



**HAL**  
open science

# Organisation à longue distance par un réseau de dislocations faiblement enterré de nanostructures de semiconducteurs III-V auto-assemblées sur substrat d'arséniure de gallium

José Coelho

► **To cite this version:**

José Coelho. Organisation à longue distance par un réseau de dislocations faiblement enterré de nanostructures de semiconducteurs III-V auto-assemblées sur substrat d'arséniure de gallium. Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris Sud - Paris XI, 2004. Français. NNT : . tel-00007633

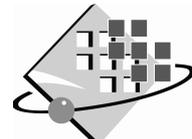
**HAL Id: tel-00007633**

**<https://theses.hal.science/tel-00007633>**

Submitted on 3 Dec 2004

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



**UNIVERSITE PARIS XI**  
**UFR SCIENTIFIQUE D'ORSAY**

**THESE**

Présentée

Pour obtenir

**Le GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES**  
**DE L'UNIVERSITE PARIS XI ORSAY**

**PAR**

**José COELHO**

Sujet :

**Organisation à longue distance par un réseau de dislocations  
faiblement enterré de nanostructures de semiconducteurs  
III-V auto-assemblées sur substrat de GaAs**

Soutenue le 30 novembre 2004 devant la commission d'examen

M. Marc CONDAT	Président
M. Joël EYMERY	Rapporteur
M. André ROCHER	Rapporteur
M. Guy HOLLINGER	Examineur
M. Jean MASSIES	Examineur
M. Gilles PATRIARCHE	Directeur de thèse



## Remerciements

Ce travail de thèse a été effectué au Laboratoire de Photonique et de nanostructures (LPN)(Unité Propre de Recherche du CNRS), d'abord à Bagnaux, puis à Marcoussis. Je remercie Jean-Yves Marzin et Marcel Bensoussan, respectivement directeur et directeur adjoint du LPN, de m'y avoir accueilli et de m'avoir permis de réaliser cette thèse dans de bonnes conditions.

J'adresse mes sincères remerciements à Joël Eymery et André Rocher qui ont accepté d'être les rapporteurs de ma thèse. Je remercie également Marc Condat, Guy Hollinger et Jean Massies de m'avoir fait l'honneur d'accepter de participer à mon jury de thèse.

J'ai eu la chance de travailler sous la direction de Gilles Patriarche. Il m'a formé à la microscopie électronique en transmission et surtout, il a fait preuve d'une très grande disponibilité pour répondre à mes nombreuses questions ; ses conseils avisés m'ont permis de résoudre de nombreux problèmes. Ce fut un réel plaisir de travailler sous ta direction Gilles. Merci.

Ma gratitude va également à Frank Glas (animateur du groupe ELaboration et PHYsique des Structures Epitaxiées au sein duquel j'ai eu le plaisir d'effectuer ma thèse) dont l'aide a été précieuse pour ma compréhension de l'élasticité linéaire et de la théorie des dislocations.

Je souhaite remercier Cristelle Mériadec qui m'a beaucoup aidé, après le déménagement du laboratoire, pour remonter et actualiser le four de collage, et pour redémarrer l'activité de collage épitaxial.

Un grand merci à Isabelle Sagnes et Guillaume Saint-Girons pour les croissances par EPVOM et pour leur aide précieuse aux moments critiques de ma thèse.

Je tiens à remercier Christophe David pour ses prompts observations d'AFM. Cette étude lui doit beaucoup.

Je remercie Ludovic Largeau et Olivia Mauguin pour les caractérisations par diffraction de rayons X. Je remercie également Ludovic pour les découpes à la scie et pour sa rapidité dans les rues de Moscou !

Mon travail n'aurait pas pu être mené à bien sans le soutien et les compétences de nombreuses personnes du laboratoire. Je remercie en particulier David Chouteau pour les dépôts de nitrure. Je remercie tout spécialement Gilbert Chanconie, Laurent Merzeau et Nicolas Allemandou pour leurs diverses réalisations mécaniques sans lesquelles cette étude n'aurait pas été possible. Merci à Luc Le Gratiet de m'avoir formé à l'amincissement de substrats grâce à la polisseuse. Merci aussi à Jean-Christophe Harmand et Aristide Lemaître pour les croissances en EJM. Je tiens également à remercier les personnes suivantes qui ont eu à m'aider à un moment où à un autre : Karine Meunier, Christophe Dupuis, Jean-Claude Esnault, Sophie Bouchoule, Julie Dion, Eric Eusebe, Emmanuel Halbwachs, Olivier Oria,

Patrick Hisope, Kamel Merghem, Laurent Couraud, Xavier Lafosse et Laurent Travers.

Je tiens à remercier tout particulièrement Yves Chriqui et Martin Strassner pour avoir su me supporter avec bonne humeur dans notre bureau. Merci spécialement à Yves pour nos nombreuses discussions sur des sujets divers et variés, et surtout pour son soutien sans faille.

Enfin je tiens à remercier mes proches et mes amis de tous bords pour leur soutien, spécialement A2 qui plus que quiconque m'a supporté et soutenu pendant ces trois ans.

# Table des matières

Table des figures	xi
Liste des tableaux	xvii
Introduction générale	1
<b>Partie I Pourquoi choisir d'ordonner des nanostructures avec des dislocations faiblement enterrées ?</b>	<b>5</b>
<b>Chapitre 1 L'auto-assemblage de nanostructures tridimensionnelles</b>	<b>7</b>
1.1 Introduction . . . . .	8
1.2 Les différents modes de croissance cristalline - considérations thermodynamiques . . . . .	9
1.2.1 Considérations d'énergie de surface . . . . .	9
1.2.2 Considérations d'énergie emmagasinée en volume lors d'une croissance initialement bidimensionnelle . . . . .	10
1.2.2.1 Une énergie d'origine élastique . . . . .	10
1.2.2.2 Relaxation de l'énergie élastique par formation de dislocations . . . . .	11
1.2.2.3 Relaxation de l'énergie élastique par formation d'îlots tridimensionnels auto-assemblés – croissance Stranski-Krastanow . . . . .	11
1.2.2.4 Modèle unifié de la croissance initialement bidimensionnelle . . . . .	15
1.3 Cinétique de la croissance des îlots tridimensionnels auto-assemblés . . . . .	18
1.3.1 Formation de la couche de mouillage . . . . .	18
1.3.2 Formation des îlots tridimensionnels auto-assemblés . . . . .	19
1.4 Synthèse . . . . .	20

<b>Chapitre 2 L’auto-organisation de nanostructures</b>	<b>21</b>
2.1 Introduction . . . . .	21
2.2 Organisations de nanostructures grâce à des motifs de surface organisés	22
2.2.1 Organisations sur des surfaces structurées naturellement . . . . .	22
2.2.2 Organisations sur des surfaces structurées de manière artificielle	23
2.3 Organisations de nanostructures via des inhomogénéités de contrainte et de déformation . . . . .	27
2.4 Synthèse . . . . .	33
<b>Partie II Etude des réseaux de dislocations faiblement enterrés dans une matrice de GaAs et organisations de nanostructures grâce aux réseaux qui s’y prêtent le mieux</b>	<b>35</b>
<b>Chapitre 1 Les dislocations</b>	<b>37</b>
1.1 Introduction . . . . .	38
1.2 Généralités . . . . .	38
1.2.1 Le vecteur de Burgers d’une dislocation . . . . .	39
1.2.2 Les dislocations parfaites et les dislocations partielles . . . . .	40
1.2.3 Critère énergétique de stabilité des dislocations (dit de Frank) .	40
1.2.4 Mouvements des dislocations . . . . .	41
1.2.5 Une vue schématique et synthétique du système de glissement des cristaux cfc ou à structure blende de zinc : le tétraèdre de Thompson	42
1.2.6 Les différents types de dislocations . . . . .	42
1.2.6.1 Les dislocations coin . . . . .	43
1.2.6.2 Les dislocations vis . . . . .	43
1.2.6.3 Les dislocations mixtes . . . . .	44
1.2.6.4 Une dislocation mixte parfaite particulière : la dislocation $60^\circ$ . . . . .	45
1.2.7 Interactions entre dislocations qui se croisent – cas des cristaux cfc ou à structure blende de zinc . . . . .	45
1.3 Rappel de la théorie de l’élasticité . . . . .	47
1.3.1 Définitions . . . . .	47
1.3.1.1 Le champ de déplacements . . . . .	47
1.3.1.2 Le champ de déformations . . . . .	47
1.3.1.3 Le champ de contraintes . . . . .	48
1.3.1.4 L’énergie de déformation élastique . . . . .	49

---

1.3.2	Théorie de l'élasticité linéaire . . . . .	49
1.4	Application de la théorie de l'élasticité linéaire aux dislocations . . . . .	50
1.4.1	Cas des dislocations vis . . . . .	50
1.4.2	Cas des dislocations coin . . . . .	51
1.4.3	Cas des dislocations mixtes . . . . .	52
1.5	Synthèse . . . . .	52
 <b>Chapitre 2 Etude théorique de réseaux de dislocations simples</b>		<b>53</b>
2.1	Introduction . . . . .	53
2.2	Les différents types de réseaux de dislocations . . . . .	54
2.3	Champs et énergie élastiques produits par des réseaux de dislocations faiblement enterrés . . . . .	57
2.3.1	Choix des expressions des champs élastiques . . . . .	58
2.3.2	Champs et énergie élastiques produits en surface par un réseau de dislocations faiblement enterré accommodant une flexion . . .	59
2.3.3	Champs et énergie élastiques produits en surface par un réseau de dislocations faiblement enterré accommodant une torsion . . .	64
2.3.4	Champs et énergie élastiques produits en surface par un réseau de dislocations faiblement enterré accommodant à la fois une flexion et une torsion . . . . .	67
2.4	Synthèse . . . . .	68
 <b>Chapitre 3 Le collage épitaxial pour obtenir des réseaux de dislocations faiblement enterrés</b>		<b>69</b>
3.1	Introduction . . . . .	70
3.2	Limitations du collage épitaxial de deux cristaux de GaAs . . . . .	71
3.3	Les presses de collage . . . . .	72
3.3.1	La presse à petits échantillons . . . . .	72
3.3.2	La presse à grands échantillons . . . . .	75
3.4	Contrôle des angles de flexion et de torsion . . . . .	78
3.5	Description détaillée et optimisation de la procédure expérimentale . . .	79
3.5.1	Structure épitaxiée sur un substrat sacrificiel . . . . .	79
3.5.2	Clivage ou sciage des échantillons à coller . . . . .	80
3.5.3	Nettoyage des cristaux à coller . . . . .	84
3.5.4	Désoxydation des cristaux à coller . . . . .	85
3.5.5	Superposition des cristaux dans la presse et recuit . . . . .	85
3.5.6	Élimination du substrat sacrificiel et des couches d'arrêt de gravure	85

3.5.6.1	Amincissement par polissage . . . . .	85
3.5.6.2	Gravure chimique sélective . . . . .	86
3.6	Synthèse . . . . .	87
<b>Chapitre 4 Etude de réseaux de dislocations réels</b>		<b>89</b>
4.1	Introduction . . . . .	89
4.2	Mesure de l'angle de torsion sur un cliché de diffraction électronique . .	90
4.3	Première approche pour la description des réseaux de dislocations réels	91
4.4	Des interactions entre dislocations . . . . .	94
4.4.1	Présentation du joint de grains considéré . . . . .	94
4.4.2	Un réseau rectangulaire de dislocations vis . . . . .	96
4.4.3	Désorientations des dislocations vis par rapport aux directions $[011]$ . . . . .	98
4.4.4	Analyse globale des réseaux de dislocations . . . . .	100
4.4.5	Synthèse de la section 4.4 . . . . .	105
4.5	Création de joints de grains à géométrie bidimensionnelle simple et pé- riodique . . . . .	106
4.5.1	Idée de base . . . . .	106
4.5.2	Mise en œuvre de cette idée . . . . .	106
4.5.3	Synthèse de la section 4.5 . . . . .	112
4.6	Synthèse du chapitre . . . . .	112
<b>Chapitre 5 Organisations de nanostructures III-V grâce aux réseaux de dislocations enterrés</b>		<b>115</b>
5.1	Introduction . . . . .	115
5.2	Démonstration de l'organisation de nanostructures III-V . . . . .	116
5.2.1	Formation des nanostructures . . . . .	116
5.2.2	Corrélations entre les réseaux de dislocations et les nanostructures	118
5.2.3	Interprétation . . . . .	120
5.3	Influence des paramètres expérimentaux sur l'organisation des nanostruc- tures . . . . .	122
5.4	Synthèse . . . . .	124
<b>Synthèse globale de l'étude</b>		<b>127</b>
<b>Perspectives</b>		<b>131</b>
<b>Annexes</b>		<b>135</b>

---

<b>Annexe A L'épitaxie en phase vapeur aux organo-métalliques (EPVOM)</b>	<b>135</b>
<b>Annexe B La microscopie électronique en transmission (MET)</b>	<b>137</b>
B.1 Principe de fonctionnement . . . . .	137
B.2 Préparation des échantillons . . . . .	138
B.2.1 Pour les vues planes . . . . .	138
B.2.2 Pour les vues en coupe . . . . .	138
B.3 Formation des diagrammes de diffraction et des images . . . . .	139
B.3.1 Diffraction en aire sélectionnée . . . . .	139
B.3.2 Images en mode «deux ondes» . . . . .	139
B.3.3 Images en mode «faisceau faible» . . . . .	140
<b>Annexe C La microscopie à force atomique (AFM)</b>	<b>141</b>
C.1 Principe de fonctionnement . . . . .	141
C.2 Les différents modes de fonctionnement . . . . .	143
C.2.1 Mode contact . . . . .	143
C.2.2 Mode non-contact (ou oscillant) . . . . .	143
C.2.3 Mode tapping (ou tapotant) . . . . .	143
C.3 Limitations de l'AFM . . . . .	143
<b>Annexe D Publications et communications</b>	<b>145</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>149</b>

*Table des matières*

---

# Table des figures

1	Schéma de la maille blende de zinc. . . . .	8
2	Schéma de la déformation quadratique d'un matériau contraint en compression sur un substrat. . . . .	9
3	Schéma d'un îlot formé selon le mode de croissance Stranski-Krastanow. . .	12
4	Vue plane de MET montrant des îlots auto-assemblés d'InGaAs sur GaAs formés par épitaxie en phase vapeur aux organo-métalliques (EPVOM). . .	13
5	Vue plane de MET montrant l'organisation à courte distance d'îlots auto-assemblés d'InAs sur GaAs déposés par épitaxie par jets moléculaires (EJM). (Bimberg et al. [9]). . . . .	14
6	Graphe de l'énergie totale d'une couche d'InAs épitaxiée sur GaAs-(001) en conditions riches élément V (As), en fonction de l'épaisseur nominale d'InAs déposé. (Tinjod [19]). . . . .	16
7	Diagramme de phase qualitatif des modes de croissance avec la condition initiale de mouillage. (Tinjod [19]). . . . .	17
8	Image de microscopie à effet tunnel (scanning tunneling microscopy : STM) montrant l'alignement d'îlots 3D de germanium sur les marches atomiques d'une surface vicinale de silicium. (Patella et al. [35]). . . . .	23
9	Images AFM montrant l'alignement d'îlots 3D d'InAs sur les accumulations de marches de surfaces vicinales de GaAs. (Kim et al. [38]). . . . .	24
10	Images STM montrant (a) la reconstruction d'une surface d'or (111) et (b) l'organisation d'îlots de nickel sur ce type de surface. (Chambliss et al. [39]).	25
11	Image STM montrant l'organisation d'îlots de cobalt sur une surface d'or (788). (Repain et al. [41]). . . . .	25
12	Images AFM montrant l'organisation d'îlots de germanium sur des mesas périodiques de silicium définis par lithographie optique. (Jin et al. [45]). . .	26
13	Images AFM montrant l'organisation d'îlots de germanium dans des cuvettes définies par holographie sur une surface de silicium. (Zhong et al. [49]). . . .	26

14	(a) Image AFM montrant l'organisation latérale à longue distance d'îlots de PbSe sur un empilement de 60 plans d'îlots séparés par des couches de PbEuTe. (b) Schéma de l'organisation 3D des îlots. (Springholz et al. [53]).	28
15	Image STM montrant l'organisation périodique d'îlots de fer grâce à un réseau de dislocations faiblement enterré. (Brune et al. [70]).	30
16	Image STM d'une surface d'un substrat de silicium dit «composite» : possédant un réseau de dislocations faiblement enterré. Une structuration périodique de la surface induite par le réseau y est visible. (Leroy et al. [72]).	31
17	Image STM montrant l'organisation à courte distance d'îlots auto-assemblés de germanium grâce à un réseau de dislocations faiblement enterré dans du silicium. (Leroy et al. [72]).	32
18	Image STM montrant des nanostructures de germanium organisées à longue distance sur un substrat composite Si/Si nano-structuré grâce à une solution chimique sensible à la contrainte. (Leroy et al. [76]).	33
19	Schéma simple de formation d'une dislocation coin.	38
20	(a) Schéma du circuit de Burgers autour d'une dislocation coin. (b) Le même circuit dans un cristal parfait.	39
21	Schéma d'une dislocation imparfaite ou partielle.	40
22	Schéma des déplacements d'atomes selon un plan atomique dense et selon un plan peu dense.	41
23	Schéma de la montée d'une dislocation coin.	42
24	Schéma du tétraèdre de Thompson	43
25	Schéma du circuit de Burgers autour d'une dislocation vis.	44
26	Schéma d'une dislocation mixte.	44
27	Schéma d'une dislocation mixte $60^\circ$	45
28	Schéma d'une dislocation et de son vecteur de Burgers (a) en notation compacte et (b) non compacte.	46
29	Schéma de deux dislocations vis qui se croisent à angle droit.	46
30	Schéma de l'interaction entre une dislocation vis et une dislocation $60^\circ$ qui se croisent.	47
31	Schéma d'un petit élément de volume d'un solide.	48
32	Schéma des composantes d'un champ de contraintes agissant sur un élément de volume.	48
33	Schémas (a) d'une flexion entre deux cristaux, (b) d'une torsion entre deux cristaux et (c) d'un désaccord de maille entre deux cristaux.	54
34	Schéma des marches atomiques de deux surfaces vicinales en contact.	55

---

35	Schéma montrant quatre des huit vecteurs de Burgers possibles pour des dislocations mixtes accommodant une flexion dans des cristaux III-V. . . . .	56
36	Graphe de la période des RDs accommodant une flexion ou une torsion en fonction de l'angle de désorientation. . . . .	57
37	Schéma d'un réseau 1D de dislocations faiblement enterré (vu en coupe). . .	58
38	Graphes des composantes non nulles des champs de contraintes et de déformations induits en surface par un réseau 1D de dislocations 60° faiblement enterrées. . . . .	61
39	Graphe de l'amplitude crête-à-crête maximale des composantes non nulles des champs de contraintes et de déformations induits en surface par un réseau 1D de dislocations 60° en fonction de l'épaisseur de la couche recouvrant les dislocations. . . . .	62
40	Graphe de l'amplitude crête-à-crête maximale des composantes non nulles des champs de contraintes et de déformations induits en surface par un réseau 1D de dislocations 60° enterré à 20 nm de profondeur, en fonction de la période des dislocations. . . . .	62
41	(a) Densité volumique d'énergie élastique stockée en surface, due à un réseau 1D de dislocations 60° faiblement enterré. (b) et (c) Amplitude crête-à-crête maximale de l'énergie élastique volumique stockée en surface par un réseau 1D de dislocations 60°, (b) en fonction de l'épaisseur de la couche recouvrant les dislocations, et (c) en fonction de la période de ces dernières. . . . .	63
42	Graphe de la composante non nulle du champ de contraintes induit en surface par un réseau carré de dislocations vis. . . . .	64
43	Densité volumique d'énergie élastique stockée en surface, due à un réseau 2D carré de dislocations vis faiblement enterré. . . . .	65
44	Graphe de l'amplitude crête-à-crête maximale des composantes non nulles des champs de contraintes et de déformations induits en surface par un réseau 2D de dislocations vis enterré à 20 nm de profondeur, en fonction de la période des dislocations. . . . .	66
45	Graphe de l'amplitude crête-à-crête maximale de la densité volumique d'énergie élastique stockée en surface due à un réseau 2D de dislocations vis enterré à 20 nm de profondeur, en fonction de la période des dislocations. . . . .	67
46	Schéma de la structure épitaxiée sur nos substrats sacrificiels. . . . .	71
47	Schéma de la presse en graphite permettant de coller des échantillons d'environ 1 cm <sup>2</sup> . . . . .	73

Table des figures

48	Schéma de la presse en graphite permettant de coller des échantillons d'environ 4 cm <sup>2</sup> . . . . .	76
49	Schéma du mécanisme pouvant donner lieu à la formation de substrats composites de mauvaise qualité. . . . .	78
50	Schéma des marches atomiques de deux surfaces vicinales en contact. . . . .	79
51	Schéma servant au calcul de l'angle de flexion entre deux cristaux collés. . . . .	80
52	Images AFM avant et après sciage d'un substrat protégé avec de la cire Sticky Wax. . . . .	81
53	Images AFM avant et après sciage d'un substrat protégé avec de la résine AZ5214. . . . .	82
54	Images AFM avant et après sciage d'un substrat protégé grâce à un dépôt de nitrure de silicium amorphe. . . . .	83
55	Images de microscopie optique de deux substrats composites : l'un avant et l'autre après amélioration de la procédure de clivage. . . . .	84
56	Images AFM (a) d'un substrat de GaAs n'ayant subi aucun traitement et (b) d'un substrat de GaAs collé à la cire sur une lamelle de verre, puis décollé et nettoyé précautionneusement. . . . .	87
57	Image AFM de la surface d'un substrat composite. . . . .	88
58	Cliché de diffraction électronique d'un substrat composite. . . . .	90
59	Vue plane de MET d'un joint de grains accommodant une torsion de 2,5° et une torsion de 0,06°. . . . .	92
60	Mise en évidence par des vues planes de MET d'interactions entre dislocations pour un joint de grains accommodant une torsion de 1,5° et une flexion de 0,6° (échantillon 2-a). . . . .	95
61	Schéma de l'interaction entre une dislocation mixte (trait gras) et des dislocations vis (trait continu fin) et conséquences sur leurs vecteurs de Burgers. . . . .	98
62	Schéma des orientations des réseaux de dislocations de l'échantillon 2-a. . . . .	100
63	Schéma illustrant le défaut de fermeture dû à une flexion pour un vecteur $\mathbf{V}$ faiblement désorienté par rapport à l'axe de flexion. . . . .	102
64	Vue plane de MET du joint de grains de l'échantillon 3-a. . . . .	107
65	Représentation schématique de la maille élémentaire des joints de grains des échantillons de type 3 à cellules hexagonales. . . . .	108
66	Vues planes de MET (en condition deux ondes 020 et 002, champ sombre) de l'interface de collage de échantillon 3-a et interprétations schématiques du contraste observé. . . . .	110
67	Vue plane de MET du joint de grains de l'échantillon 3 <sub>hexa</sub> -b. . . . .	116

---

68	Coupe transverse de MET d'un substrat composite après croissance (échantillon $3_{hexa-b}$ ). . . . .	117
69	Vues planes de MET (deux ondes 020, champ sombre) de l'échantillon $3_{hexa-b}$ . . . . .	119
70	Image AFM de l'échantillon $3_{hexa-b}$ montrant l'ondulation de surface due aux nanostructures organisées. . . . .	120
71	Schéma des déformations élastiques induites par un joint de grains formant des cellules hexagonales (de type $3_{hexa}$ ). . . . .	121
72	Vue plane de MET du joint de grains de l'échantillon $3_{hexa-c}$ . . . . .	122
73	Schéma des cellules de dislocations des échantillons $3_{hexa-b}$ et $3_{hexa-c}$ . . . . .	123
74	Image AFM de l'échantillon $3_{hexa-c}$ montrant l'ondulation de surface due aux nanostructures organisées. . . . .	123
1	Shémas d'un bulleur et d'un diffuseur d'EPVOM. . . . .	136
1	Schéma de principe d'un AFM. . . . .	141
2	Module de la force d'interaction entre l'extrémité d'une pointe de AFM et la surface imagée, en fonction de la distance $z$ qui les sépare. . . . .	142
3	Schéma d'un profil de hauteur obtenu par AFM, résultant de la convolution de la forme de la pointe avec celle d'une structure de surface de rayon de courbure supérieur à celui de la pointe. . . . .	144
4	Schéma d'un profil de hauteur obtenu par AFM, résultant de la convolution de la forme de la pointe avec celle d'une structure de surface de rayon de courbure inférieur à celui de la pointe. . . . .	144

*Table des figures*

---

# Liste des tableaux

1	Quelques caractéristiques des pièces empilées dans la presse de collage à petits échantillons. . . . .	74
2	Modules des composantes des vecteurs de Burgers des dislocations vis et mixtes $60^\circ$ dans les matériaux semiconducteurs III-V. . . . .	96
3	Caractéristiques des RDs de l'échantillon 2-a. . . . .	96



# Introduction générale

Les nanotechnologies et les nanostructures<sup>1</sup> font l'objet d'un intérêt croissant dans bien des domaines (voir le *Portail NanoSciences* du Ministère délégué à la Recherche [1] et les références citées). Un événement crucial à l'origine de cet engouement a sans doute été le discours, intitulé *There's plenty of room at the bottom*, que prononça Richard Feynman [2] (prix Nobel de physique en 1965) en décembre 1959 lors de la conférence annuelle de l'American Physical Society. Dans ce discours il envisageait ce qui est maintenant la réalité des nanosciences et des nanotechnologies.

Les nanostructures ont notamment de nombreuses applications en micro-électronique, en opto-électronique et en photonique. Ainsi, des nanostructures 3D de semiconducteurs pourraient constituer les briques de base de futurs transistors de dimensions nanométriques (la surface moyenne d'un transistor est actuellement de  $1 \mu\text{m}^2$ ). Plus leurs dimensions seront réduites et plus il sera possible d'en intégrer un grand nombre sur un seul circuit intégré, en vue d'augmenter la puissance de calcul des ordinateurs, par exemple. Outre la forte densité d'intégration que permettraient les nanostructures, leur taille extrêmement réduite leur confère de nouvelles propriétés ou des propriétés exacerbées par rapport à celles du même matériau utilisé à une échelle macroscopique. Tout particulièrement, le confinement des porteurs de charge à l'intérieur de nanostructures cristallines (selon la ou les dimensions nanométriques de ces dernières) peut induire une quantification des niveaux d'énergie de ces porteurs. Les nanostructures sont alors soit des puits quantiques, soit des fils quantiques, soit des boîtes quantiques (BQs), selon que les porteurs sont confinés selon une, deux ou trois directions.

A cause de ce caractère quantique, les nanostructures peuvent posséder des propriétés optiques intéressantes (notamment les nanostructures de semiconducteurs III-V<sup>2</sup>). Ainsi,

---

<sup>1</sup>Par nanostructures, nous entendons des structures dont au moins l'une des trois dimensions est inférieure à 100 nm. Selon que les nanostructures ont une, deux ou trois dimensions nanométriques, nous parlerons de nanostructures uni-, bi- ou tri-dimensionnelles (1D, 2D ou 3D).

<sup>2</sup>De nombreux semiconducteurs constitués d'éléments des colonnes III et V du tableau périodique de Mendeleïev (GaAs, InGaAs, InP, ...) ont une *bande interdite directe* – propriété qui permet la création d'un photon lors de la recombinaison d'un électron de la bande de conduction avec un trou de la bande de

une relaxation énergétique d'un porteur «placé» sur un niveau d'énergie quantifiée vers un niveau quantifié de plus basse énergie peut donner lieu à l'émission d'un photon d'énergie également quantifiée. Dans le cas particulier des BQs, cette propriété pourrait être mise à profit pour réaliser des lasers à faible courant de seuil, avec un bon comportement en température [3, 4], appliqués notamment aux télécommunications optiques (voir la référence 5 et les références qui y sont citées pour une revue des progrès réalisés) ou des émetteurs de photons uniques pour l'information quantique fortement sécurisée [6].

A l'heure actuelle, beaucoup de composants optiques pour les télécommunications sont réalisés par croissance cristalline (*épitaxie*<sup>3</sup>) sur substrat de phosphure d'indium (InP). Cependant ce substrat présente des limitations en termes de coûts et de performances<sup>4</sup>. En comparaison, l'emploi de matériaux épitaxiés sur substrat d'arséniure de gallium (GaAs) permettrait de pallier ces limitations.

Plusieurs méthodes sont utilisées pour fabriquer des nanostructures. Nous pouvons d'abord citer la lithographie qui est ce que l'on appelle une approche descendante ou «*top-down*». L'avantage le plus notable de cette technique est la très grande variété de structures qu'elle permet de définir. Cependant, les nanostructures réalisées par lithographie optique sont plutôt larges à cause de la limite imposée par la diffraction (la résolution approche la centaine de nanomètres). La lithographie par faisceau d'électrons atteint quant à elle une résolution de 20 nm. Contrairement à la lithographie optique lors de laquelle une résine photo-sensible masquée est insolée en une seule fois sur toute la surface d'un échantillon, la lithographie électronique est une méthode séquentielle : le faisceau d'électrons balaye la surface de la résine à irradier et les nanostructures sont définies les unes après les autres. Elle ne permet donc pas la définition de nanostructures sur toute la surface d'une plaquette de substrat en un temps raisonnable. Grâce à un microscope à effet tunnel (*Scanning Tunneling Microscope* en terminologie anglo-saxonne : *STM*) à basse température, il est possible de construire des nanostructures atome par atome [8] (c'est ce que l'on appelle une approche ascendante ou «*bottom-up*»). C'est la méthode ultime en termes de taille de nanostructures et de résolution, mais elle présente également l'inconvénient d'être très lente : généralement plusieurs heures sont nécessaires pour écrire quelques caractères.

Une alternative particulièrement intéressante pour l'élaboration de petites nanostructures 3D (notamment sur substrat de GaAs) est l'auto-assemblage. Il s'agit de la formation

---

valence. Pour des matériaux à *bande interdite indirecte*, une telle émission de photon n'est pas impossible, mais est très peu probable.

<sup>3</sup>L'épitaxie désigne d'une manière générale la croissance sur support monocristallin (substrat) d'un autre monocristal ; l'orientation de ce dernier est imposée par celle du substrat. Si les deux orientations sont identiques, on parle d'épitaxie cohérente ; dans le cas contraire, on parle d'épitaxie semi-cohérente.

<sup>4</sup>Pour une description détaillée de ces limitations, voir par exemple l'introduction de la thèse de doctorat de Guillaume Saint-Girons [7].

---

spontanée de nanostructures 3D lors de la croissance cristalline d'un matériau sur un substrat plan (ou sur une couche) constitué d'un matériau cristallin de paramètre de maille différent. Ces nanostructures permettent de relaxer la contrainte accumulée dans le matériau épitaxié à cause du désaccord de paramètre de maille. C'est une méthode efficace car elle permet de former instantanément un grand nombre de nanostructures sur toute la surface d'un échantillon sans endommager cette dernière. De plus, elle ne nécessite aucune étape préalable de définition de motifs sur un masque. Malgré ces avantages, on peut vouloir la parfaire. Tout d'abord, lorsque les nanostructures se forment ainsi sur une surface non structurée, leur distribution spatiale est bien souvent aléatoire et ne présente tout au plus qu'un ordre à courte distance car les interactions entre nanostructures via le substrat sont faibles, tout comme les différences énergétiques entre les différents arrangements possibles [9]. D'autre part, (i) leur densité n'est pas extrêmement facile à maîtriser, (ii) leur distributions en taille et (iii) en composition peuvent être relativement larges et (iv) elles peuvent avoir différentes formes. Dans bien des cas, une répartition contrôlée de ces nanostructures en surface peut être préférable afin de pouvoir les adresser avec précision, par exemple pour des applications au stockage de l'information. De même, une maîtrise de leur densité permettrait d'en isoler quelques unes ; c'est notamment une condition nécessaire à la réalisation d'émetteurs à un photon. A l'inverse une telle maîtrise permettrait également d'augmenter le nombre de nanostructures présentes dans un composant : par exemple, la faible densité des BQs d'InGaAs auto-assemblées déposées par épitaxie en phase vapeur aux organo-métalliques (EPVOM<sup>5</sup>) est un facteur limitant la réalisation, par cette technique, de lasers à BQs émettant à la «longueur d'onde télécom» de 1,3  $\mu\text{m}$  (le minimum de dispersion chromatique dans les fibres optiques) [7]. Enfin, des distributions en taille et en composition étroites, ainsi qu'une unique forme pour les nanostructures peuvent être souhaitables car ces caractéristiques influencent les propriétés de ces dernières, notamment les niveaux d'énergie des états électroniques. Ainsi, la formation d'un seul type de nanostructures avec une taille donnée permettrait d'avoir une distribution étroite des niveaux d'énergies occupés par les porteurs de charge dans les nanostructures et donc d'avoir des lasers émettant à une longueur d'onde bien précise, par exemple.

Différentes solutions ont été envisagées pour contrôler à la fois la répartition spatiale à longue distance, la densité, la distribution en taille et la forme des nanostructures auto-assemblées (notamment sur substrat de GaAs). Le sujet de cette thèse a été de développer celle que nous estimons être la plus prometteuse, à savoir : l'organisation spatiale à longue distance, grâce aux champs de contraintes et de déformations induits en surface par un réseau de dislocations (RD) périodique faiblement enterré, de nanostructures 3D de semi-conducteurs III-V auto-assemblées sur substrat de GaAs (de tels RDs peuvent être obtenus

---

<sup>5</sup>Voir l'annexe A (page 135) pour une brève description de cette technique d'épitaxie.

par la technique du *collage épitaxial* qui sera ici décrite en détail). Ce manuscrit qui en décrit les résultats<sup>6</sup> est organisé en deux parties.

Dans la première partie, nous expliquerons pourquoi nous avons voulu organiser des nanostructures 3D grâce à des défauts (les dislocations). Dans le premier chapitre de cette partie, nous décrirons les mécanismes de l'auto-assemblage. Il nous sera alors aisé de comprendre au deuxième chapitre les différentes solutions envisagées pour passer de l'auto-assemblage «classique» à l'organisation à longue distance de nanostructures auto-assemblées ; c'est ce que nous avons appelé l'auto-organisation. A la fin de ce chapitre, nous expliciterons les avantages de l'organisation grâce à un RD faiblement enterré.

La deuxième partie est consacrée à l'étude des RDs faiblement enterrés que nous avons réalisés et aux croissances sur les RDs les plus adaptés à l'organisation spatiale à longue distance de nanostructures de semiconducteurs III-V auto-assemblées. Dans le premier chapitre de cette partie nous rappellerons quelques notions sur les dislocations qui nous seront utiles par la suite (notamment sur les champs élastiques dont elles sont à l'origine). Le deuxième chapitre sera consacré à une étude théorique de RDs simples. En particulier, nous montrerons pourquoi nous nous attendons à ce que les nanostructures formées en surface reproduisent la géométrie du RD sous-jacent. Dans le troisième chapitre, nous décrirons la méthode que nous avons retenue pour obtenir des RDs faiblement enterrés, à savoir, le collage épitaxial ; nous parlerons également de l'optimisation que nous en avons faite. Dans le quatrième chapitre, nous décrirons l'étude de nos RDs réels que nous avons menée par *microscopie électronique en transmission* (MET) (voir l'annexe B, page 137, pour une brève description de cette technique), notamment avant la croissance de nanostructures. Enfin, le cinquième et dernier chapitre est consacré aux observations après croissances. Nous y démontrerons l'organisation latérale 2D de nanostructures de GaAs et d'InGaAs induite par les champs élastiques de RDs faiblement enterrés.

---

<sup>6</sup>Résultats basés sur environ 110 collages, 90 substrats composites (substrats à RDs enterrés) et 10 croissances.

## Première partie

Pourquoi choisir d'ordonner des  
nanostructures avec des dislocations  
faiblement enterrées ?



# L'auto-assemblage de nanostructures tridimensionnelles

## Sommaire du chapitre

---

<b>1.1</b>	<b>Introduction</b> . . . . .	<b>8</b>
<b>1.2</b>	<b>Les différents modes de croissance cristalline - considérations thermodynamiques</b> . . . . .	<b>9</b>
1.2.1	Considérations d'énergie de surface . . . . .	9
1.2.2	Considérations d'énergie emmagasinée en volume lors d'une croissance initialement bidimensionnelle . . . . .	10
1.2.2.1	Une énergie d'origine élastique . . . . .	10
1.2.2.2	Relaxation de l'énergie élastique par formation de dislocations . . . . .	11
1.2.2.3	Relaxation de l'énergie élastique par formation d'îlots tridimensionnels auto-assemblés – croissance Stranski-Krastanow . . . . .	11
1.2.2.4	Modèle unifié de la croissance initialement bidimensionnelle . . . . .	15
<b>1.3</b>	<b>Cinétique de la croissance des îlots tridimensionnels auto-assemblés</b> . . . . .	<b>18</b>
1.3.1	Formation de la couche de mouillage . . . . .	18
1.3.2	Formation des îlots tridimensionnels auto-assemblés . . . . .	19
<b>1.4</b>	<b>Synthèse</b> . . . . .	<b>20</b>

---

## 1.1 Introduction

Comme nous l'avons vu en dans l'introduction générale (page 2), lorsqu'un matériau est *épitaxié*, il reproduit la structure cristalline du substrat sans discontinuité au niveau de leur interface (on parle d'*homoépitaxie* si le matériau épitaxié et le matériau support sont identiques et d'*hétéroépitaxie* dans le cas contraire). Pour que cela soit possible, deux conditions doivent être vérifiées. Il faut que le matériau déposé et le substrat cristallisent dans la même structure ou dans des structures voisines (par exemple, les composés binaires III-V que nous allons étudier ici cristallisent tous dans la structure blende de zinc : Fig. 1). De plus, ils

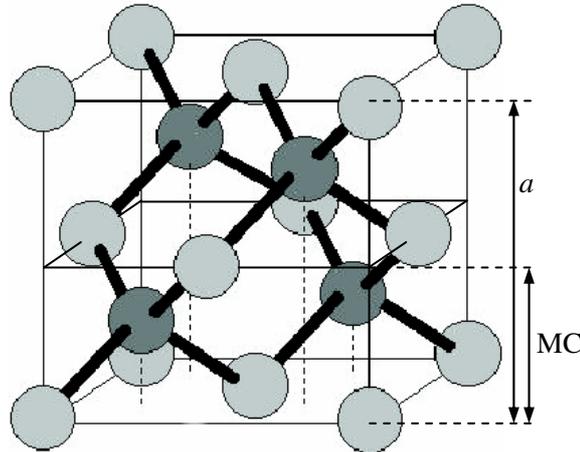


FIG. 1. Maille blende de zinc (chacun des deux niveaux de gris représente un atome différent). Le paramètre de maille est  $a$ . Nous appelons monocouche (MC) la distance entre deux plans d'atomes identiques : ici  $\frac{a}{2}$ .

doivent posséder des paramètres de maille proches. Dans le cas où le désaccord de paramètre de maille est strictement nul, il est théoriquement possible d'épitaxier une épaisseur infinie de matériau sans que des dislocations n'apparaissent<sup>7</sup> (la croissance est alors cohérente). Par contre s'il est non nul, le matériau déposé est contraint et subit une déformation élastique lors de la croissance, de sorte que son paramètre de maille dans le plan de l'interface soit identique à celui du substrat ; on parle alors de croissance pseudomorphique cohérente.

<sup>7</sup>Les dislocations sont des défauts linéaires et étendus qui permettent une déformation plastique du cristal lorsqu'elles se déplacent (cette déformation permet une relaxation de la contrainte élastique accumulée dans le cristal). Elles seront longuement décrites dans la deuxième partie (page 37 et suivantes). La présence de dislocations est généralement néfaste aux propriétés d'émissions des dispositifs optiques car ce sont des pièges de recombinaison radiative parasite et non radiative pour les porteurs de charge.

Cette déformation est quadratique (Fig. 2). Cependant, l'énergie élastique accumulée dans

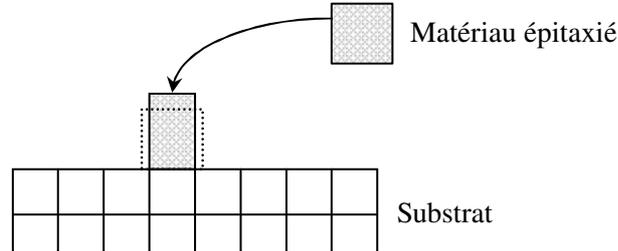


FIG. 2. Déformation quadratique d'un matériau contraint en compression sur un substrat. La déformation du matériau épitaxié dans la direction orthogonale à la surface est due à la déformation dans le plan de la surface et est appelée effet Poisson. C'est le même effet qui impose à un élastique de s'amincir quand on tire dessus.

le système constitué du substrat et du matériau épitaxié croît linéairement avec la quantité de matière déposée et doit être relaxée. Ce sont les différents modes de croissance permettant cette relaxation (parmi lesquels la formation de nanostructures 3D auto-assemblées) qui sont décrits dans ce chapitre.

## 1.2 Les différents modes de croissance cristalline - considérations thermodynamiques

### 1.2.1 Considérations d'énergie de surface

Aux tous premiers instants de la croissance épitaxiale, le rapport entre la surface du matériau épitaxié et son volume est très grand. Des considérations relatives aux énergies de surface prévalent donc sur celles relatives à l'énergie élastique emmagasinée en volume.

Soient  $\gamma_s$  l'énergie de surface du substrat S,  $\gamma_m$  l'énergie de surface du matériau épitaxié M et  $\gamma_i$  leur énergie d'interface. Les énergies de surface dépendent de l'orientation cristalline (car elles dépendent, en première approximation du moins, du nombre de liaisons pendantes), de l'état de contrainte et des reconstructions de surface (voir page 22 pour une description de cette dernière notion). L'énergie d'interface est liée au recouvrement du substrat par le matériau épitaxié. Les matériaux appariés sont souvent voisins chimiquement : ils ont fréquemment un élément en commun (par exemple, l'arsenic est commun au GaAs et à l'InAs). C'est pourquoi cette énergie d'interface est alors bien moindre que  $\gamma_m$ .

Si  $\gamma_s > \gamma_m + \gamma_i$ , l'augmentation de la surface libre du matériau épitaxié constitue une diminution de l'énergie du système. C'est pourquoi le matériau M va « mouiller » la surface et croître de manière 2D : une nouvelle couche atomique ne se forme que lorsque la pré-

cédente est complète. C'est le *mode de croissance Frank-van der Merwe*. A ce stade de la croissance, l'énergie élastique emmagasinée n'est pas suffisante pour former des dislocations (assez coûteuses en énergie) ; la croissance est donc cohérente.

Si en revanche  $\gamma_s < \gamma_m + \gamma_i$ , l'augmentation de la surface libre du matériau épitaxié constitue une augmentation de l'énergie du système et ce dernier va donc tenter de maintenir la surface libre du substrat aussi grande que possible : il se formera des îlots 3D cohérents (ils peuvent ne pas demeurer cohérents si la croissance se poursuit). C'est le *mode de croissance Volmer-Weber*.

En l'absence de désaccord de paramètre de maille entre M et S (c'est à dire dans le cas d'une homoépitaxie), les modes de croissance 2D et 3D cohérents sont les seules morphologies que peut adopter le matériau M.

Dans la suite, nous allons nous intéresser tout particulièrement à l'hétéroépitaxie avec comme condition de départ  $\gamma_s > \gamma_m + \gamma_i$  : cas où le matériau M commence par mouiller la surface ; c'est la condition vérifiée par le mode de croissance des îlots auto-assemblés. Pour décrire les modes de croissance qui opèrent quand la quantité de matériau déposé augmente, de simples considérations de surfaces ne suffisent plus : il faut également prendre en compte l'énergie emmagasinée en volume.

## 1.2.2 Considérations d'énergie emmagasinée en volume lors d'une croissance initialement bidimensionnelle

### 1.2.2.1 Une énergie d'origine élastique

L'énergie emmagasinée dans le volume du matériau déposé est due à la contrainte que subit ce dernier. Cette contrainte a deux origines : thermique et élastique.

La contrainte d'origine thermique est due à la différence de coefficient de dilatation thermique entre le substrat S et le matériau épitaxié M. De cette différence de coefficient de dilatation résulte une différence de déformation au cours d'un changement de température  $\Delta T$ . Entre le GaAs et l'InAs par exemple, cette différence de déformation est de l'ordre de 0,7 pour mille pour un  $\Delta T$  de 600°C, alors que le désaccord de maille entre le GaAs et l'InAs est de l'ordre de 7%. C'est pourquoi dans la suite on négligera la contrainte d'origine thermique par rapport à la contrainte élastique due au désaccord de paramètre de maille.

Selon la théorie de l'élasticité linéaire (voir page 47 et suivantes et la référence 10), l'énergie élastique  $E_{el}$  accumulée par unité de surface dans une couche épitaxiée 2D cohérente est donnée par :

$$E_{el} = M \left( \frac{\Delta a}{a} \right)^2 h, \quad (1)$$

où  $M$  est le module d'Young du matériau épitaxié quand il est soumis à une contrainte biaxiale (en l'occurrence : dans un plan parallèle à la surface du substrat, pour que le

désaccord de maille soit nul dans ce plan),  $\frac{\Delta a}{a}$  est le désaccord de maille du substrat par rapport à la couche et  $h$  est l'épaisseur de cette dernière.  $M$  dépend du matériau épitaxié et de son orientation cristalline (car il se déforme de manière différente selon le plan dans lequel s'exerce la contrainte biaxiale). Pour une couche 2D cohérente, l'énergie totale accumulée dans la couche par unité de surface est donc :

$$E_{tot} = M \left( \frac{\Delta a}{a} \right)^2 h + \gamma_m + \gamma_i . \quad (2)$$

Elle croît avec  $h$  et la simple croissance 2D cohérente n'est rapidement plus suffisante pour relaxer la contrainte à l'origine de cette énergie. Le système peut alors évoluer soit vers un mode de croissance par lequel la contrainte est relaxée de manière plastique par formation de dislocations, soit vers un autre mode de croissance par lequel la contrainte est relaxée de manière élastique par formation d'îlots cohérents.

### 1.2.2.2 Relaxation de l'énergie élastique par formation de dislocations

Le premier mode de croissance est le plus souvent adopté par des systèmes pour lesquels le désaccord de maille est très faible : de quelques pour mille. La croissance demeure 2D cohérente et pseudomorphique jusqu'à une certaine épaisseur. Au-delà il devient préférable pour le système de former des dislocations (organisées en un réseau 2D carré, dans le cas d'une orientation (100)) à l'interface entre le matériau déposé et le substrat pour relaxer la contrainte élastique accumulée. Le matériau déposé reprend alors son propre paramètre de maille.

### 1.2.2.3 Relaxation de l'énergie élastique par formation d'îlots tridimensionnels auto-assemblés – croissance Stranski-Krastanow

L'autre mode de croissance qui permet la relaxation d'un matériau qui commence par croître de manière 2D est généralement adopté par des systèmes dont le désaccord de maille est de quelques pour cent<sup>8</sup>. Après formation d'une fine couche 2D pseudomorphique (dite «couche de mouillage»), la contrainte accumulée est relaxée par les faces libres d'îlots cohérents qui se forment en surface : comme on peut le voir sur le schéma de la figure 3, au niveau de ces faces libres, le matériau épitaxié tend à reprendre son propre paramètre de maille et la contrainte élastique est ainsi diminuée. C'est le *mode de croissance Stranski-Krastanow* (SK). La relaxation de l'énergie élastique ainsi permise sera d'autant plus efficace que l'îlot sera haut. Mais cela va de pair avec une augmentation de sa surface libre et par conséquent de son énergie de surface. C'est donc cette compétition entre la relaxation de l'énergie

---

<sup>8</sup>Mais, on le verra plus loin, le mode de croissance choisi par le système ne dépend pas de ce seul désaccord : à même désaccord, un système de matériaux peut relaxer la contrainte par formation de dislocations, tandis qu'un autre la relaxe élastiquement par formation d'îlots cohérents.

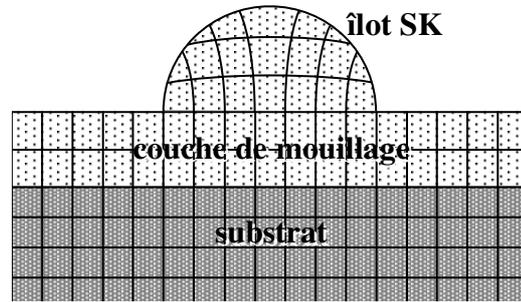


FIG. 3. Représentation schématique d'un îlot formé selon le mode de croissance Stranski-Krastanow.

élastique et l'augmentation de l'énergie de surface qui conditionne la croissance SK. D'autre part, si la croissance du matériau contraint se poursuit, les îlots atteignent une taille au-delà de laquelle la relaxation élastique ne suffit plus et des dislocations apparaissent en leur sein, tandis qu'ils adoptent le paramètre de maille du matériau libre.

