circ$ ,  $h / l_x = 0,12$ ). (c): Profil MET (en champ noir) obtenu avec le modèle représenté en (a).  $g=220$ ,  $w = - 0,74$ ,  $t = 210$  nm,  $A_g = 0,054$ . (d): Profil MET (en champ noir) obtenu avec le modèle représenté en (b).  $g=220$ ,  $w = - 0,52$ ,  $t = 260$  nm,  $A_g = 0,054$ .

modèle est suggérée par le fait que, en microscopie à champ proche, si les dimensions des défauts sont généralement fiables, il se peut que la détermination de la forme des défauts soit erronée (phénomènes de convolution de pointe qui ont pour effet d'aplanir les formes trop abruptes). Sur la **figure III, 20, a** est représenté schématiquement (dans le plan  $y = 0$ ), un modèle en forme d'îlot tronqué de rapport d'aspect  $h / l_x$  identique à celui des précédents modèles mais pour lequel l'angle  $\alpha$  vaut  $20^\circ$ . Le profil d'intensité obtenu avec ce modèle (dans les mêmes conditions que celui présenté sur la figure III, 16 b) est représenté sur la **figure III, 20, c**. On voit que le profil obtenu présente une forte modulation d'intensité dans le lobe blanc, modulation qui n'a jamais été observée expérimentalement sur l'échantillon B. De même, avec une forme de modèle en trou tronqué comme celui de la **figure III, 20, b** ( $\alpha = 20^\circ$ ,  $h / l_x = 0,12$ ), le profil MET obtenu (**figure III, 20, d**) s'écarte fortement des profils expérimentaux relevés sur l'échantillon A<sub>5</sub>. Nous pouvons ainsi conclure que les formes des défauts relevées en microscopie à champ proche sur les échantillons A<sub>5</sub> et B correspondent bien aux formes des défauts responsables des contrastes MET sur ces échantillons. Les mesures réalisées en microscopie à champ proche sont donc ainsi confirmées.

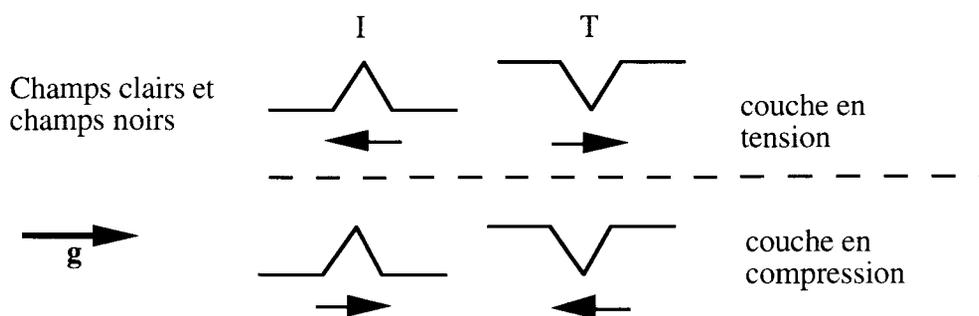


figure III, 21: Sens du vecteur  $L$  pour des couches situées sur la face d'entrée des électrons. T = trou, I = îlot.  $g = 220$ ,  $w = 0$ .

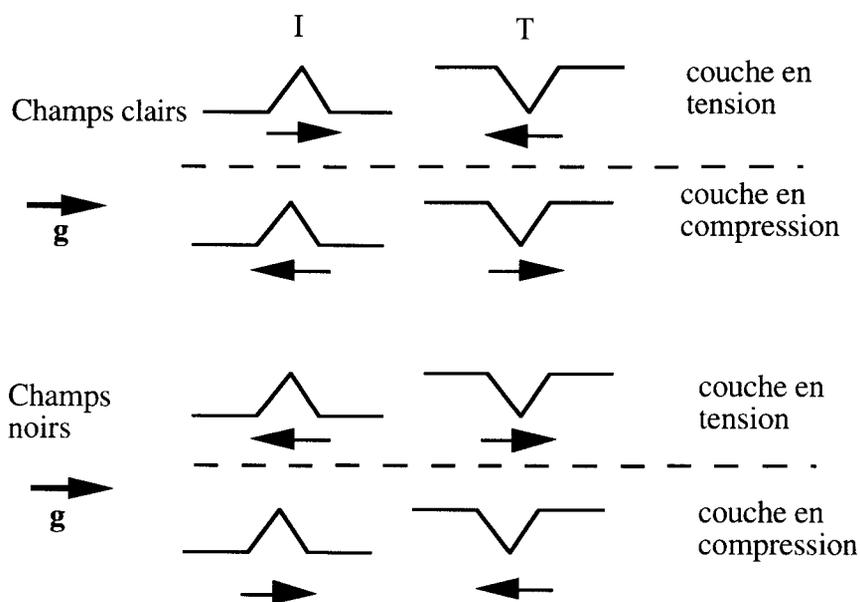


figure III, 22: Sens du vecteur  $L$  pour des couches situées sur la face de sortie des électrons. T = trou, I = îlot.  $g = 220$ ,  $w = 0$ .

### III, 6) Discussion et conclusion

#### III, 6, 1) Validité de la méthode

Des études précédentes réalisées au laboratoire [11] sur des îlots d'InAs sur un substrat de GaAs avaient mis en évidence la validité de la méthode des éléments finis pour calculer les champs de déformations associés à des défauts 3D et pour simuler les contrastes MET associés à de tels défauts. Dans le cas des échantillons en tension d' $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$  sur InP étudiés dans le cadre de cette thèse, l'application de cette méthode nous a permis de localiser des sites de relaxation différents agissant à la surface des échantillons en fonction de la forme des défauts 3D présents, forme elle-même fonction des conditions de croissance: pour l'échantillon A<sub>5</sub>, la relaxation des contraintes est localisée sur les bords des trous, tandis que sur l'échantillon B, cette relaxation est localisée au sommet des îlots. D'autre part, la méthode utilisée s'est avérée suffisamment sensible pour s'assurer de la compatibilité des observations réalisées en MET et en microscopie à champ proche sur les deux échantillons: les formes en "V" relevées en microscopie à champ proche pour les trous (échantillon A<sub>5</sub>) et les îlots (échantillons B) sont bien celles des défauts responsables des contrastes MET sur ces échantillons.

Plus généralement, il faut noter que l'identification des défauts de type trou ou îlot peut être réalisée de façon immédiate en champ noir et en champ clair en comparant le sens du vecteur  $\mathbf{L}$  à celui du vecteur de diffraction  $\mathbf{g}$ . Les règles utilisables pour cette identification sont regroupées sur les **figures III, 21** et **III, 22**. Elles ont été établies pour des couches en tension ou en compression situées du côté de la face d'entrée des électrons ou du côté de la face de sortie. Ces règles ont été déduites des simulations de contraste MET des défauts issues des calculs par éléments finis et nous avons vérifié qu'elles étaient compatibles avec les résultats généraux obtenus par Ball [14] et Katerbau [15].

#### III, 6, 2) Morphologie de surface 3D des couches en tension et des couches en compression

En ce qui concerne la relaxation élastique des systèmes en tension observés dans le cadre de cette étude, nos calculs par éléments finis montrent que la localisation des sites de relaxation de contrainte associés à l'ondulation des couches en tension sont les mêmes que dans le cas des couches en compression (InGaAs /GaAs, GeSi /Si): ces sites se situent sur les zones de la couche les plus éloignées de l'interface couche-substrat. Dans le cas des structures en tension étudiées ( $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$  / InP), ces sites peuvent être, en

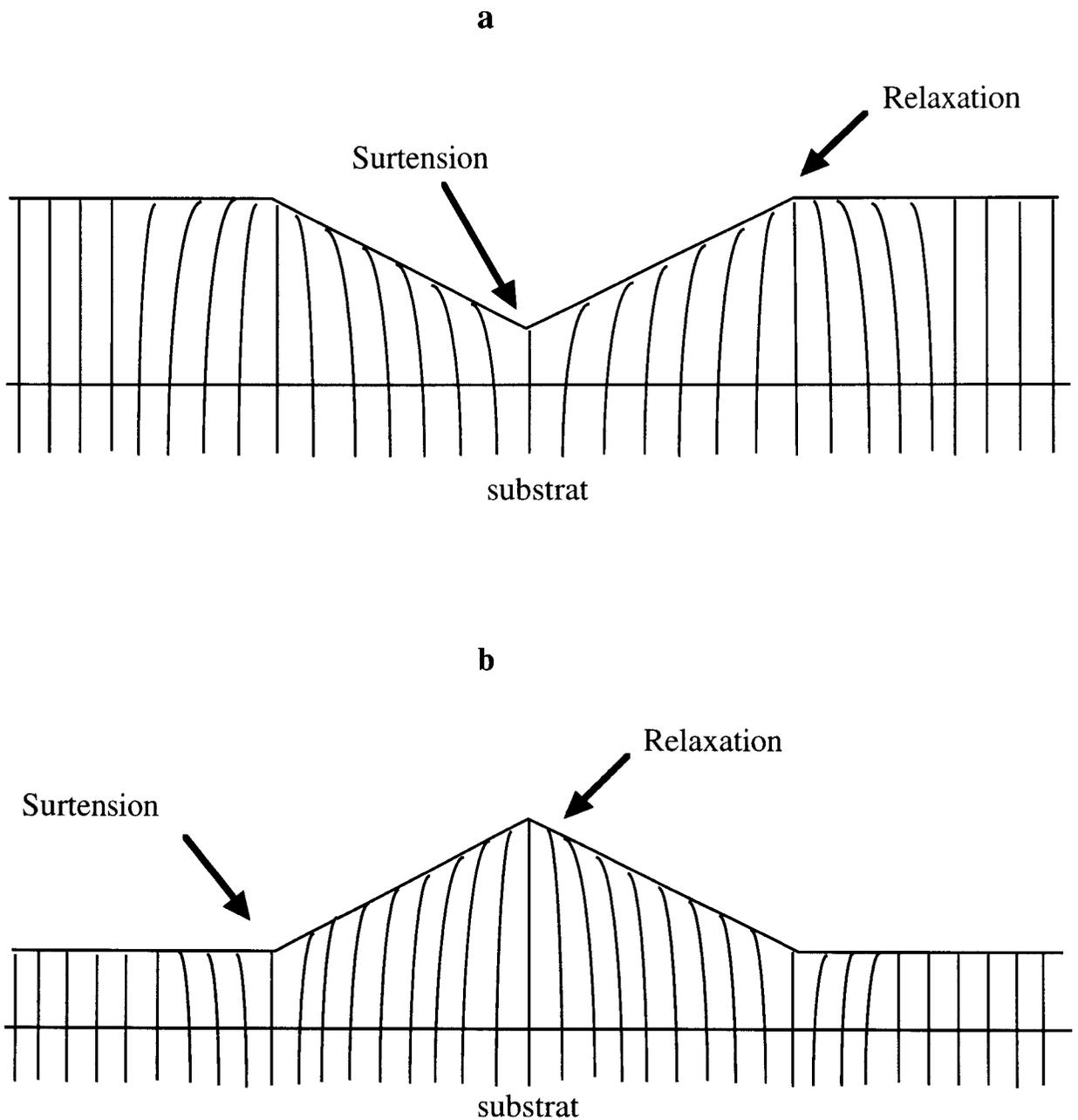
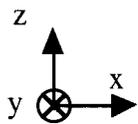


figure III, 23: Représentation schématique des distorsions des plans atomiques (110), de normale [Ox], associées aux deux types de défauts observés dans les couches en tension d' $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As} / \text{InP}$ . a) Cas du trou. b) Cas de l'îlot.

fonction de la morphologie de surface, les bords des trous (échantillon A<sub>5</sub>) ou les sommets des îlots (échantillon B). Sur la **figure III, 23**, sont représentées les distorsions des plans atomiques (110) associées à ces deux types de défauts.

Pour les systèmes en compression d'In<sub>0,82</sub>Ga<sub>0,18</sub>As / InP, les études de morphologie de surface réalisées en STM par P. Krapf et Y. Robach [8] montrent que dans ce cas, c'est la formation d'îlots isolés qui est privilégiée, comme dans le cas des autres systèmes en compression. Cette différence de morphologie entre les systèmes en compression et les systèmes en tension ne peut pas s'expliquer à partir de la relaxation des contraintes assurée par les défauts: ainsi que nous l'avons montré, les îlots et les trous relaxent indifféremment les contraintes pour les systèmes en tension et les systèmes en compression. Pour expliquer cette différence de morphologie, les auteurs proposent une analyse basée sur la forme latérale des défauts. D'après leur analyse, cette forme est déterminée par la forme des marches des bords des terrasses constituant les structures 3D. Leurs observations montrent que la morphologie des couches en tension conduit à des bords de marches préférentiellement concaves, tandis que celle des couches en compression conduit à des bords de marche préférentiellement convexes. Ils ont alors démontré que la relaxation élastique des contraintes favorisait les courbures de marche concaves pour les systèmes en tension et les courbures de marche convexes pour les systèmes en compression. Lors de la formation des structures 3D, la concavité privilégiée des bords de marche conduit naturellement à la formation de trous isolés pour les couches en tension, tandis que la convexité des bords de marche aboutit naturellement à la formation d'îlots isolés pour les couches en compression. L'observation d'îlots isolés sur l'échantillon B ne remet pas en cause cette explication. Pour cet échantillon en effet, la morphologie de surface finale a pu résulter de processus de transport de matière importants pendant le maintien à haute température (525°C) qui a eu lieu après la croissance, processus essentiellement différents de ceux agissant pour les échantillons de la série A. L'état stable que représente la rugosité pour une couche contrainte n'aurait pas pu être atteint pendant la croissance hors équilibre de cette couche. La transition 2D / 3D aurait alors eu lieu à partir d'un état métastable qui aurait accumulé une forte densité de contrainte, ce qui serait à l'origine de processus de transport de matière différents. La morphologie de surface de cet échantillon est donc difficilement comparable à celles de couches réalisées dans les conditions proches de l'équilibre thermodynamique utilisées pour les échantillons de la série A.



### III, 6, 3) Limites de la méthode

Ainsi que nous l'avons remarqué lors de la comparaison des résultats de simulation avec les images MET expérimentales, le manque de reproductibilité des contrastes relevés sur les trous de l'échantillon A<sub>5</sub> et les îlots de l'échantillon B nous a imposé de nous cantonner à des comparaisons qualitatives entre les profils expérimentaux et les profils simulés. Dans le cadre de ces comparaisons, nos résultats ont permis de rendre compte des contrastes MET expérimentaux à partir de calculs des champs de déformation associés aux défauts responsables de ces contrastes. Cependant, à partir de cette comparaison qualitative, nos calculs ne prétendent pas rendre compte des valeurs précises des champs de déformation présents dans les structures étudiées. En effet, il se peut que sur ces morphologies 3D, d'autres phénomènes, ne pouvant pas être pris en compte dans nos calculs, viennent influencer la répartition des contraintes au sein des couches. On peut penser notamment aux phénomènes de diffusion d'éléments vers les zones relaxées, tels que celui observé pour l'indium sur des couches d'InGaAs / GaAs [16], ou celui du germanium sur des couches de GeSi / Si [17]. Une comparaison plus quantitative entre les contrastes expérimentaux et simulés ne pourra être entreprise qu'à condition de disposer de contrastes expérimentaux reproductibles. C'est l'objet du chapitre suivant que de tester la validité des calculs par éléments finis et des simulations de contraste sur une géométrie de défaut beaucoup mieux connue, par l'étude des phénomènes de relaxation hétérogène des contraintes associés à l'émergence en surface d'un puits contraint.