En 1985, 47 ans après que le mode de croissance SK a été proposé par Stranski et Krastanow, Goldstein *et al.* observèrent pour la première fois des îlots SK cohérents (en l'occurrence, des îlots d'InAs) formés lors d'une croissance par épitaxie par jets moléculaires (EJM<sup>9</sup>) d'InAs sur GaAs (InAs/GaAs) [12]. Après recouvrement de ces îlots par du GaAs, les auteurs ont pu démontrer, grâce à des spectres de photoluminescence<sup>10</sup>, les bonnes propriétés d'émission optique de ces îlots. Ceux-ci n'étaient autres que des BQs, pour lesquelles les porteurs de charge étaient donc confinés dans les trois directions de l'espace. Depuis, ces îlots cohérents ont suscité un intérêt croissant car ils peuvent être très petits et donc imposer un fort confinement 3D des porteurs<sup>11</sup> (des dimensions latérales de 10 nm sont communes ; voir Fig. 4) et car ils se forment de manière spontanée (d'où leur nom : îlots auto-assemblés). D'autre part, en plus d'être spontanée, la formation de ces îlots est très soudaine : pour un dépôt d'InAs sur GaAs par exemple, leur densité passe de zéro à environ  $10^{10} \text{ cm}^{-2}$  quand l'épaisseur nominale d'InAs déposé passe de 1,5 à 1,7 MC [14].

<sup>9</sup>Pour une brève description de cette technique, le lecteur pourra se reporter par exemple à la page web de la société Veeco<sup>®</sup> indiquée en référence 11.

<sup>10</sup>La photoluminescence est le rayonnement optique émis par un échantillon soumis à une excitation optique. Les photons d'énergie supérieure à l'énergie de bande interdite sont absorbés et créent des paires électron-trou. L'équilibre peut se rétablir par des processus non radiatifs ou radiatifs. Dans ce dernier cas, les électrons de la bande de conduction rejoignent la bande de valence pour se recombiner avec un trou en émettant un photon d'énergie proche de l'énergie de bande interdite du matériau – c'est la photoluminescence.

<sup>11</sup>Gérard *et al.* ont démontré en 1996 [13] que grâce à ce fort confinement, les BQs présentent une faible sensibilité optique vis à vis de centres de recombinaison non radiative situés à proximité, tels que des dislocations (à condition bien sûr que ces îlots ne soient pas eux-mêmes relaxés plastiquement).

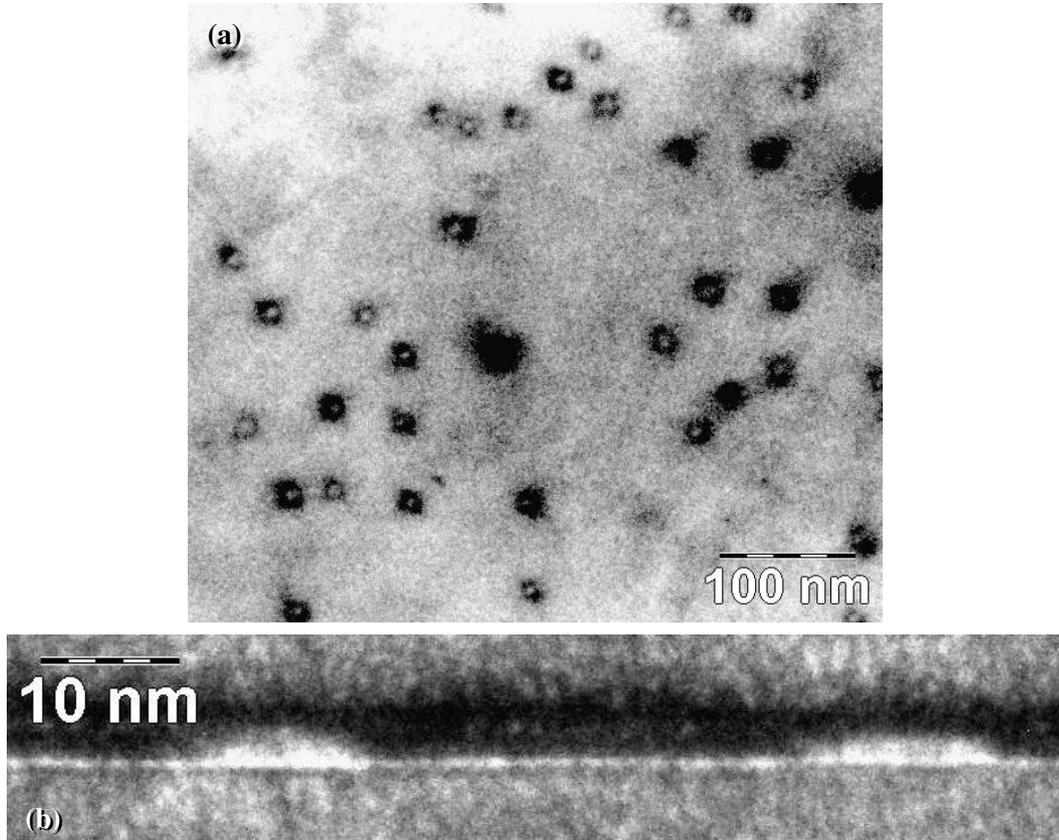


FIG. 4. (a) Vue plane et (b) coupe transverse de MET montrant des îlots auto-assemblés d'InGaAs sur GaAs formés par EPVOM. Sur la coupe transverse, la fine couche blanche reliant les îlots est la couche de mouillage; les îlots sont recouverts d'une couche sombre d'InGaAs à plus faible concentration en indium que ces derniers.

A l'équilibre thermodynamique (c'est-à-dire lorsque la croissance est interrompue et les paramètres de croissance tels que la température sont maintenus constants), il est souvent observé que certains îlots grossissent au dépend de plus petits îlots qui se «dissolvent» afin de réduire la surface totale et donc de réduire l'énergie du système (ce phénomène est connu sous le nom de maturation d'Ostwald ou *Ostwald ripening*) ; au-delà d'une certaine taille, des dislocations apparaissent au sein de ces gros îlots. Ce mécanisme est à l'origine de la large distribution en taille, à l'équilibre thermodynamique, des îlots auto-assemblés. Pourtant, Bimberg *et al.* ont rapporté dès 1995 la formation, sous certaines conditions de croissance d'EJM, de plans denses de petits îlots d'InAs/GaAs auto-assemblés, homogènes en taille<sup>12</sup> (dimensions latérales :  $12 \pm 1$  nm ; hauteur : 4-6 nm) et qui restent stables quand la croissance

<sup>12</sup>Ils ont atteint une dispersion des dimensions latérales d'environ 10% alors qu'elle est de l'ordre de 20-30% en générale.

est interrompue [9] (Fig. 5(a)). De plus, à petite échelle, ces îlots sont grossièrement ordonnés en un réseau carré (la figure 5(b) met en évidence une organisation préférentielle des îlots selon les directions  $\langle 100 \rangle$ ) alors que généralement la répartition spatiale de tels îlots est aléatoire. Pour un plan dense d'îlots, les interactions élastiques entre îlots voisins deviennent

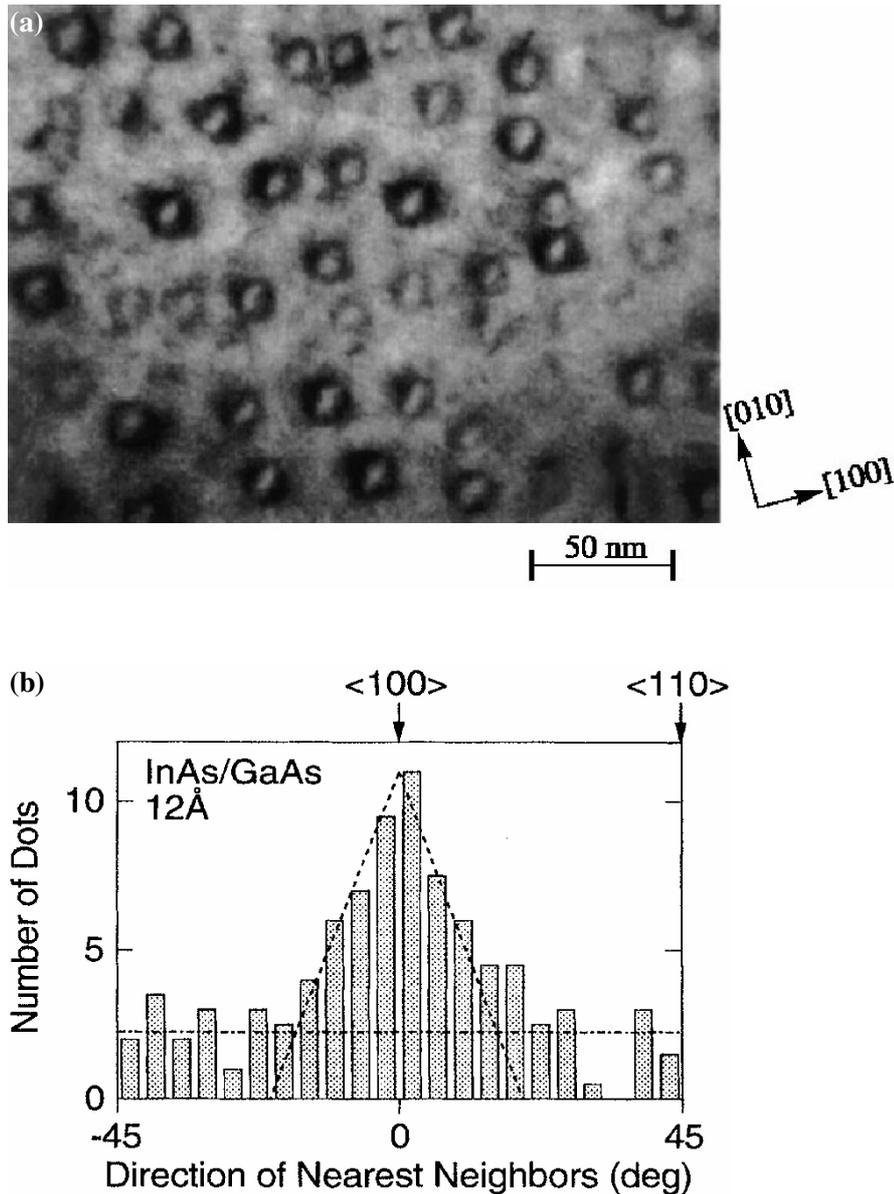


FIG. 5. Organisation à courte distance d'îlots auto-assemblé d'InAs sur GaAs déposés par EJM. (a) Vue plane de MET; (b) histogramme des directions définies par les îlots plus proches voisins. (Bimberg et al. [9]).

essentielles. Comme l'ont fait remarquer Shchukin *et al.* [15], des études théoriques (telles celle de Marchenko [16]) ont montré qu'un tel système de domaines élastiques minimise

son énergie de contrainte en imposant à ces domaines (les îlots) une organisation spatiale périodique. Shchukin *et al.* [15,17] ont montré par des considération thermodynamiques que (i) les îlots SK peuvent, sous certaines conditions de croissance, posséder une taille optimale (qui dépend des propriétés élastiques des matériaux) et (ii) qu'un organisation en réseau carré est (ou est très proche de) la configuration d'énergie minimale pour des îlots denses. Cependant, les différences en énergie entre les différentes organisations spatiales possibles étant faibles, il n'est pas étonnant de n'observer qu'un ordre à courte distance (Fig. 5). Enfin, grâce à une étude expérimentale approfondie, Ledentsov *et al.* [18] ont montré que les îlots d'InAs/GaAs homogènes en taille et ordonnés qu'ils formaient (ainsi que ceux formés par Bimberg *et al.* [9]) résultaient bien d'un équilibre thermodynamique (que ceux-ci soient formés par EJM ou par EPVOM).

#### 1.2.2.4 Modèle unifié de la croissance initialement bidimensionnelle

Tinjod a récemment proposé un modèle à l'équilibre thermodynamique qui décrit les différents modes de croissance d'un matériaux qui commence par mouiller la surface du substrat [19]. Ce modèle a le mérite de prendre en compte non seulement le désaccord de maille et le module d'Young biaxial  $M$ , mais aussi (contrairement à des modèles plus anciens [20,21]) d'autres paramètres qui influencent également la croissance : la proportion  $\alpha$  d'énergie élastique relaxée par les îlots (par rapport à l'énergie élastique relaxée à la fois par les îlots et par la couche de mouillage ; elle dépend notamment de la forme des îlots), le surcoût d'énergie de surface  $\Delta\gamma$  dû à la formation des îlots (qui dépend fortement des conditions de croissance), l'énergie  $E_{c-MD}$  de formation d'une dislocation de désaccord de maille et la distance minimale  $d_0$  entre dislocations telle que toute la contrainte soit relaxée plastiquement. L'auteur est parvenu à exprimer l'énergie totale (par unité de surface) du matériau déposé en fonction de la seule variable  $h$  (l'épaisseur moyenne du matériau épitaxié) pour les quatre modes de croissance que sont la croissance 2D, la croissance SK, la croissance 2D avec formation de dislocations (2D-MD, pour *Misfit Dislocations*) et la croissance SK avec formation de dislocations (SK-MD) :

$$E_{2D}(h) = M(\Delta a/a)^2 h + \gamma^{2D} \quad (3a)$$

$$\text{avec } \gamma^{2D} = \gamma_m + \gamma_i ,$$

$$E_{SK}(h) = (1 - \alpha)M(\Delta a/a)^2 h + \gamma^{2D} + \Delta\gamma , \quad (3b)$$

$$E_{2D-MD}(h) = \frac{-E_{c-MD}^2(h)}{d_0^2 M(\Delta a/a)^2 h} + \frac{2}{d_0} E_d(h) + \gamma^{2D} , \quad (3c)$$

$$E_{SK-MD}(h) = \frac{-E_{c-MD}^2(h)}{(1 - \alpha)d_0^2 M(\Delta a/a)^2 h} + \frac{2}{d_0} E_d(h) + \gamma^{2D} + \Delta\gamma , \quad (3d)$$

avec

$$E_{c-MD}(h) = \frac{\mu_i b^2 (1 - \nu \cos^2 \theta)}{4\pi(1 - \nu)} \left( \ln \frac{h}{b} + 1 \right), \quad (4)$$

où  $\mu_i$  est le module de cisaillement à l'interface entre le matériau M et le substrat,  $b$  est le module du vecteur de Burgers (voir page 39) de la dislocation formée,  $\nu$  est le coefficient de Poisson du matériau M et  $\theta$  est l'angle que forme le vecteur de Burgers avec la ligne de dislocation. Précisons que  $E_{2D-MD}$  et  $E_{SK-MD}$  sont définies pour des épaisseurs  $h$  supérieures respectivement à des épaisseurs critiques  $h_c^{2D-MD}$  et  $h_c^{SK-MD}$  de formation du réseau de dislocations [19]. Pour une épaisseur  $h$  donnée, le mode de croissance effectif sera celui d'énergie minimale. Ce modèle a permis à l'auteur de rendre compte par exemple de la transition SK à 1,7 MC observée par Gérard [22] lors de la croissance par EJM d'InAs sur GaAs-(001) en conditions riches arsenic<sup>13</sup> (Fig. 6). Ainsi, d'après le modèle, la croissance doit

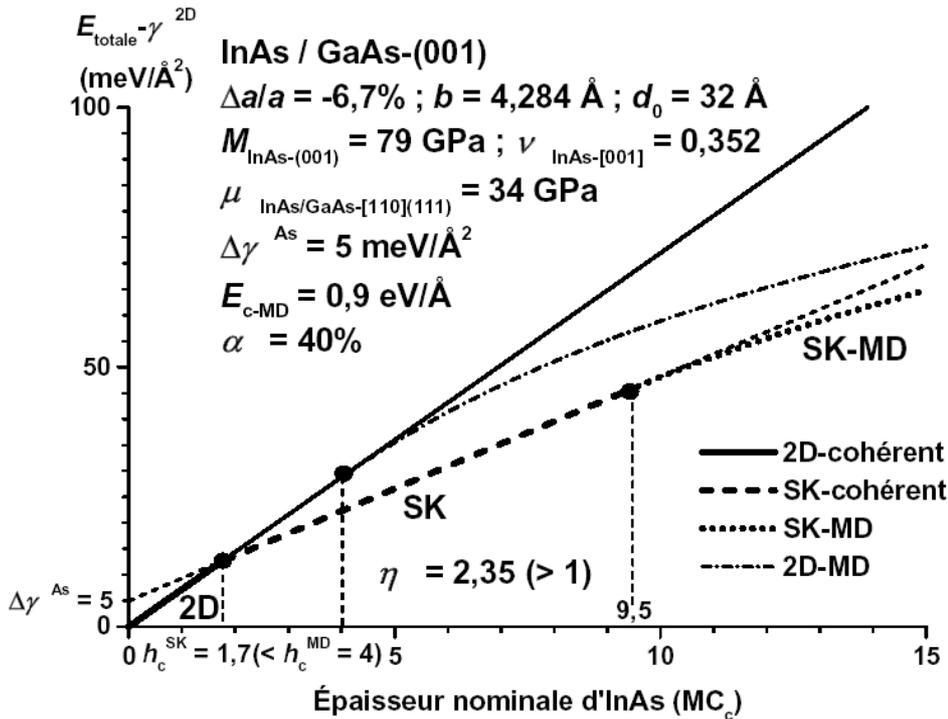


FIG. 6. *Energie totale d'une couche d'InAs épitaxiée sur GaAs-(001) en conditions riches élément V (As), en fonction de l'épaisseur nominale d'InAs déposé. Les différentes courbes correspondent aux différents modes de croissance. A une épaisseur donnée, le système adoptera le mode de croissance qui permet l'énergie totale la plus faible. (Tinjud [19]).*

tout d'abord être 2D puis lorsque 1,7 MC d'InAs ont été déposées, des îlots SK cohérents

<sup>13</sup>La croissance des arséniures (alliages à base d'arsenic) se fait en conditions riches arsenic car autrement les éléments III de l'alliage forment des gouttelettes, à cause de la désorption des atomes d'arsenic [17].

devraient se former et enfin, au-delà de 9,5 MC des dislocations de désaccord de maille devraient apparaître dans ces îlots.

L'auteur a également dégagé le paramètre clé qui conditionne le mode de relaxation de la contrainte élastique. Il s'agit du rapport

$$\eta = \frac{h_c^{2D-MD}}{h_c^{SK}} = \frac{\alpha E_c^{2D-MD} |\Delta a/a|}{b_{\text{eff}} \Delta \gamma}, \quad (5)$$

où  $b_{\text{eff}}$  est la composante efficace du vecteur de Burgers pour l'accommodation du désaccord de maille par les dislocations. En effet, si  $\eta < 1$ , alors  $h_c^{2D-MD} < h_c^{SK}$  et la relaxation plastique a donc lieu (dans le cas contraire, c'est la relaxation élastique SK).

Enfin, l'auteur a établi un diagramme de phase qualitatif décrivant les différents modes de croissance avec la condition initiale de mouillage, en fonction de  $\eta$  et de l'épaisseur  $h$  (Fig. 7).

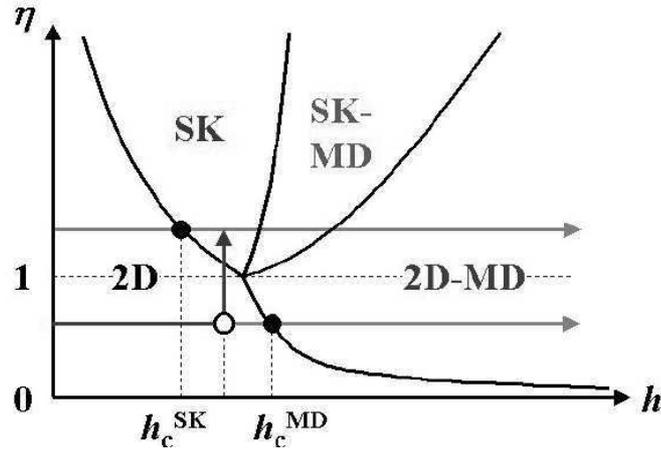


FIG. 7. Diagramme de phase qualitatif des modes de croissance avec la condition initiale de mouillage (Tinjođ [19]). Les deux flèches horizontales représentent des épitaxies pour lesquelles les conditions de croissance ne changent pas (l'une avec  $\eta < 1$  et l'autre avec  $\eta > 1$ ), tandis que la flèche verticale représente, lors d'une interruption de croissance (puisque l'épaisseur  $h$  reste constante) un changement notable des conditions «de croissance», de sorte que le surcoût  $\Delta \gamma$  d'énergie de surface soit abaissé et que donc le rapport  $\eta$  redevienne favorable à la transition SK.

En somme, ce modèle permet d'avoir une vision globale et plus poussée que les modèles précédents des modes de croissance pouvant survenir lors de la croissance d'un matériau contraint, après mouillage de la surface du substrat. De plus, l'auteur a vérifié qu'il décrivait correctement les observations expérimentales de quelques équipes. Néanmoins, comme tout modèle, et l'auteur le reconnaît lui-même, il possède des limitations liées aux hypothèses

faites. La plus restrictive est sans aucun doute l'hypothèse d'équilibre thermodynamique (hypothèse commune à toutes les considérations faites jusqu'à présent dans ce chapitre) car l'épitanie d'un matériau se fait rarement dans des conditions où cet équilibre est réalisé. De plus, les paramètres d'ordre thermodynamique tels que ceux évoqués jusqu'à présent ne sont pas les seuls à influencer la croissance.

Dans la section suivante, nous complétons notre description de la croissance des îlots auto-assemblés par des considérations cinétiques. En effet, de nombreuses études ont montré que des paramètres d'ordre cinétique tels que la vitesse de croissance ou la température ont une action non négligeable sur l'épaisseur critique de transition 2D-3D [23], sur la nucléation des îlots SK [24, 25] et sur leur densité [25–27]. D'ailleurs, intuitivement, on peut pressentir que la cinétique a une influence sur la formation des îlots puisque ceux-ci se forment après seulement de l'ordre de deux à dix secondes de dépôt d'InAs (dans le cas d'îlots d'InAs formés sur GaAs, dans les conditions usuelles de croissance, que ce soit en EJM ou en EPVOM). Notre ambition n'est pas de décrire la croissance avec exactitude (cela peut d'ailleurs sembler illusoire vu le nombre de paramètres à prendre en compte), mais simplement de mettre en évidence les phénomènes cinétiques qui peuvent l'influencer.

## 1.3 Cinétique de la croissance des îlots tridimensionnels auto-assemblés

### 1.3.1 Formation de la couche de mouillage

Lors de la croissance du matériau contraint, les atomes déposés ne se fixent pas tout de suite à la surface. Ils sont tout d'abord physisorbés<sup>14</sup> (on les appelle alors adatoms) avant d'être chimisorbés définitivement<sup>15</sup>. Ce phénomène de diffusion est activé thermiquement : pour qu'un atome puisse quitter un site cristallographique de surface et en rejoindre un autre par diffusion, il doit d'abord franchir une barrière énergétique qui dépend essentiellement de l'énergie des liaisons covalentes qu'il partage avec ses premiers voisins. La distance moyenne  $L_{\text{diff}}$  sur laquelle un atome peut diffuser dépend essentiellement de :

- la température –  $L_{\text{diff}}$  augmente avec cette dernière car l'échappement des atomes adsorbés hors des sites cristallographiques est thermiquement activé ;
- la vitesse de croissance –  $L_{\text{diff}}$  augmente quand cette dernière diminue car les sites de surface sont occupés moins vite (il y a plus de sites disponibles pour accueillir les atomes qui diffusent) ;

---

<sup>14</sup>L'interaction attractive qui les lie à la surface n'est pas chimique, elle est essentiellement due aux forces de van der Waals.

<sup>15</sup>L'interaction attractive qui les lie à la surface est alors chimique – plus précisément, dans le cas des semiconducteurs III-V, des liaisons iono-covalentes se forment.

- la rugosité de la surface –  $L_{\text{diff}}$  augmente quand cette dernière diminue car les accidents de surface sont des sites favorables à la chimisorbtion des atomes.

Les atomes déposés en surface vont se fixer de manière préférentielle sur des marches atomiques [28, 29], des inhomogénéités de contrainte et de déformation [30] ou certaines impuretés [31] à condition que leur longueur de diffusion soit suffisante pour les atteindre (ils forment des noyaux de hauteur mono-atomique sur ces sites de fixation préférentielle). Dans le cas contraire, ils vont se rencontrer et former également des noyaux 2D. Ces noyaux 2D vont ensuite s'étendre à la surface car leurs flans constituent des sites de fixation préférentielle pour les adatoms.

Ce processus de nucléation est donc aléatoire. Néanmoins, comme l'ont fait remarquer Voigtländer *et al.* [25], la distribution des aires des noyaux présente un pic. Les auteurs ont attribué cela à un phénomène cinétique (indépendant de considérations thermodynamiques telles celles de Shchukin *et al.* [15, 17] évoquées en page 15) : la saturation de la nucléation<sup>16</sup>. Lorsque la distance entre noyaux adjacents devient égale à  $L_{\text{diff}}$ , l'incorporation d'un atome sur les flans d'un noyau devient plus probable que la formation d'un nouveau noyau – il en résulte une homogénéisation de la taille de ces derniers. On passe alors de la phase de nucléation à la phase de croissance des noyaux (croissance 2D dans le cas présent) pendant laquelle plus aucun nouveau noyau ne se forme (la densité de ces derniers est donc déterminée par  $L_{\text{diff}}$ ).

La croissance de ces noyaux va ensuite se poursuivre jusqu'à leur coalescence et ensuite la formation d'une couche 2D complète.

L'ensemble des processus décrits dans cette sous-section se répète pour chacune des couches atomiques constitutives de la couche de mouillage.

### 1.3.2 Formation des îlots tridimensionnels auto-assemblés

Pour les îlots SK, la croissance démarre sur la couche de mouillage de la même manière que celle décrite précédemment. Des noyaux 2D se forment puis s'étendent. Au-delà d'une certaine taille critique, à cause de la contrainte accumulée dans ces noyaux, il leur devient énergétiquement favorable de croître de manière 3D [32] – c'est l'apparition des îlots SK. La densité de ces îlots est donc identique à celle des noyaux 2D (elle-même imposée par la longueur de diffusion des atomes déposés). De même que pour les noyaux 2D, la répartition spatiale de ces îlots est aléatoire (c'est une autre raison qui explique que Bimberg *et al.* [9] n'ont observé qu'un ordre à courte distance de leurs îlots denses lorsqu'ils laissaient le temps au système d'atteindre l'équilibre thermodynamique).

L'incorporation des atomes sur les îlots étant énergétiquement plus favorable, ceux-ci

---

<sup>16</sup>On entend par nucléation, la formation des noyaux.

vont croître (aussi bien en dimensions latérales qu'en hauteur) tandis que l'épaisseur de la couche de mouillage va rester constante. Cependant, au cours de cette croissance, une forte contrainte se développe en périphérie des îlots [32]. L'expansion latérale de ces derniers est ainsi limitée. C'est sans doute un phénomène qui est à l'origine de la relativement bonne homogénéité en taille des îlots SK. Mais cette caractéristique est très dépendante des paramètres de croissance [33] et il n'est pas toujours aisé de concilier l'homogénéité en taille avec d'autres propriétés attendues de ces îlots, telles qu'une émission optique à une longueur d'onde de  $1,3 \mu\text{m}$  [34].

Si la croissance se poursuit, les îlots coalescent (éventuellement après avoir relaxé plastiquement si le désaccord de maille entre les îlots et le substrat est trop important pour qu'ils restent cohérents) pour former une couche 2D rugueuse.

## 1.4 Synthèse

En résumé, l'auto-assemblage d'îlots est un mécanisme qui permet de réaliser des nanostructures 3D cohérentes de manière simple puisque leur formation est spontanée et de plus, de dimensions suffisamment petites pour que les porteurs de charge y soient confinés dans les trois directions de l'espace – de tels îlots sont des BQs. Néanmoins, comme nous l'avons déjà souligné dans l'introduction générale, ce type de nanostructures possède quelques limitations pour un certain nombre d'applications. En effet, leur positionnement en surface est aléatoire ou ne présente tout au plus qu'un ordre à courte distance. Leur densité est imposée par les matériaux et par les paramètres de croissance – paramètres sur lesquels la marge de manœuvre est bien souvent réduite et qui ne permettent donc pas toujours d'obtenir la densité désirée. Enfin une homogénéité en taille encore meilleure serait profitable. Dans le chapitre suivant, nous allons voir quelques unes des méthodes qui ont été envisagées et expérimentées pour surmonter ces limitations et nous nous attacherons aux avantages de celle que nous avons retenue.

# L'auto-organisation de nanostructures

## Sommaire du chapitre

---

<b>2.1</b>	<b>Introduction</b> . . . . .	<b>21</b>
<b>2.2</b>	<b>Organisations de nanostructures grâce à des motifs de surface organisés</b> . . . . .	<b>22</b>
2.2.1	Organisations sur des surfaces structurées naturellement . . . . .	22
2.2.2	Organisations sur des surfaces structurées de manière artificielle . . . . .	23
<b>2.3</b>	<b>Organisations de nanostructures via des inhomogénéités de contrainte et de déformation</b> . . . . .	<b>27</b>
<b>2.4</b>	<b>Synthèse</b> . . . . .	<b>33</b>

---

## 2.1 Introduction

Notre objectif est de tirer parti des avantages de l'auto-assemblage sur substrat de GaAs et d'en surmonter la plupart des limitations. Il va donc s'agir de contrôler l'organisation spatiale et la dispersion en taille et en forme des îlots auto-assemblés sur GaAs<sup>17</sup> ; en d'autres termes, on veut passer de l'auto-assemblage à l'auto-organisation à grande échelle de nanostructures 3D, c'est à dire à la formation spontanée de nanostructures ordonnées sur toute la surface d'un échantillon. Il faut donc que les sites de nucléation préférentielle de ces îlots soient ordonnés. Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, ces sites sont des irrégularités de la morphologie de surface, des irrégularités de contrainte et de déformation ou des impuretés. Il faudrait donc disposer d'un moyen d'ordonner au moins l'un de ces trois types de sites. Dans ce chapitre, nous allons présenter quelques unes des méthodes qui ont été envisagées pour y parvenir, en terminant par celle que nous avons retenue. Nous discuterons

---

<sup>17</sup>Ce n'a pas été un objectif de cette thèse de pallier à une autre limitation de l'auto-assemblage qu'est la large distribution en composition des nanostructures.

les avantages et les inconvénients de chacune d'entre elles. Cette présentation ne se veut pas exhaustive, mais simplement représentative sinon de toutes les méthodes envisagées, tout au moins des idées qui leur sont sous-jacentes. Nous parlerons d'abord de méthodes basées sur l'organisation d'irrégularités de surface, puis d'autres basées sur l'organisation de variations spatiales de contrainte et de déformation accompagnées éventuellement de modifications de la morphologie de surface et/ou d'inclusions d'impuretés.

## 2.2 Organisations de nanostructures grâce à des motifs de surface organisés

### 2.2.1 Organisations sur des surfaces structurées naturellement

Nous l'avons dit, les marches atomiques sont des sites de nucléation préférentielle pour les îlots auto-assemblés. De plus, lorsque la surface est faiblement désorientée par rapport à une surface de faibles indices de Miller (elle est alors dite «vicinale»), des marches atomiques périodiques et orientées perpendiculairement à la plus grande pente de la surface (par rapport au plan de faibles indices) se forment. Ces marches séparent des terrasses orientées selon le plan de faibles indices de Miller et leur périodicité  $\Lambda_f$  est géométriquement imposée par la désorientation :  $\Lambda_f = \frac{h_m}{\tan \theta_f}$ , où  $h_m$  est la hauteur des marches et  $\theta_f$  est l'angle de désorientation. Avec de telles marches périodiques il est alors possible d'organiser les îlots [35] (Fig. 8). D'autre part, il est possible de profiter du phénomène d'accumulation de marches («*step bunching*»<sup>18</sup>) pour imposer une barrière énergétique plus importante aux atomes déposés et ainsi favoriser encore plus une nucléation organisée des îlots [35, 37, 38] (Fig. 9). Cependant il est difficile de découper un substrat de sorte que ses marches soit bien rectilignes et régulièrement espacées sur toute la surface (et ce d'autant plus si celle-ci est grande). En outre, cette méthode ne permet qu'une organisation 1D des îlots.

Une autre structure qui peut être exploitée pour l'organisation d'îlots est la *reconstruction de surface*. Il s'agit d'une structuration de la surface qui résulte de l'organisation périodique des atomes différente de celle qu'ils ont dans le matériau massif, afin de minimiser le nombre de liaisons pendantes. Ce mécanisme est illustré par la figure 10(a), pour le cas particulier d'une surface d'or (111) [39]. Sur des surfaces reconstruites, certains types de sites peuvent être plus favorables que d'autre à la nucléation d'îlots et il en résulte donc une organisation périodique de ces derniers (Fig. 10(b)) [39–41]. Cependant, comme l'on fait remarquer Repain *et al.* [41] pour des surfaces d'or (111) reconstruites en  $22 \times \sqrt{3}$  (Fig. 10(c)), les reconstructions de deux zones adjacentes de la surface séparées par une marche atomique

---

<sup>18</sup>Pour une description de ce mécanisme, le lecteur pourra se reporter par exemple à la thèse de doctorat de M. Sussiau [36].

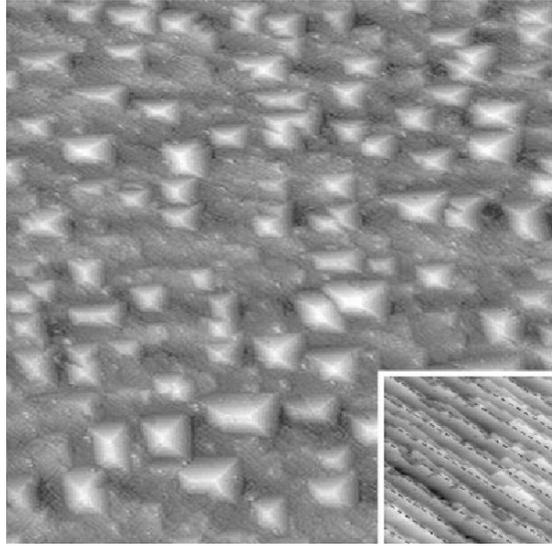


FIG. 8. Image STM ( $500 \times 500 \text{ nm}$ ) montrant l'alignement d'îlots 3D de germanium sur les marches atomiques d'une surface de silicium désorienté de  $2^\circ$  par rapport au plan (001). L'insert est une image STM ( $50 \times 50 \text{ nm}$ ) montrant la surface avant épitaxie. (Patella et al. [35]).

peuvent ne pas être corrélées entre elles, de sorte que la périodicité des reconstructions est rompue (ce phénomène existe également pour des surfaces de GaAs [43]). Ils en ont conclu qu'une organisation régulière à grande distance ne peut pas être réalisée sur une grande surface d'or (111) (la limite est de l'ordre de  $100 \times 100 \mu\text{m}$ ). Pour pallier ce problème, ils ont utilisé une surface d'or (788), qui combine à la fois des reconstructions de surface et des marches périodiquement ordonnées à grande échelle, pour ordonner des îlots de cobalt (Fig. 11). Néanmoins, il subsiste toujours deux inconvénients liés à l'organisation d'îlots grâce à des surfaces reconstruites. Dans les conditions de croissance usuelles, les atomes déposés ne sont pas forcément très sensibles à l'influence des reconstructions de surface. D'autre part, la périodicité de ces reconstructions est fixée par le substrat et ne peut pas être contrôlée.

### 2.2.2 Organisations sur des surfaces structurées de manière artificielle

Plutôt que d'utiliser la structuration naturelle d'un substrat, on peut structurer ce dernier de manière artificielle par lithographie.

Ainsi, Jin *et al.* [44–46] ont fait croître des îlots cohérents de germanium sur des mesas de silicium formés par épitaxie sélective dans les ouvertures périodiques (définies par lithographie optique) d'une couche de silice formée en surface par oxydation thermique d'un substrat de silicium (Fig. 12). En fonction des paramètres de croissance (quantité de germanium déposé et température), un ou plusieurs îlots sont formés sur chaque mesa. Chaque

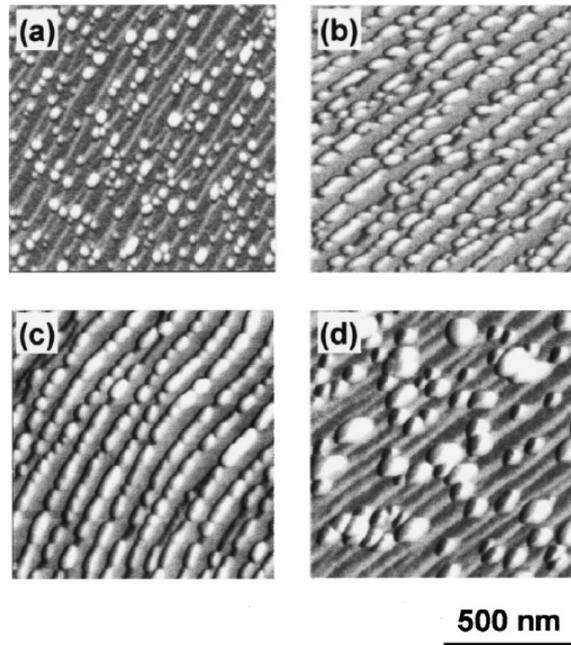


FIG. 9. Images de microscopie à force atomique (AFM : atomic force microscopy; voir annexe C, page 141) montrant des alignements d'îlots 3D d'InAs sur les accumulations de marches de surfaces de GaAs désorientées de  $\mathcal{P}$  par rapport au plan (001), pour des épaisseurs nominales d'InAs de (a) 2, (b) 2,2, (c) 2,3 et (d) 2,4 MC. (Kim *et al.* [38]).

mesa d'un même échantillon possède le même nombre d'îlots. De plus, les auteurs ont montré que dans bien des cas, ils sont ordonnés de la même manière sur chaque mesa (comme on peut le voir pour le cas particulier illustré par la figure 12).

Lee *et al.* [47] ont exploré une méthode similaire pour des îlots d'InAs sur GaAs. Ils ont fait croître ces îlots par épitaxie sélective dans les ouvertures périodiques (définies par lithographie optique interférométrique) d'une couche de silice déposée préalablement sur le substrat de GaAs. Différents diamètres d'ouvertures ont été étudiés (de 50 à 200 nm), malheureusement des gros îlots relaxés plastiquement sont systématiquement formés avec parfois des îlots cohérents.

Enfin, Zhong *et al.* [48,49] ont ordonné des îlots de germanium sur une surface structurée de silicium sans avoir recours à l'épitaxie sélective. Ils ont défini par lithographie holographique des réseaux 2D de cuvettes (de 500, 400 ou 370 nm de dimensions latérales et de profondeur inférieure à 20 nm) sur des substrats de silicium. Ils ont ensuite épitaxié une couche tampon de silicium qui reproduit cette structure (Fig 13(a)). Finalement le germanium est déposé et forme des îlots cohérents auto-assemblés ; un îlot apparaît dans chaque cuvette (et pas ailleurs)(Figs. 13(b) et 13(c)).

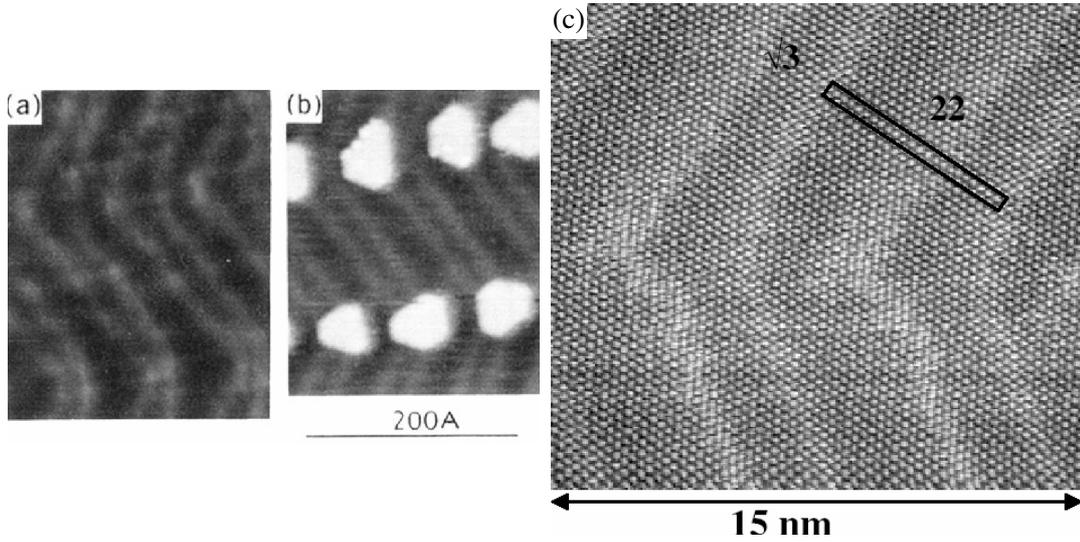


FIG. 10. Images STM. (a) Reconstruction d'une surface d'or (111) (Chambliss et al. [39]). Les zigzags clairs sont des crêtes d'environ  $0,2 \text{ \AA}$  de haut. (b) Organisation d'îlots de nickel (les motifs blancs) sur ce type de surface. (Chambliss et al. [39]). Ces surfaces d'or (111) présentent une reconstruction  $22 \times \sqrt{3}$  : les vecteurs de base  $\mathbf{a}'$  et  $\mathbf{b}'$  de la maille élémentaire (le rectangle noir de l'image (c); Rousset et al. [42]) de la surface reconstruite vérifient les conditions  $\|\mathbf{a}'\| = 22\|\mathbf{a}\|$  et  $\|\mathbf{b}'\| = \sqrt{3}\|\mathbf{b}\|$ , où  $\mathbf{a}$  et  $\mathbf{b}$  sont les vecteurs de base de la maille élémentaire de la surface non reconstruite (tout au long de ce manuscrit, les vecteurs apparaissent en caractères gras, sans flèche) – on peut reconstituer cette maille en joignant les atomes (les points blancs) plus proches voisins.

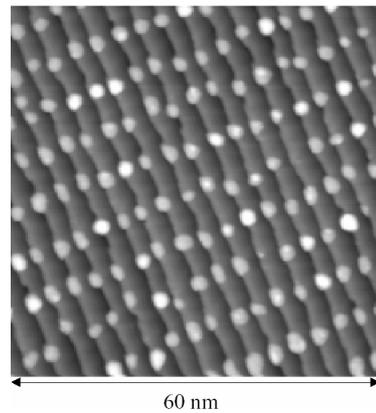


FIG. 11. Image STM montrant l'organisation d'îlots de cobalt sur une surface d'or (788). (Repain et al. [41]).

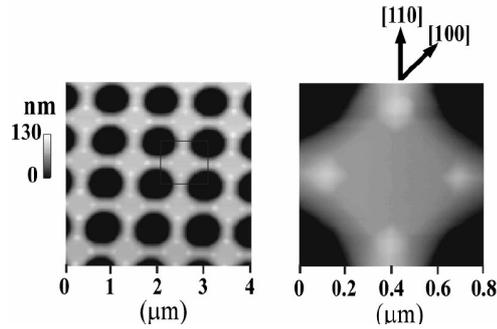


FIG. 12. Images AFM d'îlots cohérents de germanium (les points blancs) auto-assemblés sur des mesas de silicium (les zones grises). (Jin et al. [45]).

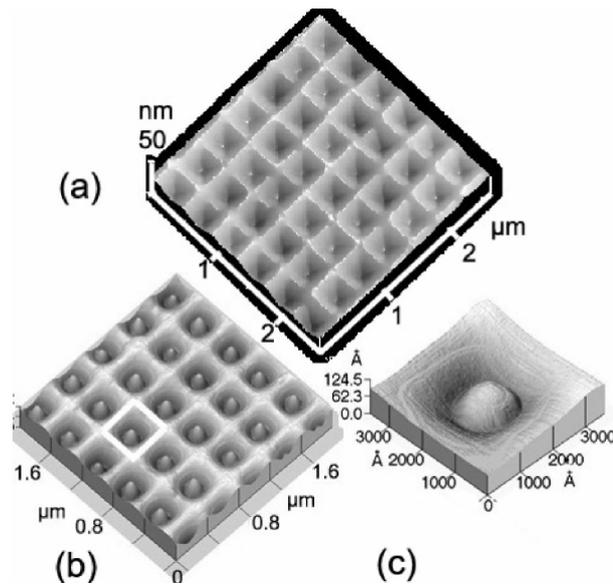


FIG. 13. Images AFM (a) d'un substrat de silicium structuré, après croissance de la couche tampon de silicium ; (b) après dépôt de 4 MC de germanium qui forment des îlots auto-assemblés ; (c) zoom sur un îlot de germanium. (Zhong et al. [49]).

Il est donc possible d'organiser des îlots auto-assemblés ayant une bonne homogénéité en taille [49] sur des surfaces structurées par lithographie. Néanmoins, comme nous l'avons déjà signalé, il n'est pas possible grâce aux techniques de lithographie optique d'atteindre de fortes densités d'îlots et la lithographie électronique (qui, elle, le permet) est trop lente pour envisager une organisation d'îlots sur une grande surface.

## 2.3 Organisation de nanostructures grâce à des variations spatiales et organisées de la contrainte et de la déformation de surface

Nous l'avons dit plus haut (page 19), les îlots peuvent nucléer sur des inhomogénéités de contrainte et de déformation localisées en surface, où l'énergie de déformation élastique emmagasinée dans les îlots est minimisée.

Des variations spatiales de la contrainte et de la déformation de surface peuvent simplement être créées par la déformation due à un plan d'îlots enterrés sous une fine couche du même matériau que le substrat (on nomme une telle couche *espaceur*) : chaque îlot enterré va déformer localement cette couche. La répartition spatiale des îlots déposés sur cette couche sera corrélée à celle des îlots sous-jacents si la contrainte ou la déformation induite par ces derniers à la surface est suffisante. Ainsi il est courant d'observer un alignement vertical d'îlots lors de la croissance de multi-couches d'îlots [12, 30]. De plus, en 1996, Tersoff *et al.* [50] ont montré par des données expérimentales (confirmées par un modèle théorique simple à deux dimensions) l'apparition d'une organisation latérale à longue distance d'îlots ainsi qu'une homogénéisation de leurs volumes lors de l'empilement de plans d'îlots faiblement espacés (îlots de SiGe sur Si, en l'occurrence). Ce genre d'organisation latérale a été confirmée plus tard par d'autres groupes pour des îlots de germanium sur silicium [51] et pour des îlots de d'InGaAs sur GaAs [52]. Cependant la régularité à longue distance de ces organisations reste faible. Springholz *et al.* [53, 54] sont parvenus à obtenir une bonne organisation latérale et verticale de nanostructures 3D de PbSe sur PbEuTe (Fig. 14(a)) au delà de 30 plans de nanostructures empilés (séparés par des espaceurs de PbEuTe d'épaisseur égale ; plusieurs échantillons ont été étudiés avec des épaisseurs variant de 30 à 70 nm). Ces îlots sont organisés en un réseau 3D *cubique à faces centrées* (cfc) compressé de 18% selon la grande diagonale, dont le paramètre de maille  $L$  peut être modifié continuellement sur une plage de quelques dizaines de nanomètres en faisant varier l'épaisseur  $D_{SL}$  des espaceurs (Fig. 14(b)) ; en effet, le rapport  $\frac{D_{SL}}{L}$  est constant : il a été mesuré égal à 0,704. On le voit, cette fois-ci les îlots de deux plans successifs ne sont pas alignés verticalement. Les auteurs ont attribué cela ainsi que la bonne organisation latérale à la forte anisotropie élastique caractéristique des matériaux IV-VI. Mais d'après une étude théorique de Liu *et al.* [55], il est également possible d'obtenir une organisation 3D à longue distance d'îlots avec des empilements de matériaux à plus faible anisotropie. Cette assertion n'a pas encore (à notre connaissance) été confirmée expérimentalement. Il est bien sûr possible de combiner l'organisation latérale d'un premier plan d'îlots par structuration *ex-situ* (lithographie ou microscope de champ proche) du substrat avec la croissance ultérieure d'autres plans

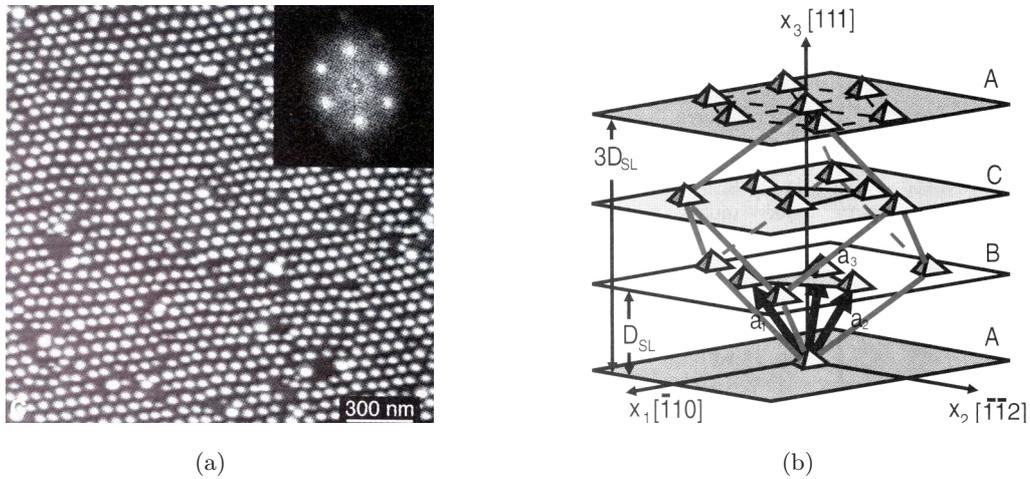


FIG. 14. (a) Image AFM montrant l'organisation latérale à longue distance d'îlots de PbSe sur un empilement de 60 plans d'îlots séparés par des couches de PbEuTe. En insert, le spectre de puissance met en évidence l'organisation périodique à longue distance des îlots. (b) Schéma de l'organisation 3D des îlots. (Springholz et al. [53]).

d'îlots, pour avoir une organisation 3D [48, 56–60]. Cependant, de telles méthodes restent limitées par leur lenteur ou par les faibles densités qu'elles permettent d'atteindre (dues à leurs faibles résolutions spatiales).

Il est également possible de créer *ex-situ* des inhomogénéités de contrainte et de déformation. Ainsi, Kammler *et al.* [61] ont utilisé le bombardement focalisé d'ions  $\text{Ga}^+$  sur une surface de silicium pour induire la nucléation préférentielle d'îlots de germanium ; celle-ci s'expliquant soit par des contraintes et déformations locales dues aux inclusions des ions dans la maille de silicium soit par un effet surfactant<sup>19</sup> des ions. Malheureusement, cette méthode ne permet pas une résolution inférieure à 100 nm et, de plus, elle est séquentielle. Omi *et al.* [62, 63] ont quant à eux implanté (à travers un masque) un substrat de silicium avec de l'oxygène. L'oxygène implanté induit une contrainte et une déformation en surface et modifie la morphologie de cette dernière ; les sites de nucléation d'îlots de germanium sont ainsi contrôlés. Cette technique n'est pas séquentielle mais sa résolution spatiale reste limitée.

Les dislocations sont d'autres sources de contraintes et de déformations [64] qui peuvent influencer les sites de nucléation des îlots. Bien que ces défauts soient des sites de recombinaison radiative parasite et non radiative pour les porteurs de charge, leur utilisation peut

<sup>19</sup>Surfactant : qui augmente les propriétés mouillantes d'une substance en abaissant la tension superficielle de celle-ci.

être envisagée, car comme nous l'avons déjà signalé (page 12), si les porteurs sont fortement confinés dans les îlots (c'est-à-dire si ces derniers sont des BQs), ils présentent une faible sensibilité optique vis à vis de dislocations situées à proximité. Grâce aux travaux de Fafard *et al.* [65], on peut avoir un ordre de grandeur de la distance devant séparer une BQ d'une dislocation pour que ses propriétés d'émission optique ne soient pas altérées. Les auteurs ont démontré par l'expérience le couplage entre les niveaux d'énergie de BQs d'InAs alignées verticalement, lorsque l'épaisseur de l'espaceur est inférieure à 15 nm (cela n'a pas lieu dans le cas contraire ; un modèle en bon accord avec ces résultats a été conçu plus tard par Szafran *et al.* [66]). Cela veut dire que les fonctions d'ondes des porteurs de charge confinés dans ces BQs ne s'étendent pas de plus de la moitié de cette valeur en dehors des boîtes, selon la direction de croissance : 7,5 nm. Donc ces fonctions d'ondes ne peuvent pas se coupler avec des défauts distants de plus de 7,5 nm des boîtes selon cette direction. Par conséquent, on peut envisager d'ordonner des BQs d'InAs grâce à des dislocations enterrées à plus de 7,5 nm sous le plan de BQs. Ces BQs ont des dimensions et une forme similaires aux BQs d'InGaAs formées au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures par EPVOM (la technique qui a été employée pour nos croissances) ; cette valeur est donc certainement aussi un bon ordre de grandeur pour nos propres systèmes. Cependant, tous les problèmes ne seront peut-être pas résolus si les dislocations sont enterrées à plus de 7,5 nm car il est probable que les porteurs créés hors des BQs à proximité des dislocations soient presque tous consommés pour des recombinaisons sur ces dernières. On peut certainement s'affranchir de cela en empilant des plans de BQs sur un premier plan ordonné par des dislocations enterrées (avec des espaceurs suffisamment minces pour que les BQs déposées soient ordonnées par le plan de BQs sous-jacent) ; les porteurs générés à proximité des plans de BQs les plus éloignés des dislocations ne seront que peu sensibles à ces dernières. D'autre part, il arrive que des dislocations s'ordonnent en réseaux périodiques. Ainsi, comme nous l'avons déjà évoqué (page 11), les dislocations qui se forment, à l'interface entre deux couches déposées désaccordées en maille, pour relaxer la contrainte élastique ont tendance à s'organiser en un réseau 2D périodique lorsqu'elles sont suffisamment mobiles et proches les unes des autres pour pouvoir interagir. Enfin, Romanov *et al.* [67], ainsi que Bourret [68] ont montré par des considérations thermodynamiques (c'est-à-dire par des critères de minimisation d'énergie du matériau déposé) que des RDs périodiques faiblement enterrés peuvent imposer une organisation périodique à des îlots auto-assemblés formés en surface. Cela a été confirmé expérimentalement pour des îlots auto-assemblés sur des couches épitaxiées au-delà de leur épaisseur critique de relaxation plastique [69–71] (Fig. 15) ; le RD 2D enterré qui se forme alors est responsable de l'organisation périodique des îlots. Cependant l'utilisation de couches relaxées plastiquement présente des inconvénients car la formation du RD s'accompagne de la formation de nom-

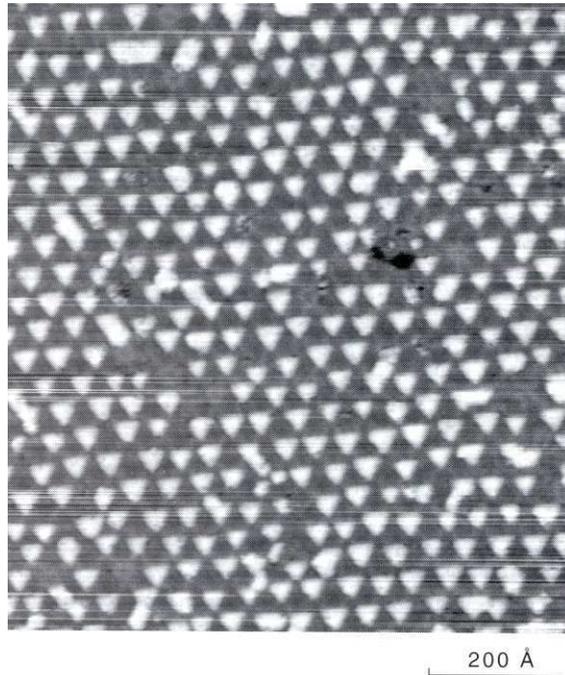


FIG. 15. Image STM montrant l'organisation périodique d'îlots de fer grâce à un RD faiblement enterré sous une couche relaxée de cuivre déposée sur un substrat de plomb (111). (Brune et al. [70]).

breuses dislocations résiduelles<sup>20</sup> (dites *traversantes*) qui dégradent ces couches puisqu'elles les traversent de part en part et émergent en surface, pouvant ainsi être en contact avec les îlots et piéger les porteurs de charge qui y étaient confinés. En outre, les dislocations de ces RDs ne sont réellement périodiques que si elles sont suffisamment mobiles et proches les unes des autres (autrement, la distance entre deux dislocations voisines varie autour de la périodicité moyenne). Enfin, cette périodicité moyenne est fixée par le désaccord de maille entre la couche relaxée et la couche ou le substrat sous-jacent (voir page 56). Elle peut être modifiée en changeant la composition de la couche relaxée, mais la marge de manœuvre est limitée.

Il existe cependant une méthode qui permet de former des RDs faiblement enterrés sans formation de dislocations traversantes et avec une périodicité variable sur une grande plage : il s'agit de ce que nous avons appelé le «*collage épitaxial*». C'est un procédé par lequel on transfère à haute température une couche cristalline mince sur un substrat (la jonction se fait par l'intermédiaire de liaisons covalentes). Pour accommoder la désorientation cristalline que l'on impose entre ces deux cristaux, un RD se forme à l'interface de collage. La périodicité de ce RD est géométriquement liée à la désorientation et peut donc être choisie. Si les deux

---

<sup>20</sup>Résiduelles car bien qu'elles n'appartiennent pas au RD, elles sont liées à sa formation.

### 2.3. Organisations de nanostructures via des inhomogénéités de contrainte et de déformation

cristaux mis en contact ont le même coefficient de dilatation thermique, une fois le recuit terminé, ils ne sont pas macroscopiquement contraints ; c'est pourquoi les dislocations du RD restent confinées à l'interface de collage – aucune dislocation traversante ne se forme [74]. Patriarche *et al.* [75] ont montré que cela peut rester vrai si les matériaux collés n'ont pas le même coefficient de dilatation thermique : ils ont montré dans le cas particulier du collage épitaxial GaAs/InP qu'un réseau secondaire de dislocations se forme pour accommoder cette différence, mais ce réseau est situé à proximité de l'interface de collage. Cette technique a été explorée par Leroy *et al.* pour une structure (que nous appelons «*substrat composite*») constituée d'une fine couche de silicium collée sur un substrat de silicium, sur laquelle des îlots auto-assemblés de germanium ont été déposés [72]<sup>21</sup>. Avant croissance des îlots, la surface présente des ondulations 1D (Fig. 16) que les auteurs ont attribué à un RD 1D accommodant une flexion<sup>22</sup> entre les deux cristaux collés, ainsi que des ondulations 2D plus petites, à période plus courte, que les auteurs ont attribué à un RD 2D accommodant une torsion<sup>23</sup>. Après la formation des îlots auto-assemblés de germanium, aucune corrélation

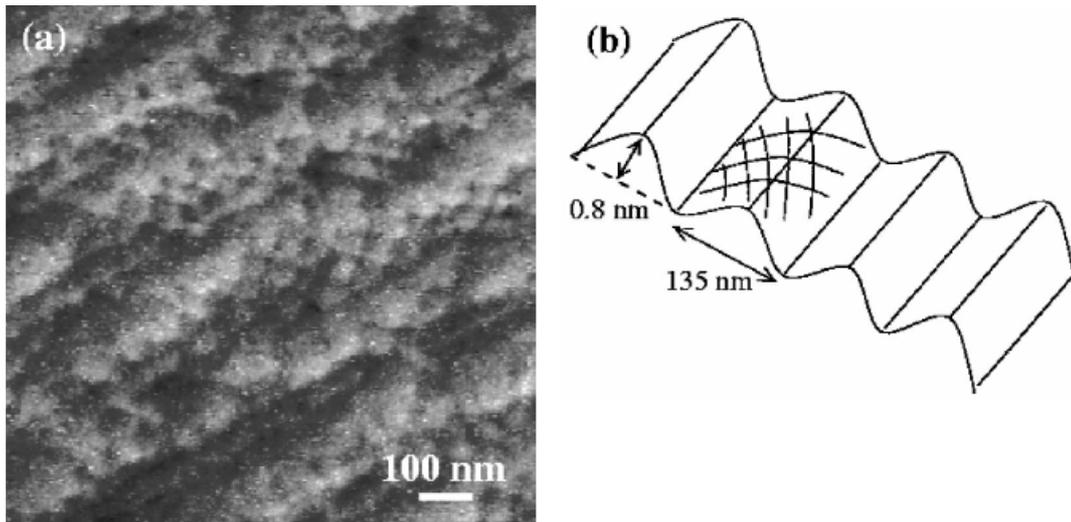


FIG. 16. (a) Image STM d'un substrat composite Si/Si. (b) Schéma de la morphologie de surface : des ondulations 1D et 2D dues aux RDs enterrés sont visibles. La période des ondulations 2D est de  $36 \pm 2$  nm avec une amplitude de  $0,2 \pm 0,05$  nm. (Leroy *et al.* [72]).

<sup>21</sup>La faisabilité d'un joint de grains à grande échelle avait auparavant été démontrée par M. Benamara (entre autres) [73].

<sup>22</sup>Une flexion est une désorientation angulaire entre les directions cristallines des cristaux collés, dont l'axe de rotation est contenu dans l'interface de collage ; elle est due à la «vicinalité» d'au moins l'un des cristaux, c'est-à-dire la désorientation de sa surface par rapport à un plan de faibles indices de Miller.

<sup>23</sup>Une torsion est une désorientation angulaire entre les directions cristallines des cristaux collés, dont l'axe de rotation est normal à l'interface de collage.

spatiale entre ces derniers n'est visible : seule apparaît de nouveau l'ondulation 1D. Après un recuit de 10 minutes à 450°C, la transformée de Fourier (insert inférieur de la figure 17(b)) des images de microscopie à effet tunnel (Fig. 17(a)) met en évidence un ordre latéral de symétrie d'ordre quatre. Sur l'auto-corrélation (Fig. 17(b)) de la figure 17(a), on peut voir

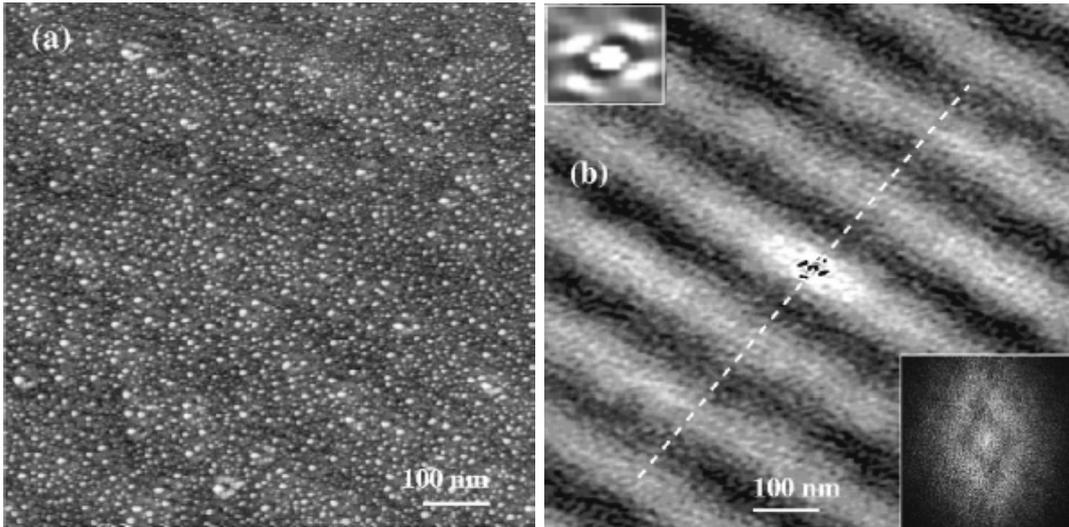


FIG. 17. (a) Image STM d'îlots auto-assemblés de germanium sur un substrat composite Si/Si après un recuit de 10 min à 450°C. (b) Auto-corrélation de (a); insert supérieur : détail de la zone centrale; insert inférieur : transformée de Fourier de (a). (Leroy et al. [72]).

deux structures : une structure 1D due à l'ondulation initiale de la surface de silicium et une structure 2D (au centre) que les auteurs ont attribuée à une corrélation à courte distance entre les îlots (la longueur de corrélation est de  $18 \pm 1$  nm : la moitié de la période des dislocations accommodant la torsion). D'après les auteurs, cette organisation spatiale est due à une migration des atomes de germanium au cours du recuit, dirigée à la fois par le champ de déformations des dislocations enterrées et par des interactions élastiques entre îlots voisins.

Afin d'obtenir une organisation latérale plus prononcée des îlots auto-assemblés, les mêmes auteurs ont récemment exploré une méthode légèrement différente [76]. En effet, ils ont utilisé des substrats composites Si/Si qu'ils ont gravés avec une solution chimique sensible à la contrainte pour former en surface une nano-structuration reproduisant l'organisation spatiale du RD. Sur ces surfaces structurées, ils ont épitaxié des nanostructures de germanium qui reproduisent la nano-structuration (Fig. 18).

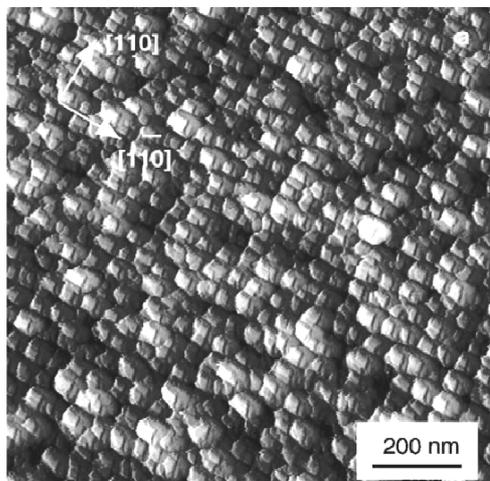


FIG. 18. Image STM montrant des nanostructures de germanium épitaxiées sur un substrat composite Si/Si gravé par une solution chimique sensible à la contrainte. (Leroy *et al.* [76]).

## 2.4 Synthèse

En résumé, les RDs faiblement enterrés obtenus par collage épitaxial influencent l'organisation spatiale d'îlots auto-assemblés sur la surface. Cette méthode présente de nombreux avantages par rapport aux autres énoncées tout au long de ce chapitre. Il est possible de faire varier sur une grande plage la périodicité de l'organisation – qui peut être inférieure à celle permise par une structuration de surface par lithographie électronique. Sa mise en œuvre est rapide puisque la structure «organisante» n'est pas définie de manière séquentielle. Enfin, la surface n'est pas détériorée par des émergences de dislocations traversantes. Les résultats obtenus grâce à cette méthode (sans gravure de la surface) n'ont encore mis en évidence qu'un ordre à courte distance des îlots, certainement parce que l'influence en surface du RD était trop faible. Néanmoins, c'est cette méthode que nous avons retenu car comme on le verra dans la suite (page 65), toutes les dislocations ne sont pas équivalentes : certaines génèrent en surface des champs de contraintes et de déformations plus intenses. Il était donc possible au début de cette thèse d'espérer organiser à longue distance des nanostructures 3D auto-assemblées grâce à des RDs faiblement enterrés. La variante récemment explorée par Leroy *et al.*, à savoir la gravure chimique sélective de substrats composites est intéressante également et pourrait être une perspective pour nos travaux de recherche. Pour l'appliquer aux substrats composites GaAs/GaAs, il faudra au préalable rechercher et optimiser une solution chimique fortement sensible à la contrainte pour ce matériau et avec une vitesse de gravure lente (pour qu'elle soit sélective).



## Deuxième partie

Etude des réseaux de dislocations  
faiblement enterrés dans une matrice  
de GaAs et organisations de  
nanostructures grâce aux réseaux qui  
s'y prêtent le mieux



# 1

## Les dislocations

### Sommaire du chapitre

---

<b>1.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>38</b>
<b>1.2</b>	<b>Généralités</b>	<b>38</b>
1.2.1	Le vecteur de Burgers d'une dislocation	39
1.2.2	Les dislocations parfaites et les dislocations partielles	40
1.2.3	Critère énergétique de stabilité des dislocations (dit de Frank)	40
1.2.4	Mouvements des dislocations	41
1.2.5	Une vue schématique et synthétique du système de glissement des cristaux cfc ou à structure blende de zinc : le tétraèdre de Thompson	42
1.2.6	Les différents types de dislocations	42
1.2.6.1	Les dislocations coin	43
1.2.6.2	Les dislocations vis	43
1.2.6.3	Les dislocations mixtes	44
1.2.6.4	Une dislocation mixte parfaite particulière : la dislocation $60^\circ$	45
1.2.7	Interactions entre dislocations qui se croisent – cas des cristaux cfc ou à structure blende de zinc	45
<b>1.3</b>	<b>Rappel de la théorie de l'élasticité</b>	<b>47</b>
1.3.1	Définitions	47
1.3.1.1	Le champ de déplacements	47
1.3.1.2	Le champ de déformations	47
1.3.1.3	Le champ de contraintes	48
1.3.1.4	L'énergie de déformation élastique	49
1.3.2	Théorie de l'élasticité linéaire	49
<b>1.4</b>	<b>Application de la théorie de l'élasticité linéaire aux dislocations</b>	<b>50</b>

---

1.4.1	Cas des dislocations vis . . . . .	50
1.4.2	Cas des dislocations coin . . . . .	51
1.4.3	Cas des dislocations mixtes . . . . .	52
<b>1.5</b>	<b>Synthèse . . . . .</b>	<b>52</b>

---

## 1.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous allons définir ce qu'est une dislocation. Nous allons présenter les différents types de dislocations en nous intéressant tout particulièrement au cas des cristaux à structure blende de zinc car les semiconducteurs binaires que nous avons étudiés cristallisent dans ce système. Nous présenterons également quelques propriétés des dislocations qui nous seront utiles dans la suite de ce manuscrit. Après un rappel de la théorie de l'élasticité, nous présenterons les champs élastiques de déplacements, de déformations et de contraintes, ainsi que l'énergie de déformation élastique, produits par les dislocations. Pour de plus amples détails sur les dislocations, le lecteur pourra se reporter à l'ouvrage de J. et Julia R. Weertmann pour une première approche [77] ou, pour une approche plus approfondie, à celui de J. P. Hirth et J. Lothe [64] ou encore à celui édité par F. R. N. Nabarro [78].

## 1.2 Généralités

Les dislocations sont des défauts linéaires du réseau cristallin qui permettent une déformation plastique du matériau lorsqu'elles se déplacent. Elles résultent d'un glissement ou d'un cisaillement localisé d'une partie du cristal par rapport à une autre. Ceci est illustré par la figure 19 pour une dislocation coin (définie dans la suite : page 43) de ligne normale à la feuille. Dans ce cas, le vecteur de déplacement des atomes (symbolisé par la flèche) appelé vecteur de Burgers (voir page 39) est perpendiculaire à la ligne de dislocation.

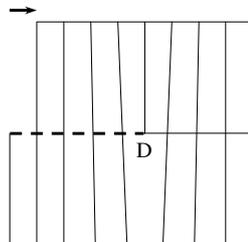


FIG. 19. *Modèle simple de formation d'une dislocation coin D. Un glissement a eu lieu dans le sens de la flèche, dans le demi-plan matérialisé par la ligne pointillée.*

### 1.2.1 Le vecteur de Burgers d'une dislocation

Le vecteur de Burgers  $\mathbf{b}$  d'une dislocation caractérise le déplacement subi par les atomes à cause de cette dernière. Il est défini par la procédure suggérée par Frank (voir la référence 64 et les références qui y sont citées) qui est illustrée dans la figure 20 pour une dislocation coin. Le sens de  $\mathbf{b}$  dépend du sens choisi pour la ligne de dislocation. Il s'agit d'un choix

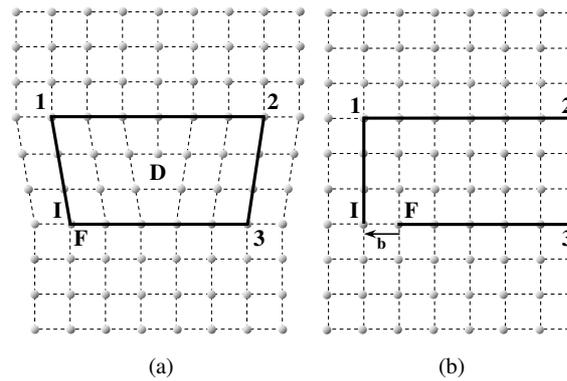


FIG. 20. (a) Circuit de Burgers I-1-2-3-F autour d'une dislocation coin  $D$  de ligne normale à la feuille. (b) Le même circuit dans un cristal parfait.

arbitraire ; ici nous avons choisi le sens positif pointant vers la feuille. Pour déterminer  $\mathbf{b}$ , il faut ensuite décrire un chemin fermé I-1-2-3-F, appelé circuit de Burgers, autour de la dislocation, en passant par des atomes situés dans une zone du cristal exempte de défaut (Fig. 20(a)). On entend par zone exempte de défaut une zone où les déplacements des atomes par rapport à leurs positions moyennes de référence ne sont perturbés que par des contraintes élastiques et par des vibrations thermiques (autour de leurs positions de référence). Notons que le sens de parcours du circuit dépend lui aussi de l'orientation de la ligne de dislocation. La convention la plus commune et que nous choisirons systématiquement dorénavant est celle de la «main droite»<sup>24</sup>. Ensuite, on décrit le même circuit dans un cristal parfait (Fig. 20(b)). Le vecteur requis pour fermer ce circuit (de l'atome final F à l'atome initial I) est le vecteur de Burgers  $\mathbf{b}$ .

Une dislocation ne peut se terminer abruptement dans le cristal. Elle peut soit se terminer en surface, soit boucler sur elle-même, soit rencontrer une autre dislocation – leur jonction est ce que l'on appelle un nœud. On peut aisément montrer que si toutes les dislocations arrivant à un nœud sont orientées positivement en s'éloignant du nœud, la somme vectorielle de leurs vecteurs de Burgers doit être nulle. C'est ce que l'on pourrait appeler la loi des nœuds de dislocations (l'analogie avec la loi des nœuds de Kirchoff pour les courants électriques est

<sup>24</sup>En pointant le pouce de la main droite selon la direction de la dislocation (vers le sens positif), le sens de la rotation est donné par la courbure des autres doigts de la main, orientée vers l'extrémité de ces derniers.

évidente).

### 1.2.2 Les dislocations parfaites et les dislocations partielles

Les dislocations peuvent être soit parfaites soit partielles. Le vecteur de Burgers des dislocations parfaites est un vecteur du réseau cristallin ; ce n'est pas le cas pour une dislocation partielle. Par exemple, sur la figure 21, où l'on voit une dislocation partielle produite en coupant le cristal selon (AB) et en déplaçant les deux côtés ainsi séparés,  $\mathbf{b}$  est la moitié d'un vecteur de base de la maille.

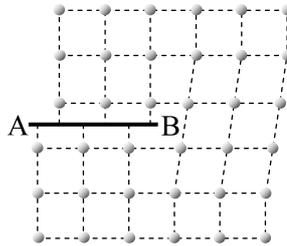


FIG. 21. Une dislocation imparfaite ou partielle.

Comme on peut le voir dans le cas particulier de la figure 21 (au niveau du plan (AB)), un défaut d'empilement des atomes est associé avec toute dislocation partielle. Un tel défaut est coûteux en énergie [64] et par conséquent, une dislocation partielle n'est stable que si en se dissociant en plusieurs dislocations ou en se combinant avec une autre dislocation, l'énergie totale du système ne peut pas être réduite (le critère gouvernant la stabilité des dislocations est traité dans la sous-section suivante). Pour qu'une dislocation partielle subsiste dans un cristal, il faut donc que l'énergie du défaut d'empilement qui lui est associé soit faible.

### 1.2.3 Critère énergétique de stabilité des dislocations (dit de Frank)

Nous venons de le voir, les dislocations partielles peuvent ne pas être stables à cause du défaut d'empilement qui leur est associé, mais nous avons également laissé entendre qu'une dislocation peut réduire l'énergie qui lui est associée en se combinant avec une autre dislocation ou en se dissociant en plusieurs dislocations. L'énergie d'une dislocation est proportionnelle à  $b^2$ . De plus, Frank a montré (voir la référence 64 et les références qui y sont citées) que la dépendance angulaire autour de la dislocation peut être négligée (cela revient à considérer le milieu comme isotrope), de sorte que la seule valeur de  $b^2$  peut être utilisée pour statuer sur la stabilité d'une dislocation. Ainsi, une dislocation parfaite de vecteur de Burgers  $\mathbf{b}_1$  peut se dissocier en deux dislocations parfaites de vecteurs de Burgers  $\mathbf{b}_2$  et  $\mathbf{b}_3$  si

$$b_1^2 > b_2^2 + b_3^2 ; \quad (6)$$

c'est ce que l'on appelle le critère de stabilité de Frank. Ce critère reste valable si les dislocations de vecteurs de Burgers  $\mathbf{b}_2$  et  $\mathbf{b}_3$  sont partielles, mais il ne faut pas oublier d'ajouter l'énergie du défaut d'empilement qui est associé à chacune d'elles.

Dans le GaAs, les dislocations ne sont que faiblement dissociées : la largeur de dissociation entre deux dislocations partielles est de l'ordre de 5 Å. Au cours de notre étude, nous n'avons eu à les considérer qu'à des échelles plus grandes (d'au moins un ordre de grandeur), c'est pourquoi nous les considérerons parfaites. De plus, à cause du critère de Frank, il apparaît que seules les dislocations parfaites dont le vecteur de Burgers est un vecteur de base de la maille élémentaire sont stables (le ou les plus courts de ces vecteurs, plus précisément). Ainsi, pour les cristaux ayant la structure blende de zinc,  $\mathbf{b}$  est du type  $\frac{a}{2} \langle 110 \rangle$  pour les dislocations parfaites stables (où  $a$  est le paramètre de maille) : c'est un vecteur orienté selon une direction  $\langle 110 \rangle$  et dont la norme est la moitié d'une arête de la maille blende de zinc ( $\frac{a}{2}$ ) projetée sur cette direction :  $a \frac{\sqrt{2}}{2}$ .

#### 1.2.4 Mouvements des dislocations

Les dislocations peuvent se déplacer soit par glissement, soit par montée. Nous allons ici étudier ces deux types de déplacement.

Dans un plan atomique dense, le déplacement minimal des atomes redonnant une configuration conforme au réseau est plus petit que dans un plan peu dense (Fig. 22). Il en va de

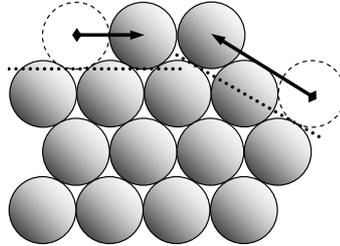


FIG. 22. *Déplacements d'atomes selon un plan atomique dense (flèche de gauche) et selon un plan peu dense (flèche de droite). Les plans sont matérialisés par les lignes pointillées.*

même pour un déplacement selon une direction dense par rapport à une direction peu dense. Intuitivement, on peut supposer que les plans et directions denses sont respectivement les plans et directions privilégiés de glissement des atomes et donc des dislocations. Notons que les directions denses sont identiques à celles définies par les vecteurs de Burgers stables d'une dislocation parfaite (l'hypothèse faite ici est donc cohérente avec la sous-section précédente). Pour les cristaux à structure blende de zinc (comme nos échantillons par exemple), les plans denses sont du type  $\{111\}$  et les directions denses du type  $\langle 110 \rangle$ . Des considérations plus rigoureuses [64] ainsi que l'expérience confirment qu'ils constituent le système de glissement

de ces cristaux. Pour qu'une dislocation puisse glisser (on dit qu'elle est «*glissile*»), il faut à la fois que sa ligne et son vecteur de Burgers appartiennent à un plan de glissement ; si tel n'est pas le cas, la dislocation est dite «*sessile*».

Le mécanisme de montée est activé par le mouvement de lacunes situées au voisinage de la ligne de dislocation – il est donc d'autant plus probable que la température est élevée. La montée d'une dislocation coin est illustrée de manière schématique par la figure 23. Si des lacunes sont créées sous la dislocation, c'est le mécanisme inverse qui a lieu (on pourrait parler de «*descente*»).

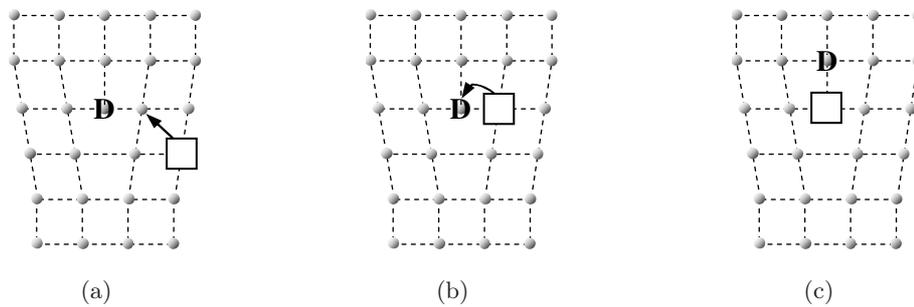


FIG. 23. Représentation schématique de la montée d'une dislocation coin  $D$ , induite par le mouvement d'une lacune (représentée par le carré).

### 1.2.5 Une vue schématique et synthétique du système de glissement des cristaux cfc ou à structure blende de zinc : le tétraèdre de Thompson

Une représentation schématique permet de synthétiser le système de glissement des cristaux cfc ou à structure blende de zinc ; il s'agit du tétraèdre de Thompson. Il se forme en joignant les quatre nœuds les plus proches voisins de la maille (Fig. 24). Les arêtes du tétraèdre correspondent aux six directions de glissement (12 si l'on différencie orientation négative et positive). Ces arêtes sont également les six vecteurs de Burgers des dislocations parfaites (12 si l'on différencie les deux orientations). Quant aux faces, elles correspondent aux quatre plans de glissement.

### 1.2.6 Les différents types de dislocations

Nous avons maintenant présenté toutes les notions nécessaires à la description, dans cette sous-section, des différents types de dislocations qui peuvent être présentes dans un cristal.

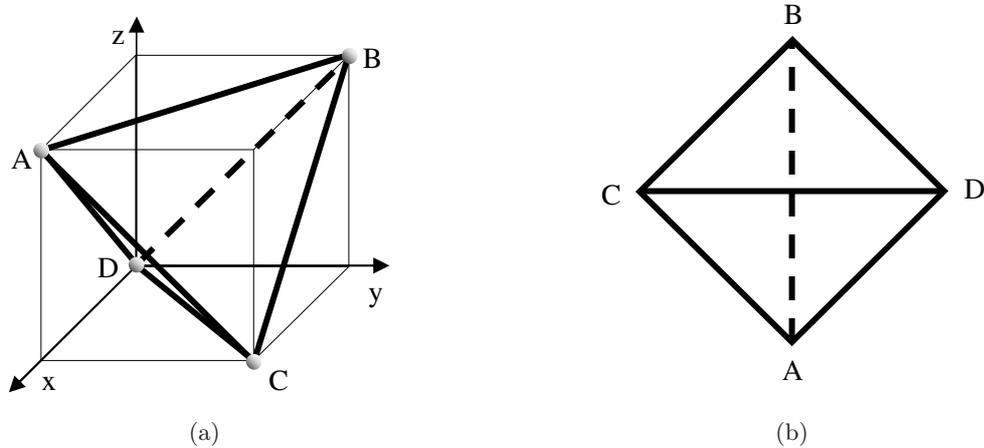


FIG. 24. *Le tétraèdre de Thompson selon deux points de vue. Les directions  $(Dx)$ ,  $(Dy)$  et  $(Dz)$  sont du type  $\langle 001 \rangle$  et les arêtes du cube ont pour longueur  $\frac{a}{2}$ .*

### 1.2.6.1 Les dislocations coin

La dislocation coin peut être représentée par l'insertion d'un demi-plan supplémentaire dans le cristal (Fig. 20(a), page 39). Elle est représentée par le symbole  $\perp$ , où le trait vertical représente le demi-plan supplémentaire. Le cœur de la dislocation est localisé à l'extrémité de ce demi-plan et définit donc une ligne. A proximité de ce cœur, le réseau cristallin est très déformé.

Le vecteur de Burgers d'une dislocation coin est perpendiculaire à sa ligne (d'où son nom). Dans le cas d'une dislocation coin parfaite dans un cristal à structure blende de zinc, pour laquelle le vecteur de Burgers  $\mathbf{b}$  est donc de type  $\frac{a}{2} \langle 110 \rangle$ , la ligne de dislocation est orientée selon la direction  $\langle 110 \rangle$  normale à  $\mathbf{b}$ . La ligne et le vecteur de Burgers appartiennent donc à un plan  $\{001\}$ . Or ce type de plan n'est pas un plan de glissement des cristaux à structure blende de zinc. C'est pourquoi les dislocations coin parfaites de ces cristaux sont immobiles par glissement (sessiles); elles peuvent uniquement bouger par montée (ou «descente»).

### 1.2.6.2 Les dislocations vis

La dislocation vis résulte du décalage d'une distance inter-atomique d'une partie du cristal par rapport à l'autre (Fig. 25). Elle est la manifestation d'un cisaillement.

Elle porte ce nom car si on décrit un circuit de Burgers autour de la dislocation, on monte ou descend d'un niveau atomique, à la manière du filet d'une vis. Si l'on monte d'un niveau (comme sur la figure 25), la dislocation vis est dite droite tandis que si l'on descend

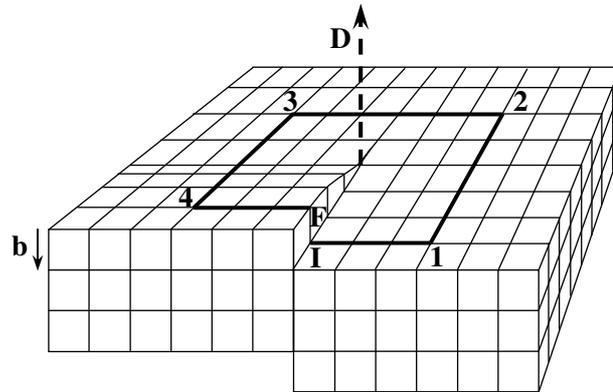


FIG. 25. Circuit de Burgers I-1-2-3-F autour d'une dislocation vis  $D$  orientée positivement vers le haut de la page.

d'un niveau, elle est dite gauche.

D'autre part, il apparaît que son vecteur de Burgers est parallèle à sa ligne. Donc une dislocation vis parfaite dans un cristal à structure blende de zinc est orientée selon une direction  $\langle 110 \rangle$  ; par conséquent elle peut glisser selon les deux plans  $\{111\}$  qui la contiennent.

### 1.2.6.3 Les dislocations mixtes

Une dislocation mixte possède à la fois un caractère coin et un caractère vis : son vecteur de Burgers a une composante parallèle et une autre perpendiculaire à la ligne de dislocation. Ainsi, sur la figure 26, la dislocation est de type vis à l'extrémité gauche, coin à l'extrémité droite et mixte entre les deux. Notons que la définition même du vecteur de Burgers indique qu'il est invariant le long de la ligne de dislocation, même si la ligne change d'orientation. Enfin, une dislocation mixte peut glisser localement si à la fois son vecteur de Burgers et sa ligne sont contenus dans un plan de glissement.

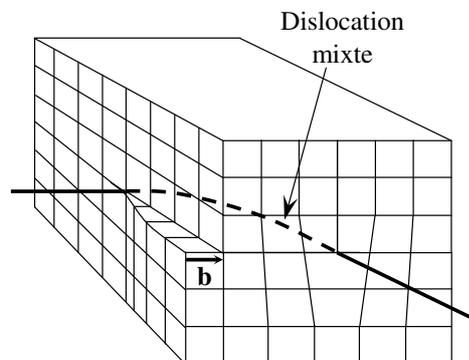


FIG. 26. Une dislocation mixte.

#### 1.2.6.4 Une dislocation mixte parfaite particulière : la dislocation $60^\circ$

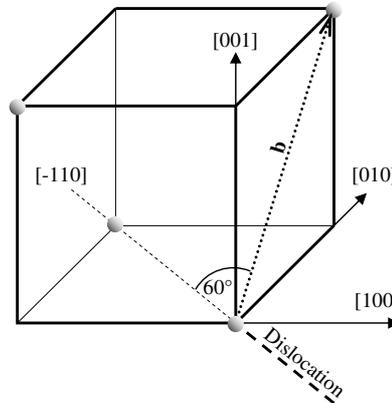


FIG. 27. Une dislocation mixte  $60^\circ$  (les arêtes du cube ont pour longueur  $\frac{a}{2}$ , où  $a$  est le paramètre de maille).

D'après le paragraphe précédent, on peut définir une dislocation mixte parfaite particulière d'un cristal à structure blende de zinc, pour laquelle la ligne de dislocation appartient à la fois à deux plans de glissement (Fig. 27). Dans ce cas la dislocation forme un angle de  $60^\circ$  avec le vecteur de Burgers, d'où son nom. Ce type de dislocations est très couramment observé dans les cristaux à structure blende de zinc tels que le GaAs.

#### 1.2.7 Interactions entre dislocations qui se croisent – cas des cristaux cfc ou à structure blende de zinc

Lorsque des dislocations se rencontrent en un nœud, elles vont avoir tendance à réagir afin de minimiser l'énergie du système (par l'intermédiaire des déformations élastiques qu'elles engendrent autour de leurs lignes).

Afin de décrire ces réactions, nous allons utiliser une notation basée sur le tétraèdre de Thompson (Fig. 24(b), page 43) qui permet d'orienter facilement les vecteurs de Burgers des dislocations dans les cristaux cfc ou à structure blende de zinc. Les deux lettres du tétraèdre définissant le vecteur de Burgers<sup>25</sup> sont placées de part et d'autre de la dislocation (Fig. 28) de sorte que le vecteur se lit dans le bon ordre lorsque l'on regarde la dislocation selon la direction positive : lorsque la flèche orientant la ligne s'éloigne de nous. Ainsi les deux représentations de la figure 28 sont équivalentes. De plus, pour la représentation (a), le vecteur de Burgers est **CB** et non **BC** ; on aurait pu omettre de spécifier l'orientation de la dislocation, dans ce cas le vecteur de Burgers est soit **CB**, soit **BC** selon l'orientation choisie (c'est-à-dire selon que l'on regarde la dislocation dans un sens ou dans l'autre).

<sup>25</sup>Dans cette sous-section, tous les vecteurs de Burgers seront référencés par rapport au tétraèdre de



FIG. 28. Une dislocation et son vecteur de Burgers (a) en notation compacte (référéncée par rapport au tétraèdre de Thompson de la figure 24(b), page 43) et (b) non compacte.

Considérons maintenant le cas particulier de deux dislocations qui se croisent à angle droit.

Premièrement, deux dislocations vis (Fig. 29). Les quatre zones limitées par les dislocations sont chacune «partagées» par deux lettres. D'après Amelinckx [79], dans ce cas, aucune réaction n'est observée ni attendue.

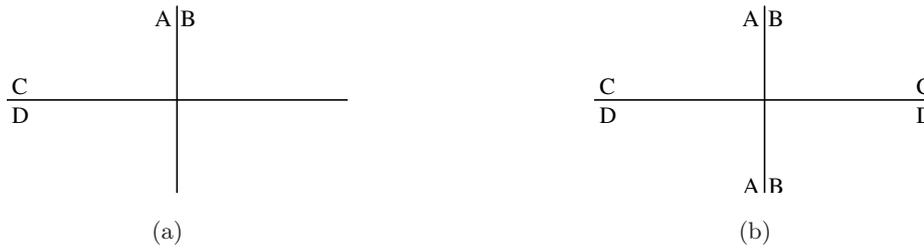


FIG. 29. (a) Deux dislocations vis qui se croisent à angle droit. (b) Les mêmes dislocations avec les vecteurs de Burgers reportés sur les quatre segments de dislocations.

Le cas d'une dislocation vis DC croisant à angle droit une dislocation  $60^\circ$  CA est illustré par la figure 30. Cette fois-ci, l'une des zones contient uniquement la lettre C (Fig. 30(a)). Donc, d'après Amelinckx [79], les deux dislocations vont pouvoir réagir pour minimiser l'énergie du nœud de sorte que ce dernier va se séparer en deux nœuds connectés par une dislocation mixte  $60^\circ$  DA (Fig. 30(b)). L'un des nouveaux nœuds doit être de type K : avec une seule lettre dans chaque zone entourant le nœud ; tandis que l'autre doit être de type P : avec deux lettres dans chaque zone entourant le nœud. Afin d'équi-répartir l'énergie de déformation élastique sur les différents segments de dislocations arrivant sur les nœuds, ces segments vont avoir tendance à se ré-orienter de sorte qu'ils forment entre eux un angle de  $120^\circ$  (Fig. 30(c)).

---

Thompson de la figure 24(b).

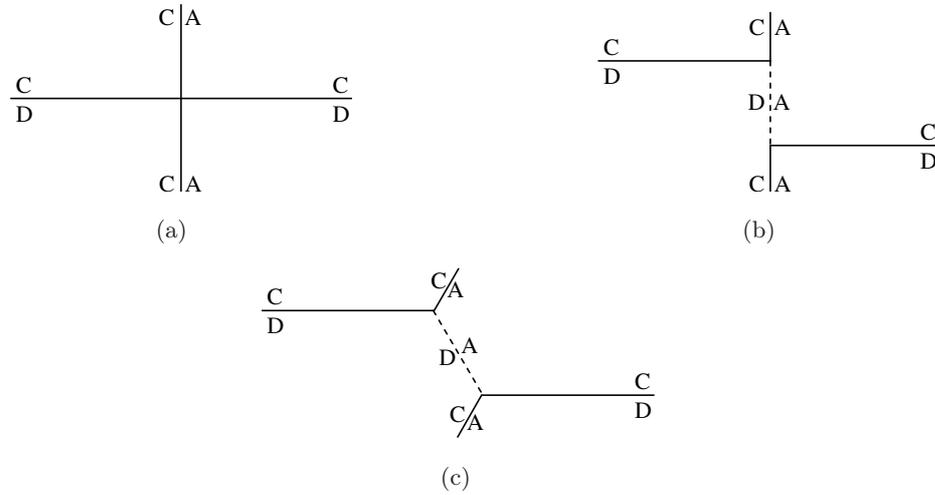


FIG. 30. (a) Une dislocation vis  $DC$  croisant une dislocation  $60^\circ CA$ . (b) Réaction entre ces dislocations par formation d'un nouveau segment de dislocation  $60^\circ DA$ . (c) Réorientation des segments de dislocations pour équi-répartir l'énergie de déformation élastique.

### 1.3 Rappel de la théorie de l'élasticité

Pour une description plus détaillée de cette théorie, le lecteur pourra se reporter par exemple à l'ouvrage de Landau et Lifchitz [10].

#### 1.3.1 Définitions

##### 1.3.1.1 Le champ de déplacements

Considérons un solide initialement non contraint. Soient  $(x, y, z)$  les coordonnées cartésiennes d'un atome quelconque du solide. Lorsque l'on applique des contraintes, la position de l'atome considéré change et les nouvelles coordonnées sont :  $(x+u, y+v, z+w)$ . Les quantités  $u, v$  et  $w$  sont donc les déplacements de l'atome en question selon les axes  $(Ox)$ ,  $(Oy)$  et  $(Oz)$  du repère respectivement (où  $O$  est l'origine du repère) et le champ de déplacements est le vecteur de coordonnées  $(u, v, w)$ .

##### 1.3.1.2 Le champ de déformations

Le champ de déformations d'un élément de volume (Fig. 31) peut être exprimé au moyen de six termes. Il s'agit de trois termes de dilatation ou de compression (suivant qu'ils sont positifs ou négatifs)  $\varepsilon_{ii}$  selon l'axe  $(Oi)$  (avec  $i = x, y$  ou  $z$ ) et de six termes de cisaillement  $\varepsilon_{ij}$  (où  $i \neq j$ )<sup>26</sup> dans un plan parallèle à l'axe  $(Ok)$  (où  $k \neq i$  et  $j$ ). Ces déformations sont

<sup>26</sup> $\varepsilon_{ij}$  est identique à  $\varepsilon_{ji}$ .

liés aux déplacements que subissent les atomes :

$$\varepsilon_{xx} = \partial u / \partial x, \quad (7a)$$

$$\varepsilon_{yy} = \partial v / \partial y, \quad (7b)$$

$$\varepsilon_{zz} = \partial w / \partial z, \quad (7c)$$

$$\varepsilon_{xy} = \frac{1}{2} (\partial u / \partial y + \partial v / \partial x), \quad (7d)$$

$$\varepsilon_{xz} = \frac{1}{2} (\partial u / \partial z + \partial w / \partial x), \quad (7e)$$

$$\varepsilon_{yz} = \frac{1}{2} (\partial v / \partial z + \partial w / \partial y). \quad (7f)$$

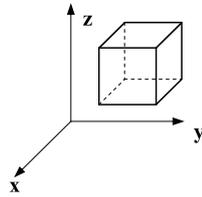


FIG. 31. Un petit élément de volume d'un solide.