### REFERENCES du CHAPITRE III

- [1] S. Guha, A. Madhukar et K.C. Rajkumar, Appl. Phys. Lett. **57**, 2110 (1990).
- [2] J. Y. Yao, T. G. Andersson et G. L. Dunlop, J. Appl. Phys. **69**, 2224 (1991).
- [3] N. Grandjean, J. Massies, C. Delamarre, L. P. Wang, A. Dubon et J. Y. Laval, Appl. Phys. Lett. **63**, 66 (1993).
- [4] D. J. Eaglesham et M. Cerullo, Phys. Rev. Lett. **64**, 1943 (1990).
- [5] G. Attolini, E. Chimenti, P. Franzosi, S. Gennari, C. Pelosi, P. P. Lottici, Appl. Phys. Lett **69**, 957 (1996).
- [6] M. Gendry, V. Drouot, C. Santinelli, G. Hollinger, Appl. Phys. Lett **60**, 2249 (1992).
- [7] M. Gendry et G. Hollinger, Proc. Int. Conf. on Semic. Heteroepitaxy, Montpellier, édité par World Scientific (1995).
- [8] P. Krapf, Y. Robach, M. Gendry et L. Porte, Phys. Rev. **B 55/16**, R10 229 (1997)
- [9] J.Y. Yao, T.G. Andersson and G.L. Dunlop, J. Appl. Phys. **69**, 2224 (1991).
- [10] Y. Androussi, A. Lefebvre, B. courboulès, N. Grandjean, J. Massies, T. Bouhacina, J. P. Aimé, Appl. Phys. Lett. **65**, 1162 (1994).
- [11] T. Benabbas, P. François, Y. Androussi et A. Lefebvre, J. Appl. Phys. **80** , 2763 (1996).
- [12] W. L. Bell et G. Thomas, Phys. Stat. Sol. **12**, 843 (1965).
- [13] S. Christiansen, M. Albrecht, H. P. Strunk, P. O. Hansson et E. Bauser, Appl. Phys. Lett. **66**, 574 (1995).
- [14] C. J. Ball, Phil. Mag. **9**, 574 (1964).
- [15] K. H. Katerbau, Phys. Stat. Sol. (a) **59**, 211 (1980).
- [16] K. Tillmann, A. Thust, M. Lentzen, P. Swiatek, A. Förster, K. Urban, W. Laus, D. Gerthsen, T. Remmele and A. Rosenauer, Phil. Mag. Lett. **74**, 309 (1996).
- [17] T. Walther, C.J. Humphreys and A.G. Cullis, Appl. Phys. Lett. **71**, 809 (1997).



**CHAPITRE IV:**  
**ETUDE de la RELAXATION en SURFACE d'un**  
**PUITS CONTRAINT d'In<sub>0,13</sub>Ga<sub>0,87</sub>As dans une**  
**MATRICE GaAs**



**CHAPITRE IV:**  
**ETUDE de la RELAXATION en SURFACE d'un PUIITS**  
**CONTRAIT d'In<sub>0,13</sub>Ga<sub>0,87</sub>As dans une MATRICE GaAs**

**Introduction**

**IV, 1) Position du problème et revue bibliographique**

**IV, 2) Présentation de l'hétérostructure étudiée**

IV, 2.1) Conditions de croissance

IV, 2.2) Préparation des échantillons pour les observations en MET

**IV, 3) Résultats des calculs par éléments finis**

IV, 3.1) Modèles utilisés pour les calculs

IV, 3.2) Résultats des calculs

**IV, 4) Résultats des observations MET**

**IV, 5) Résultats des simulations de contraste**

IV, 5.1) Résultats des simulations pour  $t = 225$  nm et  $t = 360$  nm

IV, 5.2) Sensibilité des simulations aux paramètres  $t$ ,  $w$  et  $x$

IV, 5.3) Influence du paramètre d'absorption anormale  $A_g$

**IV, 6) Discussion et conclusion**



## Introduction

Dans les hétérostructures semi-conductrices, l'émergence des puits contraints à la surface des échantillons est un autre exemple de situation où les contraintes subissent des relaxations hétérogènes. Ce phénomène est particulièrement sensible en microscopie électronique en transmission, lors de l'observation des échantillons sur la tranche ("cross section") [1-7]. Pour ces observations en effet, travailler avec des échantillons minces fait jouer un rôle prépondérant aux phénomènes de surface et il est important de pouvoir caractériser ces phénomènes, afin de bien préciser les différences observées par rapport au cas des échantillons massifs.

La géométrie des échantillons étant particulièrement simple, la résolution des équations de la théorie de l'élasticité des milieux continus a conduit à des solutions analytiques simples, par l'intermédiaire de deux types de modèles, le modèle de Ligne de Force [5, 8] et le modèle des séries de Fourier [5, 8, 9]. Ces auteurs ont testé les résultats de leurs calculs en comparant des images MET simulées issues des calculs avec des images expérimentales, images obtenues en conditions dynamiques en deux ondes [5] ou en faisceaux convergents à grand angle (en anglais, LACBED, [8]). Ainsi que nous le verrons, ces résultats conduisent à certaines incohérences, ce qui nous a motivé à reprendre l'étude en utilisant la méthode de calcul par éléments finis. Cette méthode a déjà été utilisée pour déterminer les champs de déformation dans les structures à puits contraints (dans le système GaAs / In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As / GaAs [10]). Dans ce cas, les auteurs ont testé les résultats des calculs en mesurant le déplacement des franges d'égale épaisseur, sur des échantillons en forme de coin clivé. Ils ont pu montrer, en comparant les images expérimentales et les images simulées, que les calculs par éléments finis permettaient de déterminer avec précision les champs de contrainte sur ce type de structures. Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes proposé de valider les résultats d'éléments finis de la même façon, dans le cas de la relaxation en surface d'un puits d'In<sub>0,13</sub>Ga<sub>0,87</sub>As enterré dans une matrice de GaAs. Cette étude sera pour nous l'occasion, d'une part de comparer les résultats des calculs d'éléments finis à ceux obtenus avec une des méthodes de calculs analytiques (la méthode des séries de Fourier), et d'autre part de tester, dans le cas d'une géométrie simple, l'efficacité de la méthode qui consiste à comparer les images expérimentales de contraste de diffraction à des images simulées basées sur l'approximation de la colonne.

La présentation des résultats se déroulera suivant le plan suivant: dans une première partie bibliographique, nous présenterons brièvement les deux modèles analytiques cités ci-dessus. L'accent sera mis sur la méthode des séries de Fourier, que nous avons également utilisée, afin de comparer ses résultats avec ceux obtenus par la



méthode des éléments finis. Puis, nous présenterons le matériau observé dans le cadre de cette étude (l'hétérostructure GaAs / In<sub>0,13</sub>Ga<sub>0,87</sub>As / GaAs). Nous décrirons ensuite les résultats des calculs de champs de déformation obtenus par la méthode des éléments finis ainsi que les images de microscopie électronique en transmission mettant en évidence les contrastes dynamiques de diffraction électronique associés à la relaxation en surface du puits. Nous présenterons enfin les résultats des simulations de contraste et les confronterons aux images expérimentales. Cette comparaison nous permettra d'apprécier la validité de la méthode employée et l'ensemble des résultats obtenus sera discuté dans une dernière partie.

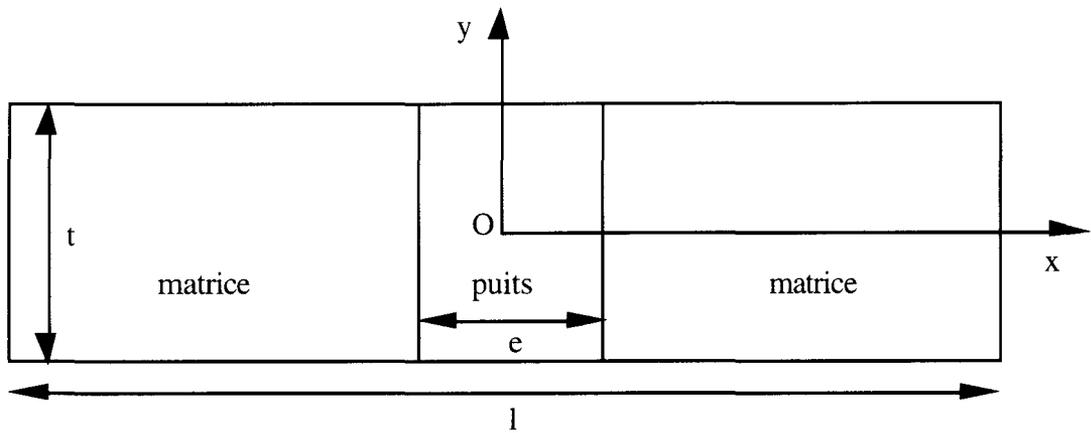


figure IV. 1: Représentation schématique d'un puits contraint enterré dans une matrice.

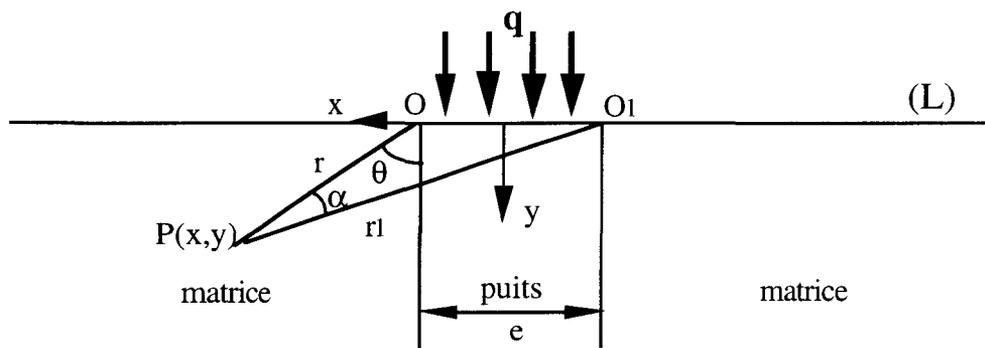


figure IV. 2: Représentation schématique de l'échantillon utilisée dans le cadre du modèle de la ligne de force. La contrainte  $q$  sert à équilibrer les contraintes de désadaptation dans le puits.

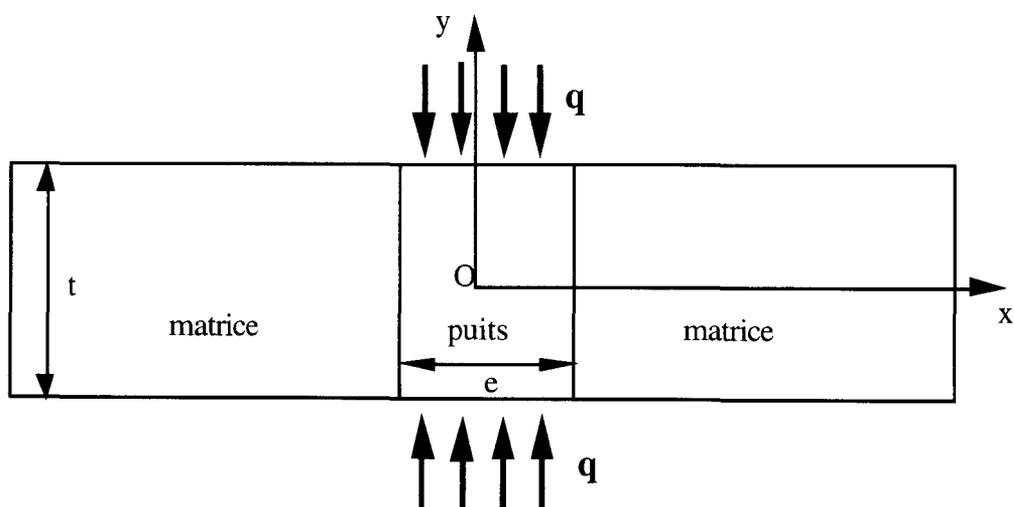


figure IV. 3: Représentation schématique de l'échantillon utilisée dans le cadre du modèle des séries de Fourier. La contrainte  $q$  (symétrique) sert à équilibrer les contraintes de désadaptation dans le puits.

## IV, 1) Position du problème et revue bibliographique

On considère dans cette partie le cas général d'un puits de paramètre de maille  $a_p$  enterré dans une matrice de paramètre de maille  $a_m$ . Le puits et la matrice sont désadaptés en paramètre de maille de sorte que le taux de désadaptation vaut:  $\Delta a / a = (a_m - a_p) / a_p$ . Cette structure est représentée sur la **figure IV, 1**. On se place dans la situation la plus courante où la largeur  $e$  du puits est très inférieure aux dimensions de l'échantillon suivant les trois directions [Ox], [Oy] et [Oz]. Dans ce cas, on peut considérer que seul le puits est contraint et les déformations correspondantes, loin des surfaces (c'est à dire à une distance de la surface  $> \sim e$ ), valent alors:

$$(IV,1) \quad \begin{cases} \varepsilon_{yy} = \varepsilon_{zz} = \varepsilon_0 = \Delta a / a \\ \varepsilon_{xx} = -2\nu\varepsilon_0 / (1 - \nu) \end{cases}$$

Près des surfaces (à une distance de la surface  $< \sim e$ ), le relâchement des contraintes induit une relaxation de ces déformations, qu'il est possible de calculer à l'aide du modèle de la Ligne de Force ou du modèle des Séries de Fourier dans le plan xOy, les champs de contrainte et de déformation étant indépendants de z. Ces modèles sont issus des méthodes de résolution des équations de l'élasticité des milieux continus [11] dans le cas des problèmes plans. Ils ont été repris par plusieurs auteurs pour traiter le problème de la relaxation en surface des puits contraints [5, 8, 9].

Dans le cadre du modèle de la ligne de Force [5, 8], le problème est traité à l'aide d'un solide plan semi-infini limité par une ligne (L) et une contrainte  $q$  est appliquée sur un segment [OO<sub>1</sub>] de cette ligne de façon à équilibrer les contraintes dues à la désadaptation entre le puits et la matrice (**figure IV, 2**). Grâce à cette représentation, les contraintes principales peuvent être alors déterminées en tout point P(x, y) en fonction de l'angle  $\alpha$ , et les déformations déduites de ces valeurs en utilisant la loi de Hooke [11]. De façon à modéliser l'ensemble du système, la solution de la Ligne de Force doit être appliquée sur la face supérieure et inférieure de la structure et les déplacements issus des deux surfaces sont alors ajoutés. Cette approche exige donc que les deux surfaces de l'échantillon puissent être considérées comme bordant un solide semi-infini de façon à ce que les champs de déformation associés aux deux surfaces n'interagissent pas. Ceci ne peut pas être le cas de façon générale, en particulier quand les échantillons sont très minces ( $t / e < 10$ ) et ce point constitue la limite de cette méthode de calcul [5, 8].

Une autre méthode, la méthode des séries de Fourier, considère de façon plus générale la résolution de l'équation d'équilibre des contraintes associée au problème plan considéré, sous forme d'une série de Fourier. Cette analyse ne repose sur aucune



hypothèse restrictive particulière et elle permet de décrire la relaxation en surface des puits contraints de la façon la plus générale possible. Elle a initialement été employée par Treacy et al [3] pour décrire les hétérogénéités de contrainte associées à la décomposition spinodale des couches d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}_y\text{P}_{1-y}$ . Le système de coordonnées utilisé dans le cadre de ces calculs est représenté sur la **figure IV, 3**. La résolution du problème passe par la détermination de la fonction d'Airy  $\phi$  qui satisfait à la relation suivante [9, 11]:

$$(IV,2) \quad \partial^4 \phi / \partial x^2 + 2\partial^4 \phi / \partial x^2 \partial y^2 + \partial^4 \phi / \partial y^4 = 0$$

La contrainte s'appliquant sur les faces supérieure et inférieure de l'échantillon est représentée par une fonction porte, de valeur  $q$  pour  $-e/2 \leq x \leq +e/2$  et de valeur nulle partout ailleurs. Cette fonction porte, symétrique, admet un développement en série de Fourier. On peut donc de la même façon considérer la fonction  $\phi$  sous forme d'un développement en série de Fourier défini par:

$$(IV,3) \quad \phi = \sum_{m=0}^{\infty} A_m \cos(2\pi m x / l) f_m(y)$$

Les coefficients  $A_m$  s'obtiennent à partir de l'analyse standard de Fourier, ainsi que la valeur de la fonction  $f_m(y)$  qui exprime la dépendance en  $y$  de la fonction  $\phi$ . On peut ensuite dériver les valeurs des contraintes en tout point de l'échantillon à partir de ce potentiel grâce aux relations suivantes:

$$(IV,4) \quad \begin{cases} \sigma_{xx} = \partial^2 \phi / \partial y^2 \\ \sigma_{yy} = \partial^2 \phi / \partial x^2 \\ \sigma_{xy} = - \partial^2 \phi / \partial x \partial y \end{cases}$$

Les déformations en tout point de la structure s'obtiennent alors à partir de la loi de Hooke et les valeurs des déplacements par intégration des champs de déformation.

Ces deux types de solutions (modèle de la ligne de force et modèle des séries de Fourier) ont été testés par plusieurs auteurs en simulant les images MET obtenues avec les champs de déplacement ainsi calculés et en les comparant avec des images expérimentales. Perovic et al [5] ont entrepris cette comparaison en utilisant les contrastes de diffraction dynamiques obtenus en deux ondes avec le vecteur  $g$  de type



$\langle 400 \rangle$  parallèle à la direction  $[Ox]$ . Un accord qualitatif a été obtenu entre les images expérimentales et les images simulées\* avec la méthode des séries de Fourier, pour toutes les épaisseurs de l'échantillon. La méthode de la ligne de force n'a donné des résultats satisfaisants que pour des grandes valeurs de l'épaisseur d'échantillon, ce qui est en accord avec la remarque concernant la validité de cette méthode. Chou et al [8] ont utilisé, pour tester la validité de leurs calculs, des images obtenues en LACBED. Dans ce cas, les champs de déformation hétérogènes existant au voisinage de l'intersection du puits et de la surface de l'échantillon créent un dédoublement des lignes de Bragg (800). De façon surprenante, ils ont montré que les simulations issues des calculs réalisés avec la méthode de la ligne de force rendaient mieux compte de cette séparation que celles issues de la méthode des séries de Fourier, avec lesquelles la séparation des lignes de Bragg était sous-estimée. Les auteurs concluent alors sur la nécessité d'affiner les calculs des champs de déplacement associés à ce phénomène de relaxation de surface. C'est ce point qui nous a également motivé pour tester les résultats obtenus avec la méthode des éléments finis, en comparant les simulations des contrastes dynamiques de diffraction issues de ces calculs avec les images expérimentales.

---

\* Avec les calculs analytiques, les valeurs du champ de déplacement  $R$  sont obtenues en fonction de  $y$  et on peut calculer les valeurs de  $dR/dy$ . La simulation des contrastes de diffraction électronique est alors réalisée (dans l'approximation de la colonne) en injectant directement ces valeurs dans les équations de Howie et Whelan (voir le chapitre II), écrites avec un changement de variable approprié [3]. C'est la méthode qui est également utilisée dans le cadre de cette étude.



## IV, 2) Présentation de l'hétérostructure étudiée

### IV, 2, 1) Conditions de croissance

L'échantillon observé a été élaboré par Epitaxie par Jets Moléculaires à l'Institut d'Electronique et de Micro-électronique du Nord (IEMN), par Y. Druelle. Il est constitué d'une couche d' $\text{In}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$  contrainte en compression dans une matrice de GaAs (100) (taux de désadaptation  $\Delta a / a = - 0,0092$ ). L'épaisseur du puits d' $\text{In}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$  est de 10 nm, celle des couches de GaAs (couche tampon et couche supérieure) sont de 500 nm. Par rapport à la représentation de la figure IV, 1, la direction de croissance [100] est parallèle à la direction [Ox] et les directions de type  $\langle 011 \rangle$  sont parallèles aux directions [Oy] et [Oz]. Les vitesses de croissance sont de 0,75  $\mu\text{m/h}$  pour les couches de GaAs et de 0,84  $\mu\text{m/h}$  pour la couche d' $\text{In}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ . La température de croissance est de 580 °C pour la couche tampon de GaAs et de 510 °C pour la couche d' $\text{In}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$  et la couche supérieure de GaAs. Il y a eu un arrêt de croissance de 3 mn entre la couche tampon de GaAs et la couche d' $\text{In}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$  pour stabiliser la température du substrat.

L'épaisseur de la couche contrainte a été vérifiée par la méthode de diffraction des rayons X et sa composition chimique a été mesurée par photoluminescence (D. Vignaud, LSPES): la concentration en indium a été évaluée à  $13,5 \pm 0,5 \%$ .

### IV, 2, 2) Préparation des échantillons pour les observations en MET

Pour les observations en MET, réalisées en "cross-section", les échantillons sont préparés suivant la méthode décrite par C. Herbeaux dans sa thèse de troisième cycle [12] et amincis par bombardement ionique (sur les deux faces des échantillons) dans les conditions suivantes: tension d'accélération ionique: 4,5 kV, courant ionique: 0,25 mA, angle d'inclinaison du faisceau: 13°. Ils sont préparés de façon à ce que la direction [Ox] de la figure IV, 1 soit parallèle à [100] et que la direction du faisceau électronique soit parallèle à la direction [Oy] ([011] ou  $[01 \bar{1}]$ ). Le vecteur de diffraction utilisé pour révéler les contrastes associés à la relaxation des contraintes en surface est le vecteur  $\mathbf{g} = 400$ , sensible aux champs de déplacement parallèles à la direction [100].



## IV, 3) Résultats des calculs par éléments finis

### IV, 3, 1) Modèles utilisés pour les calculs

Les calculs par éléments finis ont été réalisés sur des modèles bidimensionnels représentant le quart de l'échantillon de la figure IV, 1 (x et y positifs). L'utilisation d'un calcul bidimensionnel revient à considérer une épaisseur infinie dans la direction [Oz], ce qui est tout à fait justifié dans le cas des échantillons observés en cross-section. Ces conditions nous assurent que les variations des champs de déplacement sont confinées dans le plan (x, y) (la déformation  $\epsilon_{zz}$  est constante, de valeur  $\Delta a / a$ , donnée par la relation (IV, 1)). Suivant la direction x, la largeur l totale du modèle a été fixée à 1000 nm, de façon à éviter toute interaction élastique entre la couche d'InGaAs et les surfaces libres perpendiculaires à la direction [Ox]. Le maillage est réalisé avec des éléments rectangulaires à 8 noeuds.

### IV, 3, 2) Résultats des calculs

Les calculs par éléments finis des champs de déformation et de déplacement ont été réalisés en fonction de l'épaisseur t de l'échantillon, avec le modèle précédemment décrit. Les résultats obtenus pour les champs de déformation  $\epsilon_{xx}$  et  $\epsilon_{yy}$  avec  $t = 100$  nm (rapport de l'épaisseur de l'échantillon sur la largeur du puits:  $t / e = 10$ ) sont représentés sur les **figures IV, 4 , a** et **IV, 5, a** respectivement. Nous avons également représenté sur ces figures les profils obtenus à la surface de l'échantillon ( $y = t / 2$ , **figures IV, 4 , b** et **IV, 5, b**) et ceux obtenus au centre du puits ( $x = 0$ ), en fonction de la distance à la surface de l'échantillon (**figures IV, 4 , c** et **IV, 5, c**). De fortes variations des champs de déformation sont observées dans le puits, près de la surface de l'échantillon. Ces valeurs du champ de déformation sont positives quand le matériau est étiré (tension) et négatives quand il est comprimé (compression). Les valeurs nominales (correspondant à la déformation du puits dans un échantillon massif) sont données par la relation (IV, 1), soit :  $\epsilon_{yy} = \epsilon_0 = -0,0092$  et  $\epsilon_{xx} = -2\nu / (1-\nu) \epsilon_0 \approx -\epsilon_0 = 0,0092$  (avec  $\nu \approx 1/3$ ). On voit sur la figure IV, 4, a et sur les profils correspondants que la déformation suivant [Ox] est supérieure à la valeur nominale (d'environ 40 %) à la surface du puits, indiquant un étirement du puits dans la direction [Ox]. Dans le puits, on constate l'existence d'une poche de relaxation (de l'ordre de 50 %) située à quelques nm sous la surface (6 nm, d'après le profil de la figure IV, 4, c, ce qui correspond à peu près à la demi-largeur du puits). La matrice accommode une faible partie des déformations et on note l'existence d'une poche de tension près de la surface de l'échantillon (les autres valeurs des déformations dans la matrice sont négligeables). Au centre du puits ( $y = 0$ ), la

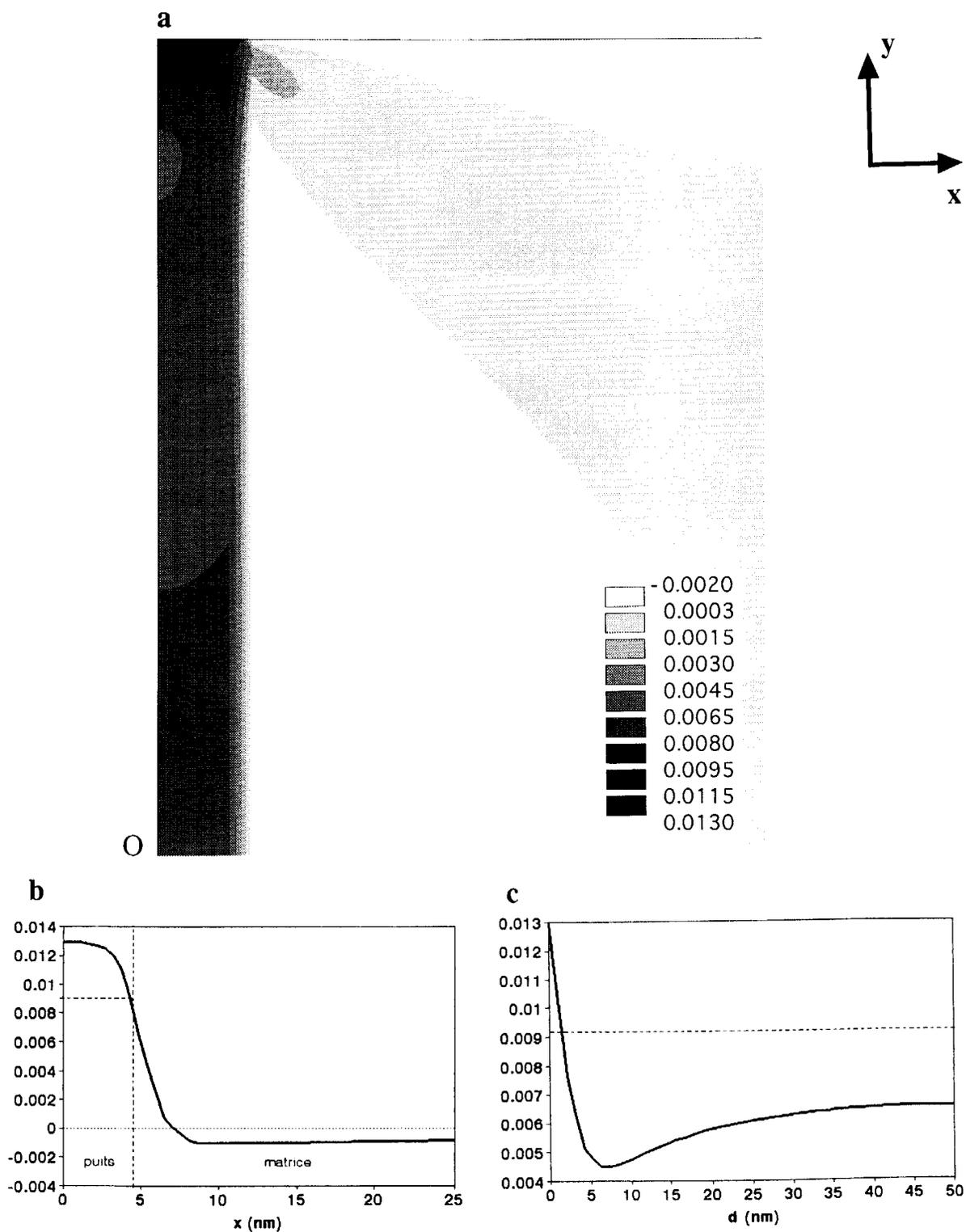


figure IV, 4: (a): Carte de la composante  $\epsilon_{xx}$  du champ de déformation calculée par la méthode des éléments finis, pour  $t = 100$  nm ( $t / e = 10$ ), sur le quart du modèle de la figure IV, 1, a ( $x$  et  $y > 0$ ). (b): Valeurs de  $\epsilon_{xx}$  à la surface de l'échantillon en fonction de l'abscisse  $x$ . (c): Valeurs de  $\epsilon_{xx}$  au centre du puits en fonction de la distance  $d = ly - t/2l$  à la surface de l'échantillon. Sur ces graphiques, la valeur nominale  $\epsilon_0 = 0,0092$  est indiquée par une ligne discontinue.