### 1.3.1.3 Le champ de contraintes

De même, le champ de contraintes (qui n'est autre qu'une force par unité de surface) d'un élément de volume peut être exprimé au moyen de neuf termes : trois termes de dilatation-compression  $\sigma_{ii}$  et six termes de cisaillement  $\sigma_{ij}$  (où  $i \neq j$ ) (Fig. 32). Les six termes de cisaillement ne sont pas indépendants : ils doivent s'ajouter de sorte qu'aucun couple n'agisse sur l'élément de volume. S'il existait un tel couple, l'élément de volume tournerait de plus en plus vite. Cela impose  $\sigma_{xy} = \sigma_{yx}$ ,  $\sigma_{xz} = \sigma_{zx}$  et  $\sigma_{yz} = \sigma_{zy}$ .

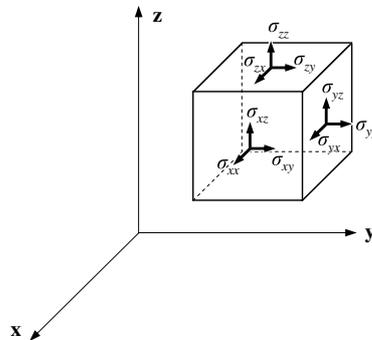


FIG. 32. Les composantes d'un champ de contraintes agissant sur un élément de volume.

### 1.3.1.4 L'énergie de déformation élastique

Un milieu élastique contraint emmagasine de l'énergie. Cette énergie élastique  $W$  de déformation exprimée par unité de volume est donnée par :

$$W = \frac{1}{2} \sum_{i,j} \sigma_{ij} \varepsilon_{ij} . \quad (8)$$

### 1.3.2 Théorie de l'élasticité linéaire

Si le champ de contraintes appliqué au solide considéré est faible et si la température est assez basse pour que les effets de fluage soient négligeables, il est relié aux déformations par la loi linéaire de Hooke qui s'écrit (en notation matricielle) comme suit :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} \\ \sigma_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & C_{14} & C_{15} & C_{16} \\ C_{21} & C_{22} & C_{23} & C_{24} & C_{25} & C_{26} \\ C_{31} & C_{33} & C_{33} & C_{34} & C_{35} & C_{36} \\ C_{41} & C_{42} & C_{43} & C_{44} & C_{45} & C_{46} \\ C_{51} & C_{52} & C_{53} & C_{54} & C_{55} & C_{56} \\ C_{61} & C_{62} & C_{63} & C_{64} & C_{65} & C_{66} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} \\ \varepsilon_{yy} \\ \varepsilon_{zz} \\ \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} \\ \varepsilon_{xy} \end{pmatrix} , \quad (9)$$

où les  $C_{ij}$  sont les constantes dites élastiques.

Ces constantes ne sont pas indépendantes. Cependant, pas moins de 21 d'entre elles sont nécessaires pour un matériau anisotrope. Si l'on se limite aux corps isotropes, le nombre de constantes indépendantes est considérablement réduit. Dans ce cas, la loi de Hooke peut s'exprimer à l'aide des seuls coefficients de Lamé  $\mu$  et  $\lambda$  :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} \\ \sigma_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (\lambda + 2\mu) & \lambda & \lambda & 0 & 0 & 0 \\ \lambda & (\lambda + 2\mu) & \lambda & 0 & 0 & 0 \\ \lambda & \lambda & (\lambda + 2\mu) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2\mu & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 2\mu & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 2\mu \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} \\ \varepsilon_{yy} \\ \varepsilon_{zz} \\ \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} \\ \varepsilon_{xy} \end{pmatrix} , \quad (10)$$

où  $\mu$  est le module de cisaillement du matériau et  $\lambda$  est défini par :

$$\lambda = \frac{2\nu\mu}{1 - 2\nu} , \quad (11)$$

où  $\nu$  est le coefficient de Poisson du matériau.

## 1.4 Application de la théorie de l'élasticité linéaire aux dislocations

Les dislocations imposent des déformations et des contraintes au cristal. Nous ne rappellerons ici que leurs expressions pour les différents types de dislocations rectilignes (qui sont celles qui nous intéressent). Pour une démonstration de ces expressions, le lecteur pourra se reporter à l'ouvrage de Hirth et Lothe [64].

Le cristal sera considéré être un milieu infini, continu, élastique et isotrope dans lequel la théorie de l'élasticité linéaire s'applique. Les résultats exposés dans la suite seront donc seulement valable suffisamment loin du cœur de la dislocation considérée car ce dernier est loin d'être une zone continue et exempte de déformations plastiques.

### 1.4.1 Cas des dislocations vis

Nous considérons une dislocation vis dont la ligne est orientée positivement comme l'axe ( $Oz$ ) et dont le vecteur de Burgers est défini par :  $\mathbf{b} = -b \mathbf{z}$ , où  $\mathbf{z}$  est le vecteur unitaire de l'axe ( $Oz$ ).

Son champ de déplacements est défini par :

$$w = \frac{b}{2\pi} \arctan \frac{y}{x}, \quad (12)$$

les déplacements selon les axes ( $Ox$ ) et ( $Oy$ ) étant nuls. Les déformations élastiques autour de cette dislocation sont :

$$\varepsilon_{xz} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial x} \right) = -\frac{b}{2\pi} \frac{y}{x^2 + y^2}, \quad (13a)$$

$$\varepsilon_{yz} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial y} \right) = \frac{b}{2\pi} \frac{x}{x^2 + y^2}, \quad (13b)$$

$$\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = \varepsilon_{zz} = \varepsilon_{xy} = 0, \quad (13c)$$

et donc les contraintes sont :

$$\sigma_{xz} = -\frac{\mu b}{2\pi} \frac{y}{x^2 + y^2}, \quad (14a)$$

$$\sigma_{yz} = \frac{\mu b}{2\pi} \frac{x}{x^2 + y^2}, \quad (14b)$$

$$\sigma_{xx} = \sigma_{yy} = \sigma_{zz} = \sigma_{xy} = 0. \quad (14c)$$

Dans les équations (13) et (14), on peut voir que contraintes et déformations deviennent infinies quand la distance  $r$  ( $= x^2 + y^2$ ) par rapport à la ligne de dislocation tend vers zéro. Puisque la théorie linéaire de l'élasticité est fondée sur l'hypothèse que contraintes et déformations sont petites, il apparaît à nouveau que cette analyse n'est pas valable dans les

régions proches de la ligne de dislocation. On limite souvent l'utilisation de ces expressions à des distances  $r$  supérieures au rayon du cœur  $r_0$ . Ce dernier est parfois choisi égal à cinq fois le module du vecteur de Burgers.

L'énergie de déformation élastique par unité de longueur de la ligne de dislocation quant à elle (on parle d'énergie interne pour une dislocation) s'exprime de la sorte :

$$\xi = \int_{r_0}^R \frac{\mu b^2}{\pi} \left( \frac{1}{2r} - \frac{r}{R^2} \right)^2 r dr = \frac{\mu b^2}{4\pi} \ln \frac{R}{r_0}, \quad (15)$$

où  $r_0$  est le rayon du cœur et  $R$  la dimension du cristal ou du grain cristallin pour les polycristaux. L'énergie interne totale de la dislocation inclut également l'énergie emmagasinée à l'intérieur du rayon  $r_0$  où la théorie linéaire des milieux continus n'est plus applicable. Cependant la plus grande partie de l'énergie de déformation due à la dislocation est emmagasinée dans les régions éloignées du cœur. Par conséquent, l'équation (15) donne une bonne approximation de l'énergie interne totale.

### 1.4.2 Cas des dislocations coin

Nous considérons une dislocation coin dont la ligne est orientée positivement comme l'axe ( $Oz$ ) et dont le vecteur de Burgers est :  $\mathbf{b} = b \mathbf{x}$ , où  $\mathbf{x}$  est le vecteur unitaire de l'axe ( $Ox$ ).

Son champ de déplacements est défini par :

$$u = \frac{b}{2\pi} \left[ \arctan \frac{y}{x} + \frac{1}{2(1-\nu)} \frac{xy}{r^2} \right], \quad (16a)$$

$$v = -\frac{b}{2\pi} \left[ \frac{1-2\nu}{2(1-\nu)} \ln r + \frac{x^2}{2r^2(1-\nu)} \right], \quad (16b)$$

$$w = 0, \quad (16c)$$

son champ de déformations par :

$$\varepsilon_{xx} = -\frac{by}{4\pi} \frac{3x^2 + y^2 - 2\nu r}{r^2(\nu - 1)}, \quad (17a)$$

$$\varepsilon_{yy} = -\frac{by}{4\pi} \frac{[y^2(2\nu - 1) + x^2(2\nu + 1)]}{r^2(\nu - 1)}, \quad (17b)$$

$$\varepsilon_{xy} = \frac{bx}{4\pi} \frac{x^2 - y^2}{r^2(1 - \nu)}, \quad (17c)$$

$$\varepsilon_{zz} = \varepsilon_{xz} = \varepsilon_{yz} = 0, \quad (17d)$$

et son champ de contraintes par :

$$\sigma_{xx} = -\frac{\mu b}{2\pi(1-\nu)} \frac{y(3x^2 + y^2)}{r^2}, \quad (18a)$$

$$\sigma_{yy} = \frac{\mu b}{2\pi(1-\nu)} \frac{y(x^2 - y^2)}{r^2}, \quad (18b)$$

$$\sigma_{xy} = \frac{\mu b}{2\pi(1-\nu)} \frac{x(x^2 - y^2)}{r^2}, \quad (18c)$$

$$\sigma_{xz} = \sigma_{yz} = 0. \quad (18d)$$

$$(18e)$$

Enfin, son énergie de déformation s'écrit :

$$\xi = \frac{\mu b^2}{4\pi(1-\nu)} \ln \frac{R}{r_0}. \quad (19)$$

### 1.4.3 Cas des dislocations mixtes

Le vecteur de Burgers d'une dislocation mixte rectiligne fait un angle arbitraire avec la ligne de dislocation. Si nous faisons à nouveau coïncider l'axe ( $Oz$ ) avec la ligne de dislocation et plaçons l'axe ( $Ox$ ) dans le plan de glissement de la dislocation, on peut écrire le vecteur de Burgers :  $\mathbf{b} = b_x \mathbf{x} + b_z \mathbf{z}$ , où  $b_x$  et  $b_z$  désignent les composantes du vecteur de Burgers selon les axes ( $Ox$ ) et ( $Oz$ ). Ces composantes ne sont autre que les composantes coin et vis (respectivement) du vecteur de Burgers.

Le champ de déplacements d'une ligne de dislocation est alors la somme du champ de déplacement d'une dislocation coin pure de vecteur de Burgers  $b_x \mathbf{x}$  et d'une dislocation vis pure de vecteur de Burgers  $b_z \mathbf{z}$ . Les champs de déformations et de contraintes ainsi que l'énergie de déformation élastique s'obtiennent par des sommes analogues.

## 1.5 Synthèse

En résumé, les dislocations sont à l'origine de champs élastiques de déplacements, de déformations et de contraintes, ainsi que d'une énergie de déformation élastique. Intuitivement, on peut donc penser que la présence de dislocations à proximité de la surface d'un cristal va influencer la croissance et notamment la croissance d'îlots. Si de plus les dislocations sont organisées en réseaux, on peut s'attendre à ce que les îlots reproduisent la même organisation.

# Etude théorique de réseaux de dislocations simples

## Sommaire du chapitre

---

<b>2.1</b>	<b>Introduction</b> . . . . .	<b>53</b>
<b>2.2</b>	<b>Les différents types de réseaux de dislocations</b> . . . . .	<b>54</b>
<b>2.3</b>	<b>Champs et énergie élastiques produits par des réseaux de dislocations faiblement enterrés</b> . . . . .	<b>57</b>
2.3.1	Choix des expressions des champs élastiques . . . . .	58
2.3.2	Champs et énergie élastiques produits en surface par un réseau de dislocations faiblement enterré accommodant une flexion .	59
2.3.3	Champs et énergie élastiques produits en surface par un réseau de dislocations faiblement enterré accommodant une torsion .	64
2.3.4	Champs et énergie élastiques produits en surface par un réseau de dislocations faiblement enterré accommodant à la fois une flexion et une torsion . . . . .	67
<b>2.4</b>	<b>Synthèse</b> . . . . .	<b>68</b>

---

## 2.1 Introduction

L'interface entre deux grains cristallins ayant des orientations ou des paramètres de maille différents est appelée joint de grains. Dans notre cas, les grains en question sont le substrat et la couche cristalline mis en contact lors du collage épitaxial. En général, un joint de grains peut être une interface quelconque, mais à l'équilibre thermique il est plan afin de minimiser sa surface et donc de minimiser l'énergie d'interface. Il est constitué d'un RD qui permet d'accommoder la discontinuité cristalline entre les deux grains. Dans ce

chapitre, nous allons étudier l'énergie et les champs élastiques produits en surface par des RDs faiblement enterrés à géométrie simple. Les RDs réels ont une géométrie souvent plus complexe. Néanmoins, nous parviendrons à la conclusion que pour de tels réseaux également, l'énergie et les champs élastiques reproduisent en surface leur organisation.

## 2.2 Les différents types de réseaux de dislocations

Les RDs se formant au niveau d'un joint de grains peuvent être dus à une flexion entre les deux grains, une torsion ou un désaccord de maille (Fig. 33). On parle alors de joints de flexion, de torsion ou de désaccord de maille. Une flexion est une rotation entre les

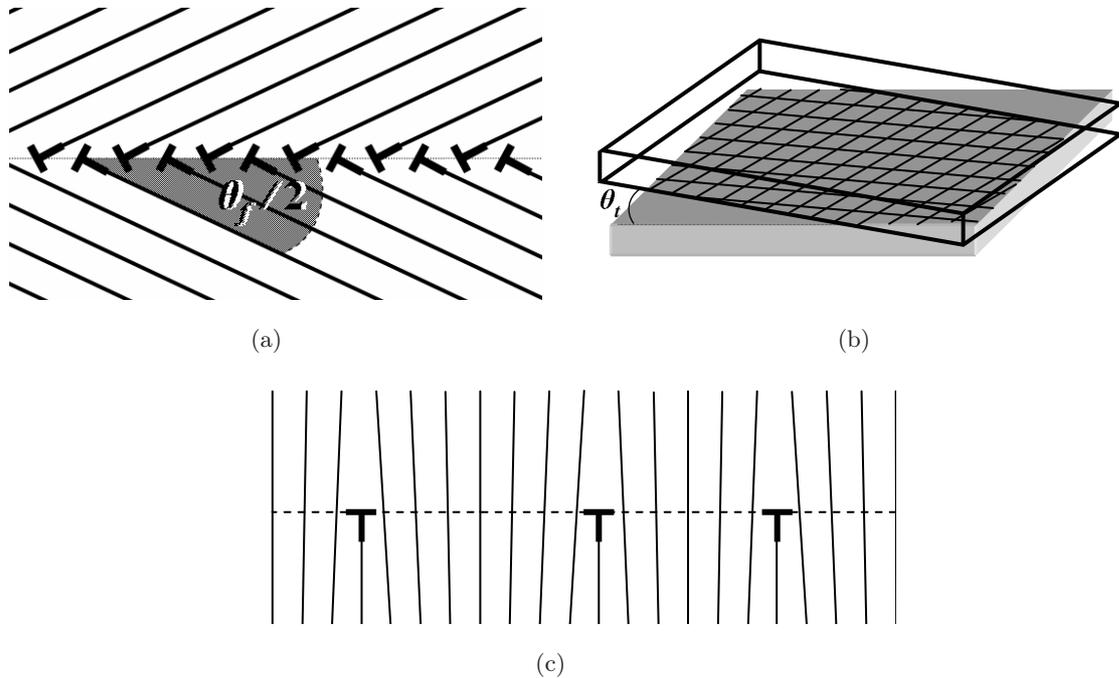


FIG. 33. (a) Une flexion d'angle  $\theta_f$  entre deux cristaux. La ligne pointillée représente le joint de grains. De part et d'autre de cette ligne, les lignes parallèles représentent des plans cristallins des deux cristaux (vus en coupe transverse). Les dislocations sont symbolisées par les  $\perp$ . (b) Une torsion d'angle  $\theta_t$  entre deux cristaux dont les plans cristallins sont supposés parallèles aux faces (le RD 2D est symbolisé par le quadrillage). (c) Un désaccord de maille entre deux cristaux vu en coupe transverse (seul l'un des sous RDs est visible).

plans cristallins des deux cristaux liés dont l'axe est contenu dans le plan de la jonction. L'accommodation de cette désorientation requiert un RD dont une des composantes du

vecteur de Burgers moyen<sup>27</sup> est normale au joint de grains ; il peut s'agir d'un réseau 1D ou 2D de dislocations coin [64]. Dans la réalité on observe un réseau 1D de dislocations mixtes orientées (tout comme l'axe de flexion) perpendiculairement à la bissectrice des plus grandes pentes des surfaces en contact [75] (Fig. 34), dont le vecteur de Burgers moyen n'est

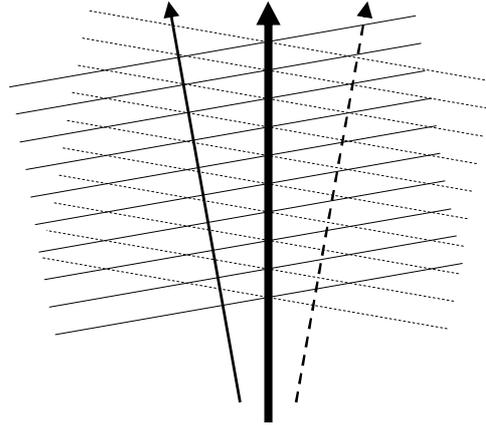


FIG. 34. Schéma des marches atomiques de deux surfaces vicinales en contact (en trait continu et discontinu). L'orientation des plus grandes pentes de ces surfaces est indiquée par les flèches fines. L'axe de flexion ainsi que les dislocations mixtes sont normales à leur bissectrice (flèche épaisse) et sont contenues dans le plan de l'interface.

pas contenu dans le plan de l'interface (seule sa composante normale à l'interface permet l'accommodation de la flexion). Pour les cristaux III-V, ce vecteur est de type  $\frac{a}{2} \langle 110 \rangle$  ( $a$  est le paramètre de maille) ; quatre des huit vecteurs possibles sont illustrés dans la figure 35 (les quatre autres sont identiques à ceux-là au signe près). Si les composantes normales à l'interface des vecteurs de Burgers sont toutes orientées dans le même sens, la norme de la composante efficace pour l'accommodation d'une flexion vaut  $\frac{a}{2}$ . D'autre part, si les dislocations sont orientées selon une direction  $[011]$  (nous supposons que les surfaces à la jonction desquelles se forme le joint de grains sont faiblement désorientées par rapport au plan  $(100)$ ), ce sont des dislocations  $60^\circ$  (Fig. 35) : les lignes de dislocations forment un angle de  $60^\circ$  avec leurs vecteurs de Burgers.

Une torsion est une rotation entre les plans cristallins des deux cristaux liés, mais dont l'axe est perpendiculaire au plan de la jonction. Cette désorientation est accommodée par un réseau 2D carré de dislocations vis (Fig. 33(b)) orientées selon des directions  $[011]$ . Cette fois-ci, c'est la composante vis du vecteur de Burgers moyen qui permet l'accommodation de

<sup>27</sup>Vecteur moyen aussi bien en norme qu'en direction et sens ; dans nos cristaux à structure blende de zinc, les RDs sont essentiellement constitués de dislocations parfaites dont les vecteurs de Burgers ont donc la même norme, mais pour lesquels les directions et les sens peuvent être différents.

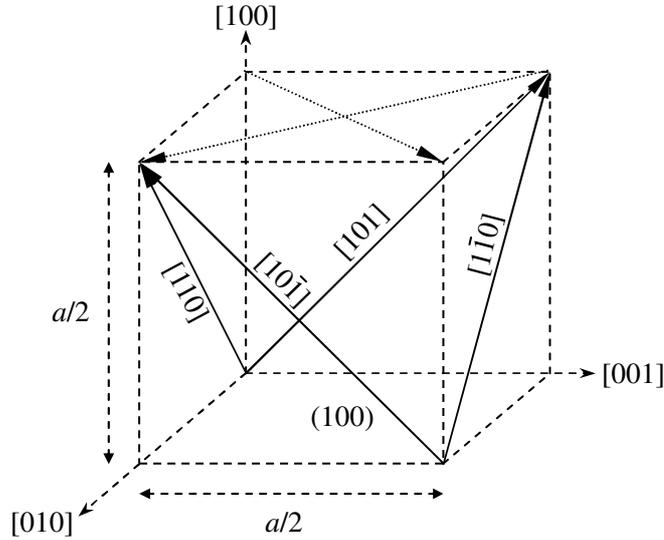


FIG. 35. Quatre des huit vecteurs de Burgers possibles (les flèches en trait continu) pour des dislocations mixtes accommodant une flexion dont l'axe est contenu dans le plan (100) (pour des cristaux cfc ou à structure blende de zinc). Des dislocations ayant des vecteurs de Burgers dans le plan (100) (les flèches en trait pointillé) ne permettent pas d'accommoder une telle flexion.

la torsion ; si, pour chaque réseau 1D constituant le réseau 2D, tous les vecteurs de Burgers sont orientés dans le même sens, la norme de cette composante vaut  $\frac{a}{\sqrt{2}}$ .

Pour ces désorientations (flexion et torsion), la périodicité  $D$  des RDs est géométriquement liée à l'angle de rotation et à la norme de la composante du vecteur de Burgers permettant l'accommodation de la désorientation par la formule dite de Frank :

$$D = \frac{b_{eff}}{2 \sin \theta/2}, \quad (20)$$

où  $b_{eff}$  est la norme de la composante du vecteur de Burgers efficace pour accommoder la discontinuité cristalline au niveau du joint et  $\theta$  est l'angle de rotation. En ce qui concerne les joints de flexion, cette expression est strictement vraie uniquement pour les joints de flexion symétriques (comme celui de la figure 33(a)), c'est-à-dire ceux pour lesquels les plans cristallins homologues des deux cristaux en contact sont orientés symétriquement par rapport à l'interface. Cependant, lorsque le joint de flexion est quasi-symétrique<sup>28</sup>, l'équation (20) est une bonne approximation de la période des dislocations [64]. Pour les deux désorientations,  $D$  est représenté en Fig. 36 en fonction de  $\theta$ . Puisque l'on veut que les cellules de disloca-

<sup>28</sup>C'est le cas pour nos substrats composites car les cristaux que nous avons collés étaient toujours des cristaux vicinaux de même désorientation.

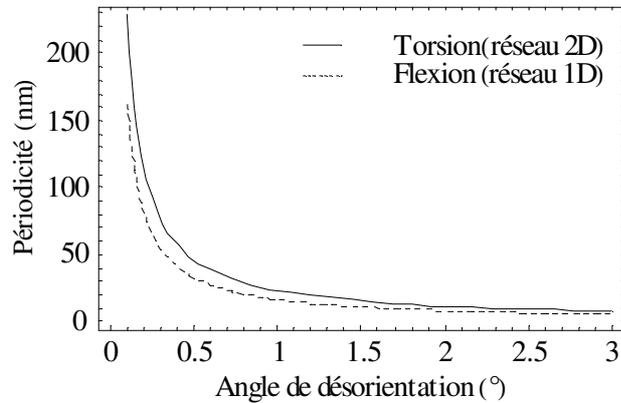


FIG. 36. Période des RDs accommodant une flexion ou une torsion en fonction de l'angle de désorientation.

tions soient plus grandes que les dimensions latérales des BQs usuellement épitaxiées par EPVOM (au minimum 10 nm), on voit qu'il faut des angles de désorientation inférieurs à 1°.

Enfin, un désaccord de maille entre les deux cristaux joints est accommodé par un réseau 2D carré de dislocations coin (Fig. 33(c)); le cristal du dessus a un paramètre de maille supérieur à celui du dessous).

## 2.3 Champs et énergie élastiques produits en surface par des réseaux de dislocations faiblement enterrés

Intéressons nous maintenant à l'influence d'un RD faiblement enterré et parallèle à la surface sur les propriétés élastiques de cette surface. L'objectif de cette prospection est de tenter de prévoir comment un matériau épitaxié réagit quand il est déposé sur une surface dont les caractéristiques élastiques (énergie et champs) subissent une modulation.

Pour répondre à cette interrogation, Romanov *et al.* [67] ainsi que Bourret [68] ont considéré des critères de minimisation d'énergie élastique pour prédire le positionnement des îlots induit par le RD sous-jacent. Une autre manière d'aborder le problème est de considérer plutôt les déformations et contraintes en surface car elles influencent la cinétique et la fixation des adatoms. Dans la suite de ce chapitre, nous allons à la fois nous intéresser aux distributions spatiales en surface de la densité volumique d'énergie élastique et des champs élastiques produits par différents RDs.

### 2.3.1 Choix des expressions des champs élastiques

Bonnet et Verger-Gaugry [80] ont déterminé, dans le cas de matériaux élastiquement isotropes, les expressions des composantes du champ de déplacements associé à un réseau 1D infini de dislocations faiblement enterrées de même vecteur de Burgers en sommant en séries de Fourier les contributions des dislocations (voir page 50 et suivantes) du réseau et en prenant en compte les conditions de convergence et d'équilibre des solutions obtenues et les conditions aux limites, à savoir : (i) la finitude de l'énergie élastique stockée par unité de surface dans le cristal épais (c'est-à-dire pour  $x_2 < 0$ ; voir Fig. 37) et la convergence

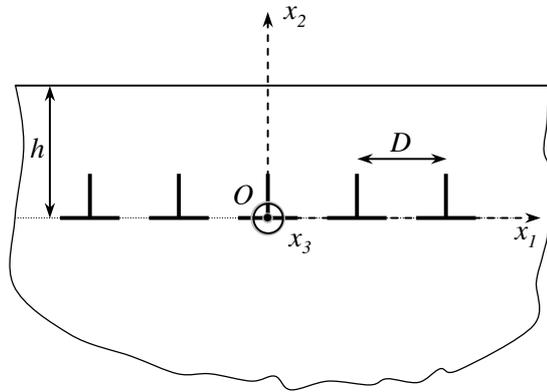


FIG. 37. Schéma d'un réseau 1D de dislocations faiblement enterrées de vecteur de Burgers identique.  $D$  est la période du réseau et  $h$  l'épaisseur de la couche supérieure.

vers zéro des contraintes dans ce même cristal, loin du joint ; (ii) la nullité de la résultante et du moment des forces agissant sur un cylindre de matière renfermant une dislocation ; (iii) la planéité du joint de grains et la périodicité des dislocations ainsi que du champs de déplacements qu'elles engendrent ; (iv) la continuité des forces au travers du joint ; et (v) l'annulation des contraintes à la surface libre. En se basant sur ces expressions, Bourret a exprimé les composantes non nulles du champs de contraintes induits en surface par des réseaux 1D simples de dislocations faiblement enterrés, dans le cas où un seul et même matériau est situé de part et d'autre des RDs [68]. Plus précisément, il a considéré des réseaux de dislocations vis et des réseaux de dislocations coin de deux types : (i) avec des vecteurs de Burgers contenus dans le plan du joint et (ii) avec des vecteurs de Burgers normaux à ce plan. Pour notre étude théorique des champs et énergie élastiques produits par un RD situé à l'interface entre deux cristaux de GaAs, nous nous baserons sur ses expressions. Les expressions des champs de déformations et de déplacements peuvent, elles, être obtenues grâce aux équations (7) (page 48) et (10) (page 49) respectivement. Enfin, la densité volumique d'énergie élastique stockée en surface est obtenue grâce à l'équation (8)

(page 49). D'autre part, toutes les expressions dont nous avons parlé dans ce paragraphe sont définies dans le cadre de la théorie de l'élasticité linéaire ; donc les champs élastiques et la densité volumique d'énergie élastique produits par des RDs composés de plusieurs réseaux 1D de dislocations sont obtenus en sommant les contributions de ces derniers.

Dans la suite de cette étude, nous ne nous intéresserons qu'aux joints de flexion, de torsion et plus généralement aux joints de grains accommodant à la fois une flexion et une torsion<sup>29</sup>. Dans ce dernier cas, on parlera de joints mixtes. Le matériau considéré sera le GaAs. Nous supposerons les dislocations orientées selon des directions  $[011]$ . Il s'agit d'une orientation naturelle pour les lignes de dislocations vis dans les matériaux III-V. En revanche, en règle générale, les dislocations mixtes ont une orientation quelconque, mais pour nos études expérimentales nous nous sommes fréquemment placé dans une configuration pour laquelle les lignes des dislocations mixtes sont orientées selon une direction  $[011]$ . Enfin, nous supposerons les dislocations stables ; leurs vecteurs de Burgers sont donc de type  $\frac{a}{2} \langle 011 \rangle$  (par conséquent, les dislocations mixtes sont en fait de type  $60^\circ$  à cause de l'orientation que nous venons de choisir pour leurs lignes).

### 2.3.2 Champs et énergie élastiques produits en surface par un réseau de dislocations faiblement enterré accommodant une flexion

Considérons d'abord un joint de flexion. Nous supposons que les dislocations du réseau 1D (de période  $D$ ) sont parallèles à l'axe ( $Ox_3$ ) d'un repère orthonormé direct ( $Ox_1x_2x_3$ ) ( $\mathbf{x}_1$ ,  $\mathbf{x}_2$  et  $\mathbf{x}_3$  sont les vecteurs de base de ce repère) ; cet axe est confondu avec l'une des dislocations (Fig. 37). La configuration la plus favorable énergétiquement pour accommoder une flexion est obtenue lorsque les composantes normales à l'interface des vecteurs de Burgers des dislocations mixtes sont toutes orientées dans le même sens. C'est d'ailleurs très certainement ce qui se passe dans la réalité car autrement les périodicités des dislocations observées en MET seraient différentes de celles attendues et calculées d'après la formule de Frank (équation (20), page 56) avec cette hypothèse. C'est pourquoi nous imposons arbitrairement aux vecteurs de Burgers des dislocations mixtes d'avoir une composante positive selon l'axe ( $Ox_2$ ) ; ceux-ci sont donc à choisir parmi les quatre vecteurs suivants :  $\mathbf{b} = \pm \frac{a}{2\sqrt{2}} \mathbf{x}_1 + \frac{a}{2} \mathbf{x}_2 + \pm \frac{a}{2\sqrt{2}} \mathbf{x}_3$ . De plus, pour que les matériaux joints soient à l'équilibre, il faut que les composantes vis et coin résiduelles dans le plan du joint de grains soient nulles. Les vecteurs de Burgers de ces dislocations doivent donc être choisis de sorte que cette condition soit vérifiée. Pour ce faire, nous nous sommes placés dans le cas particulier d'une alternance périodique entre les quatre vecteurs possibles. La périodicité réelle du RD est donc  $4D$ .

---

<sup>29</sup>Nous n'avons pas étudié expérimentalement les joints de désaccord de maille.

Afin de simplifier le problème, Bourret avait modélisé le champ de contraintes en surface d'un joint de flexion en considérant qu'il était composé d'un réseau 1D de dislocations coin dont les vecteurs de Burgers étaient normaux au joint de grains avec une norme égale à  $\frac{a}{2}$  [68]. Pour modéliser la configuration que nous avons choisie au paragraphe précédent (plus proche de la réalité), nous n'avons donc pas utilisé son expression du champ de contraintes d'un joint de flexion. Puisque ses calculs (tout comme ceux de Bonnet et Verger-Gaugry) ont été effectués dans le cadre de la théorie de l'élasticité linéaire, l'expression du champ de contraintes en surface pour notre configuration est obtenue simplement en sommant les contributions des différentes composantes des vecteurs de Burgers des dislocations : la composante vis de chaque dislocation et leurs deux composantes coin ((i) dans le plan du joint de grains et (ii) normale à ce plan). La contribution des composantes vis est donnée par l'expression de Bourret [68] du champ de contraintes en surface d'un réseau 1D de dislocations vis (dont la norme des vecteurs de Burgers doit être choisie égale à  $\frac{a}{2\sqrt{2}}$ ), tandis que les contributions des composantes coin sont données par ses expressions du champ de contraintes en surface d'un réseau 1D de dislocations coin (i) de vecteurs de Burgers contenus dans le plan de l'interface (de norme  $\frac{a}{2\sqrt{2}}$ ) et (ii) de vecteurs de Burgers normaux à ce plan (de norme  $\frac{a}{2}$ ) ; rappelons également que nous avons pris soin d'alterner de manière périodique les quatre vecteurs de Burgers que nous avons retenus au paragraphe précédent.

Pour un RD, de 25 nm de période (donc de période réelle égale à 100 nm) enterré à 20 nm de profondeur (valeur que nous avons imposée à nos échantillons ; ce choix est justifié par des résultats expérimentaux : voir page 71), les composantes non nulles des champs de contraintes et de déformations sont représentées en figure 38(a) et 38(b) respectivement ; les vecteurs de Burgers des dislocations y sont spécifiés. Ce réseau permet d'accommoder une flexion de  $0,65^\circ$  autour de l'axe ( $Ox_3$ ). Chacune des composantes de dilatation/compression de ces champs élastiques ( $\sigma_{11}$ ,  $\sigma_{33}$ ,  $\varepsilon_{11}$  et  $\varepsilon_{22}$ ) est due à la fois aux deux composantes coin (selon ( $Ox_1$ ) et selon ( $Ox_2$ )) du vecteur de Burgers de chaque dislocation. Considérées conjointement, la périodicité de ces composantes est de 100 nm (c'est à dire la périodicité réelle des dislocations ; Fig. 38), c'est pourquoi la périodicité des composantes de dilatation/compression des champs est elle aussi de 100 nm. Les composantes de cisaillement  $\sigma_{13}$  et  $\varepsilon_{13}$  sont, elles, uniquement dues aux composantes vis des vecteurs de Burgers des dislocations, dont la période est de 50 nm (c'est à dire la moitié de la périodicité réelle des dislocations ; Fig. 38) ; c'est pourquoi leur périodicité est aussi de 50 nm. Donc les diverses composantes des champs élastiques de contraintes et de déformations reproduisent bien (comme attendu) les périodicités des composantes des vecteurs de Burgers qui les produisent.

En figure 39 sont représentées les amplitudes crête-à-crête maximales des champs de

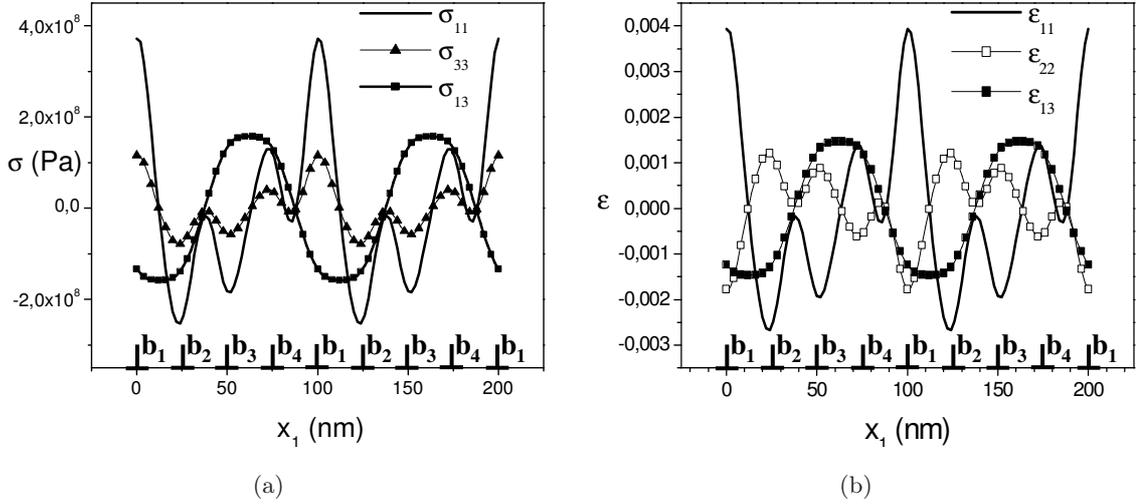


FIG. 38. Composantes non nulles des champs de contraintes et de déformations induits en surface par un réseau 1D de dislocations  $60^\circ$  parallèles à l'axe ( $Ox_3$ ) ( $D=25$  nm,  $h=20$  nm). Les champs sont invariants selon l'axe ( $Ox_3$ ). Par commodité, les dislocations ont été symbolisées par les  $\perp$  (bien que ce symbole soit en général réservé aux dislocations coin). Leurs vecteurs de Burgers sont de quatre types :  $\mathbf{b}_1 = \frac{a}{2\sqrt{2}}\mathbf{x}_1 + \frac{a}{2}\mathbf{x}_2 + \frac{a}{2\sqrt{2}}\mathbf{x}_3$ ,  $\mathbf{b}_2 = -\frac{a}{2\sqrt{2}}\mathbf{x}_1 + \frac{a}{2}\mathbf{x}_2 + \frac{a}{2\sqrt{2}}\mathbf{x}_3$ ,  $\mathbf{b}_3 = -\frac{a}{2\sqrt{2}}\mathbf{x}_1 + \frac{a}{2}\mathbf{x}_2 - \frac{a}{2\sqrt{2}}\mathbf{x}_3$  et  $\mathbf{b}_4 = \frac{a}{2\sqrt{2}}\mathbf{x}_1 + \frac{a}{2}\mathbf{x}_2 - \frac{a}{2\sqrt{2}}\mathbf{x}_3$ .

contraintes et de déformations en surface<sup>30</sup>, en fonction de l'épaisseur  $h$  (pour  $D = 25$  nm). On constate que pour une période  $D$  fixée, les amplitudes maximales des champs de déformations et de contraintes en surface augmentent exponentiellement quand l'épaisseur  $h$  diminue ; cela a été vérifié pour d'autres périodes  $D$ . Comme on s'y attendait, l'influence du RD en surface augmente donc quand cette dernière s'en «approche».

En figure 40 sont représentées les amplitudes crête-à-crête maximales des champs de contraintes et de déformations en surface, en fonction de la période  $D$  (pour  $h = 20$  nm). On constate que les amplitudes maximales des composantes non nulles de dilatation/compression de chaque champ élastique tendent vers un palier pour les grandes périodes après être passées par un maximum pour  $D \simeq \frac{h}{2}$ , puis par un minimum local pour  $D \simeq \frac{3}{2}h$  (cela est également vrai pour d'autres épaisseurs  $h$  car dans le cadre de l'élasticité linéaire, seul le rapport  $\frac{h}{D}$  est pertinent). La composante non nulle de cisaillement de chaque champ élastique tend également vers un palier, mais de manière monotone (elle l'atteint pour  $D \simeq h$ ). Ces paliers correspondent aux amplitudes crête-à-crête maximales

<sup>30</sup>C'est à dire, la différence entre le maximum absolu et le minimum absolu du champ de contraintes en surface (ou de déformations, selon le cas considéré).

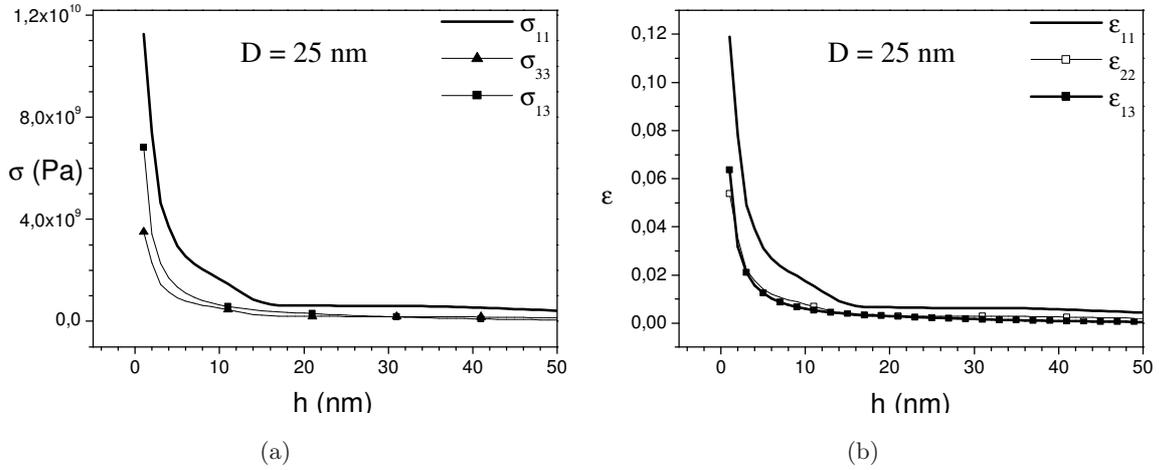


FIG. 39. Amplitude crête-à-crête maximale des composantes non nulles des champs (a) de contraintes et (b) de déformations induits en surface par un réseau 1D de dislocations  $60^\circ$  en fonction de l'épaisseur  $h$  de la couche recouvrant les dislocations (pour  $D=25$  nm).

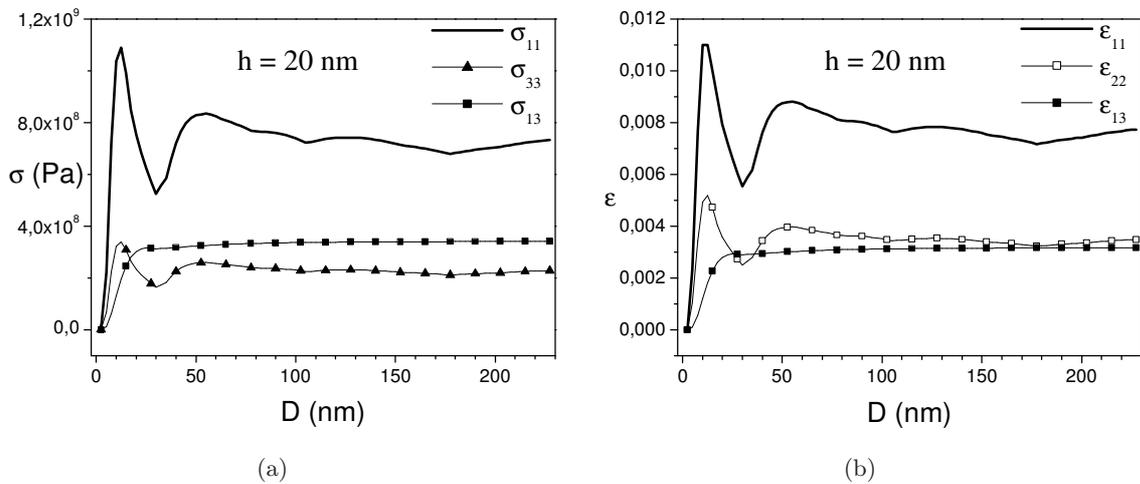


FIG. 40. Amplitude crête-à-crête maximale des composantes non nulles des champs (a) de contraintes et (b) de déformations induits en surface par un réseau 1D de dislocations  $60^\circ$  en fonction de la période  $D$  (pour  $h=20$  nm).

des champs de contraintes et de déformations produits en surface par une dislocation isolée enterrée à une profondeur  $h$ . Lorsque  $D$  tend vers zéro, les amplitudes de chaque composante des champs de contraintes et de déformations décroissent brutalement à cause d'un phénomène d'écrantage des champs élastiques des dislocations. Pour que l'effet en surface de ces champs soit notable, il ne faut donc pas que le rapport  $\frac{h}{D}$  soit trop grand. D'autre

part, on constate sur les figures 39 et 40 (comme en figure 38) que pour chaque champ, les modulations de la composante non nulle de dilatation/compression parallèle au plan du joint de grains ( $\sigma_{11}$  ou  $\varepsilon_{11}$ ) sont plus importantes que pour les autres composantes.

Enfin, la densité volumique d'énergie élastique stockée en surface due à un réseau 1D de dislocations  $60^\circ$  (avec  $D = 25$  nm et  $h = 20$  nm) est considérée en figure 41. D'après

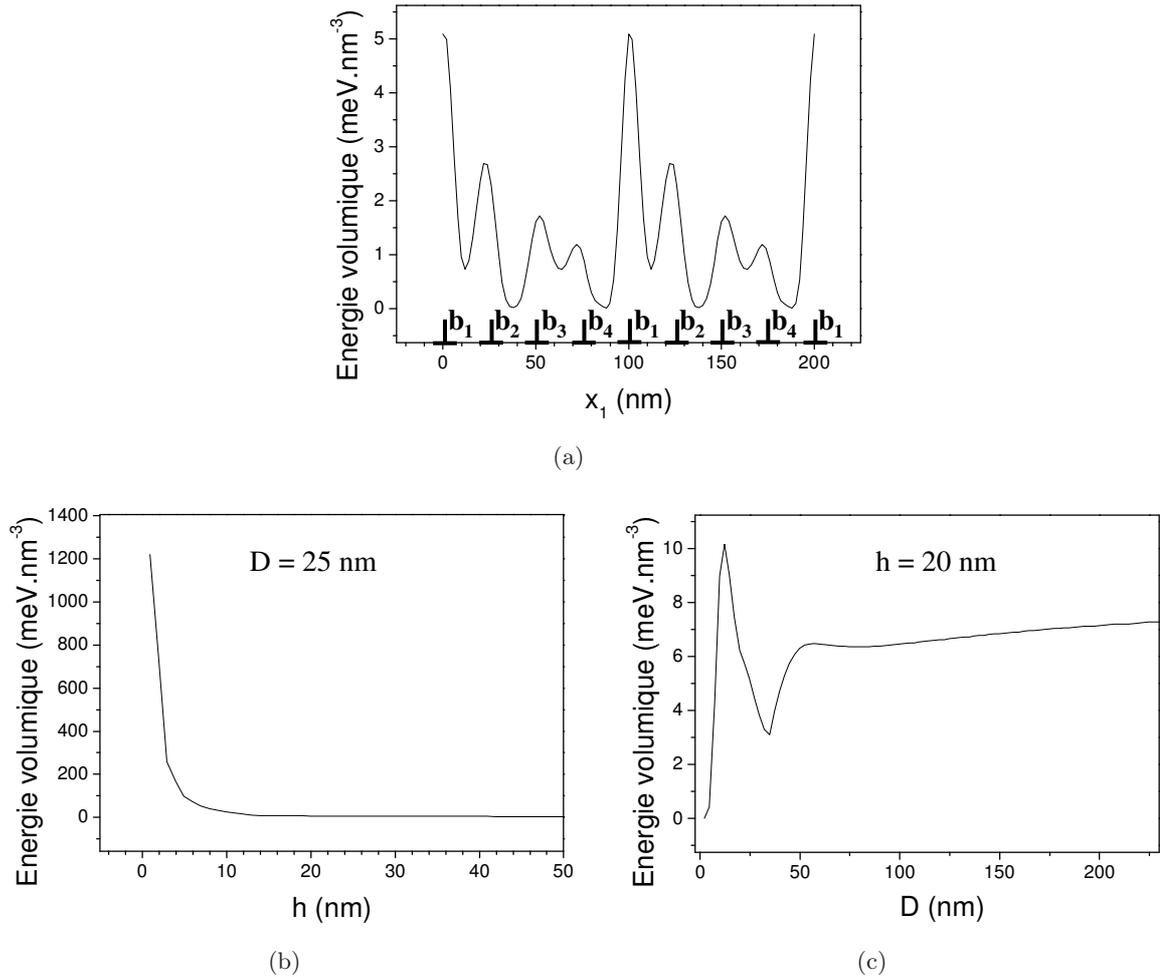


FIG. 41. (a) Densité volumique d'énergie élastique stockée en surface due à un réseau 1D de dislocations  $60^\circ$  parallèles à l'axe ( $Ox_3$ ) ( $D=25$  nm,  $h=20$  nm); elle est invariante selon l'axe ( $Ox_3$ ). Les dislocations sont identiques à celles de la figure 38. (b) et (c) Amplitude crête-à-crête maximale de cette densité volumique (b) en fonction de l'épaisseur  $h$  (pour  $D=25$  nm) et (c) en fonction de la période  $D$  (pour  $h=20$  nm).

la figure 41(a), la périodicité des modulations de cette densité est identique à celle du RD; sur la figure 41(b), on constate que son amplitude crête-à-crête maximale à période  $D$  constante décroît exponentiellement quand l'épaisseur  $h$  augmente; et sur la 41(c), on

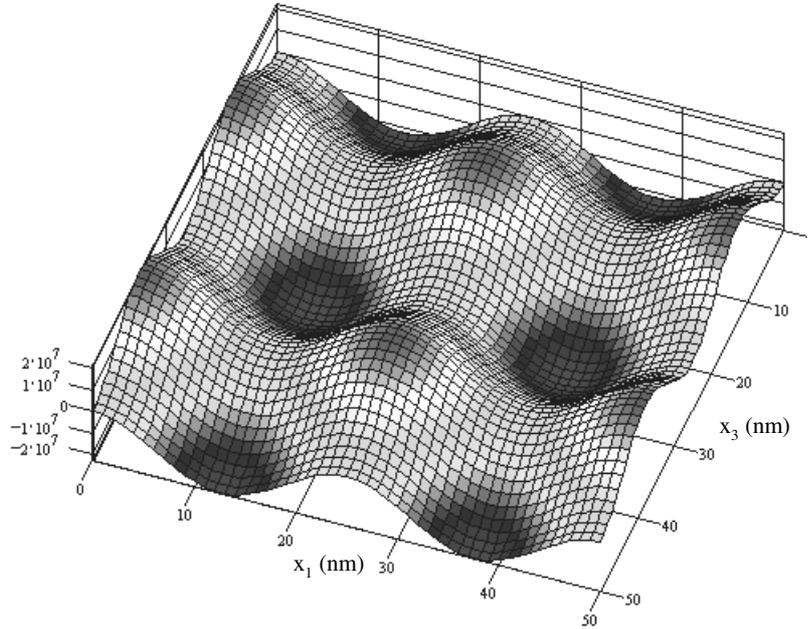


FIG. 42. Composante non nulle du champ de contraintes ( $\sigma_{31}$ ; en Pa) induit en surface par un réseau carré de dislocations vis ( $D=25$  nm,  $h=20$  nm). Les dislocations sont en coordonnées  $x_i = 0$ ,  $x_i = 25$  et  $x_i = 50$  (avec  $i = 1$  ou  $3$ ).

voit que son amplitude crête-à-crête maximale à épaisseur  $h$  constante atteint un palier aux grandes périodes après, partant de zéro, être passée par un maximum pour  $D \simeq \frac{h}{2}$  puis par un minimum local pour  $D \simeq \frac{3}{2}h$  (comme les composantes de dilatation/compression des champs de contraintes et de déformations).