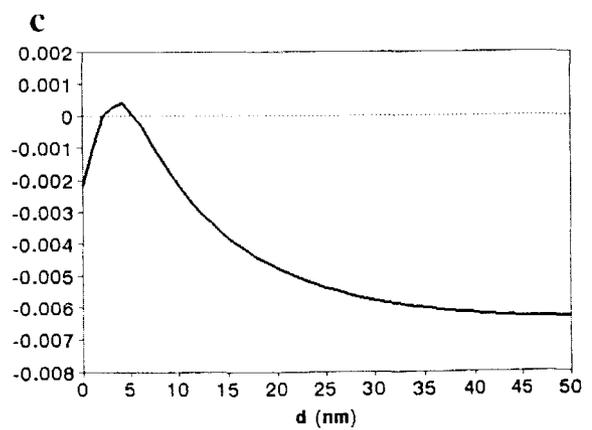
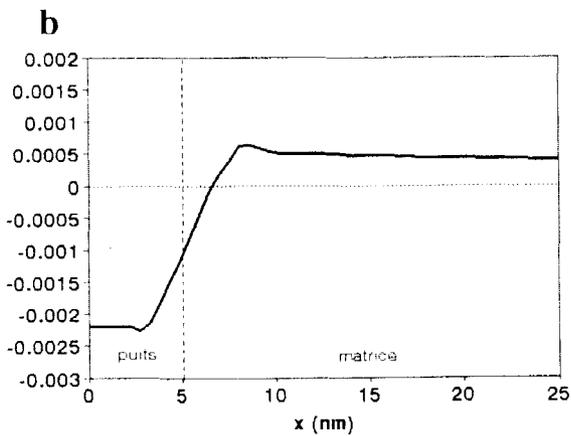
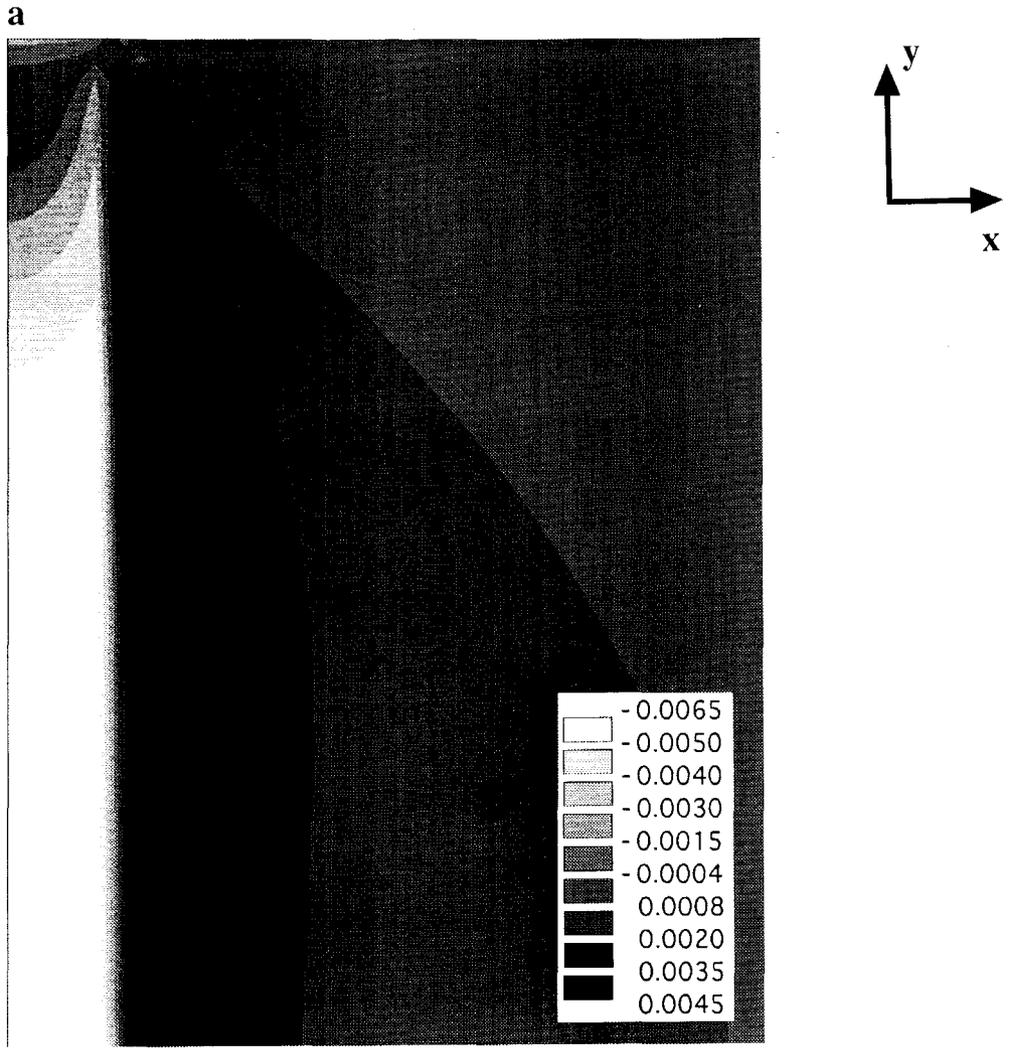


figure IV, 5: (a): Carte de la composante  $\epsilon_{yy}$  du champ de déformation calculée par la méthode des éléments finis, pour  $t = 100$  nm ( $t / e = 10$ ), sur le quart du modèle de la figure IV, 1, a ( $x$  et  $y > 0$ ). (b): Valeurs de  $\epsilon_{yy}$  à la surface de l'échantillon en fonction de l'abscisse  $x$ . (c): Valeurs de  $\epsilon_{yy}$  au centre du puits en fonction de la distance  $d = |y - t/2|$  à la surface de l'échantillon.

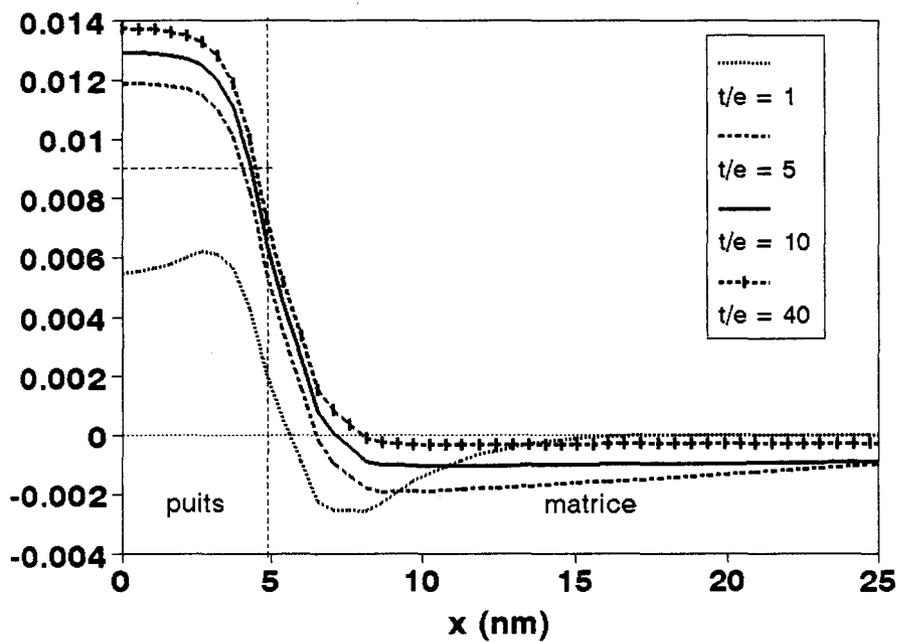


figure IV. 6: Composante  $\epsilon_{xx}$  du champ de déformation à la surface de l'échantillon, calculée pour diverses valeurs du rapport  $t/e$ . Sur ce graphique, la valeur nominale  $\epsilon_0 = 0,0092$  est indiquée par une ligne discontinue.

déformation  $\varepsilon_{xx}$  est inférieure à la déformation nominale (de l'ordre de 30 %), ce qui indique une relaxation. Les calculs montrent cependant que, quand l'épaisseur de l'échantillon augmente, la valeur de  $\varepsilon_{xx}$  loin de la surface tend rapidement vers la valeur nominale. En ce qui concerne la composante  $\varepsilon_{yy}$  de la déformation dans le puits (figures IV, 5), on constate une relaxation pratiquement totale juste sous la surface de l'échantillon. Cette relaxation décroît progressivement lorsque la distance à la surface augmente. Au centre du puits, on constate encore une relaxation de l'ordre de 30 % par rapport à la déformation nominale. La matrice accommode une petite partie de la déformation le long de l'interface puits / matrice, mais cette participation de la matrice reste faible.

Nous présentons maintenant l'évolution des champs de déformation avec la valeur du rapport  $t / e$ . Sur la **figure IV, 6** sont représentées les valeurs de la composante  $\varepsilon_{xx}$  du champ de déformation à la surface libre de l'échantillon, pour des valeurs de l'épaisseur variant de 10 nm ( $t / e = 1$ ) à 400 nm ( $t / e = 40$ ). Ces valeurs correspondent à celles couramment rencontrées pour les échantillons MET en "cross-section". Comme on peut le voir sur ces profils, les champs de déformation sont peu sensibles à la valeur du rapport  $t / e$ , tant que celle-ci est supérieure à 5. Ceci signifie que les variations des champs de déformation observées ici sont bien associées à un phénomène de surface, indépendant de l'épaisseur de l'échantillon. Par contre, avec  $t = 10$  nm ( $t / e = 1$ ), les fortes différences observées par rapport aux autres profils doivent être associées à des "effets de lame mince", c'est à dire à une interaction des champs de déformation associés aux surfaces libres supérieure et inférieure de l'échantillon. Dans la pratique cependant, on pourra toujours se placer à des épaisseurs suffisantes ( $t > 50$  nm) pour que ce phénomène ne vienne pas perturber la mesure des champs de déformation associés à la relaxation en surface du puits contraint.

L'ensemble de ces résultats met clairement en évidence les hétérogénéités des champs de déformation associées au relâchement des contraintes à la surface de l'échantillon. Les variations des champs de déformation sont essentiellement localisées dans le puits et leurs valeurs sont indépendantes du rapport  $t / e$ . Ces résultats sont tout à fait compatibles avec ceux obtenus par Faux et al [9] avec la méthode des séries de Fourier, dans le cas de puits émergents à la surface d'une hétérostructures de type "ruban allongé" (voir la figure I, 1, b, chapitre I). Dans le cadre de cette étude, nous confronterons ces résultats à ceux obtenus avec la méthode des séries de Fourier en comparant les résultats des simulations de contraste dynamique de diffraction issus des deux types de calculs. Ces contrastes sont présentés dans la partie suivante de ce chapitre.



#### **IV, 4) Résultats des observations MET**

Le vecteur de diffraction utilisé pour mettre en évidence les contrastes de diffraction associés à la relaxation en surface du puits est le vecteur appartenant au plan de la surface de l'échantillon  $g = 400$ . Ainsi que nous le verrons, ce vecteur, avec sa petite distance d'extinction ( $\xi_g = 110 \text{ nm}$  à  $300 \text{ kV}$ ), est très sensible aux variations des champs de déplacement parallèle à la direction  $[Ox] = [100]$ . Avec ce vecteur de diffraction, de longueur assez grande dans le réseau réciproque, il est aisé de se mettre en condition deux ondes (la contribution à l'image du vecteur de diffraction  $g = 200$  de la rangée, de faible intensité ( $\xi_{200} = 1006 \text{ nm} \gg \xi_{400}$ ), est alors pratiquement nulle). Ainsi que nous l'avons rapporté dans la première partie de ce chapitre, ce type d'observation a déjà été réalisée par Perovic et al [5], sur des couches alternées de  $\text{Si}_{0,8}\text{Ge}_{0,2}$  enterrées dans une matrice de Si (taux de désadaptation 0,009), et c'est pourquoi nous comparerons nos résultats avec ceux obtenus par ces auteurs.

Sur les **figures IV, 7 et IV, 8** sont représentées les images MET (numériques) obtenues en champ clair et en champ noir à  $300 \text{ kV}$  avec le vecteur de diffraction  $g = 400$  pour deux valeurs de l'épaisseur  $t$  de l'échantillon. Ces valeurs, mesurées en CBED, sont:  $t = 225 \pm 5 \text{ nm}$  pour la figure IV, 7 et  $t = 360 \pm 10 \text{ nm}$  pour la figure IV, 8. Les autres paramètres de microscopie associés à ces images sont:  $w = 0,22 \pm 0,05$  ( $s = 2,0 \pm 0,5 \times 10^{-3} \text{ nm}^{-1}$ ) pour les images en champ clair (figures IV, 7 a et IV 8, a) et  $w = 0,0 \pm 0,05$  ( $s = 0$ ) en champ noir (figures IV, 7, c et IV, 8, c). Notons ici que les incertitudes relatives importantes obtenues sur  $w$  ( $\Delta w / w \approx 20 \%$  pour les observations en champ clair) sont dues à la faiblesse de ses valeurs, proches de zéro. Ces valeurs correspondent aux conditions expérimentales de meilleur contraste et leur influence sera discutée ultérieurement. Sur les figures IV, 7 et IV, 8 sont également représentés les profils d'intensité associés aux images parallèlement à la direction  $[Ox] = [100]$ .

Comme l'ont observé Perovic et al [5], les distorsions des plans atomiques près des surfaces de l'échantillon se manifestent par l'existence de bandes de contraste larges et diffuses de part et d'autre du puits (l'extension latérale des bandes est environ de  $100 \text{ nm}$ ), puits dont la position est repérée sur les images par les lignes verticales. On voit sur ces images que les allures des contrastes en champ clair et en champ noir sont très différentes. Les contrastes sont pratiquement symétriques en champ clair (figures IV, 7, a et IV, 8, a), constitués de deux bandes claires étroites et de deux bandes noires plus larges, situées de chaque côté du puits. Ces contrastes sont très similaires à ceux présentés par Perovic et al, et ils sont caractéristiques des images obtenues en champ clair, quelles que soient les valeurs de  $t$  et de  $w$ .

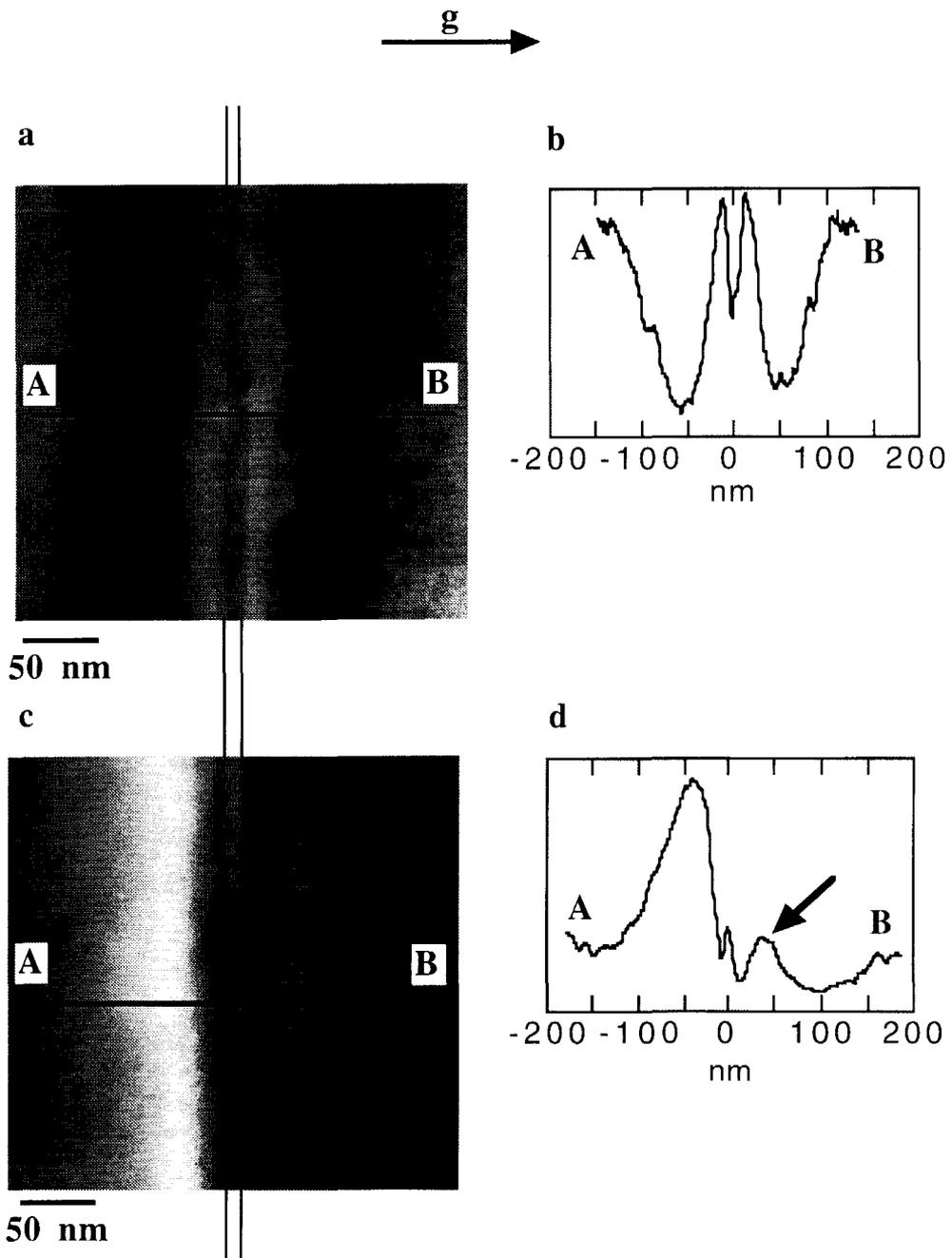


figure IV, 7: (a): Micrographie MET numérique en champ clair du puits contraint d' $\text{In}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$  observé en cross-section.  $g = 400$ ,  $w = 0,22$ ,  $t = 225$  nm. (b): Profil d'intensité correspondant le long de AB. (c) Micrographie en champ noir de la même zone que celle représentée sur (a).  $g = 400$ ,  $w = 0$ . (d): Profil d'intensité correspondant le long de AB.

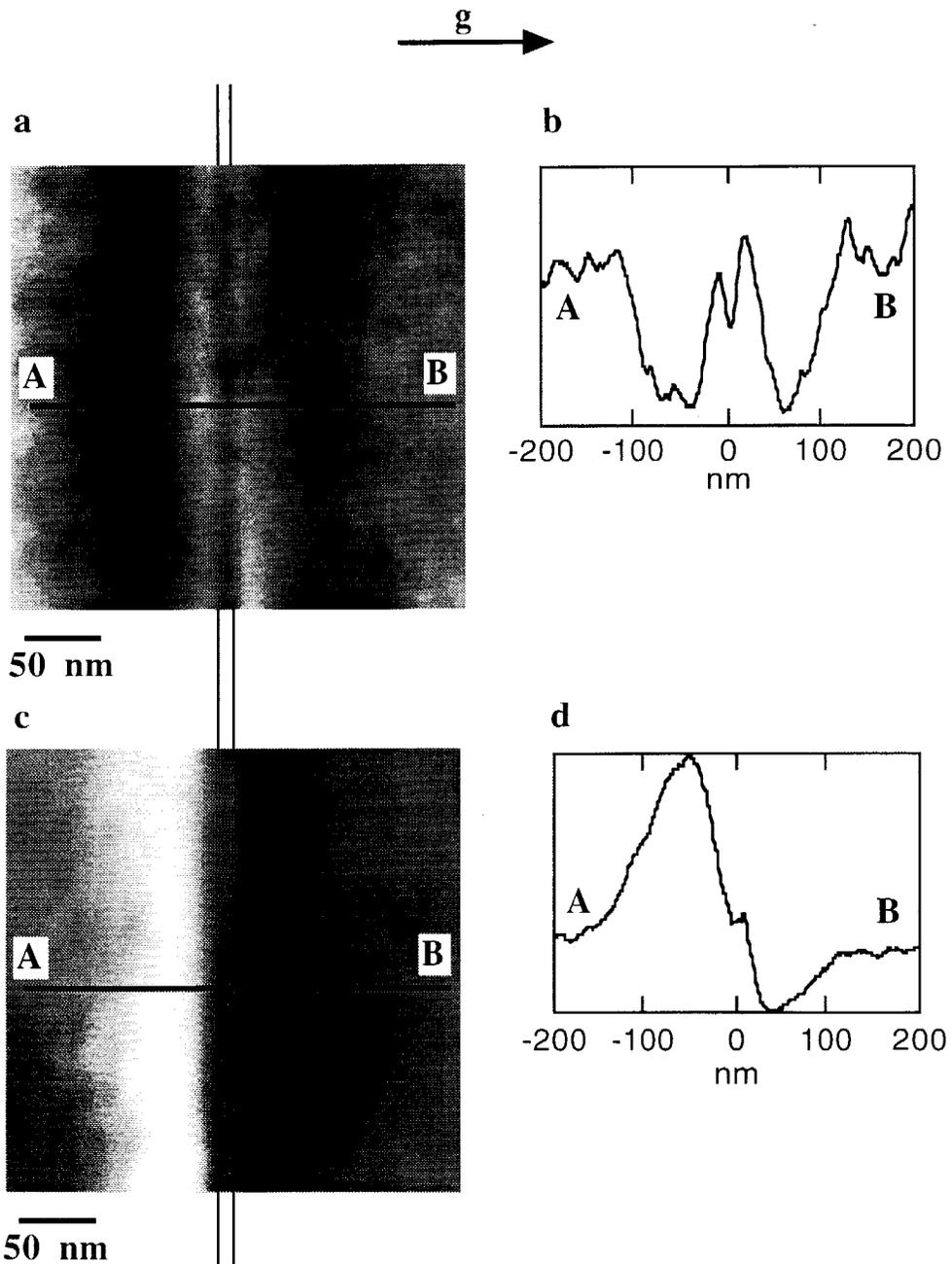


figure IV, 8: (a): Micrographie MET numérique en champ clair du puits contraint d' $\text{In}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$  observé en cross-section.  $g = 400$ ,  $w = 0,22$ ,  $t = 360$  nm. (b): Profil d'intensité correspondant le long de AB. (c) Micrographie en champ noir de la même zone que celle représentée sur (a).  $g = 400$ ,  $w = 0$ . (d): Profil d'intensité correspondant le long de AB.

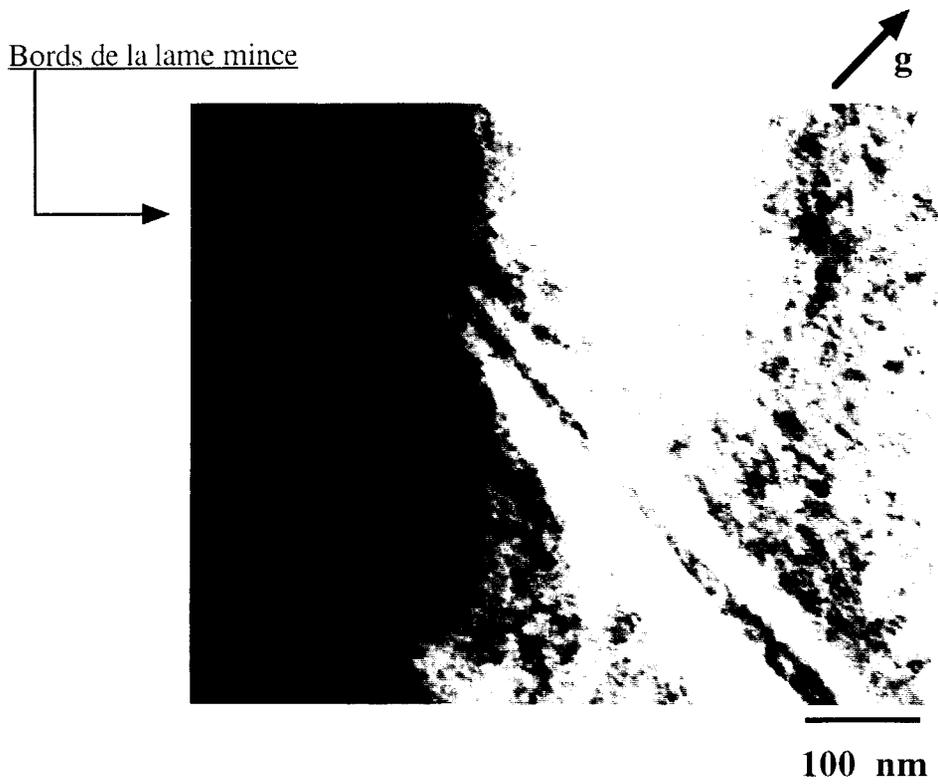
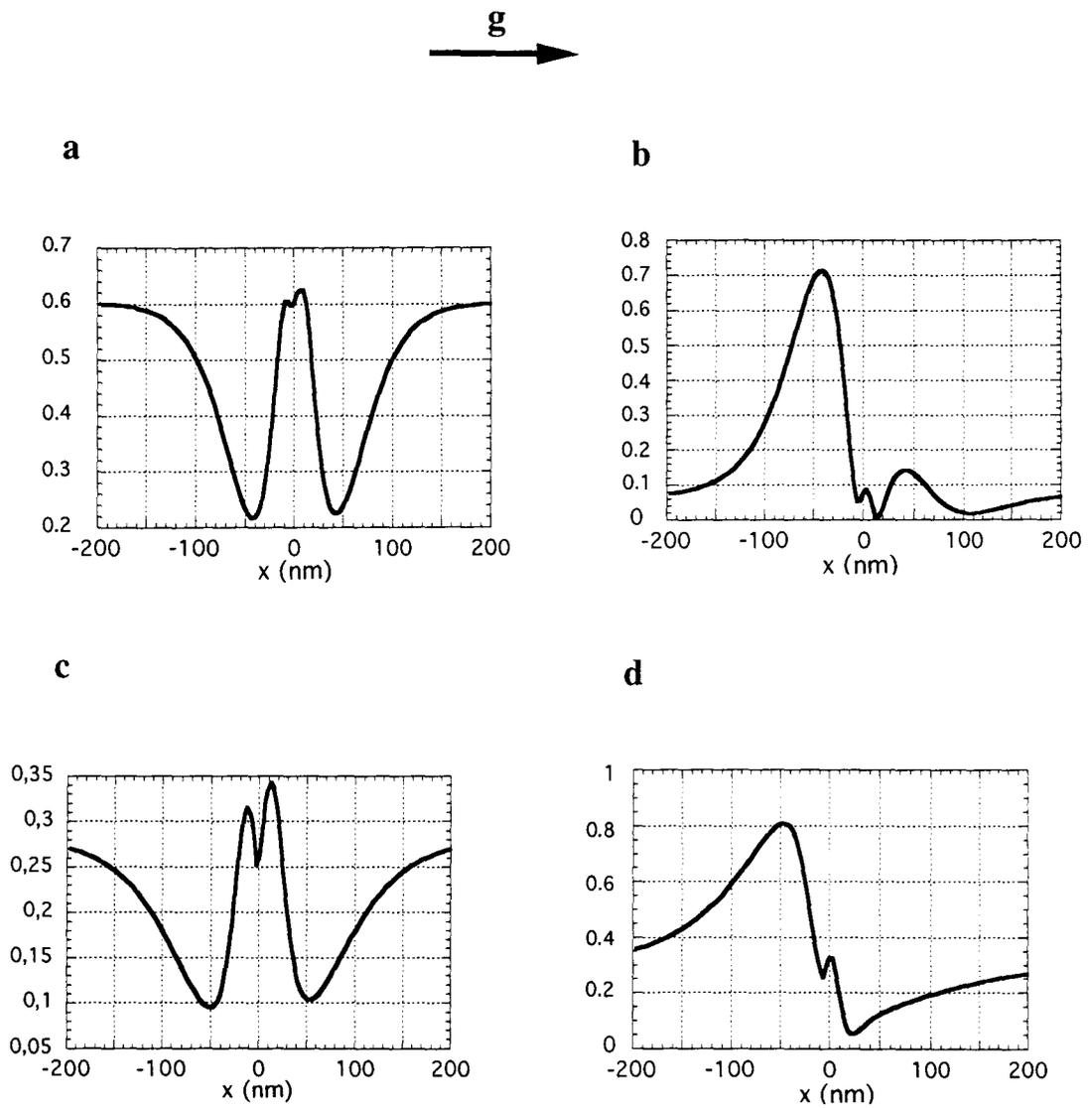


figure IV, 9: Micrographie MET en champ noir du puits d' $\text{In}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$  près du bord de la lame mince ( $t < 100 \text{ nm}$ ).  $g = 400$ ,  $w = 0$ .

Par contre, les contrastes en champ noir (figures IV, 7, c et IV, 8, c) sont asymétriques par rapport au puits. De plus, leur allure est très dépendante de l'épaisseur de l'échantillon. Ainsi, pour l'épaisseur  $t = 225$  nm, la bande noire située à droite du puits est modulée, montrant un pic clair de faible intensité (fléché sur la figure IV, 7, d), tandis que pour l'épaisseur  $t = 360$  nm, cette caractéristique a disparu. Une telle sensibilité du comportement des champs noirs en fonction de l'épaisseur de l'échantillon n'avait pas été reportée par Perovic et al, qui ont observé des contrastes symétriques pour  $t \leq 4 \xi_g$  et asymétriques pour  $t \geq 4 \xi_g$ . Dans notre cas, un contraste quasi-symétrique (constitué de deux bandes claires) n'a été observé que pour de faibles valeurs de  $t$  ( $t \leq \xi_g \approx 100$  nm). Ce type de contraste est reporté sur la micrographie MET de la **figure IV, 9**, qui représente une observation en champ noir du puits près des bords de la lame mince ( $t < 100$  nm). Notons que pour ces faibles épaisseurs, les mesures en CBED sont très imprécises, du fait des distorsions de la lame mince près des bords du trou, et cette image ne pourra pas être exploitée. Quand l'épaisseur de l'échantillon augmente, le contraste en champ noir évolue d'une allure symétrique à une allure asymétrique, par l'évolution progressive (de clair à sombre) de la bande diffuse située à droite du puits. Dans la prochaine partie de ce chapitre, nous présenterons de façon détaillée l'évolution du comportement des contrastes (en champ noir et en champ clair) avec l'épaisseur de l'échantillon.



**figure IV, 10:** Profils d'intensité MET simulés le long de la direction  $[Ox]$  à partir des calculs par éléments finis,  $g = 400$ ,  $A_g = 0,061$ . (a): Champ clair,  $w = 0,22$ ,  $t = 225$  nm. (b): Champ noir,  $w = 0$ ,  $t = 225$  nm. (c): Champ clair,  $w = 0,22$ ,  $t = 360$  nm. (d): Champ noir,  $w = 0$ ,  $t = 360$  nm.

## IV, 5) Résultats des simulations de contraste

Afin de valider les résultats des calculs par éléments finis, nous les avons testés en simulant les contrastes de diffraction obtenus avec le vecteur de diffraction  $\mathbf{g} = 400$ , et en comparant les résultats aux images expérimentales. Ces simulations de contraste ont été réalisées en utilisant la composante des champs de déplacement parallèle à  $[Ox]$ , suivant la méthode décrite dans la deuxième chapitre de ce rapport, et pour diverses valeurs de l'épaisseurs de l'échantillon. Les contrastes ont également été simulés en utilisant les résultats des champs de déplacement obtenus avec la méthode des séries de Fourier. Pour ce faire, un programme a été bâti, permettant de résoudre numériquement les équations de la théorie dynamique de la diffraction des électrons (dans l'approximation de la colonne, voir le chapitre II) en tout point d'altitude  $y$  de la colonne, pour lequel la composante suivant  $x$  du champ de déplacement a été préalablement calculée.