### 2.3.3 Champs et énergie élastiques produits en surface par un réseau de dislocations faiblement enterré accommodant une torsion

Considérons maintenant un joint de torsion. Ce type de joint est composé d'un réseau 2D carré de dislocations vis ; dans chaque sous-réseau 1D, nous considérons que les dislocations ont le même vecteur de Burgers (c'est la configuration la plus favorable à l'accommodation de la torsion). Nous avons utilisé l'expression de Bourret [68] du champ de contraintes induit en surface par un réseau 1D de dislocations vis faiblement enterré (pour obtenir le champ de contraintes du réseau 2D, nous avons sommé les contributions des deux réseaux 1D).

Cette fois-ci, les seules composantes non nulles des champs de déformations et de contraintes sont respectivement les composantes de cisaillement  $\varepsilon_{31}$  et  $\sigma_{31}$ . Les variations en surface de  $\sigma_{31}$  sont représentées en figure 42 pour un RD de 25 nm de période, enterré à 20 nm de profondeur ; les variations de  $\varepsilon_{31}$  sont identiques au facteur  $\frac{1}{2\mu}$  près ( $\mu$  est le

module de cisaillement<sup>31</sup>); un tel réseau permet d'accommoder une torsion de  $0, 92^\circ$ . Les extrema de ces champs sont logiquement situés à l'aplomb des dislocations; au centre des cellules définies par ces dernières les contraintes et déformations sont nulles. De plus, les modulations en surface de ces deux champs élastiques sont bien plus faibles que pour le réseau de dislocations  $60^\circ$  de même périodicité enterré à la même profondeur (Fig. 38). La densité volumique d'énergie élastique stockée en surface est, elle, représentée en figure 43. Là aussi les modulations sont plus faibles que pour le réseau 1D de dislocations mixtes

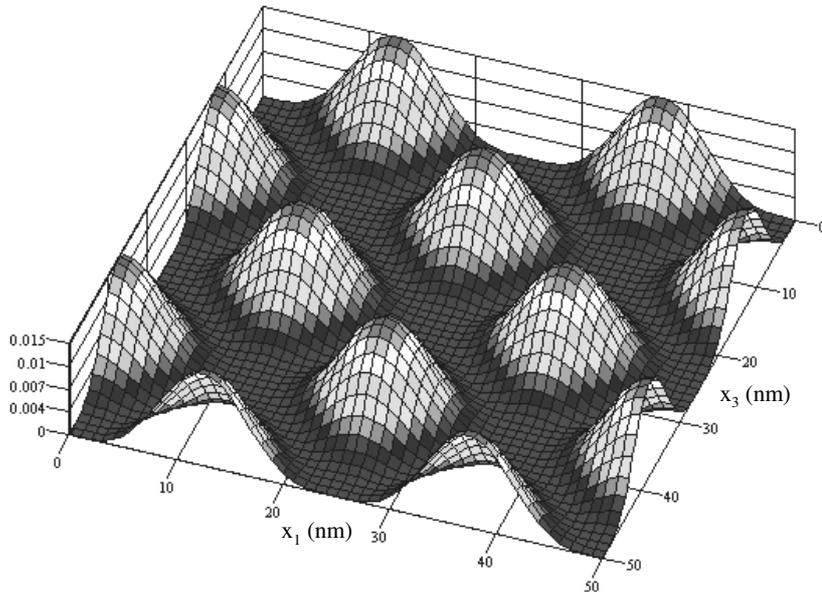


FIG. 43. Densité volumique d'énergie élastique stockée en surface due à un réseau 2D carré de dislocations vis ( $D=25$  nm,  $h=20$  nm); elle est exprimée en  $\text{meV.nm}^{-3}$ . Les dislocations sont orientées comme pour la figure 42.

considéré à la sous-section précédente (Fig. 41(a)). Ces modulations (tout comme celles des champs de contraintes et de déformations) reproduisent la périodicité du RD.

Nous avons constaté que les amplitudes crête-à-crête maximales de  $\sigma_{31}$  et  $\varepsilon_{31}$ , à période  $D$  constante, décroissent elles aussi exponentiellement quand l'épaisseur  $h$  augmente (il en va de même pour la densité volumique d'énergie élastique stockée en surface). Les amplitudes crête-à-crête maximales de ces deux composantes en fonction de la période  $D$  (pour  $h = 20$  nm) sont, elles, représentées en figure 44. Tout comme les composantes de cisaillement des réseaux 1D de dislocations mixtes (Fig. 40), elles tendent de manière monotone vers un palier. Pour  $\sigma_{31}$  (respectivement,  $\varepsilon_{31}$ ), tant que  $D$  est inférieure à environ  $\frac{5}{2}h$  (respectivement,  $D$  environ inférieure à  $3h$ ) son amplitude crête-à-crête maximale est inférieure à celles

<sup>31</sup> $\mu = 53,7 \times 10^9$  Pa pour le GaAs.

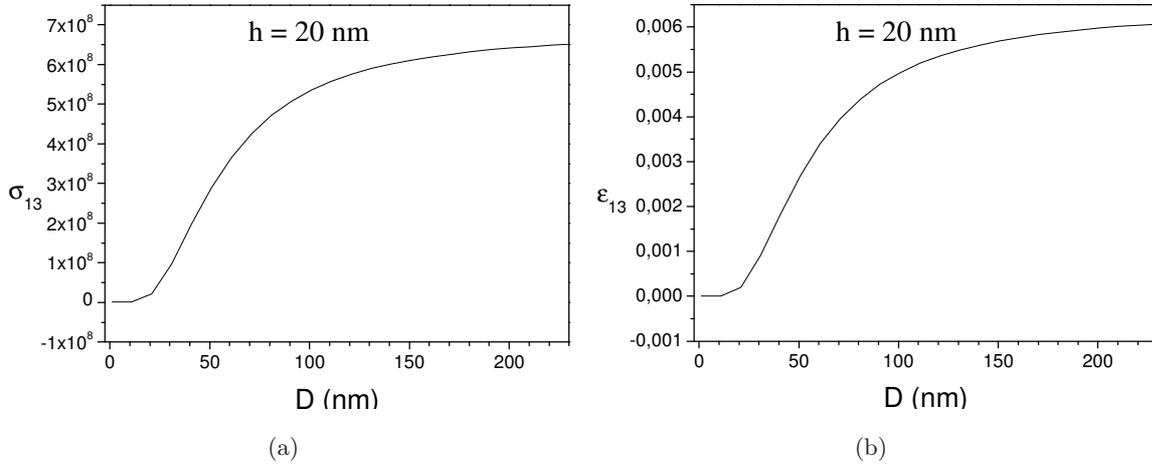


FIG. 44. Amplitude crête-à-crête maximale des composantes non nulles des champs (a) de contraintes et (b) de déformations induits en surface par un réseau 2D de dislocations vis en fonction de la période  $D$  (pour  $h=20$  nm).

de toutes les composantes du champ de contraintes (respectivement, de déformations) d'un réseau 1D de dislocations mixtes enterré à la même profondeur  $h$  ; au-delà, seule la composante  $\sigma_{11}$  (respectivement  $\varepsilon_{11}$ ) de ce dernier RD la surpasse. Donc lorsque la période  $D$  est inférieure à ces valeurs, à même épaisseur  $h$ , les champs élastiques induits en surface par un joint de flexion sont plus favorables que ceux d'un joint de torsion pour l'organisation de la croissance. Au-delà, il peut en être autrement si les composantes de cisaillement  $\sigma_{31}$  et  $\varepsilon_{31}$  ont plus d'influence sur la croissance que les composantes de dilatation/compression  $\sigma_{11}$  et  $\varepsilon_{11}$ . Néanmoins, comme on veut tendre vers l'organisation de BQs d'InGaAs, dont le paramètre de maille est supérieur à celui du GaAs, il semble avantageux d'organiser en surface des zones de dilatation ; il est donc probable qu'un joint de flexion soit plus favorable à l'organisation de la croissance qu'un joint de torsion quelle que soit la période  $D$  (à condition que pour les conditions de croissance utilisées, il soit plus pertinent de considérer les champs élastiques plutôt que la densité volumique d'énergie élastique stockée en surface). D'autre part, la plage de périodes  $D$  intéressantes vis à vis des modulations des champs élastiques (pour le joint de torsion) est comprise entre deux et cinq fois l'épaisseur  $h$  (Fig. 44) ; au-delà les champs de contraintes et de déformations varient peu. En d'autres termes, un rapport  $\frac{h}{D}$  petit est avantageux pour avoir de fortes variations des champs élastiques induits en surface par un réseau carré de dislocations vis. Enfin, l'amplitude maximale de la densité volumique d'énergie élastique stockée en surface en fonction de  $D$ , pour  $h = 20$  nm, est représentée en figure 45. Elle tend elle aussi vers un palier de manière monotone. Le niveau de ce palier est plus élevé que celui atteint pour un réseau 1D de dislocations

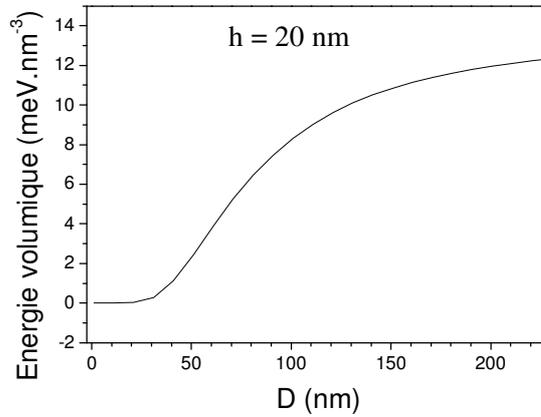


FIG. 45. Amplitude crête-à-crête maximale de la densité volumique d'énergie élastique stockée en surface due à un réseau 2D de dislocations vis en fonction de la période  $D$  (pour  $h=20$  nm).

mixtes enterré à la même profondeur (Fig. 41(c)) : pour des périodes supérieures à environ  $4h$  les modulations de la densité volumique de l'énergie élastique stockée en surface due au réseau carré de dislocations vis sont plus fortes que celles dues à un réseau 1D de dislocations mixtes. Donc si dans les conditions de croissance utilisées, il est plus pertinent de considérer l'énergie plutôt que les champs élastiques en surface, pour des périodes vérifiant cette condition, un joint de torsion sera plus favorable à l'organisation de la croissance.

#### 2.3.4 Champs et énergie élastiques produits en surface par un réseau de dislocations faiblement enterré accommodant à la fois une flexion et une torsion

Nous venons d'étudier les deux cas simples d'un RD accommodant soit une flexion pure soit une torsion pure. Dans la réalité, le RD est bien souvent un joint mixte qui doit accommoder à la fois une flexion et une torsion ; on s'attend alors à ce qu'il soit composé d'un réseau 1D de dislocations mixtes accommodant la flexion et d'un réseau 2D de dislocations vis accommodant la torsion<sup>32</sup>. Comme nous l'avons vu en page 45, les dislocations mixtes réagissent avec les dislocations vis lorsqu'elles les rencontrent. La configuration résultant de cette réaction dépend notamment de l'angle entre ces deux types de dislocations. Néanmoins les champs élastiques de ce joint résultent toujours de la somme des champs élastiques des dislocations (il en va de même pour la densité volumique d'énergie élastique stockée en surface). C'est pourquoi l'énergie et les champs élastiques en surface d'un joint mixte reproduisent également les périodicités des réseaux qui le composent. Les configurations

<sup>32</sup>Nous le verrons au chapitre 4, un joint mixte peut aussi avoir une géométrie plus simple.

optimales seront celles pour lesquelles à la fois les dislocations vis et les dislocations mixtes génèrent en surface d'importantes modulations de ces propriétés élastiques.

## **2.4 Synthèse**

L'énergie et les champs élastiques en surface reproduisent l'organisation des dislocations faiblement enterrées. Leurs modulations sont d'autant plus fortes que l'épaisseur de la couche collée est faible. Il ne faudra donc pas que cette dernière soit trop importante (nous l'avons dit, nous avons retenu une épaisseur de 20 nm). La technique du collage épitaxial que nous allons décrire en détail au chapitre suivant permet de satisfaire cette condition : grâce à elle on colle une très fine couche cristalline sur un substrat (à l'interface desquels se forme le RD accommodant la flexion et la torsion). D'autre part, pour une épaisseur donnée, en fonction de la périodicité des dislocations et des conditions de croissance, ce sera soit un joint de flexion, soit un joint de torsion qui sera plus favorable à l'organisation de nanostructures auto-assemblées. Cependant, il est préférable de privilégier ce dernier type de joint car il est susceptible d'induire une organisation 2D (on ne s'attend qu'à une organisation 1D avec un joint de flexion). Malheureusement, il est quasiment illusoire de coller deux cristaux sans flexion car ils sont toujours légèrement vicinaux. Des joints mixtes devraient donc systématiquement se former au sein de nos substrats composites. Pour ces joints, on s'attend à ce que la répartition des dislocations ne soit pas périodique selon les deux directions du plan de l'interface à cause de la présence simultanée des réseaux de dislocations mixtes et de dislocations vis. Nous montrerons au chapitre 4 de cette partie qu'il est en fait possible de profiter des interactions entre ces différentes dislocations pour obtenir un joint de grains mixte à organisation périodique 2D. L'organisation 2D de nanostructures grâce à de tels joints sera démontrée au chapitre 5 de cette partie.

# Le collage épitaxial pour obtenir des réseaux de dislocations faiblement enterrés

## Sommaire du chapitre

---

<b>3.1</b>	Introduction . . . . .	70
<b>3.2</b>	Limitations du collage épitaxial de deux cristaux de GaAs . . . . .	71
<b>3.3</b>	Les presses de collage . . . . .	72
3.3.1	La presse à petits échantillons . . . . .	72
3.3.2	La presse à grands échantillons . . . . .	75
<b>3.4</b>	Contrôle des angles de flexion et de torsion . . . . .	78
<b>3.5</b>	Description détaillée et optimisation de la procédure expérimentale . . . . .	79
3.5.1	Structure épitaxiée sur un substrat sacrificiel . . . . .	79
3.5.2	Clivage ou sciage des échantillons à coller . . . . .	80
3.5.3	Nettoyage des cristaux à coller . . . . .	84
3.5.4	Désoxydation des cristaux à coller . . . . .	85
3.5.5	Superposition des cristaux dans la presse et recuit . . . . .	85
3.5.6	Élimination du substrat sacrificiel et des couches d'arrêt de gravure . . . . .	85
3.5.6.1	Amincissement par polissage . . . . .	85
3.5.6.2	Gravure chimique sélective . . . . .	86
<b>3.6</b>	Synthèse . . . . .	87

---

### 3.1 Introduction

La technique du collage épitaxial a été développée au début des années 90 pour permettre le report, sur un substrat, de couches épaisses fortement désaccordées par rapport à ce dernier, avec une faible densité de dislocations traversantes [74]. Elle consiste à établir une liaison entre deux cristaux sans l'apport d'une matière extérieure : des liaisons covalentes se forment entre les deux cristaux lors d'un recuit à haute température. Depuis 1997 [81], elle est également utilisée pour mettre en œuvre le concept de substrat «compliant» (ou complaisant) introduit par Lo en 1991 [82] (il s'agit de substrats permettant d'augmenter l'épaisseur critique de relaxation plastique des matériaux hétéroépitaxiés).

Contrairement à l'hétéroépitaxie, lors du recuit, les deux cristaux mis en contact ne sont pas contraints. Aucun d'eux n'est forcé à adopter le paramètre de maille de l'autre : ils conservent chacun le leur. Il n'y a donc pas de processus de relaxation à mettre en œuvre comme lors de l'épitaxie de matériaux désaccordés. Seul va apparaître à l'interface un joint de grains afin d'accommoder une éventuelle discontinuité cristalline. De plus, l'absence de contrainte fait que les dislocations qui composent ce joint n'ont aucune raison de se propager dans l'un ou l'autre des cristaux, de sorte que ceux-ci ne sont pas dégradés.

Dans notre étude, nous avons utilisé cette technique pour coller une couche mince de GaAs sur un substrat de GaAs en contrôlant les désorientations cristallines entre eux et obtenir un joint de grains au niveau de l'interface. Notons que pour que ce joint puisse se former, il faut que le contact entre la couche et le substrat soit aussi parfait que possible. Il faut donc que les surfaces mises en contact soient planes et exemptes de défauts ou d'impuretés.

D'autre part, il faut que le contact soit «cristallin» : aucun RD ne se forme à la jonction entre deux matériaux amorphes. C'est pourquoi il faut que les surfaces soient parfaitement désoxydées. En outre, la température du recuit doit être choisie judicieusement. Il faut évidemment qu'elle soit bien au-dessous de la température de fusion du GaAs, mais il faut néanmoins que les atomes de gallium et d'arsenic soient suffisamment mobiles pour que l'interface se forme. Or c'est entre 600 et 700°C que s'effectue classiquement l'épitaxie de couches de GaAs de bonne qualité cristalline ; dans cette gamme de températures, la mobilité des atomes de surface est donc suffisante. Cependant il ne faut pas oublier, comme nous l'avons déjà signalé en page 16, que de telles croissances se font en conditions riches arsenic afin de limiter la désorption de ces atomes et la formation de gouttelettes de gallium. C'est pourquoi Patriarche *et al.* dès le début de leur étude sur les substrats compliants GaAs/GaAs [83–88] ont travaillé avec des températures situées au bas de la gamme sus-citée, entre 550

et 600°C (car la température limite d'évaporation non-congruente du GaAs est de 590°C sous vide ; elle est légèrement plus élevée sous atmosphère) ; d'autant qu'ils n'ont observé aucune amélioration de l'interface de collage pour des températures supérieures à 600°C (jusqu'à 730°C) [83]. Nous avons choisi quant à nous une température de recuit de 600°C, sous atmosphère d'azote (atmosphère inerte non oxydante).

Pour que les champs élastiques des dislocations des joints de grains soient sensibles en surface, nous avons travaillé avec des couches collées minces de 20 nm. Nous n'avons pas choisi des couches encore plus minces car Patriarche *et al.* [83] ont observé pour de telles couches des disparitions locales (sur plusieurs dizaines de nm<sup>2</sup>) du joint de grains ; ils ont imputé ces disparitions à la montée en température précédant les reprises de croissance par EJM sur leurs substrats compliant, qui avait pour but de désorber les oxydes de surface<sup>33</sup>. Des couches aussi minces sont bien sûr trop fragiles pour être manipulées. C'est pourquoi la couche mince à coller doit être épitaxiée sur un substrat sacrificiel en GaAs (Fig. 46), lequel est éliminé après collage. On le voit sur la figure 46, deux couches d'AlGaAs sont également

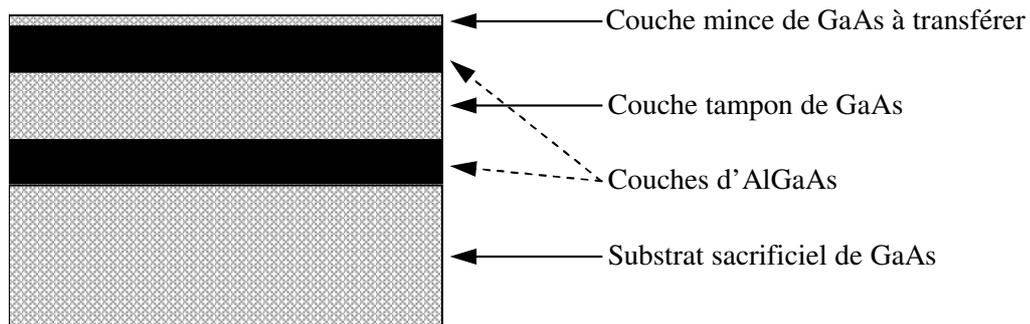


FIG. 46. Représentation schématique de la structure épitaxiée sur un substrat sacrificiel (ce schéma n'est pas à l'échelle).

épitaxiées ; ces couches serviront de couches d'arrêt pour la gravure chimique sélective humide permettant l'élimination du substrat sacrificiel (après collage et après amincissement du substrat sacrificiel par polissage).

### 3.2 Limitations du collage épitaxial de deux cristaux de GaAs

Le collage épitaxial de deux cristaux de GaAs présente certaines limitations inhérentes au matériau lui-même. Ainsi, contrairement au silicium, deux plaquettes de GaAs, aussi planes et désoxydées soient elles, n'adhèrent pas à température ambiante (seule une adhésion temporaire est parfois observée). Il est donc nécessaire d'appliquer une pression grâce à une

<sup>33</sup>De tels phénomènes d'instabilité des RDs ont également été étudiés par MET pour des collage de silicium sur silicium [90].

presse pour que les cristaux demeurent en contact lors du recuit.

Pour que le collage soit effectif sur toute la surface de contact, cette pression doit être répartie de manière homogène. Malheureusement, cela est difficile à réaliser sur de grandes surfaces : nos plaquettes de GaAs de 2 pouces de diamètre doivent donc être clivées ou sciées en des rectangles de dimensions plus petites. Cette dernière procédure est risquée car les débris de clivage ou de sciage peuvent endommager les surfaces et être à l'origine de zones non collées à l'interface. Une superficie réduite des échantillons est également une limitation pour les caractérisations et les croissances post-collage. En effet, pour préparer une lame mince pour des vues planes au MET, une surface d'au moins 3×3 mm avec peu de zones non collées est souhaitable (les grilles de MET font environ 3 mm de diamètre) ; si on veut de plus préparer également des coupes transverses selon deux directions, la surface restante de l'échantillon peut rapidement devenir très réduite, de sorte qu'une seule épitaxie (tout au plus) est possible sur ce qu'il reste de l'échantillon. Comme nous allons le voir maintenant, des échantillons trop petits sont également problématiques pour la croissance. Les croissances épitaxiales que nous avons réalisées l'ont été par EPVOM. Le porte-échantillon (appelé «suscepteur») du bâti d'EPVOM tourne à 1 400 tours/min ; les échantillons y sont maintenus sans substance adhésive, simplement grâce à une empreinte à peine plus grande qu'eux. L'empreinte la plus petite dont nous disposons est un carré d'un centimètre de côté. Par conséquent, un échantillon sur lequel on veut faire une croissance ne peut raisonnablement pas être beaucoup plus petit que cela, sous peine de le voir s'envoler lors de la rotation du suscepteur. Enfin, une utilisation ultérieure de ces croissances pour des composants nécessite des surfaces assez grandes : au moins un quart de plaque de 2".

D'autre part, le contrôle de l'angle de torsion peut aussi être perturbé par la pression appliquée : il n'est pas impossible que les deux cristaux superposés bougent légèrement entre eux à cause de cette dernière. Par conséquent, il peut sembler illusoire d'espérer un contrôle de l'angle de torsion avec une précision meilleure que 0,1°.

Dans la suite, nous allons décrire en détail toute la procure expérimentale du collage épitaxial ainsi que la manière dont nous nous sommes accommodés des limitations que nous venons de décrire dans cette section.

### **3.3 Les presses de collage**

#### **3.3.1 La presse à petits échantillons**

La première presse que nous avons utilisée (Fig. 47) permet d'obtenir des substrats composites d'environ 1 cm<sup>2</sup>. Il s'agit d'une presse constituée de trois pièces en graphite (le graphite est un matériau réfractaire : sa température de fusion est de 3 527°C) : (i) une

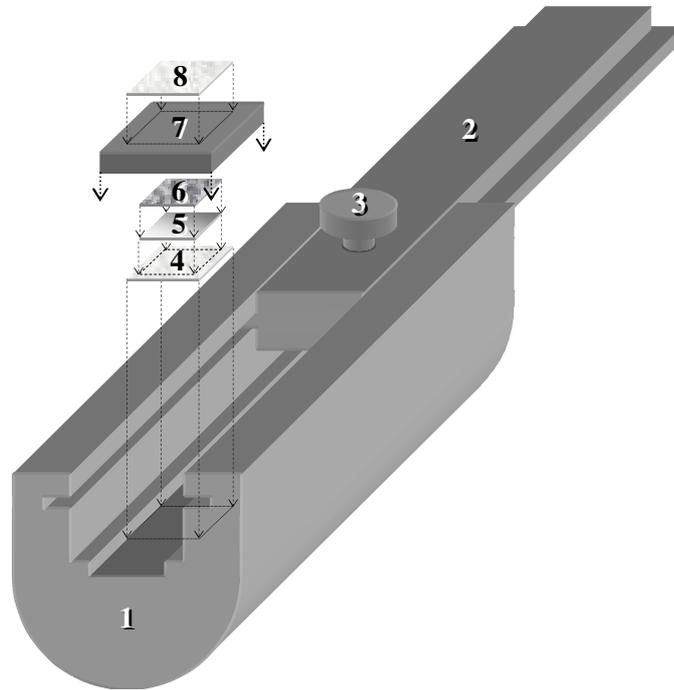


FIG. 47. Représentation schématique de la presse en graphite permettant de coller des échantillons d'environ  $1 \text{ cm}^2$ . Elle est constituée d'une coque (1), d'un couvercle coulissant (2) dans lequel vient se visser une vis (3) (tous trois en graphite). À l'intérieur de cette presse on empile une cale en silicium (4), les deux échantillons à coller (5 et 6; leurs faces polies sont en contact), une cale en graphite (7) et une cale en tungstène (8). On immobilise ensuite cet empilement grâce à la vis.

«coque» (numérotée 1 sur la figure 47) à l'intérieur de laquelle sont déposés les échantillons, (ii) un couvercle coulissant percé d'un trou circulaire dans les flancs duquel a été défini un pas de vis (n° 2) et (iii) une vis introduite dans ce trou (n° 3). Sur le fond plat de la coque, est disposé un morceau carré d'un substrat de silicium de  $500 \mu\text{m}$  d'épaisseur (n° 4) afin de disposer d'une surface parfaitement plane sur laquelle sont empilés les échantillons à coller (le silicium est inerte chimiquement à  $600^\circ\text{C}$  : sa température de fusion ( $1\,412^\circ\text{C}$ ) est supérieure à celle du GaAs ( $1\,240^\circ\text{C}$ )); la face non polie du substrat de silicium est dirigée vers le haut pour qu'il ne soit pas collé aux échantillons de GaAs lors du recuit. Sur les échantillons est superposée une cale en graphite de  $3 \text{ mm}$  d'épaisseur (n° 7) et une autre en tungstène (matériau réfractaire dont la température de fusion est de  $3\,695^\circ\text{C}$  et qui se dilate fortement – voir Tab. 1) de  $500 \mu\text{m}$  d'épaisseur (n° 8). La vis en graphite vient ensuite immobiliser cet empilement et exercer dessus une première pression. Lors du recuit, une pression supplémentaire va s'exercer dans l'axe de l'empilement parce que le graphite a

un coefficient de dilatation thermique inférieur à ceux des autres matériaux de l'empilement (Tab. 1). Cette pression permet de maintenir les échantillons à coller correctement en contact et de réduire les interstices entre les différentes pièces (n° 4-8) de l'empilement.

Connaissant les coefficients de dilatation thermique, les modules d'Young et les épaisseurs de ces pièces parallélépipédique de matériaux différents (Tab. 1), nous pouvons calculer

	C	W	GaAs	Si
$E$ (GPa)	4,8	410	85,5	47
$\alpha$ ( $\times 10^{-6} K^{-1}$ )	1,18	4,5	6,86	2,6
$e$ (mm)	3,0000	0,5000	1,0000	0,5000
$e_{T=600^\circ C}$ (mm)	3,0020	0,5013	1,0040	0,5007

TAB. 1. *Quelques caractéristiques des pièces empilées dans la presse de collage à petits échantillons : modules d'Young  $E$ , coefficients de dilatation thermique  $\alpha$ , épaisseurs  $e$  des pièces à température ambiante et épaisseurs  $e_{T=600^\circ C}$  à la température du recuit :  $600^\circ C$ .*

la pression  $P_T$  exercée, à une température  $T$  donnée, à cause des différences de dilatation thermique, dans l'hypothèse d'un contact parfait entre les pièces<sup>34</sup>. Pour résoudre ce problème, nous assimilons la presse (coque + couvercle + vis) à une cavité dont les flancs inférieurs et supérieurs sont en contact parfait avec les pièces inférieures et supérieures de l'empilement – nous négligeons donc la flèche possible des pièces empilées due au contact quasi ponctuel de la vis avec la pièce n° 8. La hauteur initiale  $H$  de cette cavité est la somme des épaisseurs  $e_i$  ( $i$  variant de 4 à 8 et désignant respectivement les pièces n° 4 à 8) des pièces à température ambiante, c'est-à-dire 5 mm. La hauteur  $H_T$  de cette cavité à la température  $T$  du recuit est donnée par  $H_T = H(1 + \Delta T \cdot \alpha_C)$ , où  $\Delta T$  est la différence entre la température  $T$  et la température ambiante ( $20^\circ C$ ), et  $\alpha_C$  est le coefficient de dilatation thermique du graphite ; soit  $H_T = 5,0034$  mm, pour  $T = 600^\circ C$ . De la même manière, on peut calculer les hauteurs qu'auraient les pièces de l'empilement à la même température si elles n'étaient pas compressées dans la presse : ces valeurs sont indiquées dans le tableau 1. La somme de ces hauteurs est supérieure à  $H_T$  ; c'est ce qui est à l'origine de la pression  $P_T$ . La différence entre cette somme et  $H_T$  vaut  $4,6 \mu m$ , ce qui veut dire que pour que les interstices entre les différentes pièces de l'empilement soient réduits, il faut que la somme des hauteurs des interstices soit inférieure à cette valeur ; d'où l'importance de la planéité des faces de ces pièces et de leur parallélisme. La presse étant bien plus massive

<sup>34</sup>Si le contact n'est pas parfait (et c'est le cas car les pièces de l'empilement ne peuvent pas être parfaitement planes), la pression réellement exercée sera bien sûr plus faible. La valeur que nous donnons dans la suite pour  $P_T$  est donc à prendre comme une borne supérieure de la pression réelle subie par les échantillons.

que les pièces de l'empilement, nous considérons qu'elle n'est pas déformée par la dilatation de ces dernières pendant le recuit et par conséquent que c'est elle qui impose la hauteur  $H_T$  de la cavité. Chaque pièce de l'empilement subit donc une compression  $\Delta e_i$  selon l'axe de l'empilement, reliée à la pression  $P_T$  par la loi de Hooke :  $\Delta e_i = \frac{P_T \cdot e_i}{E_i}$ . Finalement, la pression  $P_T$  vérifie la relation suivante :  $\sum_i e_i - \Delta e_i = H_T$ . On trouve  $P_T \sim 7$  MPa. Cette valeur peut être comparée à la cission à la limite élastique du GaAs qui est la contrainte minimale qu'il faut appliquer pour déformer plastiquement le matériau (par glissement de dislocations) : à 600°C, elle est de l'ordre de 2-3 MPa pour du GaAs non dopé [89] (comme nos échantillons). Pour mener à bien la comparaison, il faut d'abord ramener la pression  $P_T$  au système de glissement du GaAs en la multipliant par le facteur de Schmidt égal à 0,41 pour une compression selon la direction [100] (comme c'est le cas ici) ; la pression  $P'_T$  ainsi modifiée vaut environ 3 MPa (rappelons que la pression réelle est plus faible à cause des interstices entre les pièces de l'empilement). Cette pression est donc au plus de l'ordre de la cission à la limite élastique ; il est donc fort probable que les échantillons collés ne soient pas déformés plastiquement lors du recuit.

### 3.3.2 La presse à grands échantillons

Pour s'affranchir des problèmes liés aux petits substrats composites (voir page 72), nous avons conçu une presse permettant de coller des échantillons d'environ  $2,2 \times 2,2$  cm (près d'un cinquième de plaque de 2" ; Fig. 48). Cette presse n'est pas un simple agrandissement de la précédente (bien que le principe d'application de la pression soit le même) : elle est constituée de quatre parties indépendantes (n° 1a, 1b, 1c et 1d sur la figure 48) usinées séparément afin de contrôler au mieux la planéité des faces qui seront en contact avec l'empilement (les échantillons et les cales) ; ces quatre parties définissent une cavité. Elles sont assemblées grâce à des tenons introduits dans des mortaises (indiquées en trait discontinu sur le schéma). Ces tenons sont constitués d'un graphite qui se dilate légèrement plus que celui de la presse (lui-même identique à celui du « tiroir » n° 2, présenté plus loin) de sorte que la cohésion de l'assemblage est renforcée lors du recuit. Le « plafond » de la cavité est horizontal, tandis que le « plancher » est incliné de 5° par rapport à l'horizontale. À l'intérieur de cette cavité, on introduit un « tiroir » (n° 2) dont les faces planes inférieures et supérieures forment entre elles un angle de 5°, de sorte qu'une fois le tiroir introduit, le plancher et le plafond de la cavité qui subsiste sont tous deux horizontaux ; c'est à l'intérieur de cette cavité (donc sur le tiroir) que sont introduits des cales et les échantillons à coller. En introduisant plus ou moins le tiroir, on fait varier la hauteur de la cavité, tout en maintenant horizontaux son plancher et son plafond ; cela permet de coller des échantillons d'épaisseur variable ou de faire varier l'épaisseur des cales. Ces dernières (n° 5a et 5b) font

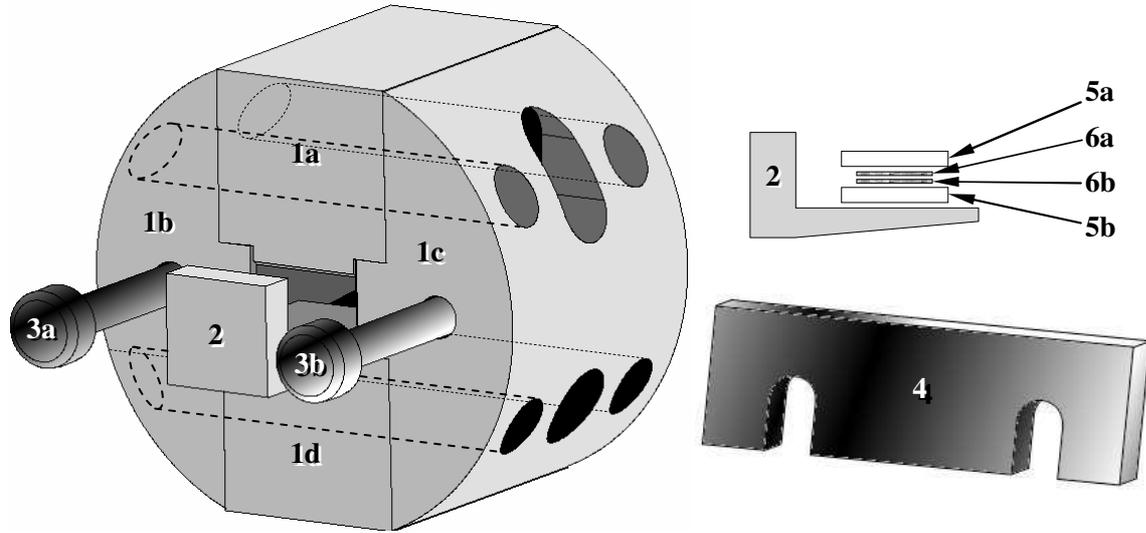


FIG. 48. Représentation schématique de la presse en graphite permettant de coller des échantillons d'environ  $4 \text{ cm}^2$ . Elle est constituée de quatre blocs de graphite (1a, 1b, 1c et 1d) assemblés grâce à des tenons insérés dans des mortaises (en trait discontinu). Ces quatre blocs définissent une cavité à l'intérieur de laquelle est introduit un tiroir (2) sur lequel sont empilés deux cales en MACOR® (5a et 5b) et les deux échantillons à coller (6a et 6b). Pour éviter l'expulsion du tiroir lors du recuit, une plaque en laiton (4) est vissée devant ce dernier grâce à des vis également en laiton (3a et 3b).

5 mm d'épaisseur et 3 cm de côté ; entre elles sont insérés les échantillons. Cette fois-ci, les cales sont en MACOR®, une céramique (constituée de fluor et d'oxydes de silicium, manganèse, aluminium, potassium et bore) qui se dilate fortement (coefficient de dilatation thermique :  $\alpha_{MACOR} = 11,4 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ), pour laquelle le fabricant garantit une température maximale d'utilisation de  $800^\circ\text{C}$  et qui est plus facile à usiner que le tungstène sur de grandes surfaces. Une fois les échantillons et les cales superposés sur le tiroir, nous faisons coulisser ce dernier dans la presse jusqu'à la butée, de sorte que l'empilement est immobilisé par un contact qui n'est plus ponctuel comme avec la vis de l'autre presse, mais réparti sur toute la surface de la cale supérieure. Cela garantit une pression plus homogène et, de plus, sur une grande surface. Pour éviter l'expulsion des cales, des échantillons et du tiroir lors du recuit (à cause de la dilatation des cales), une plaque en laiton (n° 4) est vissée (grâce aux vis n° 3a et n° 3b en laiton également) devant le tiroir. A une température de  $600^\circ\text{C}$ , l'empilement non contraint est de  $31,8 \mu\text{m}$  plus haut que la cavité de la presse (dans l'hypothèse d'échantillons de  $500 \mu\text{m}$  d'épaisseur). Cette valeur est, comme voulu, bien plus grande que

pour l'autre presse : comme il est d'autant plus difficile d'usiner des pièces aux faces planes et parallèles que celles-ci sont grandes<sup>35</sup>, les interstices à combler sont plus grands pour la presse ici considérée que pour la précédente.

De même que précédemment, nous pouvons calculer la pression exercée sur l'empilement lors du recuit, dans l'hypothèse d'un contact parfait entre les pièces (le module d'Young du MACOR<sup>®</sup> est  $E_{MACOR} = 63,8$  GPa) ; on trouve à 600°C :  $P_{T=600^\circ C} \sim 188$  MPa.

Nous l'avons dit, avec cette presse, nous parvenons à coller des échantillons sur toute la surface de contact (au moins 4 cm<sup>2</sup> ; une vingtaine de tests ont été effectués avec cette presse) : le collage résiste à l'amincissement par polissage mécanique (jusqu'à environ 20-30 μm) du substrat sacrificiel (voir page 85) ; de plus, même en clivant les échantillons collés, ceux-ci ne se séparent pas. Pourtant nous ne sommes pas parvenus à fabriquer des substrats composites de bonne qualité avec cette presse : après élimination des couches d'arrêt de gravure (voir page 86), seule une faible partie de la fine couche de GaAs à transférer subsiste. Des problèmes de pollution du four peuvent être invoquées pour expliquer cela<sup>36</sup> : la sélectivité des solutions de gravure chimique permettant l'élimination du substrat sacrificiel est très sensible au dopage. Néanmoins, la cause principale de la mauvaise qualité des substrats composites est certainement la pression appliquée : même après application du facteur de Schmidt la valeur que nous en avons calculé reste très supérieure à la cission à la limite élastique (on trouve  $P_T' \sim 78$  MPa). Il est donc fort probable que les échantillons collés subissent des déformations plastiques par des cisaillements selon les plans de glissements. La structure d'un substrat composite ainsi déformé, considérée au cours de la gravure chimique sélective de la couche tampon de GaAs (après élimination du substrat sacrificiel et de la première couche d'AlGaAs ; Fig. 46), est illustrée par la figure 49(a). Pendant cette gravure, après l'élimination totale de la couche tampon, la couche d'AlGaAs est légèrement gravée (mais beaucoup moins rapidement que le GaAs grâce à la sélectivité de la solution de gravure), de sorte que la fine couche collée de GaAs sous-jacent peut être localement gravée à un endroit où à eu lieu un cisaillement (Fig. 49(b)). Si les déformations plastiques sont nombreuses, cela peut expliquer le mauvais état de surface des substrats composites obtenus avec la grande presse. Il semblerait donc que la pression appliquée avec cette presse soit trop forte. Cependant on n'est peut-être pas très au-dessus de la limite de déformation plastique car il suffit que l'on tourne l'une des cales en MACOR<sup>®</sup> d'un quart de tour par rapport à la configuration habituelle pour que les cristaux ne se collent plus ou simplement sur une faible portion de leur surface : dans cette configuration, les interstices entre les pièces

<sup>35</sup>Nous en avons fait l'expérience car nous avons plusieurs fois repris la planéité et le parallélisme des faces des cales en MACOR<sup>®</sup> avant d'obtenir des collages effectifs sur toute la surface de contact des échantillons.

<sup>36</sup>En effet, la grande presse étant trop volumineuse pour être introduite dans le four dédié au collage épitaxial, utilisé avec la petite presse, nous avons été obligés d'utiliser un four à usage plus général.

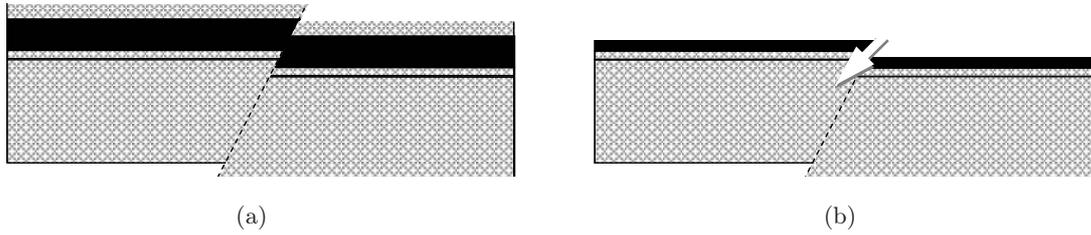


FIG. 49. (a) Un substrat composite déformé plastiquement par un cisaillement, considéré pendant la gravure chimique sélective de la couche tampon de GaAs. En partant du bas, on voit le substrat hôte de GaAs, la fine couche collée de GaAs, une couche d'arrêt de gravure d'AlGaAs (en noir) et la couche tampon de GaAs en cours de gravure. (b) Le même substrat pendant la même gravure, peu de temps après : la couche d'AlGaAs a été légèrement gravée et la solution de gravure commence à attaquer localement (au niveau de la flèche blanche) la fine couche collée de GaAs sous-jacente.

de l'empilement sont donc trop hauts pour pouvoir être réduits par l'application de la pression. On peut espérer éviter la déformation plastique des échantillons en reprenant la configuration d'empilement permettant le collage sur toute la surface de contact, mais en réduisant la température afin de réduire la pression appliquée ; de plus, à température plus basse, il sera moins probable de dépasser la cission à la limite élastique car elle est alors plus forte. Ainsi, pour une température de collage de  $500^{\circ}\text{C}$  par exemple, la pression  $P_T$  calculée vaut environ 155 MPa (cette valeur permet de réduire des interstices d'une épaisseur totale égale au maximum à  $26,3 \mu\text{m}$ ) ; après application du facteur de Schmidt, on obtient  $P'_T \sim 64 \text{ MPa}$ . A cette température, la cission à la limite élastique du GaAs est de l'ordre de 5 MPa [89]. Il faut donc espérer que la pression réelle appliquée soit inférieure à cette valeur. Si des échantillons collés à cette température sont toujours déformés plastiquement, il faudra réduire l'épaisseur d'au moins l'une des cales en MACOR<sup>®</sup>.

### 3.4 Contrôle des angles de flexion et de torsion

Nous l'avons vu en page 56, le contrôle des périodes des réseaux de dislocations doit passer par le contrôle des désorientations entre les deux cristaux collés, flexion et torsion.

Le contrôle de la flexion est assuré par le contrôle de la vicinalité des substrats que notre fournisseur certifie à  $0,1^{\circ}$  près. Cette vicinalité est imposée par rapport au plan (100) vers la direction  $[0\bar{1}0]$ . L'angle de flexion dépend de la vicinalité des deux cristaux en contact et de l'angle  $2\alpha$  que forment entre elles les plus grandes pentes de leurs surfaces (Fig. 50). L'axe

de la flexion est la direction du plan de l'interface qui est normale à la bissectrice des plus grandes pentes sus-citées. L'angle de flexion est la somme des vicinalités des deux surfaces

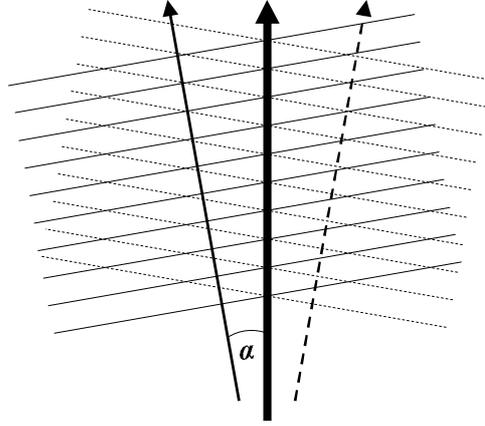


FIG. 50. Représentation schématique des marches atomiques de deux surfaces vicinales en contact (en trait continu et discontinu). L'orientation des plus grandes pentes de ces surfaces est indiquée par les flèches fines. L'axe de flexion est normal à leur bissectrice (flèche épaisse) et est contenu dans le plan de l'interface.

en contact considérées dans le plan normal à l'interface et bissecteur des plus grandes pentes des surfaces (plan hachuré de la figure 51). La vicinalité du cristal supérieur de la figure 51 dans ce plan est  $\theta' = \arctan(\cos \alpha \tan \theta)$ , où  $\theta$  est sa vicinalité selon sa plus grande pente. Dans le cas d'un joint de grains symétrique (c'est-à-dire lorsque les deux cristaux ont des angles de vicinalité  $\theta$  identiques), l'angle de flexion  $\theta_{flexion}$  vaut deux fois cette valeur :

$$\theta_{flexion} = 2 \arctan(\cos \alpha \tan \theta) . \quad (21)$$

Le contrôle de l'angle de torsion est assuré en superposant et en alignant les côtés de deux cristaux : au préalable, l'un d'eux a simplement été clivé selon les directions naturelles  $[011]$  de clivage, tandis que les côtés de l'autre ont été définis par sciage selon des directions désorientées de l'angle de torsion voulu par rapport aux directions  $[011]$ . Cette méthode nous a permis d'obtenir une précision de  $0,1^\circ$ .

## 3.5 Description détaillée et optimisation de la procédure expérimentale

### 3.5.1 Structure épitaxiée sur un substrat sacrificiel

La première étape de la procédure consiste à faire croître par EPVOM sur le substrat sacrificiel les couches d'arrêt de gravure et la couche de GaAs à transférer (Fig. 46, page 71).

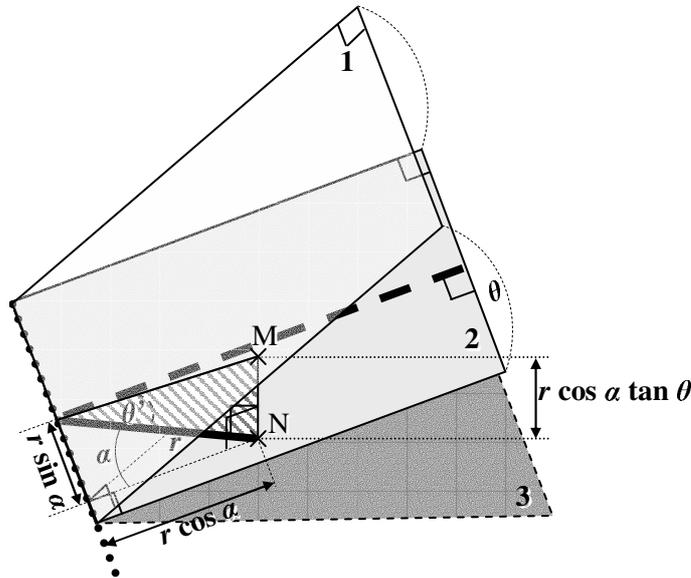


FIG. 51. Représentation schématique de l'interface (plan 2, en gris clair) entre deux cristaux dont les surfaces en contact sont vicinales par rapport à (100). De part et d'autre de cette interface, sont représentés un plan (100) de chaque cristal (plan 1 en blanc et plan 3 en gris sombre). Le cristal supérieur possède une vicinalité d'angle  $\theta$  autour de l'axe pointillé épais et l'orientation de sa plus grande pente est signifiée par le trait discontinu épais. La bissectrice des plus grandes pentes des surfaces en contact est signifiée par le trait épais continu; elle forme un angle  $\alpha$  avec chacune des plus grandes pentes. Les points M et N appartiennent respectivement aux plans 1 et 2. Le plan normal à l'interface coupant cette dernière selon la bissectrice sus-citée est hachuré. La vicinalité du cristal supérieur selon ce plan est  $\theta'$ .