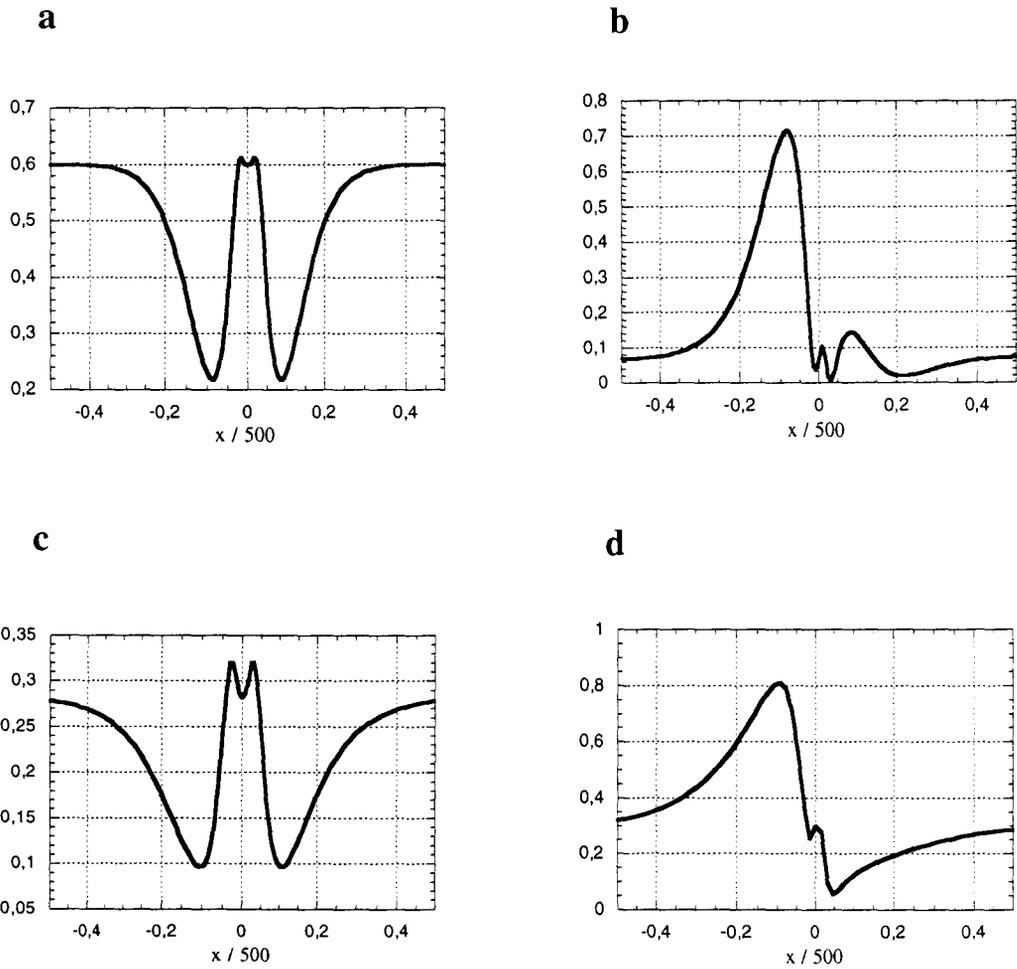
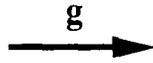
Dans un premier temps, nous présentons les résultats obtenus dans les conditions des images représentées sur les figures IV, 7 et IV, 8 et les comparons aux résultats expérimentaux. Afin de valider cette comparaison, il nous faudra étudier la sensibilité des profils simulés aux divers paramètres expérimentaux, compte tenu des incertitudes existantes sur ces derniers ( $t$ ,  $w$  et composition chimique de la couche). Un paragraphe particulier sera consacré à l'influence du paramètre d'absorption  $A_g$  qui, comme nous le verrons, se révélera être d'une grande importance sur l'allure des profils calculés.

### IV, 5. 1) Résultats des simulations pour $t = 225$ nm et $t = 360$ nm

Sur la **figure IV, 10** sont reproduits les résultats des calculs d'intensité réalisés en utilisant les paramètres MET correspondant aux images des figures IV, 7 et IV, 8. Ces paramètres sont:  $\mathbf{g} = 400$ ,  $w = 0,22$  pour les champs clairs et  $w = 0$  pour les champs noirs,  $t = 225$  nm pour la figure IV, 7 et  $t = 360$  nm pour la figure IV, 8. Pour ces calculs, les mêmes valeurs de distances d'extinction et d'absorption ont été utilisées pour la matrice (GaAs) et pour le puits ( $\text{In}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ ). Dans le cadre de cette étude, nous ne sommes en effet intéressés que par les contrastes de diffraction associés à la relaxation en surface du puits, et non au contraste chimique de ce dernier.

Ainsi que nous pouvons le constater sur cette figure, les profils simulés sont en bon accord avec les profils expérimentaux, les caractéristiques principales de ces derniers étant bien reproduites par les simulations:

- les champs clairs sont symétriques par rapport au puits,
- les champs noirs sont asymétriques par rapport au puits,
- la bande sombre du profil obtenu en champ noir est modulée pour  $t = 225$  nm, et cette modulation n'apparaît plus à 360 nm,



**figure IV, 11:** Profils d'intensité MET simulés le long de la direction  $[Ox]$  à partir des calculs par la méthode des séries de Fourier.  $g = 400$ ,  $A_g = 0,061$ . (a): Champ clair,  $w = 0,22$ ,  $t = 225$  nm. (b): Champ noir,  $w = 0$ ,  $t = 225$  nm. (c): Champ clair,  $w = 0,22$ ,  $t = 360$  nm. (d): Champ noir,  $w = 0$ ,  $t = 360$  nm.

- la position des maxima et des minima d'intensité, ainsi que la largeur des bandes de contraste, sont en bon accord avec les observations expérimentales.

Les simulations d'intensité réalisées dans les mêmes conditions en utilisant la méthode des séries de Fourier pour le calcul des champs de déplacement sont présentées sur la **figure IV, 11**. On voit que les profils ainsi obtenus sont pratiquement superposables à ceux obtenus avec la méthode des éléments finis (pour  $t = 360$  nm, les profils en champ clair présentent de légères différences près des bords du puits mais les allures globales des profils sont identiques). Les deux types d'approche - calculs analytiques et calculs par éléments finis - sont donc tout à fait compatibles dans le cas présent, et ceci nous permet de valider les résultats d'éléments finis pour ce type de calculs, la méthode des séries de Fourier pouvant être considérée comme une méthode exacte de calcul dans le cas de ce problème plan.

#### IV, 5, 2) Sensibilité des simulations aux paramètres $t$ , $w$ et $x$

Les paramètres que nous considérons dans ce paragraphe sont: l'épaisseur  $t$  de l'échantillon, l'écart à la condition de Bragg représenté par le paramètre  $w = s\xi_g$ , et la composition en indium  $x$  du puits.

Dans un premier temps, la **figure IV, 12** présente les variations des profils d'intensité calculés en fonction de l'épaisseur de l'échantillon pour les valeurs couramment rencontrées en MET avec des échantillons en "cross-section". Ces résultats montrent que les profils en champ clair sont symétriques, quelle que soit l'épaisseur de l'échantillon. Par contre, en champ noir, à chaque épaisseur est associé un profil particulier. On voit ainsi que les champs noirs ne peuvent pas être décrits comme étant soumis à une simple transition symétrique / asymétrique quand l'épaisseur de l'échantillon augmente, comme l'ont rapporté Perovic et al [5] dans le cas de couches alternées de Si / SiGe / Si. Tout ce qui peut être dit à propos du comportement des champs noirs en fonction de l'épaisseur est qu'ils sont symétriques pour  $t \leq \xi_g$  et qu'ils ne le sont plus pour  $t \geq \xi_g$ . Notons enfin que pour  $t \ll \xi_g$  ( $t / e \ll 10$ ), les contrastes simulés en champ noir redeviennent asymétriques. Ceci est à associer aux "effets de lame mince" qui ont été mis en évidence lors de la présentation des résultats des calculs par éléments finis: pour ces faibles épaisseurs, les champs de déformation associés à la relaxation en surface du puits contraint sont fortement modifiés par les interactions des surfaces libres de l'échantillon.

Nous considérons à présent l'influence, sur les profils, des incertitudes sur les mesures expérimentales de  $t$ ,  $w$  et  $x$ . Afin de faciliter la comparaison des profils, les résultats sont présentés en valeurs de contraste  $(I - I_0) / I_0$ , où  $I_0$  est l'intensité du fond.

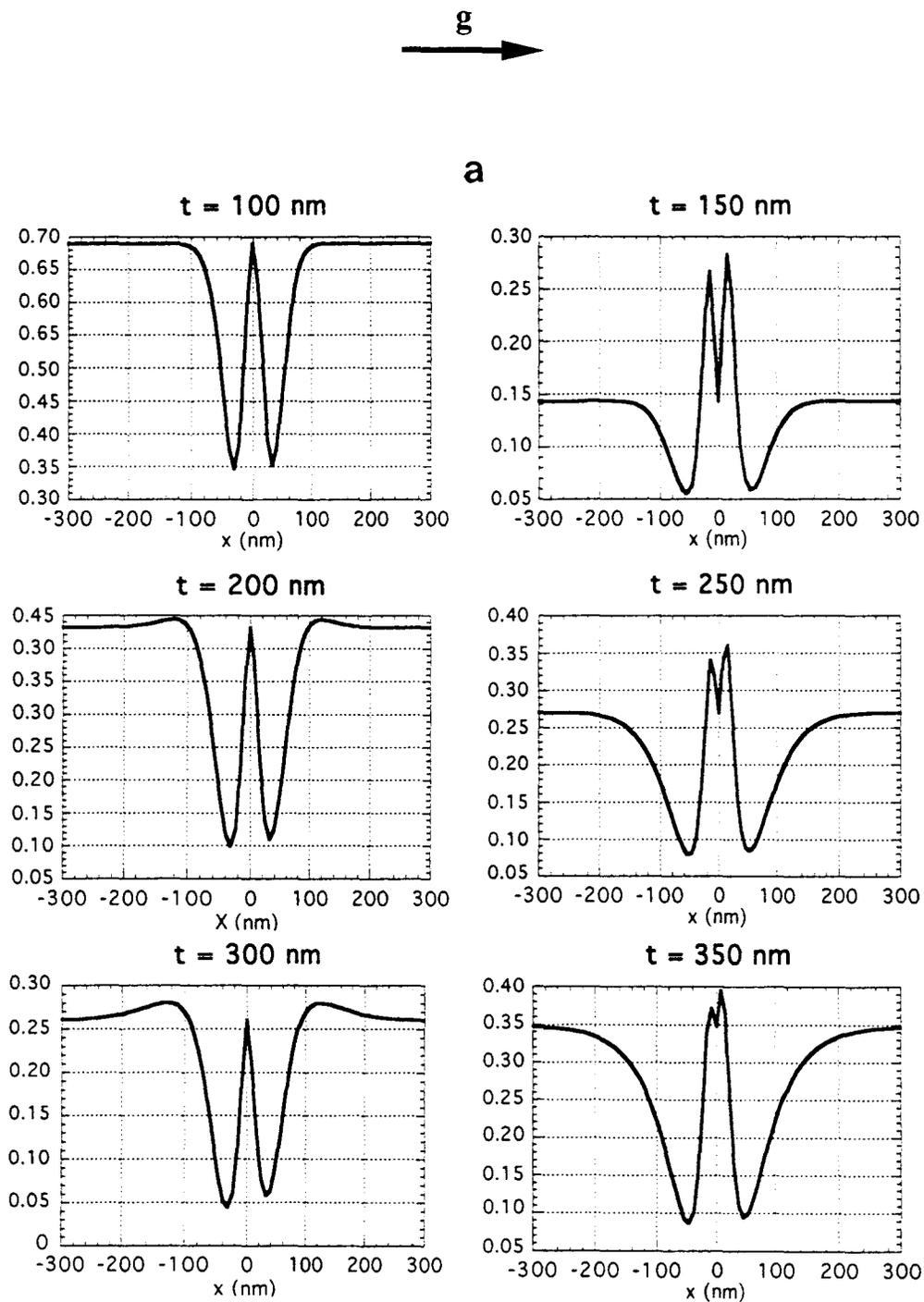


figure IV. 12: (a): Profils d'intensité calculés en champ clair pour des valeurs de l'épaisseur de l'échantillon variant de 100 à 350 nm.  $g = 400$ ,  $w = 0$ ,  $A_g = 0,061$ .

$g$  →

**b**

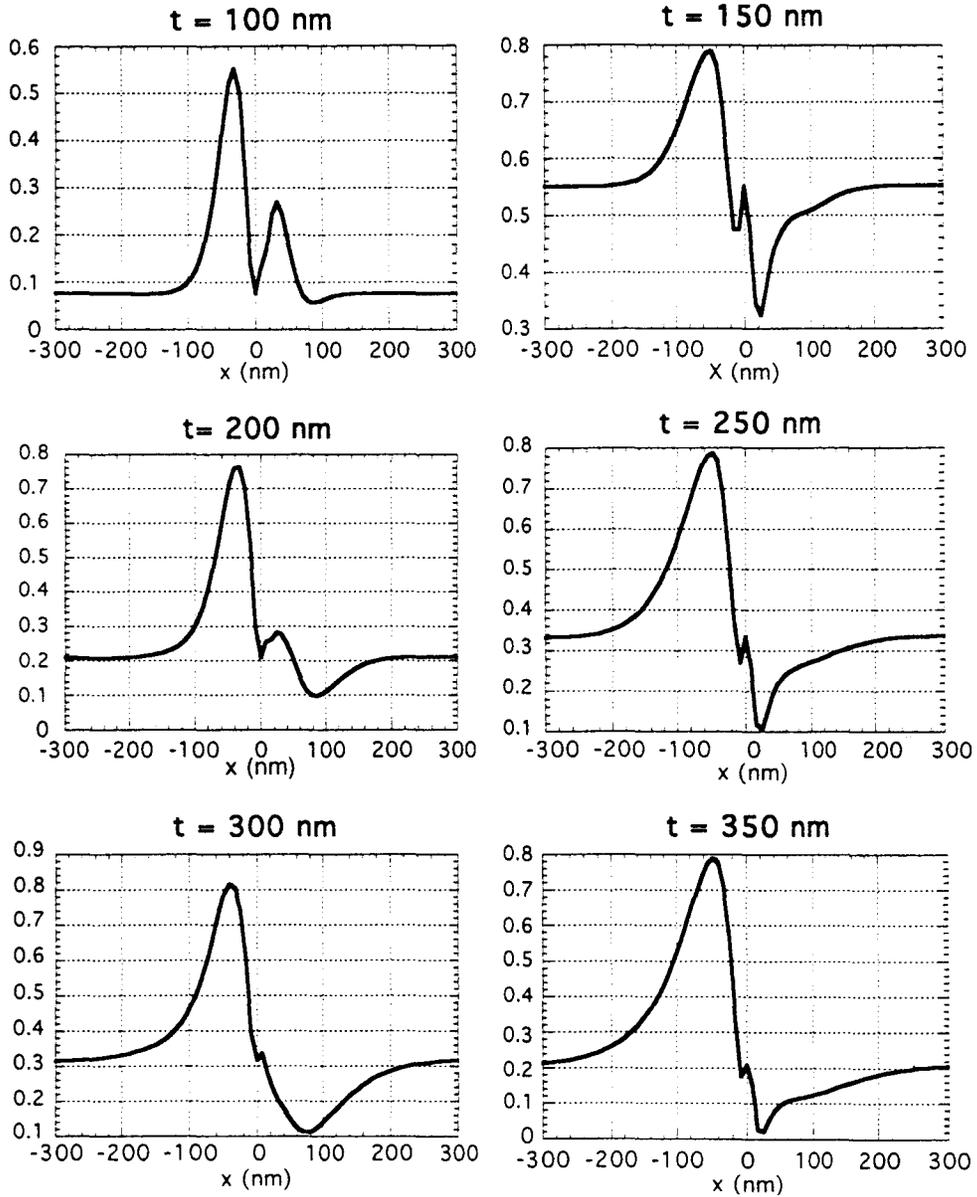


figure IV. 12: (b): Profils d'intensité calculés en champ noir pour des valeurs de l'épaisseur de l'échantillon variant de 100 à 350 nm.  $g = 400$ ,  $w = 0$ ,  $A_g = 0,061$ .

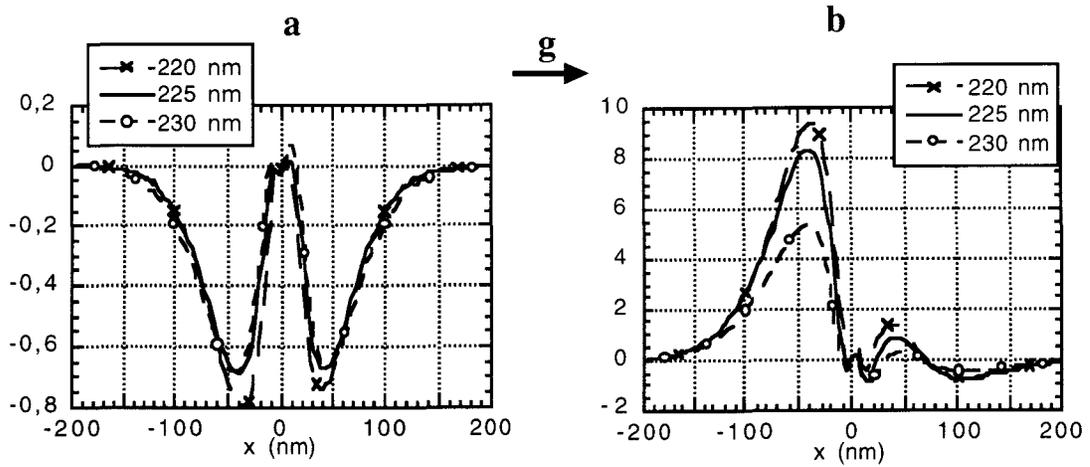


figure IV, 13: Influence de  $t$  sur les profils calculés. Les variations de  $t$  correspondent à l'incertitude expérimentale dans le cas où  $t = 225 \pm 5$  nm.  $g = 400$ ,  $w = 0$ ,  $Ag = 0,061$ . (a): Champs clairs. (b): Champs noirs.

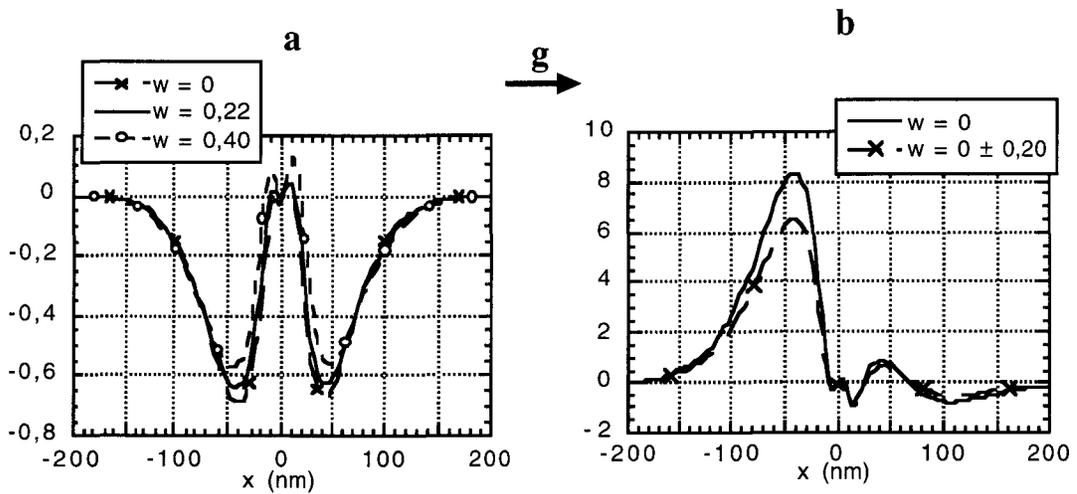


figure IV, 14: Influence de  $w$  sur les profils calculés. Les variations de  $w$  considérées sont supérieures aux incertitudes expérimentales.  $t = 225$  nm,  $g = 400$ ,  $Ag = 0,061$ . (a): Champs clairs,  $w = 0,22 \pm 0,20$ . (b): Champs noirs,  $w = 0,0 \pm 0,20$ .

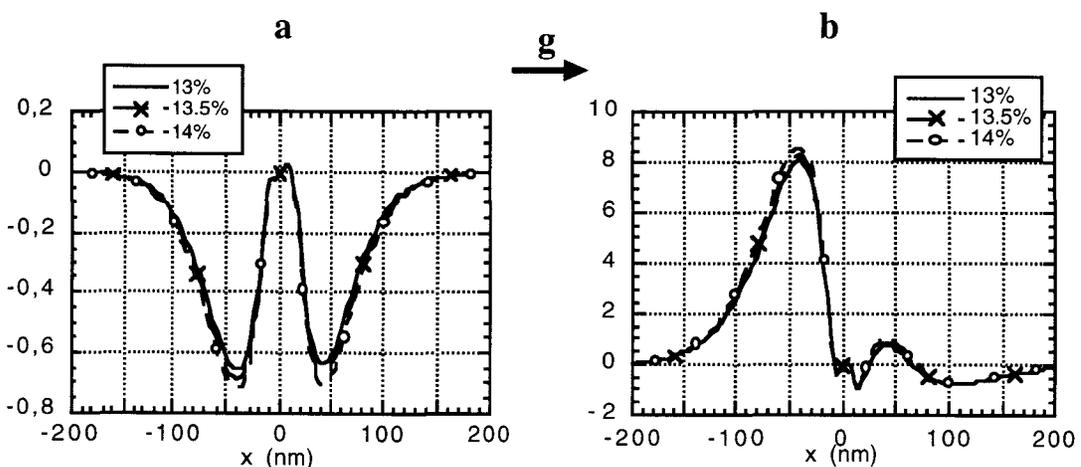


figure IV, 15: Influence de la composition en indium  $x$  du puits sur les profils calculés. Les variations de  $x$  correspondent à l'incertitude expérimentale sur cette valeur.  $t = 225$  nm,  $w = 0$ ,  $Ag = 0,061$ .

Pour l'étude de l'influence de  $w$  et  $x$ , les simulations sont présentées avec l'épaisseur  $t = 225$  nm. Nous avons vérifié que les résultats ainsi obtenus étaient généralisables à toutes les épaisseurs de l'échantillon.

Sur la **figure IV, 13** sont représentés les profils de contraste qui ont été calculés pour  $t$  variant de 220 à 230 nm, ce qui correspond à l'incertitude expérimentale sur la mesure de  $t = 225$  nm. Ces calculs montrent que, dans la gamme considérée, les variations de l'épaisseur ont peu d'influence sur les profils de contraste en champ clair. Les champs noirs sont plus sensibles à la valeur de l'épaisseur, mais cette sensibilité influe peu toutefois sur la comparaison des profils expérimentaux et simulés.

L'influence des variations de  $w$ , variations supérieures aux incertitudes expérimentales sur cette valeur, est représentée sur la **figure IV, 14**. On constate que même pour ces variations importantes de  $w$ , les profils simulés ne varient pratiquement pas.

Le dernier paramètre expérimental considéré ici est la composition en indium  $x$  du puits. Les observations en photoluminescence réalisées au laboratoire ont permis de déterminer la valeur précise de ce paramètre ainsi que l'incertitude qui lui était associée, soit  $x = 13,5 \% \pm 0,5 \%$ . Sur la **figure IV, 15** sont représentés les profils obtenus en champ clair et en champ noir pour ces valeurs de composition. Ces résultats montrent que l'incertitude expérimentale sur la valeur de  $x$  a peu d'influence sur les profils. Les calculs montrent en fait que des différences notables commencent à être observées entre les profils pour des variations de  $x$  de l'ordre de 25 %.

#### IV, 5, 3) Influence du paramètre d'absorption anormale $A_g$

En ce qui concerne le coefficient d'absorption anormale  $A_g$ , les profils présentés jusqu'ici ont été calculés avec la valeur de  $A_g = 0,061$ , qui correspond à la valeur issue des calculs de Bird et King présentés dans le chapitre II. Cependant, l'incertitude sur cette valeur n'est pas connue avec précision et afin d'apprécier l'influence de ce paramètre sur les profils calculés, nous avons réalisé des simulations en utilisant d'autres valeurs de  $A_g$ , inférieures et supérieures à la valeur précédente. Les résultats de ces calculs sont présentés sur la **figure IV, 16**, pour des valeurs de  $A_g$  variant entre 0,035 et 0,075. On constate que les champs noirs sont très sensibles à la valeur de  $A_g$ , tandis que les champs clairs sont insensibles à cette valeur. La comparaison avec les profils expérimentaux représentés sur la figure IV, 7 nous indique que la valeur de  $A_g = 0,061$  est une valeur qui permet de rendre compte de façon satisfaisante de l'allure des profils. Cependant, la comparaison avec ces profils ne peut rester qu'à un niveau qualitatif. On constate en effet, qu'avec la valeur de  $A_g = 0,075$ , le pic clair dans la bande droite du contraste relevé sur le profil expérimental n'apparaît plus sur le profil, tandis qu'avec la valeur de  $A_g =$

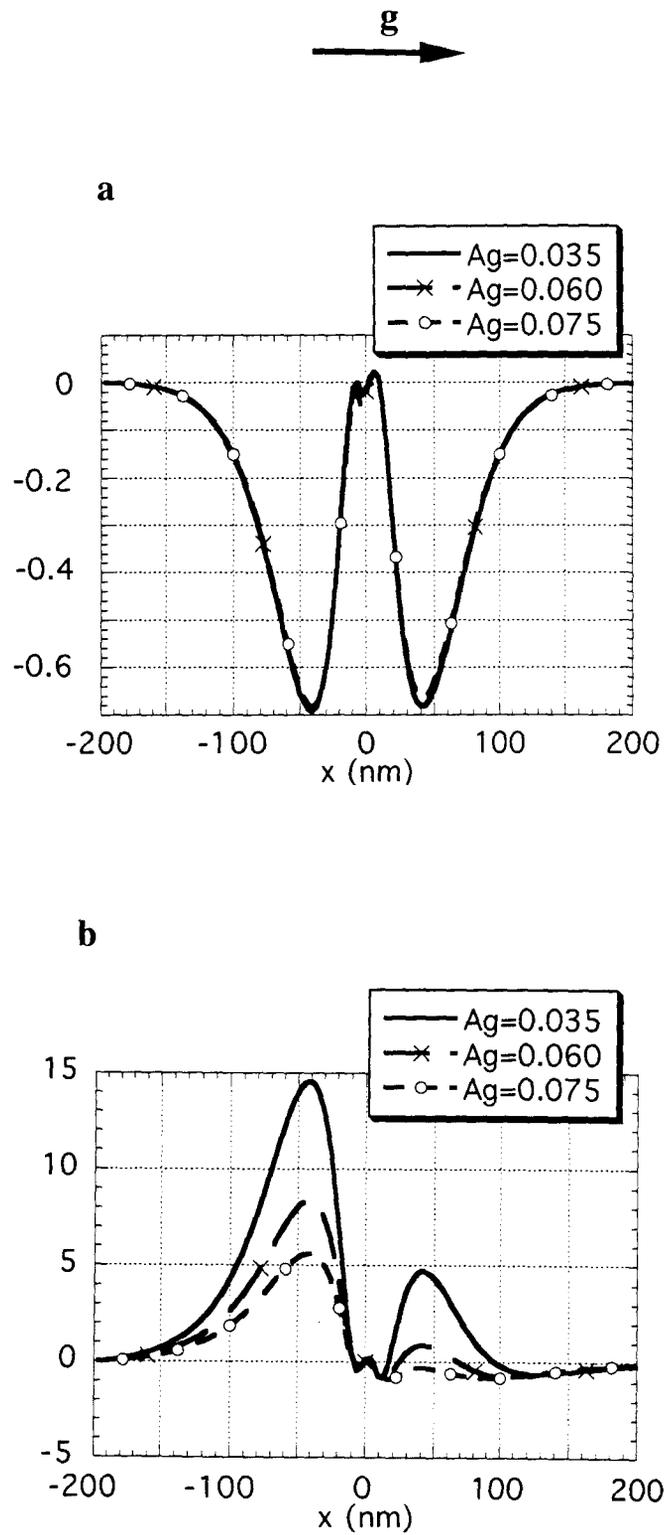


figure IV. 16: Influence de  $A_g$  sur les profils calculés.  $g = 400$ ,  $t = 225$  nm,  $w = 0$ . (a): Champs clairs. (b): Champs noirs.

0,035, le profil en champ noir est constitué de deux bandes claires. Notons que l'évolution vers un profil quasi-symétrique quand la valeur de  $A_g$  diminue (diminution des effets d'absorption) est cohérente avec les prédictions de la théorie dynamique de la diffraction des électrons prenant en compte les effets d'absorption: quand ces derniers sont faibles, les champs noirs sont complémentaires des champs clairs.

On voit donc que le paramètre  $A_g$  joue un rôle important sur l'allure des profils pour ce type de contraste dynamique. Il apparaît en fait comme un paramètre à ajuster lors de la comparaison entre les profils simulés et expérimentaux. Ce point sera discuté dans la dernière partie de ce chapitre.



## **IV, 6) Discussion et conclusion**

Le but de l'étude présentée dans ce chapitre consistait à tester la validité de la méthode des éléments finis pour calculer la relaxation des champs de déformation associée à l'émergence, à la surface de l'échantillon, d'un puits contraint d'InGaAs enterré dans une matrice de GaAs. Pour ce faire, nous avons comparé les images expérimentales des contrastes de diffraction générés par cette relaxation à des images simulées issues des calculs précédents. Le bon accord qualitatif obtenu entre les deux types d'images nous permet de conclure sur la validité de cette méthode. Des résultats similaires ont d'autre part été obtenus en utilisant la méthode de calcul analytique des séries de Fourier, ce qui est une preuve supplémentaire de la validité de la méthode de calcul par éléments finis. Notons ici que l'avantage de cette méthode repose sur le fait qu'elle est généralisable à d'autre type de structures, plus complexes, ainsi que nous l'avons vu dans le précédent chapitre.