Nous l'avons dit (page 71), cette dernière fait 20 nm d'épaisseur. Les couches d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  font environ 300 nm d'épaisseur et la couche tampon de GaAs qui les sépare, environ 480 nm. Après différents tests avec des couches d'AlGaAs de différentes compositions en aluminium, nous avons retenu une concentration  $x$  élevée pour avoir une bonne sélectivité de gravure chimique du GaAs par rapport à l'AlGaAs [91], 90% (valeur mesurée par diffraction de rayons X).

### 3.5.2 Clivage ou sciage des échantillons à coller

Si l'on veut que l'angle de torsion soit contrôlé, il faut ensuite scier l'un des cristaux à coller. Au préalable, la surface de ce cristal doit être protégée contre les éclats du sciage.

Pour cela, plusieurs solutions ont été expérimentées.

Nous avons d'abord tenté de protéger la surface avec de la cire «Sticky Wax» rouge. Une fois la cire étalée sur l'échantillon de test, celui-ci a été scié grâce à une scie ESEC® Dicing Saw 8003 qui permet un contrôle en angle - nous avons repéré les angles à imposer par rapport à un bord clivé. Mais le résultat escompté n'était pas au rendez-vous : d'une part, des éclats de substrat ont tout de même endommagé la surface et d'autre part, comme on le verra plus loin (page 87), nous nous sommes aperçu que la cire laisse des dépôts que l'on ne parvient pas à éliminer malgré un nettoyage très poussé (Fig. 52).

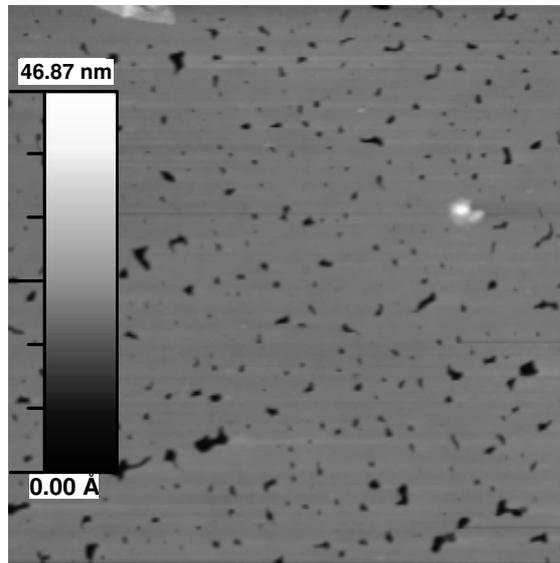


FIG. 52. Image AFM ( $4 \times 4 \mu\text{m}$ ) après sciage et retrait de la cire Sticky Wax protectrice. Les zones noires sont des trous de plusieurs nanomètres de profondeur dus à des éclats de sciage et les zones blanches sont des restes de cire.

Nous avons alors voulu protéger la surface de nos cristaux grâce à de la résine AZ5214<sup>37</sup>. Celle-ci a été étalée sur l'échantillon de test de manière homogène grâce à une tournette et a été durcie par un recuit d'une minute à  $120^\circ\text{C}$ . On voit sur la figure 53 que la résine permet effectivement de protéger la surface des substrats contre les débris causés par la scie : après sciage, retrait de la résine et nettoyage, on ne voit aucun trou en surface. Cependant il subsiste quelques dépôts localisés de résine (les points blanchâtres) malgré une procédure de nettoyage méticuleuse – ces dépôts sont tout de même moins gros que ceux subsistant après une protection de surface avec la Sticky Wax : la rugosité RMS (voir l'annexe C, page 141) n'est que de 0,38 nm alors qu'elle était initialement de 0,24 nm. Un autre problème est

<sup>37</sup>Il s'agit d'une résine photosensible couramment utilisée pour la technologie des semiconducteurs – propriété qui évidemment n'est d'aucune utilité ici.

le changement de la morphologie de surface : sur l'image (a) on voit des marches atomiques alors que sur l'image (b) on ne les voit plus et la surface est devenue plus rugueuse. Il est peu probable que ce soit un dépôt homogène de résine vu que cette dernière est couramment utilisée dans la technologie des semiconducteurs. Il semblerait donc que la résine rugosifie légèrement une surface de GaAs. D'autre part, nous avons constaté que ces résultats ne sont pas modifiés si la résine n'est pas recuite.

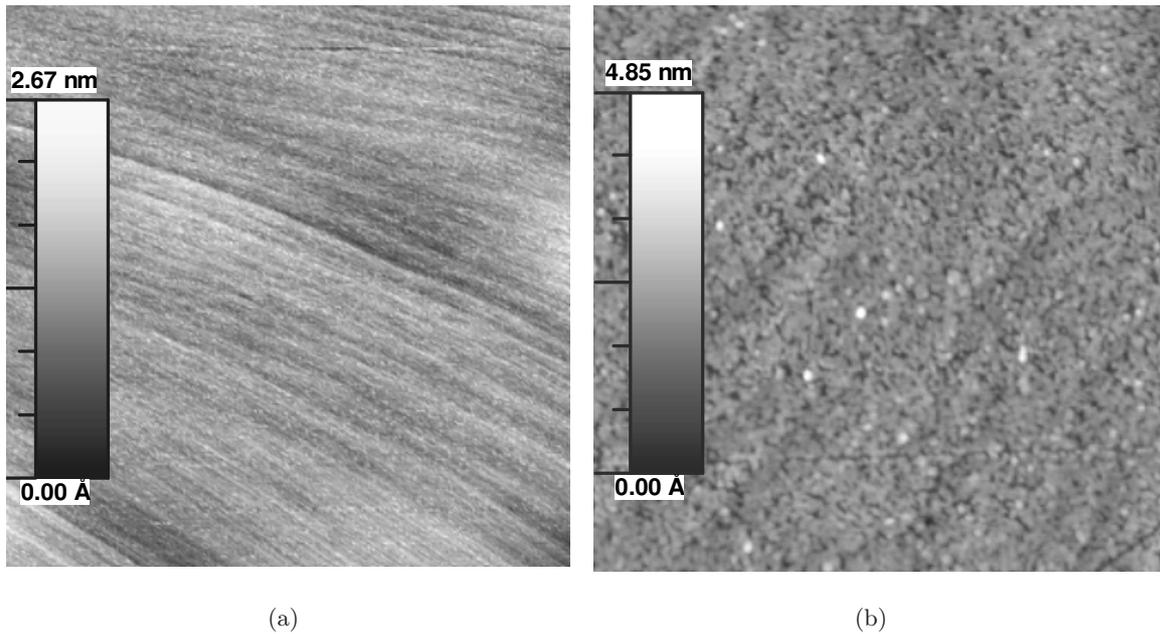


FIG. 53. Images AFM ( $1 \times 1 \mu\text{m}$ ) d'un même substrat (a) avant et (b) après sciage et retrait de la résine protectrice AZ5214. Sur l'image (a), la rugosité RMS est de 0,24 nm et sur l'image (b), elle est de 0,38 nm.

Enfin, nous avons tenté de protéger la surface de nos cristaux grâce à un dépôt de 300 nm de nitrure de silicium  $\text{Si}_3\text{N}_4$  amorphe. Comme on peut le voir sur la figure 54, après sciage et élimination du nitrure pendant dix minutes dans un bain d'acide fluorhydrique à 2%, on retrouve l'état de surface initial avec quelques rares dépôts localisés de dimensions bien inférieures à ceux laissés avec les autres méthodes de protection de surface. L'échantillon de cette figure est un substrat vicinal sur lequel ont été déposées les couches d'arrêt de gravure chimique sélective et la couche de GaAs à coller. On voit que sa surface possède des ondulations à grande échelle (qui apparaissent sous la forme d'une légère rugosité au microscope optique). Ces ondulations n'existent pas sur le substrat d'origine et apparaissent donc au cours de la croissance des couches d'arrêt, peut être à cause d'un problème de désorption de l'oxyde de surface lors de la montée en température précédant l'épitaxie. Ce problème n'a pas pu être éliminé, mais nous sommes tout de même parvenus à en limiter

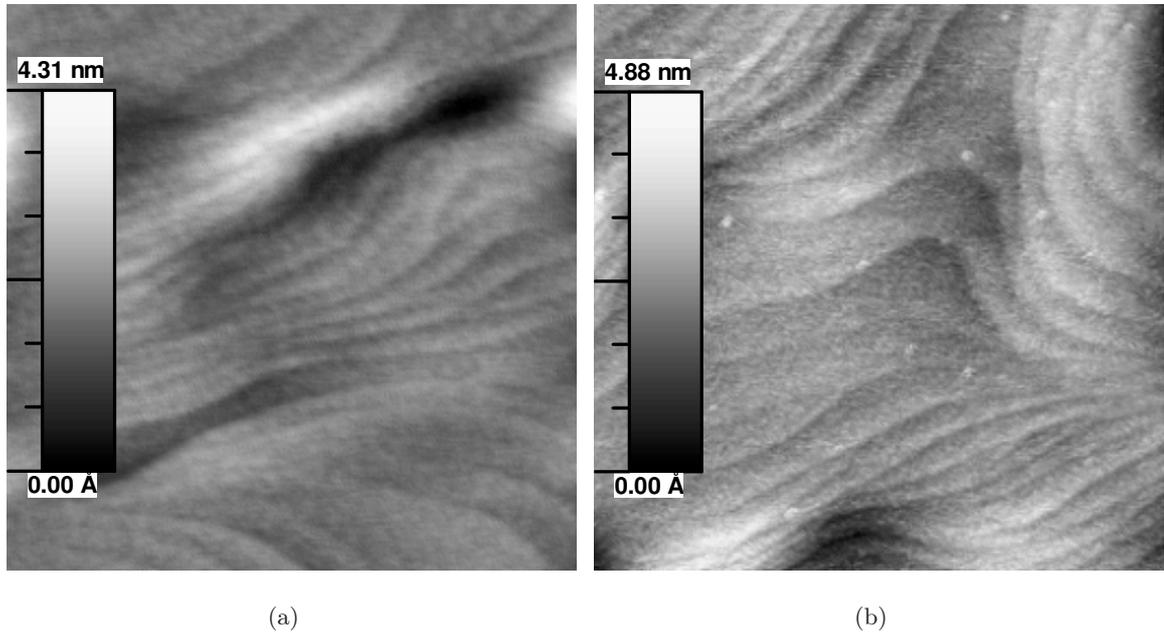


FIG. 54. Images AFM ( $1 \times 1 \mu\text{m}$ ) d'un même substrat (a) avant et (b) après sciage et retrait du nitrure de silicium protecteur.

l'ampleur grâce à un recuit plus long avant l'épitanie (10 minutes à  $720^\circ$  au lieu de 7) de sorte que nous sommes passés d'une rugosité RMS supérieure à 2 nm à une rugosité inférieure à 0,8 nm. Néanmoins, dans tous les cas, la rugosité des surfaces de nos substrats composites n'empêche pas le collage : à la température de collage, le transport de matière semble être suffisant pour que la jonction entre les deux cristaux à coller se fasse sur la majeure partie de leur interface. Toutefois, à cause de cette rugosité, des interstices sont présents entre deux substrats mis en contact pour être collés. Lors du recuit, nous l'avons dit, un transport de matière s'opère pour former la jonction entre les cristaux ; grâce à ce transport de matière, les interstices se regroupent en cavités. La plupart de ces cavités sont nanométriques. On voit ces petites cavités sur des images de MET des interfaces de collage (voir page 92 et suivantes) ; elles sont de forme grossièrement sphérique avec souvent un diamètre inférieur à 40 nm (la plupart d'entre elles ne perce pas la fine couche de GaAs collée). Des cavités macroscopique qui, elles, sont visibles au microscope optique et qui percent la fine couche collée se forment également (Fig. 55).

Pour ce qui est de la procédure de clivage, nous avons pris des précautions toutes particulières afin de limiter les éclats créés et les dégâts dont ils sont responsables sur les surfaces. Comme on peut le voir sur la figure 55, cette opération est critique pour la qualité des substrats composites. Après amélioration de la procédure de clivage et de nettoyage (lequel favorise notamment l'élimination des éclats de clivage ; voir la sous-section 3.5.3), l'état de

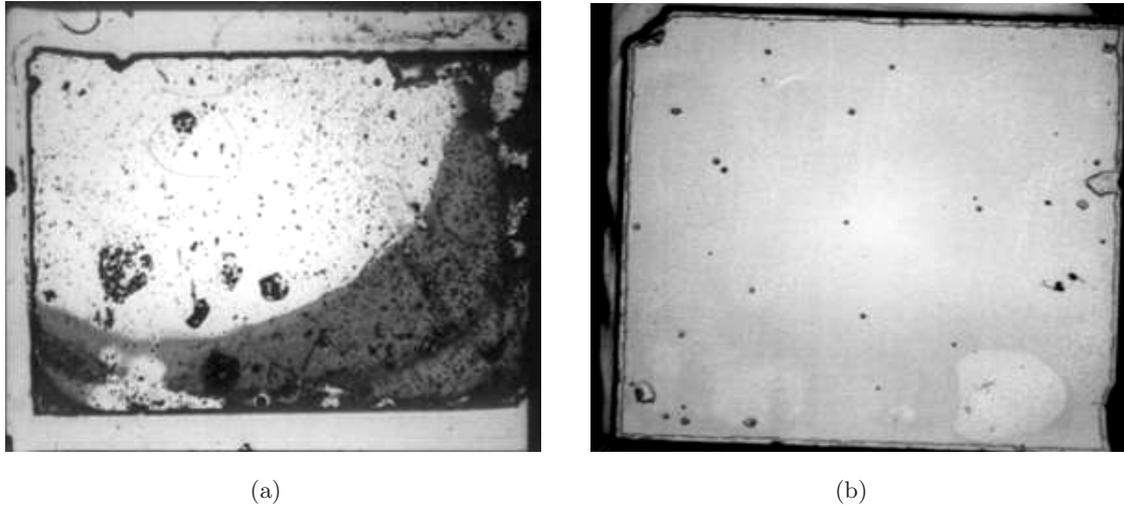


FIG. 55. Images de microscopie optique de deux substrats composites après élimination du substrat sacrificiel et des couches d'arrêt de gravure (on voit au centre la couche mince collée de forme rectangulaire et autour les contours du substrat hôte) : l'un avant (à gauche) et l'autre après (à droite) amélioration de la procédure de clivage et de nettoyage. Pour chaque substrat composite, les deux cristaux collés ont été clivés et non sciés ; les défauts de surface que l'on voit sont des zones où la couche mince n'a pas collé à cause des dégâts occasionnés par le clivage ou de cavités résultant d'interstices piégés à l'interface de collage. Ces substrats font environ 1 cm de côté.

surface des substrats composites dont les cristaux collés ont été clivés est devenu similaire à ceux dont les cristaux, protégés avec du nitrure de silicium, ont été sciés.

### 3.5.3 Nettoyage des cristaux à coller

Après que les cristaux ont été sciés et/ou clivés aux dimensions imposées par la presse (voir page 72), on passe au nettoyage des cristaux à coller. Nous venons de le dire, cette étape est critique car elle permet notamment de se débarrasser au mieux des éclats de clivage.

La procédure que nous avons retenue, après plusieurs tests, est décrite dans la suite. Les deux cristaux passent trois minutes dans trois bains de trichloréthylène : un premier avec ultra-sons, un deuxième chauffé à environ 100° et un dernier à température ambiante. Suivent deux bains d'acétone, deux bains d'isopropanol et un bain à remous d'eau désionisée (de trois minutes chacun). Les cristaux passent dans cet ordre-là dans les solvants et l'eau car le trichloréthylène est miscible dans l'acétone, l'acétone dans l'isopropanol et l'isopropanol dans l'eau.

### 3.5.4 Désoxydation des cristaux à coller

Les surfaces sont ensuite désoxydées grâce à une solution d'acide chlorhydrique à 5% pendant 2,5 minutes, rincées dans un bain à remous d'eau désionisée pendant 10 secondes et séchées. Cette durée de désoxydation est suffisante pour que les surfaces deviennent hydrophobes, prouvant ainsi qu'elles ont bien été désoxydées. D'autre part, Song *et al.* [92] ont montré qu'un rinçage aussi court suffit et qu'en revanche, pour des durées plus longues, les surfaces de GaAs s'oxydent à nouveau. Enfin nous n'avons pas retenu des solutions d'acide chlorhydrique plus concentrées car elles gravent légèrement le GaAs – suffisamment pour faire disparaître la couche mince que l'ont veut coller (comme nous l'ont montré des coupes transverses de MET).

### 3.5.5 Superposition des cristaux dans la presse et recuit

Après la désoxydation, les cristaux sont plongés dans un bain de méthanol afin de limiter la ré-oxydation de leurs surfaces, mais aussi de faciliter leur superposition. En effet, lorsque l'on essaye de les superposer juste après la désoxydation, leurs surfaces glissent l'une sur l'autre et il est impossible de bien aligner leurs bords : le moindre mouvement (lors de l'empilement des cales par exemple) les fait bouger. En revanche, si un liquide (tel que le méthanol) est présent à leur interface, ils demeurent empilés l'un sur l'autre grâce à la force de tension de surface du liquide et une fois que l'alignement de leurs bords est réalisé (contre une pièce à face verticale plane), une simple pression avec une pince suffit à les immobiliser l'un par rapport à l'autre tant que le liquide à l'interface ne s'est pas entièrement évaporé. L'adhésion dure un temps suffisant pour que l'on puisse empiler les cales et introduire le tout dans la presse sans risquer de perturber l'alignement entre les cristaux. Nous avons choisi le méthanol car c'est un solvant très volatile qui disparaît donc très rapidement dans le four.

La presse est ensuite introduite dans un four balayé par un flux d'azote. L'enceinte du four est d'abord maintenue à température ambiante pendant 15 minutes pour évacuer le méthanol et l'air introduit lors de l'ouverture. Suit une montée en température de 40°C/min jusqu'à 600°C, puis le recuit proprement dit à cette même température pendant une heure et la descente en température par refroidissement naturel du four.

### 3.5.6 Elimination du substrat sacrificiel et des couches d'arrêt de gravure

#### 3.5.6.1 Amincissement par polissage

Après le recuit, le substrat sacrificiel est tout d'abord aminci par polissage mécanique jusqu'à une épaisseur d'environ 30  $\mu\text{m}$ . Pour les échantillons d'environ 1  $\text{cm}^2$ , les substrats

sacrificiels (collés à la cire sur un support plan) étaient amincis manuellement sur un papier abrasif humidifié avec de l'eau. Sur ces échantillons, nous parvenions à des amincissements homogènes : l'écart maximal d'épaisseur sur une distance d'un centimètre était de l'ordre de 5  $\mu\text{m}$ . Quand nous avons voulu passer à des échantillons plus grands (environ 4  $\text{cm}^2$ ), il est tout de suite apparu que nous ne pourrions pas obtenir des amincissements suffisamment homogènes sur d'aussi grandes surfaces avec le même dispositif (en particulier à cause de la surface limitée du support et d'effets d'amincissement plus important sur les bords). C'est pourquoi nous avons utilisé une polisseuse mécanique Presi® P320 avec une solution de poudre d'alumine 3  $\mu\text{m}$  diluée dans de l'eau en guise de matériau abrasif. Les écarts maximaux d'épaisseur sur les substrats sacrificiels amincis de la sorte sont similaires à ceux de la précédente méthode, mais sur des distances allant jusqu'à 3 cm.

### **3.5.6.2 Gravure chimique sélective**

Pour graver le reste du substrat sacrificiel de GaAs on utilise une solution obtenue par dissolution de 50 grammes d'acide citrique en poudre dans 50 ml d'eau désionisée et ajout de 20 ml d'eau oxygénée ( $\text{H}_2\text{O}_2$ ); elle est de plus homogénéisée grâce à un barreau magnétique tournant (car très visqueuse) et chauffée à environ 50°C. Il s'agit d'une solution de gravure sélective du GaAs par rapport à l'AlGaAs<sup>38</sup>, dont la vitesse de gravure est de l'ordre de 30 microns par heure. Ensuite, l'échantillon est rincé dans un bain à remous d'eau désionisée pendant 10 minutes (à cause de la viscosité de la solution de gravure, un temps de rinçage aussi long est nécessaire pour bien l'éliminer). Puis, la couche d'AlGaAs mise à nu est éliminée par une solution d'acide fluorhydrique à environ 5% (sélective par rapport au GaAs), dans laquelle l'échantillon trempe 4 minutes. Suit un bref rinçage à l'eau désionisée. Les mêmes opérations sont répétées pour éliminer la couche tampon de GaAs et l'autre couche d'AlGaAs, de sorte qu'il ne subsiste que la couche mince de GaAs, de 20 nm d'épaisseur, collée sur le substrat hôte. Pour terminer, l'échantillon est séché.

Nous collions à la cire Sticky Wax fondue nos premiers échantillons sur une lamelle de verre pour les tremper dans les différents bains que nous venons de décrire (la lamelle n'était que faiblement attaquée lors du trempage dans le bain d'acide fluorhydrique). La cire était ensuite dissoute dans plusieurs bains de trichloroéthylène. Nous pensions l'avoir ainsi totalement éliminée et en effet, des observations au microscope optique ne montraient aucun résidu. Pourtant nous avons observé en AFM des bosses sur les surfaces qui résistaient à tous les nettoyages. Nous avons pu attribuer ces bosses à des redépôts de cire, laquelle se trouvait pourtant sur l'autre face de l'échantillon (côté non poli) : en figure 56, on voit une image AFM d'un substrat de GaAs n'ayant subi aucun traitement (56(a)) et une autre d'un substrat de

---

<sup>38</sup>Les proportions de ses constituants résultent de l'expertise de Cristelle Mériadec et de Gilles Patriarche acquise lors de leur étude sur les substrats compliant.

GaAs collé à la cire sur une lamelle de verre, puis décollé et nettoyé précautionneusement ; on voit clairement qu'il subsiste des dépôts de plusieurs nanomètres de hauteur. C'est pourquoi

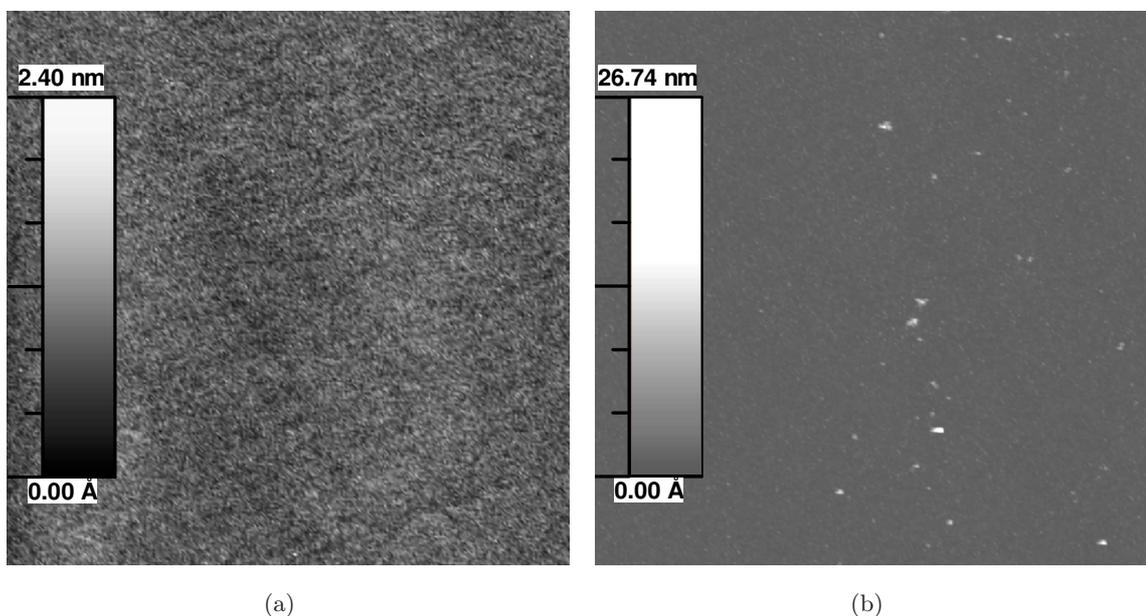


FIG. 56. Images AFM ( $4 \times 4 \mu\text{m}$ ) (a) d'un substrat de GaAs n'ayant subi aucun traitement et (b) d'un substrat de GaAs collé à la cire sur une lamelle de verre, puis décollé et nettoyé précautionneusement. Les points blancs sont des résidus de cire.

nous nous passons dorénavant de cire : nous utilisons des nacelles à la place (en verre pour les gravures dans les solutions à l'acide citrique et en polypropylène pour les gravures à l'acide fluorhydrique). Nous parvenons ainsi à obtenir des substrats composites dont les surfaces sont de qualité comparable à celles de substrats de GaAs standards : la rugosité RMS du substrat composite imagé en figure 57 est de 0,28 nm alors que celle du substrat de GaAs de la figure 56 par exemple est de 0,22 nm.

### 3.6 Synthèse

En résumé, après optimisation des conditions expérimentales de préparation des échantillons à coller et d'élimination du substrat sacrificiel, nous parvenons à obtenir des substrats composites dont les surfaces sont de bonne qualité pour des reprises de croissance. Dans la suite, nous allons d'abord étudier les joints de grains de ces substrats composites, puis finalement les reprises de croissance.

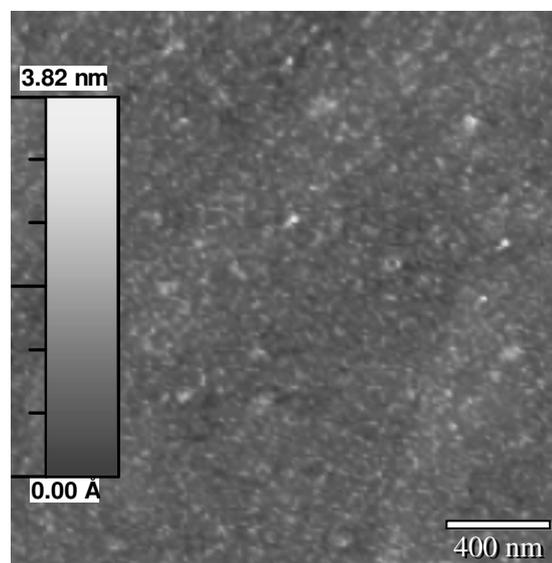


FIG. 57. Image AFM de la surface d'un substrat composite (après élimination du substrat sacrificiel et des couches d'arrêt de gravure chimique sélective).

# Etude de réseaux de dislocations réels

## Sommaire du chapitre

---

<b>4.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>89</b>
<b>4.2</b>	<b>Mesure de l'angle de torsion sur un cliché de diffraction électronique</b>	<b>90</b>
<b>4.3</b>	<b>Première approche pour la description des réseaux de dislocations réels</b>	<b>91</b>
<b>4.4</b>	<b>Des interactions entre dislocations</b>	<b>94</b>
4.4.1	Présentation du joint de grains considéré	94
4.4.2	Un réseau rectangulaire de dislocations vis	96
4.4.3	Désorientations des dislocations vis par rapport aux directions $[011]$	98
4.4.4	Analyse globale des réseaux de dislocations	100
4.4.5	Synthèse de la section 4.4	105
<b>4.5</b>	<b>Création de joints de grains à géométrie bidimensionnelle simple et périodique</b>	<b>106</b>
4.5.1	Idée de base	106
4.5.2	Mise en œuvre de cette idée	106
4.5.3	Synthèse de la section 4.5	112
<b>4.6</b>	<b>Synthèse du chapitre</b>	<b>112</b>

---

## 4.1 Introduction

Après avoir vu en détail la procédure de collage épitaxial, nous allons maintenant étudier par MET les RDs que nous avons obtenus. Nous mettrons en évidence dans ce chapitre que les RDs réels peuvent présenter des différences notables par rapport aux RDs idéaux présentés au chapitre 2 de cette partie (page 53 et suivantes).

## 4.2 Mesure de l'angle de torsion sur un cliché de diffraction électronique

Avant de nous intéresser à la description de nos joints de grains réels, il est utile de savoir comment il est possible de mesurer l'angle de torsion entre deux cristaux collés en utilisant un cliché de diffraction électronique.

La figure 58 présente un portion d'un cliché de diffraction pris en axe de zone  $[100]$ , d'un substrat composite. Chacun des deux cristaux de GaAs collés diffracte le faisceau d'électrons

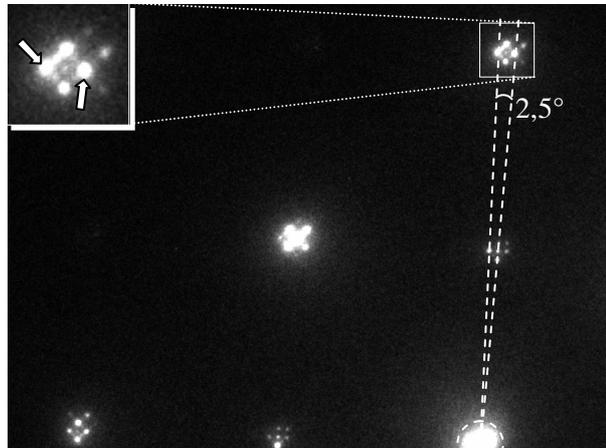


FIG. 58. Cliché de diffraction électronique en axe de zone  $[100]$  d'un substrat composite. On y mesure un angle de torsion de  $2,5^\circ$ . L'insert de gauche est un agrandissement du groupe de taches encadrées. Une tache  $004$  de diffraction simple de chacun des deux cristaux collés y est pointée; les autres taches sont dues à la double diffraction.

incident. Il n'y a aucun désaccord de maille entre ces cristaux; donc si de plus il n'y avait aucune désorientation entre eux, leurs taches de diffraction respectives se superposeraient sur le cliché. Mais ce n'est pas le cas. Le faisceau d'électrons incident est quasiment normal à l'interface de collage, dans les conditions de diffraction de la figure 58. Or l'angle de flexion est faible car la vicinalité des cristaux collés est faible. C'est pourquoi cette désorientation n'engendre pas un décalage suffisant des taches de diffraction dans le plan focal (plan où est pris le cliché de diffraction et qui est aussi normal au faisceau incident d'électrons) pour pouvoir être observé. En revanche, la torsion entre les deux cristaux peut donner lieu à un décalage observable car son axe est normal (ou quasiment normal) au plan focal. C'est la cas ici : on observe deux réseaux carrés de taches désorientés l'un par rapport à l'autre, autour du faisceau transmis (entouré en trait pointillé blanc sur la figure 58), de l'angle de torsion. Des taches dues à la double diffraction (c'est-à-dire la diffraction successive des électrons

sur les deux cristaux) sont également visibles. A cause de ce phénomène, des réseaux carrés secondaires de taches (de même période que celle des taches de diffraction simple, car elle est imposée par le paramètre de maille) apparaissent ; les origines de ces réseaux sont non plus le faisceau transmis, mais chacune des taches de diffraction simple du premier cristal traversé par les électrons transmis – il en résulte des taches organisées en un réseau carré de petite période à proximité de chaque groupe de taches de diffraction simple. On peut facilement identifier les différentes taches observées sur un cliché de diffraction électronique et ainsi mesurer l'angle de torsion (Fig. 58).

### 4.3 Première approche pour la description des réseaux de dislocations réels

Comme nous l'avons déjà remarqué, nos joints de grains faiblement enterrés accommodent à la fois une torsion et une flexion entre les deux cristaux collés (voir page 67). On pourrait s'attendre à ce que ces joints soient une simple superposition des RDs idéaux que nous avons décrit en page 54 et suivantes : un réseau 2D carré de dislocations vis pour l'accommodation de la torsion et un réseau 1D de dislocations mixtes pour l'accommodation de la flexion.

C'est bien ce que l'on observe de prime abord pour de nombreux échantillons. Ainsi, les images de la figure 59 montrent les différents réseaux de dislocations d'un même échantillon pour lequel l'angle de flexion  $\theta_{flexion}$  est très inférieur à l'angle de torsion  $\theta_{torsion}$  (les échantillons qui vérifient cette dernière relation appartiennent à ce que nous appellerons le type 1 ; nous nommerons cet échantillon 1-a) ; des cavités d'interface ou des précipités résultant respectivement de la non planéité des surfaces mises en contact ou de la présence d'impuretés sont également visibles (dans la suite, nous désignerons ces «objets» par le seul terme *cavités*, puisque dans les deux cas il s'agit de cavités qui sont ou non remplies). Des vues planes de MET en conditions de deux ondes 022 nous ont montré que, sur l'ensemble de nos substrats composites, seul un maximum de 5% de ces cavités émergent parfois en surface. Elles ne devraient donc que très peu perturber la croissance.

Les images (a) et (b) (prises avec deux vecteurs de diffraction  $\mathbf{g}$  orthogonaux<sup>39</sup>) mettent en évidence respectivement les deux réseaux 1D formant le réseau carré de dislocations vis. Le contraste engendré par des défauts tels que les dislocations, observé sur des images de MET (en particulier en faisceau faible 022), est dû à des déformations locales du cristal et donc à des changements des conditions de diffraction de Bragg. C'est pourquoi le contraste des dislocations vis est d'autant plus fort que le produit vectoriel  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b}$  est fort [93] (on se

---

<sup>39</sup> $\mathbf{k}$  et  $\mathbf{k}'$  étant les vecteurs d'ondes des ondes incidente et diffractée respectivement,  $\mathbf{g}$  est un vecteur du réseau réciproque défini par  $\mathbf{g} = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$ .

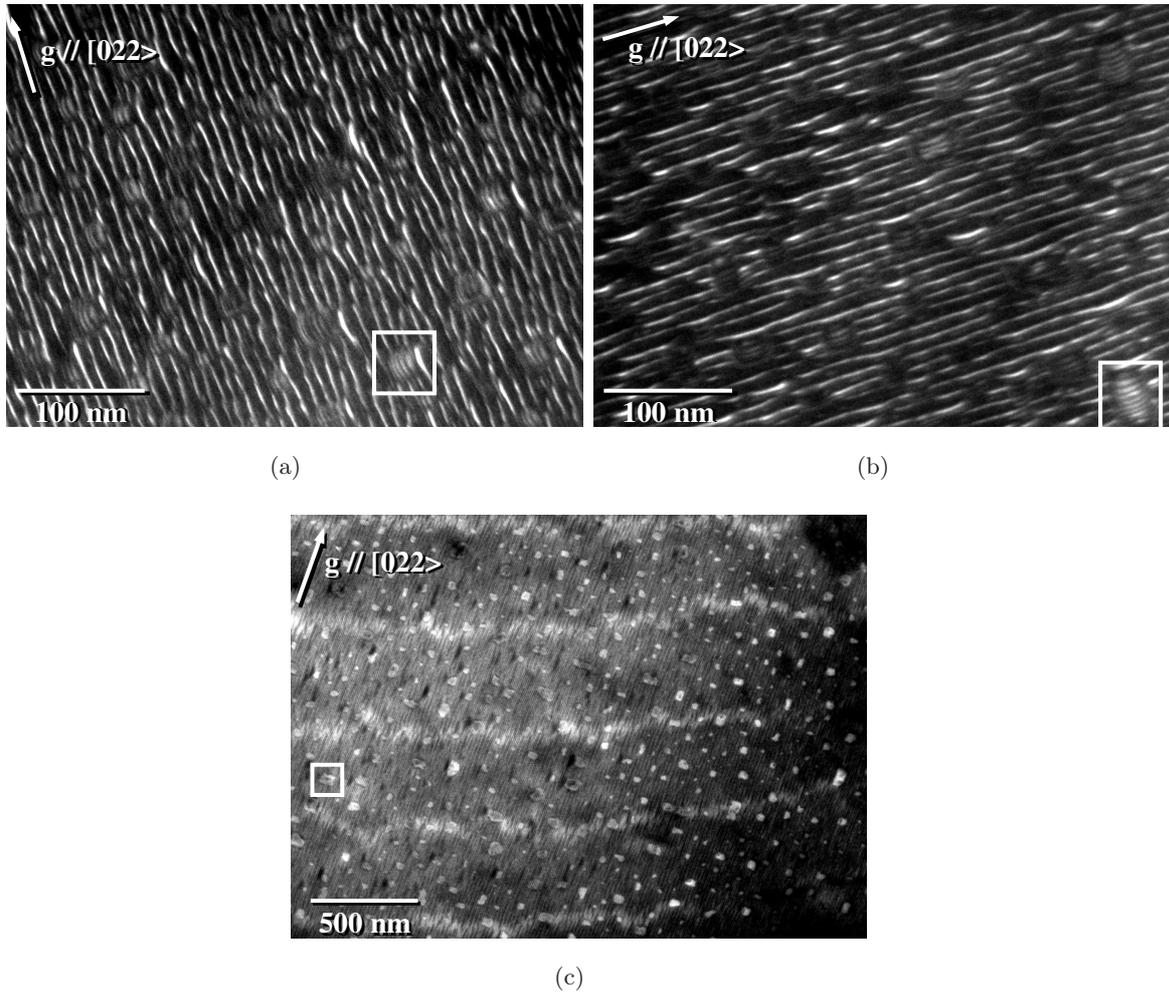


FIG. 59. Vues planes de MET de l'échantillon 1-a (de type 1). Les lignes blanches sur les images (a) et (b) (faisceau faible 022; voir l'annexe B, page 137) sont des dislocations vis. Sur la figure (c) (deux ondes 022, champ sombre; voir l'annexe B), les lignes sinueuses blanches sont des dislocations mixtes et les fines lignes noires parallèles à  $\mathbf{g}$  sont des franges de moiré résultant de la torsion entre les deux cristaux collés. Une cavité ou précipité d'interface est encadré sur chacune des images.

souvent que le vecteur de Burgers caractérise la déformation locale du cristal induite par une dislocation). Ceci explique pourquoi les dislocations vis parallèles à  $\mathbf{g}$  apparaissent sur chacune des images (a) et (b); elles sont donc orientées selon des directions  $[011]$  comme attendu. Ce réseau 2D de dislocations vis accommode une torsion de  $2,5^\circ$ . Cet angle a été mesuré sur des clichés de diffraction électronique (sur celui de la figure 58 en particulier) et confirmé grâce à la formule de Frank (équation (20), page 56) d'après la période des dislocations vis (9 nm). D'autre part, on voit que dans la plupart des cavités imagées sur

les images (a) et (b), des franges de moiré sont visibles. Ces franges apparaissent à cause de la torsion entre les deux cristaux collés et résultent de l'interférence entre les faisceaux diffractés de même indice des cristaux – plus précisément, les deux faisceaux sélectionnés pour former les images. Les franges de moiré sont perpendiculaires au vecteur joignant ces deux faisceaux (c'est-à-dire parallèles à  $\mathbf{g}$ ). Leur périodicité  $D_{\text{moiré}}$  est donnée par la relation géométrique :  $D_{\text{moiré}} = \frac{d_{0mn}}{2 \sin(\theta_{\text{torsion}}/2)}$ , où  $d_{0mn}$  est la distance réticulaire des plans atomiques  $\{0mn\}$  dont les taches de diffraction ont été sélectionnées pour former l'image considérée, et  $\theta_{\text{torsion}}$  est l'angle de torsion (ce n'est autre que la formule de Frank, page 56, dans laquelle  $b_{\text{eff}}$  est remplacé par  $d_{0mn}$ ). Pour les images (a) et (b), des taches 022 ont été sélectionnées ;  $d_{022} = \frac{a\sqrt{2}}{4} \simeq 2 \text{ \AA}$  (où  $a$  est le paramètre de maille du GaAs), c'est-à-dire la moitié de la composante efficace du vecteur de Burgers pour l'accommodation de la torsion. C'est pourquoi les franges de moiré ont une périodicité deux fois plus faible que de celle des dislocations vis : 4,5 nm. Sur les images (a) et (b), les franges de moiré ne sont quasiment observées qu'à l'intérieur des cavités car les faisceaux diffractés sélectionnés sont de faible intensité et dans cette condition, le contraste dû aux dislocations est bien plus fort que celui des franges qui ne sont visibles qu'à des endroits où les plans cristallins sont déformés et où les conditions de diffraction peuvent donc être plus favorable à leur apparition.

Sur l'image (c), on voit un réseau 1D de dislocations mixtes (de période 275 nm) qui accommode une flexion de  $0,06^\circ$  (valeur calculée d'après la formule de Frank). Ces dislocations apparaissent plus sinueuses que les dislocations vis car étant plus espacées les unes des autres, elles interagissent moins et ont donc plus de latitude pour «onduler» autour de leur direction moyenne. Elles forment un angle d'environ  $18^\circ$  par rapport à l'un des réseaux 1D de dislocations vis (et donc par rapport à l'une des directions  $[011\rangle$ ). On voit également des franges de moiré sur l'image (c) (les fines lignes noires parallèles à  $\mathbf{g}$ ). Ces franges apparaissent plus distinctement que sur les images (a) et (b) et qui plus est sur toute la surface de l'image car en condition d'imagerie de deux ondes (comme sur l'image (c)), les faisceaux diffractés sont de forte intensité.

Pour décrire avec précision les joints de grains d'échantillons pour lesquels les dislocations mixtes sont faiblement désorientés par rapport à une direction  $[011\rangle$ , une approche plus fine est nécessaire car ces dislocations perturbent alors de manière visible la géométrie des dislocations vis, de sorte que ces dernières ne sont plus organisées selon un réseau 2D carré comme attendu. Nous allons illustrer cela dans la suite grâce à l'étude approfondie d'un joint de grains d'un échantillon de type 2 : type pour lequel l'angle de flexion est inférieur à l'angle de torsion et les dislocations mixtes sont faiblement désorientées par rapport à une direction  $[011\rangle$ .

## 4.4 Des interactions entre dislocations

### 4.4.1 Présentation du joint de grains considéré

Le joint de grains de l'échantillon 2-a (de type 2) que nous allons étudier ici résulte du collage de deux cristaux de GaAs dont les surfaces sont désorientées de  $0,5 \pm 0,1^\circ$  par rapport au plan (100) autour de  $[001]$ , vers  $[0\bar{1}0]$ . Le collage a été réalisé de sorte que les plus grandes pentes des surfaces en contact forment un angle de  $90^\circ$  environ. Comme nous l'avons vu en page 80, l'axe de flexion tout comme les dislocations mixtes sont normaux à la bissectrice de ces plus grandes pentes – ils sont donc selon une direction  $[011]$ . Un petit angle de torsion a également été imposé, en plus des  $90^\circ$ , de manière non contrôlée; c'est ce petit angle qui est réellement l'angle de torsion car aucune dislocation n'est nécessaire à l'accommodation d'une torsion de  $90^\circ$ .

En figure 60 nous montrons deux vues planes de MET (prises avec deux vecteurs de diffraction orthogonaux) du joint de grains. De nouveau on peut voir un réseau 2D de dislocations vis et un réseau 1D de dislocations mixtes. Sur l'image (a), les dislocations vis sont plus contrastées que les dislocations mixtes car le contraste créé par ces dernières est proportionnel au produit scalaire  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \wedge \mathbf{u}$  [93] (où  $\mathbf{u}$  est le vecteur unitaire orientant chaque dislocation), lequel est inférieur au produit scalaire  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b}$  des dislocations vis. La structure globale du joint de grains est schématisée en figure 60(c). A chaque fois qu'une dislocation vis croise une dislocation mixte, le réseau auquel elle appartient subit un décalage d'une demi-période. Ce décalage ainsi que l'aspect en dents de scie des dislocations mixtes résultent d'interactions de minimisation d'énergie (voir page 45). Il n'est pas étonnant de ne pas voir clairement de tels décalages sur les images (a) et (b) de l'échantillon 1-a (Fig. 59) car la période des dislocations vis y est bien plus petite que celle des dislocations mixtes et il est donc fort probable que les zones imagées soient exemptes de ces décalages.

Comme attendu, pour l'échantillon 2-a, toutes les dislocations sont grossièrement orientées selon des directions  $[011]$ . Nous n'avons observé aucune influence de la polarité des substrat sur nos résultats, c'est pourquoi nous ne distinguerons pas les directions absolues  $[0\bar{1}1]$  et  $[011]$ . Nous avons attribué les orientations  $[011]$  et  $[0\bar{1}1]$  aux dislocations des images (a) et (b) respectivement; les quantités relatives aux deux sous-réseaux de dislocations vis seront indexées 1 et 2 respectivement, tandis que celles relatives aux dislocations mixtes porteront l'indice m. On le verra dans la suite, les dislocations ne sont pas exactement orientées selon des directions  $[011]$ . Afin d'éviter toutes confusions, les désorientations des dislocations par rapport à ces orientations seront notées avec la lettre  $\omega$  et l'indice adéquat, tandis que les désorientations des cristaux seront notées avec la lettre  $\theta$ . Bien que les dislocations ne soient pas exactement orientées selon des directions  $[011]$ , elles en reste très proches et il est bon d'avoir en tête les modules des différentes composantes des vecteurs de Burgers de

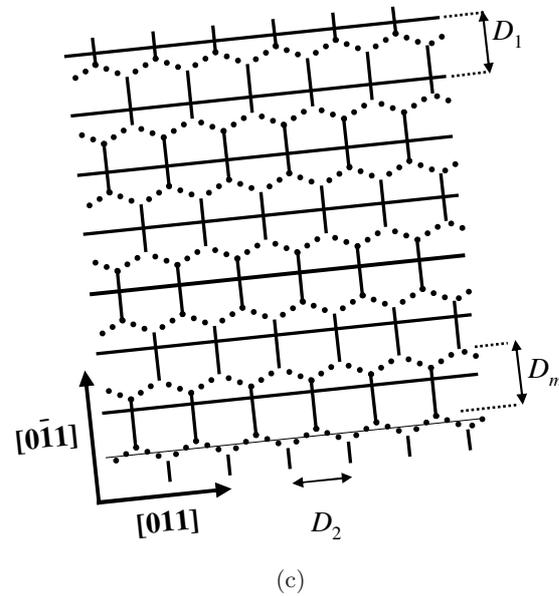
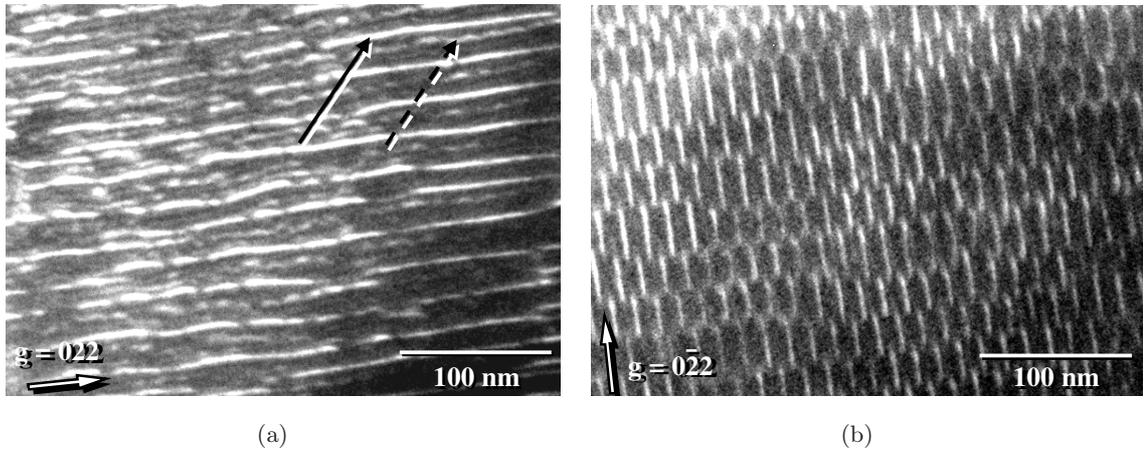


FIG. 60. (a et b) Vues planes de MET (faisceau faible 022) de l'échantillon 2-a. Sur l'image (a), les flèches en trait continu et discontinu pointent sur une dislocation vis et une dislocation mixte respectivement (les dislocations vis sont plus contrastées). Sur l'image (b), seules des dislocations vis sont visibles. (c) Schéma global du joint de grains. Les dislocations vis sont en trait gras continu et les dislocations mixtes en pointillé. L'orientation moyenne de ces dernières est signifiée par la ligne fine au bas du schéma.

dislocations vis parfaites et de dislocations mixtes orientées selon  $[011]$  (dislocations  $60^\circ$ ); elles sont rappelées dans le tableau 2.