L'ensemble des profils théoriques présentés ont été calculés en considérant des interfaces abruptes entre le puits d'InGaAs et la matrice de GaAs. Cependant, il est bien connu que les effets de ségrégation d'indium peuvent limiter la réalisation expérimentale de telles interfaces dans ces hétérostructures [13, 14] et aboutir à l'obtention d'interfaces diffuses sur quelques monocouches (voir par exemple l'article de McCaffrey et al, [15]). Pour tenir compte de ce point, nous avons réalisé des calculs de champs de déplacement avec des modèles de puits à interfaces diffuses et comparé les résultats obtenus avec les modèles à interfaces abruptes. Les résultats nous ont permis de constater que les effets associés à l'existence de ces interfaces diffuses sur les champs de déplacement étaient tout à fait négligeables.

Nous avons d'autre part montré sur ce cas présentant une géométrie simple que les incertitudes expérimentales sur les paramètres expérimentaux, comme l'épaisseur de l'échantillon, l'écart à la condition de Bragg ou la composition chimique du puits, étaient suffisamment faibles pour ne pas entraver la comparaison qualitative entre les profils expérimentaux et les profils simulés. Cependant, entreprendre une comparaison quantitative entre les profils expérimentaux et les profils simulés est difficile dans le cas présent. En effet, l'influence de la valeur du coefficient d'absorption anormale s'est révélée être très importante. Pour s'affranchir de cet effet, il faudrait disposer d'images filtrées en énergie, pour lesquelles la contribution à l'image des électrons diffusés inélastiquement est supprimée. Ce point pourrait constituer le prolongement direct de l'étude que nous venons de présenter.



## REFERENCES du CHAPITRE IV:

- [1] R. F. Cook et A. Howie, *Phil. Mag.* **A 20**, 641 (1969).
- [2] F. D. Auret, C. A. B. Ball et C. Snyman, *Thin Solid Films* **61**, 289 (1979).
- [3] M. M. J. Treacy, J. M. Gibson et A. Howie, *Phil. Mag* **A 51**, 389 (1985).
- [4] M. M. J. Treacy et J. M. Gibson, *J. Vac. Sci. Technol.* **B 4**, 1458 (1986).
- [5] D. D. Perovic, G. C. Weatherly, D. C. Houghton, *Phil. Mag.* **A 64**, 1 (1991).
- [6] X. F. Duan et K. K. Fung, *Ultramicroscopy* **36**, 375 (1991)
- [7] R. Hull, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 2291 (1993).
- [8] C. T. Chou, S. C. Anderson, D. J. H. Cockayne, A. Z. Sikorski et M. R. Vauban, *Ultramicroscopy* **55**, 334 (1994).
- [9] D. A. Faux et J. Haig, *J. Phys.: Condens. Matter* **2**, 10289 (1990).
- [10] A. J. Harvey, D. A. Faux, U. Bangert et P. Charsley, *Phil. Mag.* **A 67**, 433 (1993).
- [11] S. P. Timoshenko et J. N. Goodier, *Theory of Elasticity*, troisième édition , New York, Mac graw-Hill, pp 53-60, 104-109 (1970).
- [12] C. Herbeaux, thèse de troisième cycle universitaire, Université des Sciences et Technologies de Lille, 1990.
- [13] J. Massies, F. Turco, A. Saletes et J. P. Contour, *J. Cryst. Growth* **80**, 307 (1987).
- [14] J. M. Moison, C. Guille, F. Houzay, F. Barthe et M. Van Rompay, *Phys. Rev.* **B 40**, 6149 (1989).
- [15] J. P. McCaffrey, Z. R. Wazilewski, M. D. Robertson et J. M. Corbett, *Phil. Mag.* **A 75**, 803 (1997).



## **CONCLUSION**



## CONCLUSION

L'étude des structures décrites aux chapitres III et IV est basée sur l'application des calculs par éléments finis au cas d'objets microscopiques (de dimensions de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres) alors que ces calculs étaient jusqu'alors réservés au cas d'objets de dimensions nettement supérieures. La méthode des éléments finis a cependant été retenue parce qu'elle conduit à des calculs relativement courts et à cause de sa grande flexibilité qui permet, par exemple, d'étudier des objets présentant des géométries complexes et variées. Il nous fallait donc vérifier la validité de ces calculs. Ceci a été réalisé, soit a priori dans le cas du chapitre IV, en comparant les résultats à ceux obtenus par la méthode des séries de Fourier, soit a posteriori en vérifiant que les images MET simulées à partir des calculs d'éléments finis étaient en bon accord avec les images MET expérimentales.

Les deux autres raisons qui nous ont poussé à utiliser ce type de calcul sont les suivantes :

- les calculs analytiques basés sur l'élasticité des milieux continus sont limités à des objets présentant une géométrie simple : c'est le cas des puits enterrés du chapitre IV, mais ce n'est généralement pas le cas des défauts de surface tels que les îlots ou les trous étudiés au chapitre III.

- les calculs atomistiques ne sont bien adaptés qu'au cas d'objets "nanométriques" plus petits que ceux que nous avons étudiés.

Le bon accord obtenu entre images MET expérimentales et simulées valide également l'utilisation, pour simuler les images MET, de la théorie dynamique en deux ondes dans l'approximation de la colonne. Il faut noter que dans les deux cas étudiés dans cette thèse, les images MET obtenues en conditions dynamiques et à résolution moyenne conduisent, pour l'instant, à des interprétations plus simples et plus complètes que les informations données par les images MET à très haute résolution. Ceci est dû en partie au fait que cette dernière technique impose l'observation d'échantillons très minces (d'épaisseur 10-20 nm) pour lesquels l'interaction des champs de déformation avec les surfaces libres est mal connue et bien sûr encore plus déterminante que dans le cas des objets plus épais de la MET à résolution moyenne (épaisseurs de l'ordre de quelques centaines de nm).

Il faut noter, de façon plus générale, que l'interprétation semi-quantitative des contrastes dynamiques de nos images MET a bénéficié de l'acquisition numérique de ces



images et des clichés de diffraction CBED, l'interprétation précise de ces derniers conduisant à une très bonne précision sur la mesure de paramètres aussi essentiels que l'épaisseur de l'échantillon et l'écart à la condition de Bragg.

L'absorption anormale est un problème plus difficile à traiter. C'est pourquoi l'interprétation quantitative des contrastes n'a pu être réalisée dans le cadre de cette thèse, car nous n'avons pas disposé, tout au moins de façon systématique, d'images filtrées en énergie. L'interprétation de telles images permettrait d'étudier les hétérogénéités de champ de contrainte de façon plus précise, sans parler de l'aspect encore plus fondamental qui consisterait à comparer, de façon quantitative, des images simulées à des images expérimentales pour tester les théories et les méthodes de calcul utilisées. L'interprétation quantitative des images permettrait enfin d'obtenir des informations sur d'éventuelles hétérogénéités de composition chimique dans des objets aussi petits que ceux étudiés dans cette thèse. Ce type d'hétérogénéité a été mis en évidence et étudié dans le cas d'objets simples tels que les puits contraints bidimensionnels. Il n'en est pas de même pour les objets contraints de plus basse "dimensionnalité" tels les fils ou les boîtes quantiques.



## **ANNEXE**

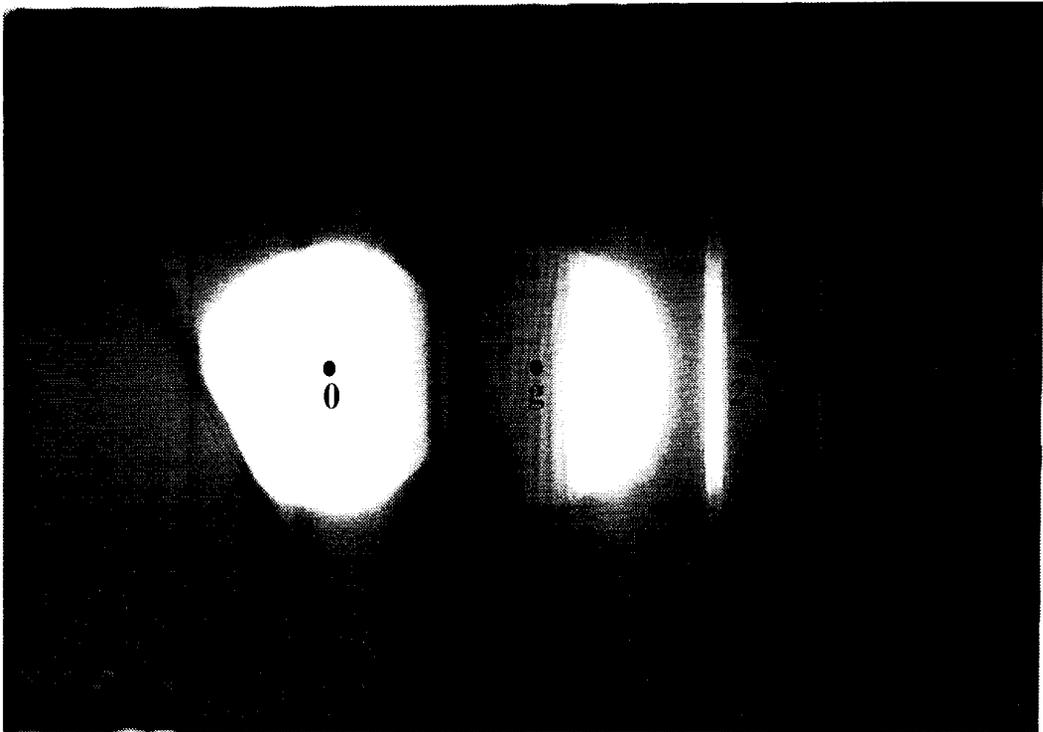


figure A1, 1: Cliché de diffraction CBED en rangée systématique  $[nn0]^*$ . InGaAs.  
 $g = 220$ .

## ANNEXE : Détermination de l'écart $s$ à la condition de Bragg, à partir d'un diagramme de diffraction en faisceaux convergeants

---

La **figure A1,1** montre, à titre d'exemple, un diagramme en faisceaux convergeants obtenu en rangée systématique (nn0), dans le cas d'un échantillon d'InGaAs. La mesure de  $s$  peut être réalisée à partir de la relation suivante :

$$(II, 16) \quad s = 2g\theta_b (\Delta x_1 / x)$$

La détermination de  $x$  est réalisée à partir de la mesure d'une distance entre lignes de Kikuchi aussi grande que possible, de façon à minimiser l'incertitude sur cette mesure : par exemple  $x = AB/4$  sur la **figure A1,2** qui est une représentation schématique (agrandie) de la figure A1,1.

La même remarque est valable pour la détermination de  $\Delta x_1$ , mais cette fois-ci, la mesure d'au moins deux longueurs est nécessaire : par exemple, AF et AE sur la figure A1,2, qui conduisent à  $\Delta x_1 = AF - AE$ .

En posant  $AB = \alpha$ ,  $AC = \beta$  et  $CD = \gamma$ , on trouve

$$(A1,1) \quad s = 2g\theta_b (5/2 - 4\beta/\alpha + 2\gamma/\alpha)$$

et

$$(A1,2) \quad \Delta s = 4g\theta_b (|2\beta - \gamma| \Delta\alpha + 2\alpha \Delta\beta + \alpha\Delta\gamma) / \alpha^2$$

Les distances  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  sont mesurées à l'aide de clichés de diffraction numérisés, de façon à pouvoir bénéficier des avantages liés à l'utilisation des techniques d'analyse d'image. Les clichés numérisés sont obtenus :

- soit à partir de films argentiques qui sont ensuite numérisés à l'aide d'un "scanner",
- soit directement avec une caméra CCD.

L'analyse d'image est réalisée à l'aide du logiciel "NIH Image", disponible sur le réseau "Internet" à l'adresse "[www.zippy.nimh.nih.gov](http://www.zippy.nimh.nih.gov)". Par exemple, le repérage des bords de disque (pour la mesure de  $\beta$ ) peut être optimisé en seuillant l'image correspondante tandis que le repérage des lignes de Kikuchi peut être amélioré par l'utilisation de fausses couleurs. De façon générale, la qualité des clichés de diffraction est telle que les distances peuvent être mesurées au pixel (px) près, ce qui donne par exemple dans le cas de la figure A1,1:

$$\begin{aligned} \alpha &= 774 \pm 1 \text{ px} = 15,50 \pm 0,02 \text{ cm} \\ \beta &= 535 \pm 1 \text{ px} = 10,70 \pm 0,02 \text{ cm} \\ \gamma &= 238 \pm 1 \text{ px} = 4,80 \pm 0,02 \text{ cm} \end{aligned}$$

soit  $s = (1,73 \pm 0,05) \times 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$ .

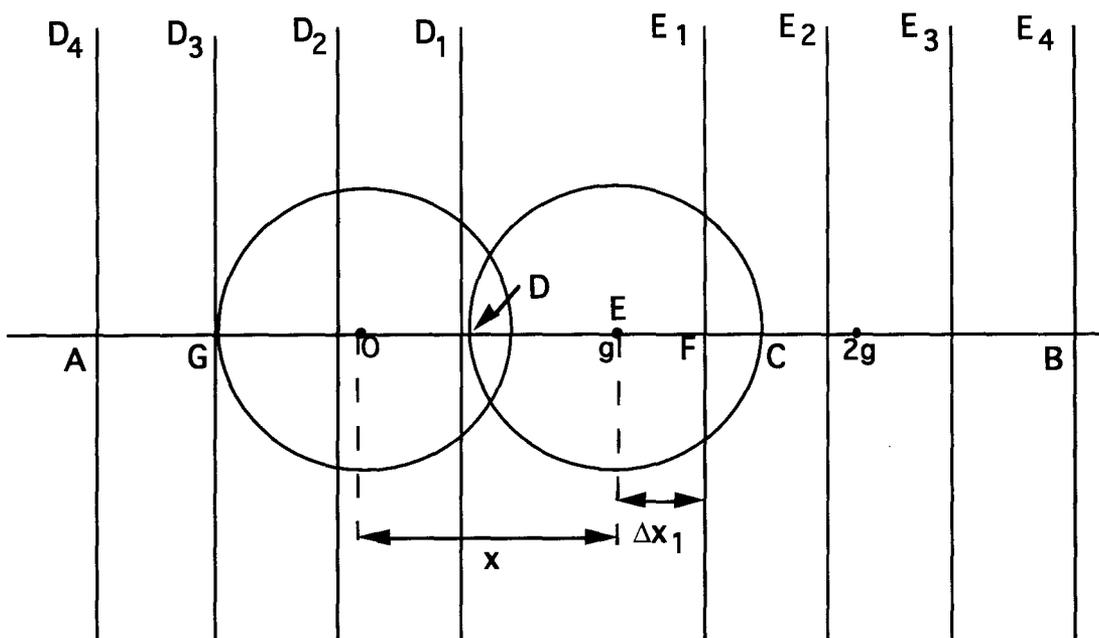


figure A1.2 : Représentation schématique agrandie du cliché de la figure A1.1.