Les désorientations et périodes mesurées pour les différents RDs de l'échantillon 2-a sont données dans le tableau 3. Notez que dans ce tableau, les chiffres après les signes  $\pm$  ne sont pas des barres d'erreur mais reflètent essentiellement les fluctuations locales des quantités

dislocation	Composante vis	Composante coin dans le plan des RDs	Composante coin normale aux RDs
vis	$\frac{a\sqrt{2}}{2}$	0	0
mixte 60°	$\frac{a\sqrt{2}}{2}$	$\frac{a\sqrt{2}}{2}$	$\frac{a}{2}$

TAB. 2. Modules des composantes des vecteurs de Burgers des dislocations vis et mixtes 60° dans les matériaux cfc ou à maille blende de zinc ( $a$  est le paramètre de maille).

RD	Indice $j$	Direction [011] la plus proche	Désorientation $\omega_j$ (°)	Période $D_j$ (nm)
vis n° 1	1	[011]	$2,8 \pm 0,8$	$21,0 \pm 0,6$
vis n° 2	2	[0 $\bar{1}$ 1]	$2,1 \pm 1,7$	$15,0 \pm 0,3$
mixtes	m	[011]		$27,9 \pm 2,8$

TAB. 3. Caractéristiques des RDs de l'échantillon 2-a.

mesurées. Ces dispersions peuvent être mesurées précisément sur les larges zones minces observées en vues planes (en MET).

#### 4.4.2 Un réseau rectangulaire de dislocations vis

Nous avons mis en évidence que les deux sous-réseaux de dislocations vis ont des périodicités différentes  $D_1$  et  $D_2$  (Tab. 3), de sorte que le réseau de dislocations vis est rectangulaire<sup>40</sup> et non carré comme attendu. Nous formulons l'hypothèse que cette différence de période est due à l'accommodation d'une partie de la torsion par les composantes vis des dislocations mixtes. En raisonnant en première approximation sur des dislocations isolées et rectilignes<sup>41</sup>, de telles composantes existent bien pour chaque dislocation mixte car la projection orthogonale du vecteur de Burgers dans le plan de l'interface de collage est selon une direction [001], tandis que sa ligne est proche de la direction [011]. De plus, ces composantes vis sont orientées le long de cette même ligne et sont donc approximativement parallèles au réseau de dislocations vis n° 1 (orienté selon [011]). Si elles s'ajoutent, moins de dislocations vis orientées selon [011] (mais pas selon [0 $\bar{1}$ 1]) seront nécessaires pour l'accommodation de la torsion et la période  $D_1$  (mais pas  $D_2$ ) devient plus grande que prévue.

Afin de vérifier cette hypothèse, nous avons d'abord mesuré sur un cliché de diffraction électronique l'angle de torsion :  $\theta_{torsion} = 1,65 \pm 0,25^\circ$ . D'après la formule de Frank (équation (20), page 56), le réseau carré idéal de dislocations vis devrait avoir une périodicité  $D_{torsion} =$

<sup>40</sup>De légères déviations par rapport à l'orthogonalité seront discutées plus loin.

<sup>41</sup>Les interactions entre dislocations seront considérées plus loin.

14,  $2 \pm 2, 2$  nm. Le tableau 3 montre en effet que  $D_1 > D_{torsion}$  tandis que  $D_2 = D_{torsion}$  aux incertitudes de mesure et aux fluctuations locales près. Notre explication peut être confirmée expérimentalement si la torsion totale accommodée par les composantes vis selon les directions  $[011]$  et  $[0\bar{1}1]$  des vecteurs de Burgers sont égales. Dans ce cas, on devrait avoir la relation :

$$\theta_{t2} = \theta_{t1} + \theta_{tm} = \theta_{torsion} , \quad (22)$$

où les angles  $\theta_{t1}$ ,  $\theta_{t2}$  et  $\theta_{tm}$  sont les torsions accommodées respectivement par les deux sous-réseaux réels de dislocations vis et par les composante vis des dislocations mixtes. D'après l'équation (20), on obtient  $|\theta_{ti}| = 2 \arcsin(\frac{a}{\sqrt{2}D_i})$  et en utilisant les périodes données dans le tableau 3, on obtient  $\theta_{t2} = 1,53 \pm 0,04^\circ$  et  $\theta_{t1} = 1,09 \pm 0,04^\circ$ . Les dislocations mixtes ont huit différents vecteurs de Burgers possibles et la torsion qu'ils accommodent collectivement est  $|\theta_{tm}| = 2 \arcsin(\frac{|b_{mv}|}{2D_m})$ , où  $\mathbf{b}_{mv}$  est la projection moyenne de tous ces vecteurs selon la direction des dislocations mixtes (c'est-à-dire la composante vis du vecteur de Burgers moyen) et  $D_m$  est la périodicité de ces dislocations (Tab. 3). En supposant que toutes leurs composantes normales à l'interface ont une orientation donnée (que l'on choisit arbitrairement positive selon  $[100]$ )<sup>42</sup>, les vecteurs de Burgers peuvent être orientés selon les directions  $[110]$ ,  $[101]$ ,  $[10\bar{1}]$  ou  $[1\bar{1}0]$  (voir la figure 35 page 56). Si l'on suppose de plus qu'ils sont tous orientés soit (i) selon  $[110]$  ou  $[101]$ , soit (ii) selon  $[10\bar{1}]$  ou  $[1\bar{1}0]$ , et dans chaque cas en nombre égal, ils correspondent tous à une torsion du même signe car ils ont une même projection selon  $[011]$ . Alors, puisque les dislocations mixtes sont en moyenne très proches de la direction  $[011]$ ,  $|b_{mv}| \approx \frac{a\sqrt{2}}{4}$  (Tab. 3) et  $\theta = 0,41 \pm 0,05^\circ$ , de sorte que l'équation (22) est vérifiée.

Bien que notre hypothèse sur la sélection des vecteurs de Burgers soit largement justifiée, les incertitudes expérimentales laissent ouverte la possibilité qu'une faible fraction de leurs composantes vis s'annulent mutuellement. Cela sera discuté plus loin. De plus, les interactions entre dislocations nous mènent à compléter le raisonnement précédent. Nous avons vu en effet, en page 45 et suivante, que lorsqu'une dislocation  $60^\circ$  interagit avec une dislocation vis qu'elle croise, les vecteurs de Burgers de deux segments<sup>43</sup> consécutifs de la dislocation mixte sont différents; cela est dû à la loi des nœuds de dislocations (page 39). D'après cette loi, seules deux combinaisons sont possibles pour les vecteurs de Burgers des dislocations mixtes :  $\frac{a}{2}[110]$  et  $\frac{a}{2}[101]$ , ou  $\frac{a}{2}[10\bar{1}]$  et  $\frac{a}{2}[1\bar{1}0]$  (Fig. 61). Etant donné que seul le vecteur de Burgers moyen importe pour l'accommodation des désorientations des cristaux et puisque, pour chaque paire de vecteurs de Burgers des dislocations mixtes, la composante

<sup>42</sup>Ce qui veut simplement dire que la densité de dislocations est le minimum requis pour l'accommodation de la flexion.

<sup>43</sup>On appelle segment de dislocation mixte une portion de dislocation mixte qui s'étend entre deux nœuds de dislocations consécutifs.

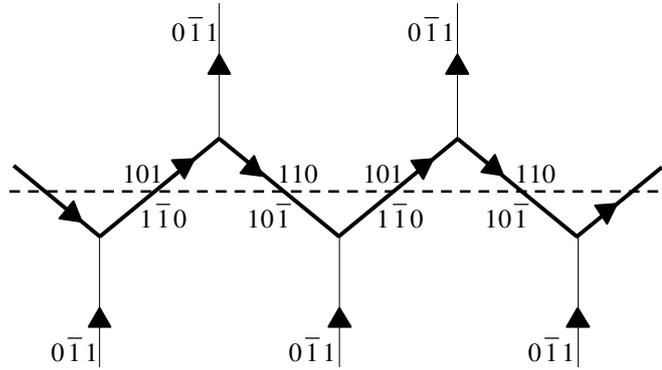


FIG. 61. Représentation schématique de l'interaction entre une dislocation mixte (en trait continu épais) et des dislocations vis du réseau n° 2 (en traits continus fins). Les flèches indiquent les orientations des lignes. Les vecteurs de Burgers sont spécifiés (le facteur  $\frac{a}{2}$  est omis) ; pour la dislocation mixte, les deux paires possibles apparaissent respectivement au-dessus et au-dessous de sa direction moyenne (en trait discontinu).

vis est la même, la démonstration que nous avons faite au paragraphe précédent (concernant l'accommodation d'une partie de la torsion par les dislocations mixtes) est confirmée ; il suffit de spécifier que la seconde paire est bien moins fréquente que la première. Notez également que l'interaction entre dislocations impose que les dislocations vis du réseau n° 2 aient le même vecteur de Burgers.

Nous concluons donc que les dislocations mixtes accommodent une partie de la torsion par l'intermédiaire de leur composante vis projetée sur  $[011]$  et que cela induit une différence de périodicité entre les deux sous-réseaux de dislocations vis. Cependant, ce phénomène n'est pas observé lorsque  $D_1$  est très petite par rapport à  $D_m$  car les dislocations mixtes sont alors trop peu nombreuses pour accommoder une part significative de la torsion. De même, il n'est pas observé non plus lorsque les dislocations mixtes sont fortement désorientées par rapport aux directions  $[011]$  car alors les composantes vis de leurs vecteurs de Burgers projetées sur ces directions sont également trop faibles pour participer de manière significative à l'accommodation de la torsion.

#### 4.4.3 Désorientations des dislocations vis par rapport aux directions $[011]$

La géométrie rectangulaire du réseau de dislocations vis étudiée à la sous-section précédente est la déviation la plus évidente par rapport au réseau idéal décrit en page 55. Nous avons également observé des divergences plus subtiles. En particulier, chaque sous-réseau de dislocations vis est très légèrement désorienté par rapport à la direction  $[011]$  la plus proche (Tab. 3). Par conséquent, ces dislocations ne sont pas de parfaites dislocations vis.

Ces désorientations imposent l'existence d'une petite composante coin  $b_{ci}$  dans le plan de l'interface pour les vecteurs de Burgers des deux sous-réseaux  $i = 1$  et  $i = 2$ . Puisque ces composantes sont presque orthogonales, elles ne peuvent pas s'annuler mutuellement. Il existe deux possibilités pour expliquer l'existence de ces composantes coin «mineures». Elles peuvent (i) permettre l'accommodation d'un léger désaccord de maille entre les deux cristaux collés ou (ii) être annulées par des composantes coin d'autres dislocations du joint de grains. Nous allons examiner ces deux hypothèses en détail.

Le désaccord de maille qui serait accommodé par la composante coin moyenne  $b_{ci}$  des vecteurs de Burgers des dislocations vis du réseau n° $i$ , désorienté de  $\omega_i$ , vaut :

$$f_i = \frac{b_{ci}}{D_i} = \frac{a \sin \omega_i}{\sqrt{2} D_i} . \quad (23)$$

Puisque chaque sous-réseau ne peut accommoder qu'un désaccord normal aux dislocations qui de plus sont quasiment orientées selon des directions  $[011]$ , on devrait avoir  $\frac{\sin \omega_1}{D_1} = \frac{\sin \omega_2}{D_2}$  (ce qui n'est pas exclu par nos données ; voir Tab. 3) car pour qu'un désaccord de maille puisse être accommodé par les dislocations vis, il faut que les composantes coin moyennes  $b_{ci}$  selon les deux directions  $[011]$  du plan de l'interface soient égales. Par exemple, le sous-réseau n° 1 (quasiment orienté selon  $[011]$ ) devrait accommoder un désaccord de maille  $f_i = (9,3 \pm 2,6) \times 10^{-4}$  selon la direction  $[0\bar{1}1]$ .

La seule cause possible pour expliquer un désaccord entre les deux cristaux de GaAs collés pourrait être un dopage différent. Cependant, nos deux substrats ont des dopages identiques. D'ailleurs les désaccords de maille dus au dopage sont très petits par rapport à la valeur mentionnée ci-dessus ; par exemple, d'après les résultats de Bassignana *et al.* [94], il apparaît que le désaccord attendu entre nos substrats et du GaAs non dopé est inférieur à  $4 \times 10^{-5}$ . Par conséquent, le dopage et plus généralement un désaccord de maille ne peut pas expliquer les désorientations des dislocations vis observées.

Nous revenons donc à notre seconde hypothèse : les composantes coin des dislocations vis annulent (ou sont annulées par) d'autres composantes coin. La seule source possible pour ces composantes reste le réseau de dislocations mixtes. Puisque les composantes coin des vecteurs de Burgers dans le plan de l'interface de chaque segment des dislocations mixtes sont approximativement à  $45^\circ$  de la direction moyenne de ces dernières (et dans tous les cas jamais parallèles aux segments) (Fig. 61), ces composantes existent réellement. La composante coin résultante pour les dislocations mixtes dépend des importances relatives des projections des sommes des vecteurs de Burgers parallèlement et perpendiculairement à leurs segments de dislocation. Malheureusement, leurs faibles contrastes et leur sinuosité empêchent une mesure précise de leur orientation moyenne (Fig. 60(a)). On peut néanmoins affirmer que les dislocations mixtes sont désorientées (au maximum) de quelques degrés par rapport à la direction  $[011]$ . Dans la section suivante, nous démontrons que nos données

expérimentales confirment cette hypothèse et permettent une détermination précise des paramètres impliqués.

#### 4.4.4 Analyse globale des réseaux de dislocations

Les orientations des RDs de l'échantillon 2-a sont synthétisées par le schéma de la figure 62. Les orientations des dislocations (choisies arbitrairement) sont indiquées par des

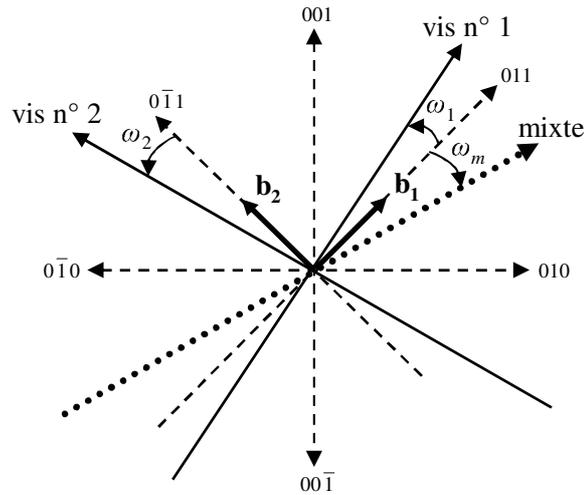


FIG. 62. Orientations des RDs de l'échantillon 2-a. Toutes les directions sont relatives à un seul des deux cristaux collés. Les directions cristallo-graphiques sont en trait discontinu tandis que les dislocations sont en trait continu ou pointillé. Le schéma est représenté dans le cas où  $\omega_m < 0$  et les vecteurs de Burgers des dislocations vis n° 1 et n° 2 sont  $\mathbf{b}_1 = \left(\frac{a}{\sqrt{2}}\right) \mathbf{u}_{011}$  et  $\mathbf{b}_2 = \left(\frac{a}{\sqrt{2}}\right) \mathbf{u}_{0\bar{1}1}$ .

flèches. Nous appelons  $\mathbf{u}_{hkl}$  le vecteur unitaire selon la direction  $[hkl]$ . Toutes les directions sont indexées par rapport à l'un des deux cristaux (choisi arbitrairement). Nous appelons respectivement  $\omega_1$  et  $\omega_2$  les désorientations des réseaux de dislocations vis n° 1 et n° 2 par rapport à leur direction  $[011]$  la plus proche, tandis que  $\omega_m$  est la désorientation moyenne des dislocations mixtes par rapport à  $[011]$ . Nos données montrent que tous ces angles sont petits et que  $\omega_1$  et  $\omega_2$  sont du même signe (Tab. 3). Puisque la torsion est accommodée essentiellement par les dislocations vis, les projections des vecteurs de Burgers des dislocations des deux sous-réseaux sur leurs lignes respectives doivent être du même signe<sup>44</sup>. Ces vecteurs de Burgers sont donc :  $\mathbf{b}_1 = \varepsilon \left(\frac{a}{\sqrt{2}}\right) \mathbf{u}_{011}$  et  $\mathbf{b}_2 = \varepsilon \left(\frac{a}{\sqrt{2}}\right) \mathbf{u}_{0\bar{1}1}$  (Fig. 62), avec

<sup>44</sup>C'est la condition nécessaire pour que les cisaillements induits par les dislocations vis aboutissent à la torsion.

$\varepsilon = \pm 1$ .

Une description complète du joint de grains devrait inclure, en plus des quantités mesurées (périodes des différents réseaux, désorientations des dislocations vis, angle de torsion), la détermination de l'angle de flexion  $\theta_{flexion}$ , de la désorientation  $\omega_m$  des dislocations mixtes et des probabilités relatives de leurs huit vecteurs de Burgers possibles  $\mathbf{b}_m$ . Pour résoudre ce problème, nous ne faisons qu'une seule hypothèse : comme mentionné plus haut (page 97), nous supposons que les composantes  $\mathbf{b}_{m\perp}$  normales à l'interface des vecteurs de Burgers des différentes dislocations mixtes ont toutes le même signe ; l'angle  $\theta_{flexion}$  étant faible, nous considérons que  $\mathbf{b}_{m\perp} = \varepsilon_m \frac{a}{2} \mathbf{u}_{100}$ , avec  $\varepsilon_m = \pm 1$ . Cette supposition est bien moins restrictive que celle faite à la sous-section 4.4.2 (page 96 et suivantes) car nous permettons les quatre vecteurs de Burgers possibles, à savoir soit (i)  $\left(\frac{a}{\sqrt{2}}\right) \mathbf{u}_{110}$ ,  $\left(\frac{a}{\sqrt{2}}\right) \mathbf{u}_{101}$ ,  $\left(\frac{a}{\sqrt{2}}\right) \mathbf{u}_{1\bar{1}0}$  et  $\left(\frac{a}{\sqrt{2}}\right) \mathbf{u}_{10\bar{1}}$ , soit (ii)  $\left(\frac{a}{\sqrt{2}}\right) \mathbf{u}_{\bar{1}10}$ ,  $\left(\frac{a}{\sqrt{2}}\right) \mathbf{u}_{\bar{1}01}$ ,  $\left(\frac{a}{\sqrt{2}}\right) \mathbf{u}_{\bar{1}\bar{1}0}$  et  $\left(\frac{a}{\sqrt{2}}\right) \mathbf{u}_{\bar{1}0\bar{1}}$ , et ne faisons aucune hypothèse sur leurs probabilités relatives que nous notons  $p_{10}$ ,  $p_{01}$ ,  $p_{\bar{1}0}$  et  $p_{0\bar{1}}$  respectivement dans chaque cas. Ces probabilités doivent vérifier les relations suivantes :

$$0 \leq p_{ij} \leq 1 \quad \text{et} \quad p_{10} + p_{01} + p_{\bar{1}0} + p_{0\bar{1}} = 1 . \quad (24)$$

A cause des interactions avec le sous-réseau n° 2 de dislocations vis, les vecteurs de Burgers ne sont pas uniques le long de chaque dislocation mixte, mais alternent (voir la sous-section 4.4.2, page 96 et suivantes ainsi que la figure 61), de sorte que les probabilités doivent être comprises comme des moyennes aussi bien le long des dislocations qu'entre dislocations.

La géométrie de toutes les combinaisons de RDs d'interface périodiques et rectilignes, compatibles avec une désorientation et un désaccord de maille donnés est décrite par la formule de Frank [64] qui stipule que si un vecteur donné  $\mathbf{V}$  de l'un des cristaux se transforme dans l'autre cristal en un vecteur  $\mathbf{V}'$  (ayant les mêmes coordonnées cristallographiques), le «défaut de fermeture»  $\mathbf{B}(\mathbf{V}) = \mathbf{V} - \mathbf{V}'$  vérifie :

$$\mathbf{B}(\mathbf{V}) = \sum_p c_p(\mathbf{V}) \mathbf{b}_p . \quad (25)$$

Dans l'équation (25), la somme s'étend sur tous les RDs  $p$  dont les dislocations ont un vecteur de Burgers  $\mathbf{b}_p$  et  $c_p(\mathbf{V})$  est le nombre de ces dislocations intersectant  $\mathbf{V}$  ; en nommant  $\mathbf{n}$  le vecteur normal à l'interface pointant vers le cristal contenant  $\mathbf{V}'$ ,  $c_p(\mathbf{V})$  est positif si  $\mathbf{V} \wedge \mathbf{n}$  a une composante positive le long de la ligne de dislocation orientée (nous choisissons arbitrairement  $\mathbf{n}$  orienté positivement selon  $[100]$ <sup>45</sup>). En appliquant l'équation (25) aux deux vecteurs unitaires non colinéaires  $\mathbf{u}_{011}$  et  $\mathbf{u}_{0\bar{1}1}$  et aux trois RDs (vis n° 1, n° 2 et mixtes), et en ignorant pour le moment que les dislocations mixtes ne sont pas rectilignes, nous

<sup>45</sup>Nous pouvons faire ce choix car nous n'avons pas spécifié lequel des deux cristaux est situé au-dessus du plan de la figure 62.

obtenons facilement :

$$\mathbf{B}(\mathbf{u}_{011}) = -\frac{\sin \omega_1}{D_1} \frac{\varepsilon a}{\sqrt{2}} \mathbf{u}_{011} - \frac{\cos \omega_2}{D_2} \frac{\varepsilon a}{\sqrt{2}} \mathbf{u}_{0\bar{1}1} - \frac{\sin \omega_m}{D_m} \left[ \frac{a\sqrt{2}}{4} (\alpha \mathbf{u}_{011} + \beta \mathbf{u}_{0\bar{1}1}) + \frac{\varepsilon_m a}{2} \mathbf{u}_{100} \right], \quad (26a)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{u}_{0\bar{1}1}) = \frac{\cos \omega_1}{D_1} \frac{\varepsilon a}{\sqrt{2}} \mathbf{u}_{011} - \frac{\sin \omega_2}{D_2} \frac{\varepsilon a}{\sqrt{2}} \mathbf{u}_{0\bar{1}1} + \frac{\cos \omega_m}{D_m} \left[ \frac{a\sqrt{2}}{4} (\alpha \mathbf{u}_{011} + \beta \mathbf{u}_{0\bar{1}1}) + \frac{\varepsilon_m a}{2} \mathbf{u}_{100} \right], \quad (26b)$$

où

$$\alpha = p_{10} - p_{\bar{1}0} + p_{01} - p_{0\bar{1}}, \quad (27a)$$

$$\beta = p_{\bar{1}0} - p_{10} + p_{01} - p_{0\bar{1}}. \quad (27b)$$

Les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  caractérisent la projection sur le plan du joint de grains du vecteur de Burgers moyen  $\bar{\mathbf{b}}_m$  des dislocations mixtes :

$$\bar{\mathbf{b}}_m = \frac{a\sqrt{2}}{4} (\alpha \mathbf{u}_{011} + \beta \mathbf{u}_{0\bar{1}1}) + \frac{\varepsilon_m a}{2} \mathbf{u}_{100}. \quad (28)$$

Puisque les angles  $\omega_1$ ,  $\omega_2$ ,  $\omega_m$ ,  $\theta_{torsion}$  et  $\theta_{flexion}$  sont petits, dans la suite, nous ne retiendrons que les termes de premier ordre en angle. Bien que non nécessaire, cette restriction simplifie considérablement la discussion.

Par ailleurs, les défauts de fermeture  $\mathbf{B}(\mathbf{u}_{011})$  et  $\mathbf{B}(\mathbf{u}_{0\bar{1}1})$  peuvent être retrouvés autrement par des considérations géométriques. Ce sont les sommes des défauts de fermeture induits séparément par la torsion et la flexion. Ceux induits par la torsion sont  $-\theta_{torsion} \mathbf{u}_{0\bar{1}1}$  et  $\theta_{torsion} \mathbf{u}_{011}$  pour  $\mathbf{B}(\mathbf{u}_{011})$  et  $\mathbf{B}(\mathbf{u}_{0\bar{1}1})$  respectivement (nous avons choisi arbitrairement  $\theta_{torsion} > 0$ ). Pour trouver les défauts de fermeture induits par la flexion, on peut s'appuyer sur la figure 63. Celle-ci représente la transformation par la flexion d'angle  $\theta_{flexion}$  d'un

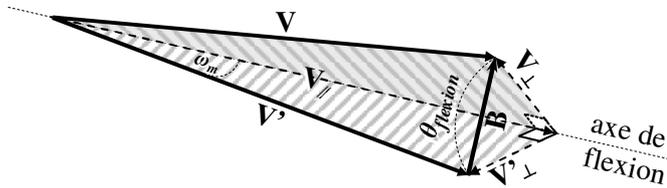


FIG. 63. Illustration du défaut de fermeture  $\mathbf{B}$  dû à une flexion  $\theta_{flexion}$  pour un vecteur  $\mathbf{V}$  désorienté de  $\omega_m$  par rapport à l'axe de flexion (qui dans notre cas est presque selon  $[011]$ ).

vecteur  $\mathbf{V}$  de l'un des cristaux en un vecteur  $\mathbf{V}'$  de l'autre cristal; nous nous plaçons dans le cas particulier où  $\mathbf{V} = \mathbf{u}_{011}$ . L'axe de flexion n'est autre que l'orientation des dislocations

mixtes (désorientées de  $\omega_m$  par rapport à  $\mathbf{V}$ ). Les vecteurs  $\mathbf{V}_\perp$  et  $\mathbf{V}'_\perp$  sont les composantes normales à cet axe des vecteurs  $\mathbf{V}$  et  $\mathbf{V}'$  respectivement ;  $\mathbf{V}_{//} = \mathbf{V}'_{//}$  sont leurs composantes parallèles à l'axe (elles sont orientées dans le sens positif de l'axe ; Fig. 63).  $\mathbf{B}$  est le défaut de fermeture. On a :

$$\|\mathbf{V}_\perp\| = \|\mathbf{V}'_\perp\| \approx \omega_m \quad \text{et} \quad \|\mathbf{V}_{//}\| = \|\mathbf{V}'_{//}\| \approx 1. \quad (29)$$

C'est la composante  $\mathbf{V}_\perp$  qui «tourne» de  $\theta_{flexion}$  pour se transformer en  $\mathbf{V}'_\perp$ . De plus, nous choisissons grâce à la «convention de la main droite»  $\theta_{flexion}$  tournant dans le sens positif autour de l'axe de flexion orienté. Par conséquent,  $\mathbf{B} = \omega_m \theta_{flexion} \mathbf{u}_{100}$  et :

$$\mathbf{B}(\mathbf{u}_{011}) = -\theta_{torsion} \mathbf{u}_{0\bar{1}1} + \omega_m \theta_{flexion} \mathbf{u}_{100}. \quad (30)$$

En revanche, pour un vecteur  $\mathbf{V} = \mathbf{u}_{0\bar{1}1}$ ,

$$\|\mathbf{V}_\perp\| = \|\mathbf{V}'_\perp\| \approx 1 \quad \text{et} \quad \|\mathbf{V}_{//}\| = \|\mathbf{V}'_{//}\| \approx \omega_m. \quad (31)$$

C'est toujours  $\mathbf{V}_\perp$  qui tourne. Donc le défaut de fermeture dû à la flexion pour  $\mathbf{V} = \mathbf{u}_{0\bar{1}1}$  est  $-\theta_{flexion} \mathbf{u}_{100}$  et

$$\mathbf{B}(\mathbf{u}_{0\bar{1}1}) = \theta_{torsion} \mathbf{u}_{011} - \theta_{flexion} \mathbf{u}_{100}. \quad (32)$$

En projetant les équations (26a) et (26b) sur  $[100]$ ,  $[011]$  et  $[0\bar{1}1]$  et en posant  $d_0 = \frac{a}{\sqrt{2}}$ , on obtient :

$$\theta_{flexion} = -\frac{\varepsilon_m a}{2D_m}, \quad (33)$$

$$\alpha \omega_m = -2\varepsilon \omega_1 \frac{D_m}{D_1}, \quad (34)$$

$$\beta \omega_m = -2D_m \left( \frac{\varepsilon}{D_2} - \frac{\theta_{torsion}}{d_0} \right), \quad (35)$$

$$\alpha = -2D_m \left( \frac{\varepsilon}{D_1} - \frac{\theta_{torsion}}{d_0} \right), \quad (36)$$

$$\beta = 2\varepsilon \omega_2 \frac{D_m}{D_2}. \quad (37)$$

L'équation (33) obtenue deux fois par projection sur  $[100]$  n'est autre que l'équation (20) (page 56) pour les petits angles de flexion. Le fait que  $D_m$  ne dépende que de l'angle de flexion signifie simplement que les dislocations vis ne peuvent pas accommoder une partie de cette désorientation. Numériquement,  $\theta_{flexion} = (-1,02 \pm 0,10) \times 10^{-2}$  rad, ou  $\theta_{flexion} = -0,58 \pm 0,06^\circ$  (en accord avec la valeur  $-0,71 \pm 0,14^\circ$  calculée d'après la vicinalité nominale du substrat (voir page 79) :  $0,5 \pm 0,1^\circ$ ).

À partir des équations (34)-(37) on veut extraire les trois inconnues  $\omega_m$ ,  $\alpha$  et  $\beta$ . D'un point de vue pratique, nous notons que les périodes des RDs sont plus précisément mesurées

que les désorientations (Tab. 3). C'est pourquoi nous commençons par calculer une valeur affinée de  $\theta_{torsion}$  plutôt que d'utiliser notre mesure directe sur le cliché de diffraction. D'après les équations (34)-(37), nous obtenons :

$$\omega_m = \frac{\omega_1}{1 - \varepsilon\theta_{torsion}\frac{D_1}{d_0}} = -\frac{1 - \varepsilon\theta_{torsion}\frac{D_2}{d_0}}{\omega_2}. \quad (38)$$

Par conséquent,  $\theta_{torsion}$  vérifie :

$$D_1D_2\theta_{torsion}^2 - \varepsilon d_0(D_1 + D_2)\theta_{torsion} + (1 + \omega_1\omega_2)d_0^2 = 0. \quad (39)$$

Les deux solutions possibles de cette dernière équation sont :

$$\begin{aligned} \theta_{torsion}^{\pm} &= \frac{\varepsilon d_0 \left[ D_1 + D_2 \mp \sqrt{(D_1 - D_2)^2 - 4D_1D_2\omega_1\omega_2} \right]}{2D_1D_2}, \\ &= \frac{\varepsilon d_0 \left[ D_1 + D_2 \mp (D_1 - D_2) \sqrt{1 - \frac{4D_1D_2\omega_1\omega_2}{(D_1 - D_2)^2}} \right]}{2D_1D_2}. \end{aligned} \quad (40a)$$

Or

$$\frac{4D_1D_2\omega_1\omega_2}{(D_1 - D_2)^2} = (6,3 \pm 8,7) \times 10^{-2} \ll 1 \quad (41)$$

(d'après les données du tableau 3), donc en effectuant un développement limité à l'ordre le plus bas de l'expression sous la racine, on obtient :

$$\theta_{torsion}^- = \varepsilon d_0 \left( \frac{1}{D_2} - \frac{\omega_1\omega_2}{D_1 - D_2} \right) \quad \text{et} \quad \theta_{torsion}^+ = \varepsilon d_0 \left( \frac{1}{D_1} + \frac{\omega_1\omega_2}{D_1 - D_2} \right). \quad (42)$$

Ces valeurs dépendent peu de  $\omega_1$  et  $\omega_2$  car uniquement par l'intermédiaire du produit de ces deux angles et également car  $D_1$  et  $D_2$  sont notablement différentes. En effet, les données du tableau 3 donnent les plages suivantes :  $\theta_{torsion}^- = \pm(2,65 \pm 0,07) \times 10^{-2}$  rad et  $\theta_{torsion}^+ = \pm(1,92 \pm 0,07) \times 10^{-2}$  rad. Tandis que cette dernière valeur est incompatible avec notre détermination expérimentale (voir page 96), la première est pleinement en accord avec nos données expérimentales, ce qui conforte notre raisonnement. Par conséquent  $\theta_{torsion} = \theta_{torsion}^-$  et notre valeur affinée est  $\theta_{torsion} = \pm(2,65 \pm 0,07) \times 10^{-2}$  rad, ou  $\theta_{torsion} = \pm 1,52 \pm 0,04^\circ$ .

En insérant cette valeur et les valeurs expérimentales de  $D_1$  et  $D_m$  dans l'équation (36), on obtient l'inégalité suivante :  $0,78 \leq \varepsilon\alpha \leq 1,34$ . Cependant, les équations (27a), (27b) et (24) indiquent que  $-1 \leq \varepsilon\alpha \leq 1$  et  $-1 \leq \beta \leq 1$ . Finalement :  $0,78 \leq \varepsilon\alpha \leq 1$ . D'après l'équation (37) et les données expérimentales de  $D_2$ ,  $D_m$  et  $\omega_2$ , on obtient :  $0,023 \leq \varepsilon\beta \leq 0,277$ . En notant que d'après les équations (27a), (27b) et (24) :

$$p_{10} + p_{01} = \frac{1 + \alpha}{2}, \quad (43a)$$

$$p_{\bar{1}0} + p_{01} = \frac{1 + \beta}{2}, \quad (43b)$$

nous obtenons finalement le jeu de contraintes suivant sur les probabilités des vecteurs de Burgers :

$$\text{si } \varepsilon > 0 : \begin{cases} 0,89 \leq p_{10} + p_{01} \leq 1 \\ 0,40 \leq p_{01} \leq 0,64 \\ 0,25 \leq p_{10} \leq 0,60 \\ 0 \leq p_{\bar{1}0} + p_{0\bar{1}} \leq 0,11 \end{cases} ; \quad (44)$$

$$\text{si } \varepsilon < 0 : \begin{cases} 0 \leq p_{10} + p_{01} \leq 0,11 \\ 0,51 \leq p_{0\bar{1}} \leq 0,62 \\ 0,38 \leq p_{\bar{1}0} \leq 0,49 \\ 0,89 \leq p_{\bar{1}0} + p_{0\bar{1}} \leq 1 \end{cases} . \quad (45)$$

Cela spécifie les déviations par rapport à l'hypothèse simple adoptée à la sous-section 4.4.2 (page 96)<sup>46</sup> que permettent les incertitudes de mesure.

D'autre part, l'équation (38) donne désormais la désorientation moyenne du réseau de dislocations mixtes. On trouve  $\omega_m = (-13,6 \pm 6,2) \times 10^{-2}$  rad, ou  $\omega_m = -7,9 \pm 3,5^\circ$ . Donc  $\omega_m$  est non nul et est de sens opposé à  $\omega_1$  et  $\omega_2$ .

Un examen détaillé de la géométrie du joint de grains montre que ces résultats ne sont pas modifiés si le caractère sinueux des dislocations mixtes (Fig. 61) est pris en compte.

#### 4.4.5 Synthèse de la section 4.4

Notre analyse quantitative globale de l'échantillon 2-a confirme donc et raffine les conclusions de l'analyse simplifiée menée aux sous-sections 4.4.2 et 4.4.3.

En conclusion, les joints de grains des échantillons de type 2 (pour lesquels  $\theta_{flexion} < \theta_{torsion}$  et les dislocations mixtes sont grossièrement orientées selon une direction  $[011\rangle$ ) sont constitués d'un réseau 2D de dislocations «quasi-vis» qui accommode essentiellement la torsion. Cependant, ce réseau n'est ni carré ni (parfois) parfaitement orienté selon des directions  $[011\rangle$ . La flexion est accommodée par un réseau 1D de dislocations mixtes dont les projections sur le plan (100) des vecteurs de Burgers individuels peuvent avoir a priori quatre orientations possibles. Plus précisément, le vecteur de Burgers moyen a une importante composante  $\alpha$  selon  $[011]$  de sorte que les dislocations mixtes ont également une importante composante vis et accommodent une part significative de la torsion, permettant ainsi une réduction du nombre des dislocations vis orientées quasiment selon  $[011]$ . Le moteur de cette sélection des vecteurs de Burgers est certainement une minimisation de l'énergie d'interface induite par la réduction du nombre des dislocations sus-citées. La désorientation des dislocations mixtes par rapport à la direction  $[011]$  et la composante  $\beta$  de

<sup>46</sup>Qui correspond à  $p_{10} = p_{01} = 0,5$  et  $p_{\bar{1}0} = p_{0\bar{1}} = 0$  si  $\varepsilon > 0$ , ou  $p_{\bar{1}0} = p_{0\bar{1}} = 0,5$  et  $p_{10} = p_{01} = 0$  si  $\varepsilon < 0$ .

leurs vecteurs de Burgers selon  $[0\bar{1}1]$  peut créer une composante coin. Cette composante est annulée par la petite composante coin créée par une légère désorientation des dislocations vis par rapport à leurs plus proches directions  $[011]$  respectives.

## 4.5 Création de joints de grains à géométrie bidimensionnelle simple et périodique

### 4.5.1 Idée de base

A la vue des conclusions que nous venons de formuler, on peut se demander si dans une configuration similaire (avec un RD mixtes parallèle au sous-RD vis n° 1) la réduction du nombre de dislocations vis du sous-réseau n° 1 ne pourrait pas aller jusqu'à leur disparition, dans le cas limite où les dislocations mixtes seraient suffisamment nombreuses par rapport aux dislocations vis pour accommoder entièrement la moitié de la torsion à la place du sous-réseau n° 1 de dislocations vis. Cela donnerait un joint de grains composé simplement d'un réseau 1D de dislocations vis et d'un réseau 1D orthogonal de dislocations mixtes qui accommoderait à la fois la flexion et la moitié de la torsion. D'autre part, les cellules définies par ces dislocations auraient cette fois-ci toutes la même taille : pour les échantillons de type 2, ce n'était pas le cas à cause de «l'intrication» des dislocations mixtes et des dislocations vis du sous-réseau n° 1. On pourrait ainsi espérer organiser à deux dimensions, sur l'ensemble de la surface de nos substrats composites, des nanostructures ayant des tailles identiques et réparties de manière périodique selon les deux directions de la surface.

### 4.5.2 Etude de la structure du joint de grains d'un échantillon de type 3

Nous avons décidé de confronter cette hypothèse à l'expérience avec l'échantillon 3-a, de type 3, catégorie d'échantillons pour lesquels  $\theta_{flexion} > \theta_{torsion}$  et la direction moyenne des dislocations mixtes est proche d'une direction  $[011]$ . Ce substrat composite a été obtenu par collage de deux cristaux de GaAs (un substrat hôte et une couche mince d'environ 20 nm d'épaisseur) désorientés de  $0,3 \pm 0,1^\circ$  par rapport au plan (100) autour de  $[001]$ , vers  $[0\bar{1}0]$ . De plus, comme pour l'échantillon 2-a, un angle d'environ  $90^\circ$  a été imposé entre leurs plus grandes pentes, de sorte que l'on s'attend à la formation d'un réseau 1D de dislocations mixtes de période  $45 \pm 15$  nm (d'après la flexion réelle entre les deux cristaux, calculée d'après la formule (21) page 79), orienté selon une direction  $[011]$ , pour l'accommodation de la flexion. Un faible angle de torsion de  $0,1 \pm 0,1^\circ$  a également été imposé (en plus des  $90^\circ$ ).

La figure 64(a) est une vue plane de MET en faisceau faible  $0\bar{2}2$  de l'échantillon 3-a (le vecteur  $\mathbf{g}$  a été indexé arbitrairement de sorte que les dislocations mixtes de cet échantillon

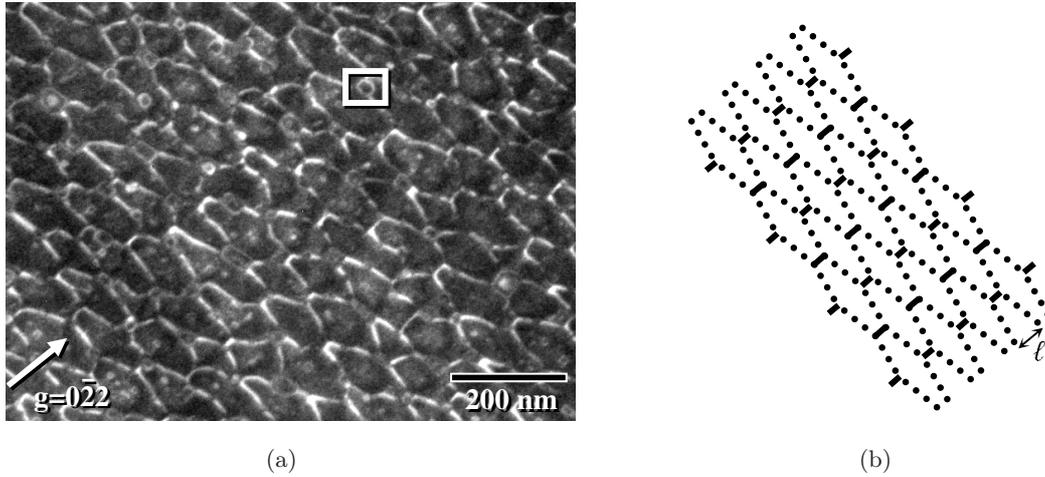


FIG. 64. (a) Vue plane de MET (faisceau faible  $0\bar{2}2$ ) de l'échantillon 3-a. Une cavité d'interface est entourée d'un carré. (b) Représentation schématique de (a) : les lignes pointillées sont les dislocations mixtes et les lignes continues sont les dislocations vis. La largeur des cellules est nommée  $\ell$ .

soient orientées comme celles de l'échantillon n° 2 – afin de faciliter la discussion qui va suivre). Les dislocations vérifiant les conditions de «visibilité» (voir pages 91 et 94) sont imagées, ainsi que les cavités d'interface; bien que de nombreuses d'entre elles semblent dévier et fixer les dislocations, leur distribution est aléatoire et homogène (en particulier, elle n'est pas reliée aux périodicités des RDs). D'autre part, des images en faisceau faible prises avec un vecteur de diffraction  $\mathbf{g}$  orthogonal ne font pas apparaître d'autres dislocations. L'ensemble du joint de grains semble donc être imagé sur la figure 64(a) et ses cellules sont grossièrement de forme hexagonale.

Bien qu'elles puissent apparaître à première vue différentes et mis à part l'absence apparente de l'un des deux sous-réseaux habituels de dislocations vis, les dislocations visibles dans ce cliché ont approximativement la même organisation (schématisée par la figure 64(b)) que celles de l'échantillon 2-a : on observe un réseau 1D de dislocations mixtes dont la direction moyenne est grossièrement orientée selon  $[011]$  et des petits segments de dislocations vis orientés selon la direction  $[0\bar{1}1]$  (sous-réseau n° 2 de dislocations vis<sup>47</sup>). Ces segments ainsi que l'aspect en dents de scie des dislocations mixtes résultent de nouveau de phénomènes d'interaction; en particulier, le décalage d'environ une demi-période des dislocations vis quand elles rencontrent une dislocation mixte. Par rapport à l'échantillon 2-a, les périodes des RDs sont plus grandes car les désorientations des cristaux sont plus petites : la période des dislocations mixtes est de  $D_m = 44,5 \pm 1,5$  nm (en accord avec celle attendue) et celle

<sup>47</sup>On reprend une numérotation identique à celle choisie pour l'échantillon 2-a.

des dislocations vis de  $D_1 = 164 \pm 22$  nm ; d'après la formule de Frank (équation (20), page 56), cette dernière période correspond à une torsion de  $0,14 \pm 0,02^\circ$ , en accord avec la valeur de  $0,1 \pm 0,1^\circ$  attendue<sup>48</sup>.

La différence majeure de l'échantillon 3-a par rapport à l'échantillon 2-a est donc l'absence apparente du sous-réseau de dislocations vis n° 1 orienté selon [011] (ce qui va parfaitement dans le sens de l'hypothèse émise à la sous-section 4.5.1). Bien que la présence de quelques rares dislocations vis orientées de la sorte ne puisse pas être totalement exclue, à la lumière de l'étude du joint de grains de l'échantillon 2-a, une absence totale est vraisemblable. Pour comprendre pourquoi, nous devons considérer attentivement les interactions entre dislocations. La figure 65 montre la maille élémentaire du joint de grains hexagonal de la figure 64 ; elle contient un segment de dislocation vis au centre et quatre autres aux

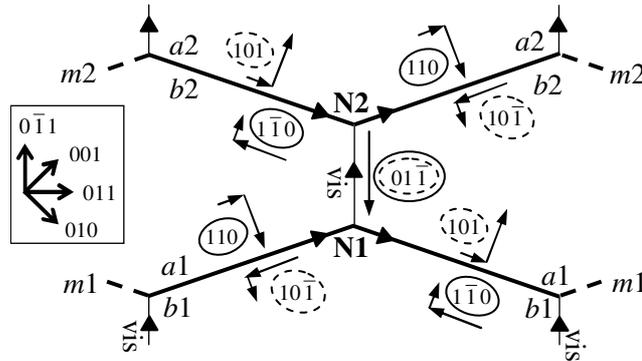


FIG. 65. Représentation schématique de la maille élémentaire du joint de grains de l'échantillon 3-a. L'insert donne les directions cristallines (choisies arbitrairement). Les flèches larges indiquent l'orientation des lignes de dislocation. A côté de chaque segment sont indiqués les vecteurs de Burgers possibles (le facteur  $\frac{a}{2}$  est omis) et la décomposition de leur projections sur le plan du joint de grains en composantes coin et vis (flèches étroites). Les ellipses en trait continu (respectivement discontinu) indiquent les segments fortement contrastés sur les images de MET en champ sombre formées avec  $\mathbf{g} = 020$  (respectivement  $\mathbf{g} = 002$ ).

coins, des portions de deux dislocations mixtes  $m1$  et  $m2$  et deux nœuds non équivalents N1 et N2. Le seul choix arbitraire que nous faisons (à part celui de l'orientation des lignes de dislocations) est celui du signe des vecteur des Burgers des dislocations vis, que nous choisissons unique ; ici, afin de faciliter la comparaison avec les images de MET, ce vecteur

<sup>48</sup>Un angle de torsion aussi petit ne peut pas être mesuré sur un cliché de diffraction électronique car les taches diffractées des deux cristaux collés sont trop proches pour pouvoir être distinguées.

est choisi  $\frac{a}{2}01\bar{1}$  (c'est-à-dire le choix opposé à celui fait pour la figure 61, page 98). La séquence des vecteurs de Burgers de tous les segments de toute dislocation mixte peut être entièrement déterminée une fois que l'un d'eux est connu : pour  $m1$ , elle est soit de type 110-N1-101 (type  $a1$ ), soit de type  $10\bar{1}$ -N1- $1\bar{1}0$  (type  $b1$ ) et pour  $m2$ , 101-N2-110 (type  $a2$ ) ou  $1\bar{1}0$ -N2- $10\bar{1}$  (type  $b2$ ) ; comme pour la figure 61, les séquences de type 'a' et 'b' sont représentées respectivement au-dessus et au-dessous des dislocations mixtes. En outre, les séquences correspondant à  $m1$  et  $m2$  peuvent a priori être choisies indépendamment. D'après la figure 65 qui montre également la composante coin (dans le plan du joint de grains) et la composante vis de chaque vecteur de Burgers possible, deux conclusions peuvent être formulées. Tout d'abord, si les segments consécutifs de chaque dislocation mixte sont de même longueur, leurs composantes coin s'annulent. D'autre part, une séquence de type 'b' produit de grandes composantes vis ; la somme de deux telles composantes consécutives est selon  $[0\bar{1}\bar{1}]$  et correspond donc à une torsion dans le même sens de rotation que le sous-réseau de dislocations vis n° 2 ; en revanche, une séquence de type 'a' produit des composantes vis plus petites et une torsion dans la direction opposée. Ces deux types de composantes vis sont respectivement plus grandes et plus petites que la composante vis de dislocations mixtes  $60^\circ$  (donc alignées selon une directions  $\langle 011 \rangle$ ), qui est elle-même deux fois moins efficace qu'une dislocation vis pour accommoder une torsion (voir tableau 2, page 96). Il est maintenant facile de comprendre pourquoi le sous-réseau de dislocations n° 1 peut être totalement absent. Pour que cela arrive, il suffit que les séquences de type 'b' soient plus fréquentes et que la répartition entre segments 'a' et 'b' produise exactement la même torsion que le sous-réseau n° 2 de dislocations vis. D'après la discussion ci-dessus, cela peut avoir lieu dès que le rapport entre les densités de dislocations mixtes et de dislocations vis est supérieur à 2. Puisque, pour l'échantillon considéré ici, ce rapport est de l'ordre de 4, ce mécanisme a très certainement lieu. En réalité, il s'agit du même mécanisme responsable du réseau rectangulaire de dislocations vis de l'échantillon 2-a, mais cette fois-ci, comme nous l'avions prévu, le «remplacement» d'une partie des dislocations du sous-réseau n° 1 par les composantes vis des dislocations mixtes est poussé à sa limite : la disparition totale du sous-réseau n° 1. Il semble en effet favorable vis à vis de l'énergie d'interface d'éliminer totalement une moitié du réseau 2D standard de dislocations vis. La géométrie complète du joint de grains de l'échantillon 3-a est donc bien déterminée par les dislocations imagées sur la figure 64(a) qui forment des cellules hexagonales aplaties ; la grande dimension de ces cellules (selon  $[011]$ ) est exactement la période  $D_2$  des dislocations vis et la petite dimension est  $\ell = 67 \pm 25$  nm (voir la figure 64(b)). Cependant, ces cellules sont quelque peu irrégulières (i) parce que les segments de dislocations mixtes ne sont pas rectilignes, (ii) parce que le décalage des dislocations vis varie et (iii) à cause de la présence des cavités d'interface.

Ces considérations sont confirmées par des images de MET en champ sombre formées

avec des vecteurs de diffraction  $\mathbf{g}$  de type 020 et 002 (Fig. 66). D'après la condition de

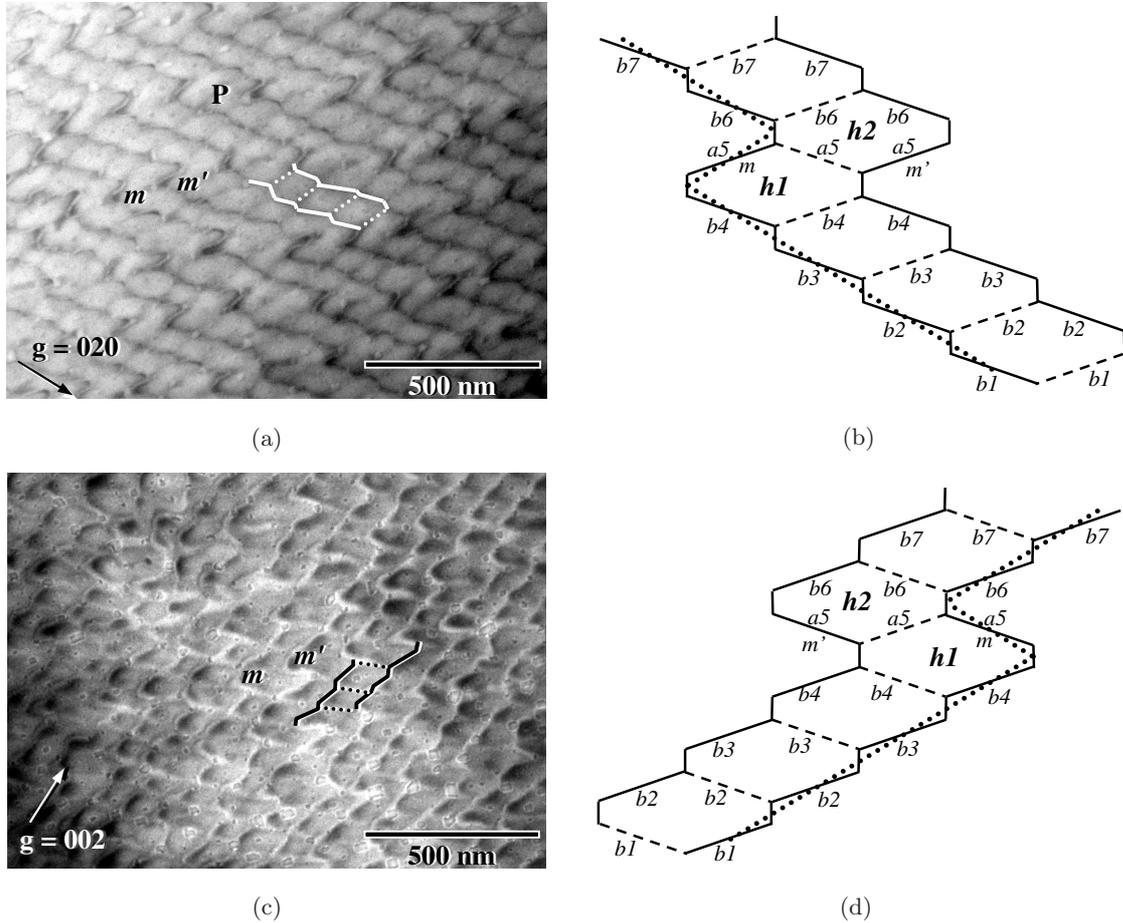


FIG. 66. (a) et (c) : vues planes de MET (deux ondes 020 et 002 respectivement, champ sombre) du joint de grains de l'échantillon 3-a. Les crans  $m$  et  $m'$  y sont indiqués et quelques cellules hexagonales y sont surlignées : les segments de dislocations fortement et faiblement contrastés en trait continu et pointillé respectivement. Sur l'image (a), le jeu d'hexagones non standard autour de  $P$  (voir le texte) est aussi indiqué. (b) et (d) : représentations schématiques des segments de dislocations vis et mixtes fortement contrastés (lignes continues) et faiblement contrastées (lignes discontinues) pour  $\mathbf{g} = 020$  et  $\mathbf{g} = 002$  respectivement. Les directions et types de séquences sont identiques à ceux de la figure 65. Les lignes pointillées représentent l'orientation moyenne des lignes sombres visibles sur les images. Les échelles sont différentes pour les schémas et les images.

visibilité des dislocations et la figure 65, tous les segments de dislocations vis et un segment sur deux de chaque dislocation mixte devraient être fortement contrastés pour  $\mathbf{g} = 020$ ,

tandis que les mêmes segments de dislocations vis et le reste des segments de dislocations mixtes devraient être fortement contrastés pour  $\mathbf{g} = 002$  ; dans chaque cas, l'autre moitié des segments de dislocations mixtes devrait être faiblement contrastée. En rassemblant les résultats sur l'accommodation de la torsion et sur le contraste des dislocations, nous trouvons que, dans le cas de la figure 65, le vecteur de Burgers des segments de dislocations mixtes en contraste pour  $\mathbf{g} = 020$  est  $\frac{a}{2}[1\bar{1}0]$  s'ils appartiennent aux séquences dominantes de type 'b', alors qu'il est  $\frac{a}{2}[110]$  s'ils appartiennent aux séquences minoritaires de type 'a'. Par conséquent, le vecteur de Burgers des segments en contraste pour  $\mathbf{g} = 002$  est  $\frac{a}{2}[10\bar{1}]$  s'ils appartiennent aux séquences majoritaires de type 'b' et  $\frac{a}{2}[101]$  s'ils appartiennent aux séquences de type 'a'. De plus, quand on passe d'une dislocation mixte à la suivante (de  $m1$  à  $m2$ ), le motif de segments fortement et faiblement contrastés se décalent latéralement (d'environ une demi-période du réseau de dislocations vis) si les séquences des deux dislocations mixtes sont du même type, tandis qu'il ne se décale pas si elles ne le sont pas. Sur les figures 66(a) et 66(c), on observe des lignes fortement contrastées parallèles et équidistantes. Chaque ligne possède des crans (comme  $m$  et  $m'$ ) et tous les crans déplacent les lignes dans la même direction. La figure 66(a) peut maintenant être interprétée de la manière suivante (voir la figure 66(b)). Une portion de ligne fortement contrastée située entre deux crans est composée de segments mixtes de type 'b' séparés par de courts segments de dislocations vis (ici presque verticaux et à peine visibles). Un cran est dû à l'absence de déplacement latéral entre les segments en contraste de deux dislocations mixtes consécutives et correspond donc à l'insertion d'un segment de type 'a' entre deux séries de segments de type 'b'. La fréquence des crans dépend des valeurs respectives de la torsion et de la flexion : plus la torsion est grande, moins les crans sont fréquents (sur la figure 66(a), un cran est visible tous les quatre segments de type 'b' environ<sup>49</sup>). A l'inverse, la figure 66(c) (formée avec un vecteur de diffraction  $\mathbf{g}$  orthogonal :  $\mathbf{g} = 002$ ) montre des lignes brisées fortement contrastées (blanches) orientées approximativement selon le jeu complémentaire de segments de dislocations mixtes. D'après cette interprétation, les lignes fortement contrastées des figures 66(a) et 66(c) devraient être parallèles et équidistantes, et leurs crans devraient être corrélés, de sorte que deux hexagones ayant un motif de contraste non standard ( $h1$  et  $h2$  sur la figure 66(b)) soient situés entre des crans appartenant à deux lignes voisines. Le premier point est toujours vérifié et le second est vérifié dans la plupart des cas, bien que l'on trouve aussi des décalages donnant lieu au regroupement de quatre hexagones de contraste non standard (par exemple, autour de P sur la figure 66(a)). Cela peut être dû à l'interruption des séquences de dislocations mixtes par des cavités ou à l'absence d'un segment de dislocation vis.

<sup>49</sup>C'est également le cas pour la figure 66(c).

### 4.5.3 Synthèse de la section 4.5

Comme nous l'avions prévu au début de cette section, il est possible de former des joints de grains accommodant à la fois une flexion et une torsion constitués d'un réseau 1D de dislocations mixtes et uniquement d'un réseau 1D de dislocations vis (et pas du réseau 2D carré attendu); cela peut avoir lieu dès que le rapport entre les densités de dislocations mixtes et de dislocations vis est supérieur à deux. Dans le cas idéal où les dislocations de chaque réseau sont régulièrement espacées et où leurs segments sont rectilignes, un tel joint de grains simple possède l'énorme avantage de former une organisation de cellules périodique selon les deux directions du plan (comme nous l'avons déjà signalé à la page 106, ce n'est pas le cas de joints de grains composés d'un réseau 1D de dislocations vis et d'un réseau 2D de dislocations vis). Dans la réalité, comme nous l'avons vu avec l'échantillon 3-a, la régularité des réseaux peut être perturbée par les cavités d'interface ou par «l'ondulation» des dislocations mixtes autour de leur direction moyenne (en particulier lorsque celle-ci sont relativement éloignées les unes des autres).

## 4.6 Synthèse du chapitre

Pour conclure, nous avons montré que les réseaux de dislocations formés pour accommoder à la fois une flexion et une torsion entre deux cristaux peuvent interagir pour donner lieu à des configurations géométriques différentes de celles attendues (voir page 54 et suivantes). En particulier, lorsque le réseau 1D de dislocations mixtes est faiblement désorienté par rapport à une direction  $[011]$ , il peut légèrement désorienter les dislocations vis de leur plus proche direction  $[011]$  (celles-ci n'ont donc plus un caractère parfaitement vis). Mais surtout, les dislocations mixtes peuvent participer à l'accommodation de la torsion par l'intermédiaire des composantes vis, selon leur plus proche direction  $[011]$ , de leurs vecteurs de Burgers. Il en résulte une augmentation de la période des dislocations vis orientées selon (ou faiblement désorientées par rapport à) cette direction  $[011]$ . Cette augmentation de période peut aller jusqu'à la disparition de ces dislocations vis si les dislocations mixtes sont suffisamment nombreuses pour accommoder la torsion à leur place, de sorte que le joint de grains est alors simplement constitué d'un réseau 1D de dislocations mixtes accommodant la flexion et une partie de la torsion et d'un réseau 1D de dislocations vis accommodant le reste de la torsion, le tout formant des cellules hexagonales. Les échantillons de type 3 (voir page 106) dont les cellules ont une telle géométrie appartiennent à une sous-catégorie que nous nommons le type  $3_{hexa}$ ; l'échantillon 3-a en fait partie, nous pouvons donc le nommer également  $3_{hexa-a}$ . Cette configuration géométrique simple peut donner lieu à la formation de cellules de tailles plus faiblement dispersées et mieux ordonnées que dans la configura-

---

tion attendue car il n'y a plus d'intercalage des dislocations mixtes entre les dislocations vis. C'est pourquoi c'est certainement la configuration idéale pour l'organisation périodique 2D de nanostructures faiblement dispersées en taille. Pour que cette configuration soit obtenue, il faut que la période des dislocations vis existantes soit au moins deux fois supérieure<sup>50</sup> à celle des dislocations mixtes (qui elles doivent être faiblement désorientées par rapport à une direction  $[011\rangle$ ). D'après la formule de Frank (équation (20), page 56) et en faisant l'approximation des petits angles (nous avons choisi des angles de flexion et de torsion inférieurs à  $1^\circ$ ; voir page 57), cette condition est équivalente à la suivante :  $\theta_{torsion} < \frac{\sqrt{2}}{2}\theta_{flexion}$ .

---

<sup>50</sup>La valeur exacte dépend de la proportion entre séquences de type 'a' et séquences de type 'b'.



# Organisations de nanostructures III-V grâce aux réseaux de dislocations faiblement enterrés

## Sommaire du chapitre

---

<b>5.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>115</b>
<b>5.2</b>	<b>Démonstration de l'organisation de nanostructures III-V</b>	<b>116</b>
5.2.1	Formation des nanostructures	116
5.2.2	Corrélations entre les réseaux de dislocations et les nanostructures	118
5.2.3	Interprétation	120
<b>5.3</b>	<b>Influence des paramètres expérimentaux sur l'organisation des nanostructures</b>	<b>122</b>
<b>5.4</b>	<b>Synthèse</b>	<b>124</b>

---

## 5.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous allons mettre en évidence l'organisation latérale 2D de nanostructures III-V auto-assemblées grâce à un joint de grains faiblement enterré dans du GaAs. Les croissances de ces nanostructures ont été réalisées sur des substrats composites de type  $3_{hexa}$  (voir page 112). Nous venons de montrer que c'est certainement la configuration la plus appropriée pour l'organisation périodique 2D de nanostructures homogènes en taille.

## 5.2 Démonstration de l'organisation de nanostructures III-V

### 5.2.1 Formation des nanostructures

Afin d'étudier l'influence en surface d'un joint de grains faiblement enterré, nous avons fait croître par EPVOM (après une montée en température à 650°C pour désorber l'oxyde de surface), sur nos substrats composites, des séquences GaAs/InAs/In<sub>0,15</sub>Ga<sub>0,85</sub>As/GaAs qui donnent lieu à la formation de BQs d'InGaAs sur substrat standard [95]. Nous allons nous intéresser ici à une croissance réalisée à une température de 470° sur un substrat composite de type 3<sub>hexa</sub>; il s'agit de l'échantillon 3<sub>hexa</sub>-b qui résulte du collage de deux cristaux vicinaux désorientés de  $0,3 \pm 0,1^\circ$  par rapport au plan (100) (identiques à ceux de l'échantillon 3-a; voir page 106), empilés de sorte que leurs marches atomiques forment un angle de  $90,1 \pm 0,1^\circ$  (la torsion contrôlée est donc de  $0,1 \pm 0,1^\circ$ ) – par conséquent, on s'attend à ce que les dislocations mixtes soient orientées comme pour l'échantillon 3-a selon une direction  $[011]$ . Les dislocations de son joint de grains sont imagées sur la figure 67(a); on reconnaît l'organisation caractéristique des échantillons de type 3<sub>hexa</sub>: les cellules hexagonales allongées selon une direction  $[011]$  (voir page 107 et suivantes). La période des dislocations vis est de  $D_1 = 261 \pm 61$  nm (Fig. 67(b)), ce qui correspond d'après la formule de Frank à une torsion de  $0,093 \pm 0,022^\circ$ , en accord avec la valeur attendue; celle des dislocations mixtes est de  $D_m = 50 \pm 15$  nm (en accord avec la valeur attendue de  $45 \pm 15$  nm; voir page 106); et la largeur  $\ell$  des cellules vaut  $88 \pm 32$  nm. La structure de l'échantillon

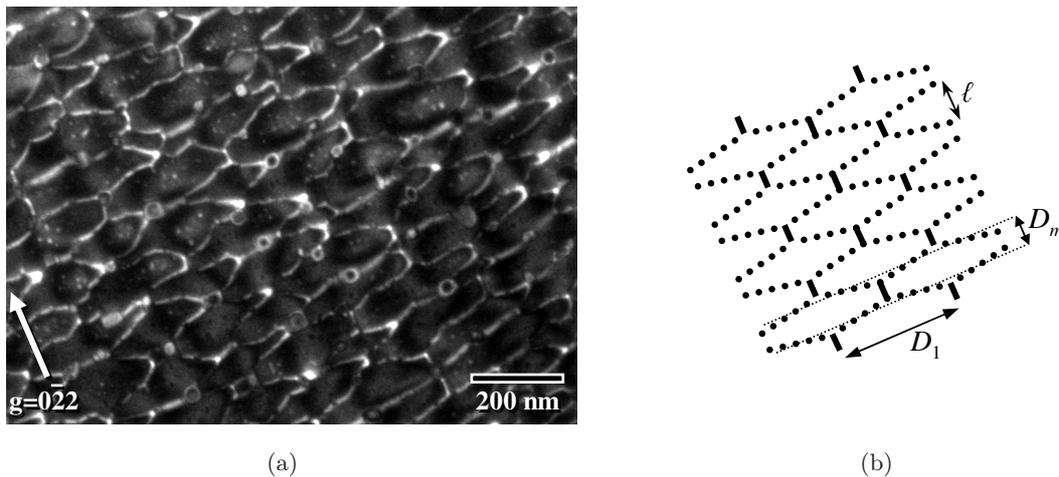


FIG. 67. (a) Vue plane de MET (faisceau faible  $\overline{022}$ ) de l'échantillon 3<sub>hexa</sub>-b. L'orientation absolue du vecteur de diffraction  $\mathbf{g}$  a été choisie de manière arbitraire pour que les dislocations mixtes et vis soient orientées comme celles de l'échantillon 3-a. (b) Représentation schématique de (a).

après croissance est imagée sur une coupe en section transverse observée au MET (Fig. 68).

En partant du bas de l'image, on voit le substrat hôte (n° 1) et la couche collée de GaAs (n°

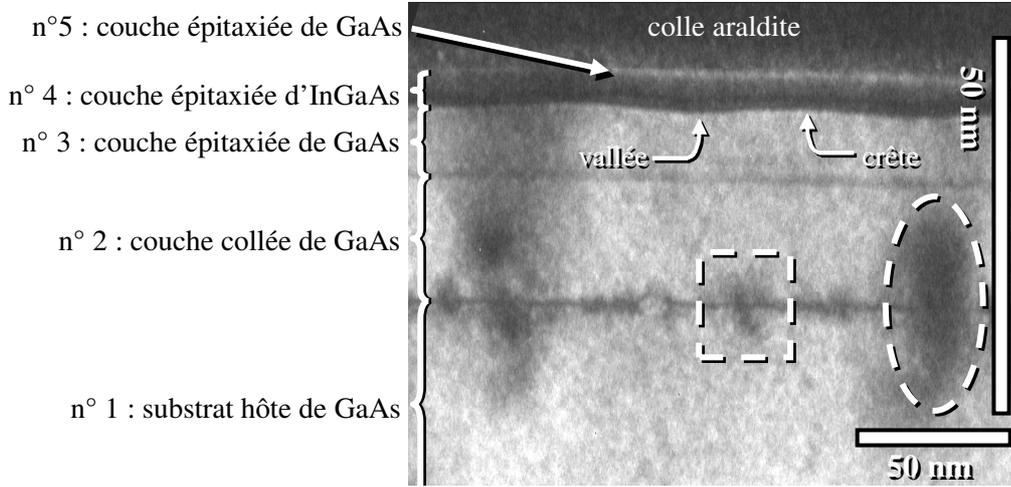


FIG. 68. Coupe transverse de MET (deux ondes 200, champ sombre) d'un substrat composite après croissance (échantillon  $3_{\text{hexa-b}}$ ). L'ellipse et le rectangle entourent respectivement une dislocation et une cavité d'interface. Notez les différentes échelles horizontales et verticales choisies pour mettre en évidence les ondulations des couches n° 3 et 4. Le contraste diffus au-dessus de la couche blanche de GaAs n° 5 est due à la colle araldite utilisée pour préparer l'échantillon en coupe.

2). Leur interface est le joint de grains, où les larges tâches noires résultent des déformations induites par les dislocations et les plus petites, des cavités. Comme on s'y attendait (voir page 70), les dislocations sont restées confinées à l'interface de collage (cela s'est confirmé sur l'ensemble de la lame mince et pas seulement sur cette petite zone en particulier). Les couches épitaxiées sont empilées au-dessus de la couche n° 2. Aucune BQ n'a été observée sur cet échantillon. Cependant, la couche tampon de GaAs (n° 3) et la couche d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  (n° 4; résultant de l'interdiffusion entre les couches nominales d'InAs et d' $\text{In}_{0,15}\text{Ga}_{0,85}\text{As}$ ) présentent toutes deux des modulations d'épaisseur que nous allons détailler. Finalement, une fine couche de GaAs (n° 5) recouvre la structure (le contraste diffus au-dessus de cette dernière est due à la colle araldite utilisée pour préparer l'échantillon en coupe). Patriarche *et al.* [96] ont étalonné le contraste de coupes transverses de MET (réalisées dans des conditions d'imagerie identiques à celles de la figure 68) de puits quantiques d'InGaAs contraints dans du GaAs en fonction de leurs concentrations en indium (par contraste, il faut ici comprendre le rapport d'intensité entre l'InGaAs et le GaAs). D'après leur courbe expérimentale et notre rapport  $\alpha = 0,62 \pm 0,04$  de l'intensité provenant de la couche n° 4 par rapport à celle provenant du GaAs environnant, nous avons déterminé la composition moyenne de

notre couche d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  :  $x = 0,31 \pm 0,02$ . La présence de la ligne sombre entre les deux couches de GaAs n° 2 et 3 peut surprendre, mais il ne faut pas oublier que cette interface résulte d'une reprise d'épitaxie sur la surface du substrat composite obtenue après élimination des couches d'arrêt de gravure d'AlGaAs (voir page 85) et qu'elle ne peut donc pas avoir la qualité d'une interface avec un substrat «epi-ready» désoxydé. De plus, des expériences de spectroscopie de masse d'ions secondaires montrent que des concentrations d'impuretés aussi faibles que  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  peuvent produire ce contraste.

D'après ces images, il apparaît déjà que les modulations d'épaisseur de la couche tampon de GaAs et de la couche d'InGaAs ne sont pas distribuées de manière aléatoire. En effet, on constate qu'une épaisseur plus importante d'InGaAs a crû dans les vallées de la couche de GaAs (Fig. 68). De plus, puisque, comme on peut le voir sur la figure 68, les dimensions latérales de ces modulations sont de quelques dizaines de nanomètres tandis que leurs amplitudes sont de quelques nanomètres, ce sont véritablement des nanostructures de matériaux III-V. Ces nanostructures résultent clairement de l'effet du joint de grains pendant la croissance et ne sont pas dues à une éventuelle ondulation initiale de la surface puisque, comme nous l'avons vu en page 87, après retrait des couches d'arrêt, les surfaces des substrats composites présentent une rugosité non ordonnée et de plus négligeable ; d'ailleurs, l'interface de reprise d'épitaxie couche n° 2 / couche n° 3 apparaît parfaitement plane (Fig. 68). Cependant, des coupes transverses ne permettent ni une étude de l'organisation spatiale des nanostructures, ni une étude de leur relation avec les dislocations. Dans la suite, nous allons démontrer la corrélation des nanostructures avec le joint de grains et nous discuterons de l'origine de cette corrélation.

## 5.2.2 Corrélations entre les réseaux de dislocations et les nanostructures

Seules des vues planes permettent d'apporter la preuve de la corrélation entre les nanostructures et les dislocations. En figure 69 on voit deux vues planes de MET de l'échantillon  $3_{hexa}$ -b prises avec des vecteurs  $\mathbf{g}$  orthogonaux de type 020. Sur ces deux images apparaissent des lignes fortement contrastées. Bien que le contraste soit légèrement perturbé par les nanostructures épitaxiées, on y reconnaît aisément les lignes brisées fortement contrastées dont nous avons discuté en page 110 et suivantes pour l'échantillon 3-a (Fig. 66) ; ici un cran est intercalé tous les deux segments de dislocations mixtes environ. Les cellules hexagonales formées par les dislocations peuvent être reconstituées : quelques unes sont surlignées sur la figure 69(b).

Sur les images de la figure 69, on voit également, à l'intérieur des cellules de dislocations, des zones claires séparées par des «valées» sombres. Trois points cruciaux sont à noter à ce sujet :

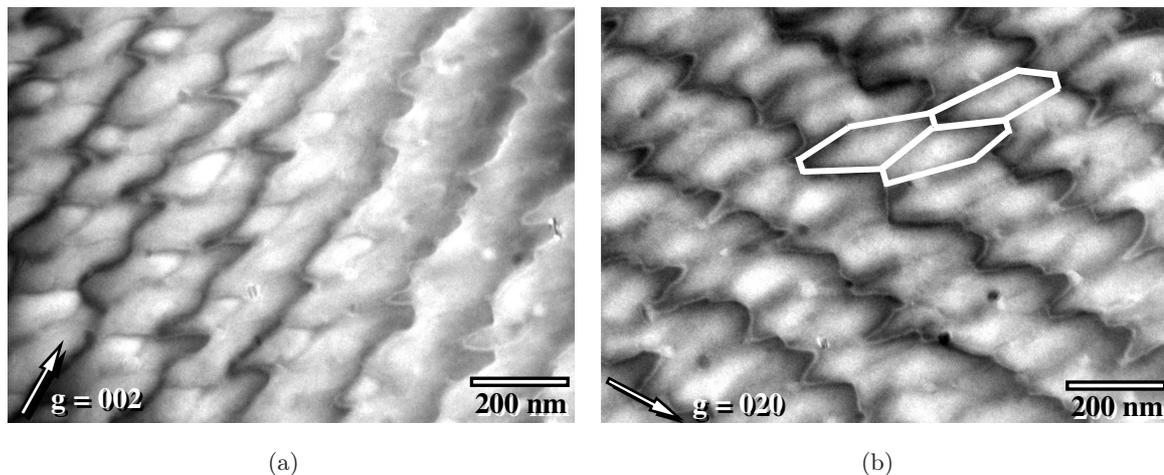


FIG. 69. Vues planes de MET (deux ondes 020, champ sombre) de l'échantillon  $3_{hexa-b}$  : (a)  $g = 002$  ; (b)  $g = 020$ . Quelques cellules de dislocations sont surlignées sur l'image (b)

- (a) ce motif de zones claires est similaire bien qu'observé sur des images prises avec des réflexions orthogonales (Fig. 69) ;
- (b) les zones claires ont les mêmes périodicités que les RDs sous-jacent et leur orientation est proche de celle des cellules du joint de grains ;
- (c) ces motifs ne sont pas observés avant croissance : chaque cellule hexagonale de l'échantillon 3-a (Fig. 66 page 110), sur lequel aucune croissance n'a été réalisée, possède un contraste gris uniforme (les légères variations de contraste observées à plus grande échelle sont dues à des changements dans les conditions de diffraction liés à la courbure de la lame mince de MET).

Le point (a) prouve que le motif n'est pas un contraste de déformation mais une cartographie des variations locales du facteur de structure (intégré sur l'épaisseur de la lame mince). Ces variations ne peuvent pas être dues à de fortes variations de composition de la couche d'alliage InGaAs car rien de tel n'a été observé sur les coupes transverses de MET (Fig. 68). Elles doivent certainement résulter des variations d'épaisseur des couches de GaAs et d'InGaAs déjà observées sur les images en coupe. En effet, puisque la réflexion 020 a une grande longueur d'extinction ( $\sim 860$  nm dans le GaAs) alors que les lames de MET sont minces (environ 100 nm) et puisque des alliages d' $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  avec  $x \sim 0,3$  ont approximativement le même facteur de structure 020 que le GaAs [96], une région plus claire correspond à une épaisseur locale plus importante du GaAs et/ou de l'InGaAs [93]. Cependant, puisque l'épaisseur de la couche tampon de GaAs est plusieurs fois supérieure à celle de l'alliage, le motif de contraste est dominé par la contribution du GaAs. Finalement, le point (c) prouve que la corrélation entre les modulations d'épaisseur (point (b)) et le

joint de grains a été induite, lors de la croissance, par ce dernier. Nos observations de MET démontrent donc que nous sommes parvenus à ordonner des nanostructures de GaAs et/ou d'InGaAs grâce au champ de déformation des RDs sous-jacent. Ces nanostructures résultent de modulations d'épaisseur de la couche d'InGaAs superposées aux modulations de la couche de GaAs épitaxié.

Une autre preuve de la présence en surface de nanostructures ordonnées est donnée par des images AFM (Fig. 70) qui révèlent les ondulations de surface résultant de la superposi-

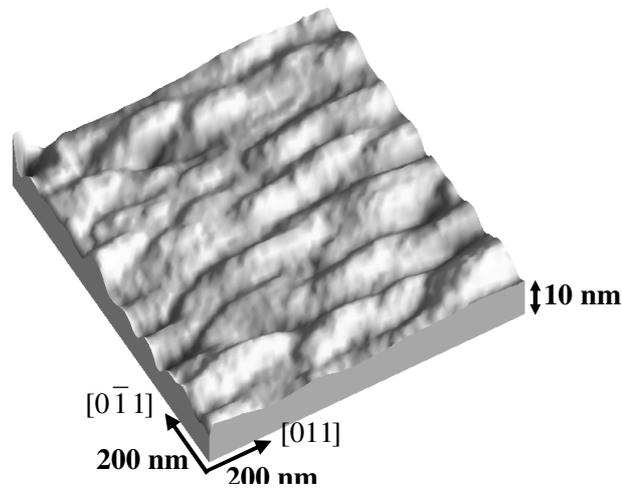


FIG. 70. Image AFM de l'échantillon  $3_{hexa-b}$  montrant l'ondulation de surface due aux nanostructures organisées.

tion des nanostructures d'InGaAs et de GaAs ; l'amplitude moyenne de ces ondulations est de  $2,0 \pm 0,1$  nm. De plus, des profils de hauteur selon les deux directions  $[011]$  montrent que ces ondulations de surface ont des dimensions latérales et des orientations identiques (à la résolution latérale de l'AFM et à la dispersion des mesures près) à celles des cellules du joint de grains (Fig. 67, page 117) observées sur les vues planes de MET. Comme l'épaisseur de la couche ondulée de GaAs est plus importante que celle d'InGaAs, les ondulations de surface sont certainement dues essentiellement à la première. Ce jeu d'observations cohérentes prouve donc amplement que le champ de déformation du joint de grains enterré est à l'origine de l'organisation spatiale des nanostructures.

### 5.2.3 Interprétation

Pour comprendre comment les nanostructures sont ordonnées par le joint de grains, nous devons revenir à la structure de ce dernier. Nous avons observé précédemment (page 108 et suivantes) que les composantes coin de deux segments consécutifs de chaque dislocation mixte ont des sens opposés. Cela implique que la déformation élastique induite d'un côté

donné de l'interface par de telles paires alterne également entre dilatation et compression ; cela est indiqué par les signes '+' et '-' sur la figure 71 sur laquelle sont représentées schématiquement plusieurs cellules hexagonales du joint de grains. Notez que la composante coin, dans le plan de l'interface, d'un segment donné de dislocation mixte est orientée dans un sens indépendant de la séquence ('a' ou 'b') à laquelle il appartient (Fig. 65). Il en résulte que, en faisant abstraction de la dispersion en taille des cellules de dislocations, le motif de déformations de surface est périodique selon les deux directions du plan ; en particulier, il n'est pas perturbé par la présence des crans décrits en pages 111 et suivantes. Nous supposons que le signe '+' correspond à une dilatation locale dans le cristal «supérieur», qui contient les couches épitaxiées. Pour des raisons de symétrie, la déformation élastique

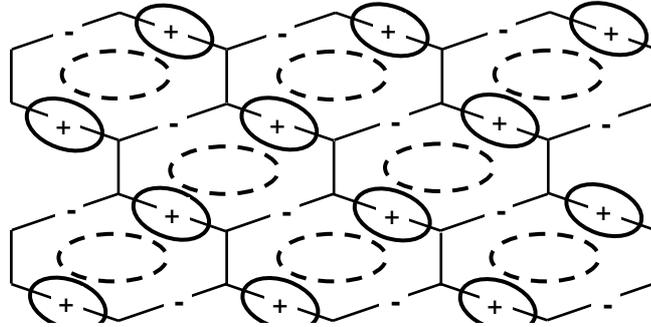


FIG. 71. Représentation schématique des déformations élastiques ('+' : dilatation ; et '-' : compression) induites dans le cristal «supérieur» par un joint de grains mixte formant des cellules hexagonales (de type  $3_{hexa}$ ). Les ellipses en trait continu (respectivement discontinu) indiquent les régions où le GaAs (respectivement l'InGaAs) croît de manière préférentielle.

doit s'annuler aux centres des hexagones. Quand la couche tampon de GaAs est déposée, elle va croître préférentiellement sur des zones où le paramètre de maille de surface est proche du sien, c'est-à-dire sur les régions centrales de chaque hexagone (Fig. 71). Cela explique pourquoi l'épaisseur de cette couche n'est pas uniforme (Fig. 68 page 117) et également pourquoi les zones épaisses devraient coïncider avec ces régions, comme démontré à la sous-section précédente. D'après le même mécanisme, on s'attend à ce que la couche d'alliage croisse là où la surface est dilatée (Fig. 71) puisqu'elle a un paramètre de maille supérieur à celui du GaAs. Cela explique pourquoi l'InGaAs a tendance à croître dans certaines vallées de la couche tampon de GaAs (Fig. 68). L'aspect allongé des motifs observés en surface (Fig. 70) résulte du fait que les nanostructures d'InGaAs doivent croître préférentiellement dans une vallée sur deux de la couche tampon de GaAs n° 3, celles correspondant aux zones en dilatation (Fig. 71).

### 5.3 Influence des paramètres expérimentaux sur l'organisation des nanostructures

Nous avons modifié les conditions expérimentales pour vérifier que l'organisation des nanostructures n'est pas réalisable que pour une configuration particulière. Nous allons ici étudier l'échantillon  $3_{hexa-c}$  qui, tout comme l'échantillon  $3_{hexa-b}$ , résulte du collage de deux cristaux vicinaux désorientés de  $0,3 \pm 0,1^\circ$  par rapport au plan (100) et superposés de sorte que leurs marches atomiques forment entre elles un angle de  $90,1 \pm 0,1^\circ$ . Sur cet échantillon, la même séquence de croissance que sur l'échantillon  $3_{hexa-b}$  a été déposée (voir page 116), mais à une température légèrement inférieure :  $450^\circ\text{C}$ , contre  $470^\circ\text{C}$ . Nous espérons former des nanostructures moins plates et nous rapprocher ainsi de l'aspect de BQs conventionnelles. En effet, quand la température est réduite, l'énergie thermique des atomes déposés en surface est diminuée. Si un atome déposé dans l'une de ses zones de croissance préférentielle (définies à la sous-section précédente) a une faible énergie thermique, il ne peut pas s'en échapper et un mode de croissance 3D (comme pour les îlots SK) est favorisé. Si l'énergie thermique des atomes est accrue, la plupart d'entre eux pourra s'échapper de ces zones et la croissance sera plus homogène (2D).

La structure du joint de grains (Fig. 72) est bien celle d'un échantillon de type  $3_{hexa}$ . La

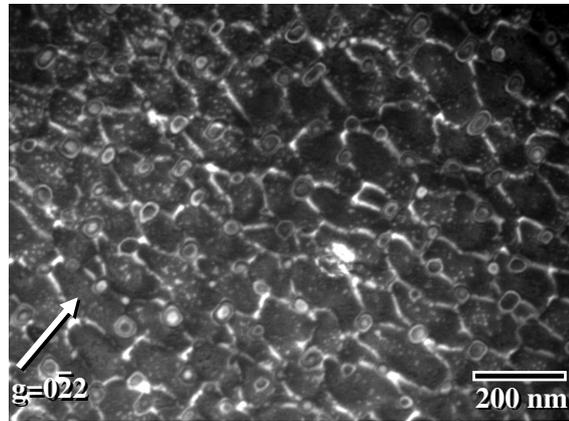


FIG. 72. Vue plane de MET (faisceau faible  $0\bar{2}2$ ) de l'échantillon  $3_{hexa-c}$ . L'orientation absolue de  $\mathbf{g}$  est choisie arbitrairement.

périodicité des dislocations vis (parallèles à  $\mathbf{g}$ ) est inférieure à celle de l'échantillon  $3_{hexa-b}$  :  $128 \pm 20$  nm (correspondant à une torsion de  $0,18 \pm 0,03^\circ$ ), bien que toujours en accord avec la torsion de  $0,1 \pm 0,1^\circ$  imposée. En revanche, celle des dislocations mixtes est identique ( $49 \pm 3$  nm) comme attendu, puisque la vicinalité des cristaux collés était identique. Les segments de dislocations vis sont également plus longs ; c'est pourquoi la largeur  $\ell$  des cellules est plus petite :  $\ell = 63 \pm 11$  nm (Fig. 73) ; en conséquence, l'angle que forment entre eux

deux segments consécutifs de dislocations mixtes est plus grand.

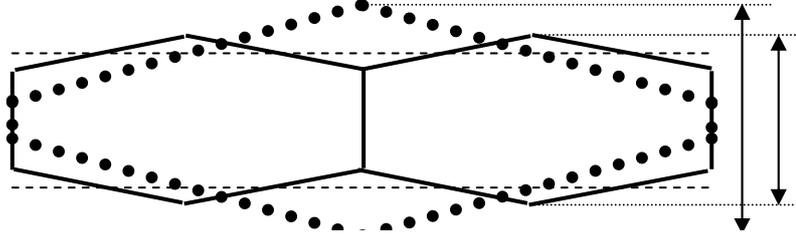


FIG. 73. Représentation schématique, à l'échelle, des cellules de dislocations des échantillons  $3_{hexa-b}$  (en pointillé gras) et  $3_{hexa-c}$  (en trait continu). Les deux lignes discontinues représentent l'orientation moyenne des dislocations mixtes; la distance qui sépare ces lignes est donc la période de ces dislocations. Les distances indiquées par les flèches sont les largeurs  $\ell$  des cellules des deux échantillons.

De nouveau des nanostructures organisées ayant des dimensions latérales et des orientations identiques à celles des cellules du joint de grains sont formées en surface (Fig. 74). Ces

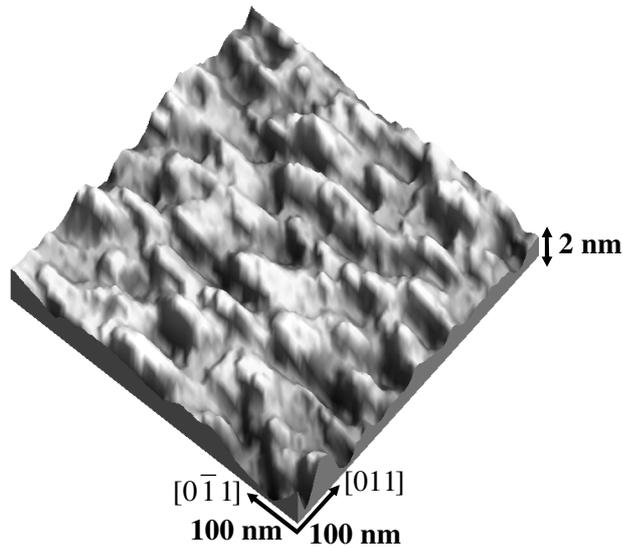


FIG. 74. Image AFM de l'échantillon  $3_{hexa-c}$  montrant l'ondulation de surface due aux nanostructures organisées.

nanostructures de surface ont une hauteur moyenne de  $1,1 \pm 0,1$  nm – pour l'échantillon  $3_{hexa-b}$  elle était de  $2,0 \pm 0,1$  nm<sup>51</sup>. Malgré cette valeur plus faible, les nanostructures de

<sup>51</sup>Cette hauteur moyenne plus faible pour l'échantillon  $3_{hexa-c}$  est probablement due à des modulations plus faibles des champs élastiques en surface, à cause d'un phénomène d'écrantage entre dislocations voisines (voir page 62) : en effet, pour l'échantillon  $3_{hexa-b}$  les dislocations vis sont plus proches les unes des autres.

surfaces de l'échantillon  $3_{hexa-c}$  semblent moins plates. Afin de confirmer ce point, nous avons assimilé les bases de ces nanostructures à des ellipses (puisqu'elles en ont l'aspect) et avons calculé pour chaque nanostructure des figures 70 (échantillon  $3_{hexa-b}$ ) et 74 (échantillon  $3_{hexa-c}$ ) le rapport entre leur hauteur et l'aire de leur base. Pour l'échantillon  $3_{hexa-b}$ , la moyenne de ces rapports de forme vaut  $1,6 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-1}$  tandis que pour l'échantillon  $3_{hexa-c}$  elle vaut  $2,6 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-1}$ , c'est-à-dire 1,6 fois celle de l'échantillon  $3_{hexa-b}$ . Donc les nanostructures de surface de l'échantillon  $3_{hexa-c}$  sont bel et bien moins plates que celles de l'échantillon  $3_{hexa-b}$ .

## 5.4 Synthèse

En résumé, grâce aux champs élastiques périodiques de joints de grains faiblement enterrés à géométrie simple (composés d'un réseau 1D de dislocations mixtes et d'un réseau 1D de dislocations vis organisés en cellules hexagonales), nous avons ordonné en surface des nanostructures de semiconducteurs III-V selon les deux directions du plan de l'interface de collage. Elles ont des dimensions latérales et des orientations identiques à celles des cellules du joint de grains sous-jacent et sont donc bien la conséquence directe des modulations 2D en surface des champs élastiques induites par les dislocations ordonnées faiblement enterrées. Leurs dispersions en taille sont de l'ordre des dispersions des dimensions des cellules de dislocations :

- pour l'échantillon  $3_{hexa-b}$  : 23% pour la largeur des nanostructures (à comparer à la largeur  $\ell$  des cellules de dislocations dont la dispersion est de 35%) et 36% pour la longueur (à comparer à la longueur des cellules, c'est-à-dire la période des dislocations vis, dont la dispersion est de 25%) ;
- pour l'échantillon  $3_{hexa-c}$  : 17% pour la largeur (à comparer à la largeur des cellules dont la dispersion est de 17%) et 16% pour la longueur (à comparer à la longueur des cellules dont la dispersion est de 16%).

La dispersion des dimensions latérales de nos nanostructures est donc plus élevée que celle de BQs auto-assemblées d'InAs sur GaAs qui peut être de seulement 10% [9]. Mais l'on voit que pour l'échantillon  $3_{hexa-c}$  les dispersions sur les nanostructures sont plus faibles que pour l'échantillon  $3_{hexa-b}$  car les dimensions des cellules de dislocations sont également moins dispersées. Cela est normal car en réduisant la période des dislocations, la dispersion sur les dimensions des cellules est aussi réduite (à cause d'interactions plus fortes entre dislocations voisines). On pourrait donc former des nanostructures de tailles plus homogènes grâce à des RDs de périodes plus faibles. D'autre part, il serait intéressant de comparer les densités des nanostructures organisées d'InGaAs aux BQs d'InGaAs formées dans les mêmes conditions de croissance. Malheureusement, sur les images AFM (Fig. 70 page 120 et 74 page 123), ainsi

---

que sur les observations en MET en conditions de type 002 champ sombre (Fig. 69 page 119), il est impossible de distinguer les nanostructures d'InGaAs des nanostructures de GaAs. On peut tout de même estimer la densité maximale des nanostructures d'InGaAs en supposant que l'organisation schématique de la figure 71 est rigoureusement vraie : en supposant que des nanostructures d'InGaAs se forment dans toutes les zones de dilatation de surface. On trouve :  $7,6 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$  pour l'échantillon  $3_{hexa}$ -b et  $1,6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  pour l'échantillon  $3_{hexa}$ -c, alors que la densité de BQs d'InGaAs formées dans les mêmes conditions de croissance est de  $3 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . Les densités de nanostructures sur substrat composite sont directement liées aux densités des cellules de dislocations et devraient pouvoir être augmentées (jusqu'à dépasser celle des BQs formées sur substrat standard) en diminuant les périodicités des RDs. Par la même opération, les dimensions latérales des nanostructures ainsi que leur dispersion en taille seront réduites ; on s'approchera alors de celles des BQs.



# Synthèse globale de l'étude

Le but de cette étude était de contrôler à la fois la répartition spatiale à longue distance, la densité, la distribution en taille et la forme de nanostructures auto-assemblées (telles que les boîtes quantiques) sur substrat de GaAs pour de futures applications en opto-électronique et en photonique. Pour ce faire, nous avons voulu tirer parti des champs élastiques produits en surface par un réseau de dislocations (RD) périodique faiblement enterré.

Dans ce manuscrit, nous avons commencé par décrire les mécanismes de l'auto-assemblage. Nous avons en particulier rappelé que les sites de nucléation préférentielle des nanostructures auto-assemblées peuvent être des variations localisées des contraintes et déformations de surface. C'est pourquoi il semble judicieux de vouloir ordonner les nanostructures grâce aux champs élastiques induits en surface par un RD périodique faiblement enterré.

Nous nous sommes ensuite intéressés aux méthodes envisagées pour pallier les limitations de l'auto-assemblage, dont les RDs faiblement enterrés obtenus par collage épitaxial. Par collage épitaxial, on entend l'adhésion entre deux cristaux (en l'occurrence, une couche mince et un substrat hôte) par formation de liaisons covalentes à l'interface, lors d'un recuit à haute température (l'interface est donc un joint de grains). Pour accommoder la ou les désorientations cristallines entre ces cristaux (désorientations angulaires et/ou de désaccord de maille), un RD se forme à leur interface. La ou les périodicités de ce RD sont géométriquement liées aux désorientations et peuvent donc être choisies. La méthode du collage épitaxial présente également l'avantage d'être rapide : le RD se forme sous toute la surface d'un échantillon (appelé substrat composite : substrat hôte + couche collée) en une seule étape, à savoir le recuit. Enfin, la formation de ce RD ne s'accompagne pas de la formation de dislocations traversantes (contrairement aux RDs formés lors d'une hétéroépitaxie au-delà de la relaxation plastique). Les dislocations traversantes émergent en surface et se propagent dans les couches épitaxiées. Or les dislocations sont des centres de recombinaison radiative (parasite) et non radiative pour les porteurs de charge et dégradent donc les performances des dispositifs optiques.

Après avoir rappelé quelques notions utiles concernant les dislocations, nous nous sommes ensuite intéressés aux champs et à l'énergie élastiques théoriques produits en surface par

des RDs idéaux permettant l'accommodation soit d'une flexion (une rotation entre les directions cristallines des deux cristaux collés dont l'axe est contenu dans leur interface), soit une torsion (une rotation entre les directions cristallines des deux cristaux collés dont l'axe est normal à leur interface), c'est-à-dire les deux désorientations angulaires que nous avons imposées pour nos substrats composites. Pour l'accommodation d'une flexion, la formation d'un réseau unidimensionnel (1D) de dislocations mixtes est attendue, tandis que pour l'accommodation d'une torsion, c'est un réseau bidimensionnel (2D) carré de dislocations vis orientées selon des directions  $\langle 011 \rangle$  qui est attendu. Les champs et l'énergie élastiques induits en surface par de tels réseaux devraient reproduire leur périodicité. Ils sont d'autant plus forts en surface que les dislocations sont faiblement enterrées. D'autre part, pour une épaisseur donnée, en fonction de la périodicité des dislocations et des conditions de croissance, ce sera soit un joint de flexion, soit un joint de torsion qui sera plus favorable à l'organisation de nanostructures auto-assemblées. Enfin, pour nos substrats composites, à la fois une flexion et une torsion sont imposées. On s'attend donc à ce que les deux types de RDs se forment à la fois (c'est un joint mixte). De même que les champs élastiques d'un RD sont les sommes des contributions des dislocations qui le composent, les champs élastiques de surface d'un joint mixte sont les sommes des contributions des RDs qui le composent.

Nous avons ensuite décrit en détail la fabrication de nos substrats composites, c'est à dire le collage épitaxial d'une couche de GaAs de 20 nm d'épaisseur sur un substrat hôte de GaAs. Pour pouvoir être manipulée, cette couche est initialement épitaxiée sur des couches d'AlGaAs, elles mêmes épitaxiées sur un substrat sacrificiel de GaAs. Les couches d'AlGaAs sont des couches d'arrêt de gravure chimique sélective permettant l'élimination du substrat sacrificiel après le collage (ces couches sont également éliminées après le collage). Nous avons optimisé les conditions expérimentales, de sorte que le nombre de zones non collées dues à des impuretés emprisonnées à l'interface de collage ou à des dégâts causés aux surfaces initiales des deux cristaux collés a été considérablement diminué et que la surface des substrats composites à l'échelle du micron est à peine plus rugueuse que celle de substrats de GaAs standards ; cette rugosité est de plus non ordonnée. Nos échantillons sont donc de qualité suffisante pour que les croissances épitaxiales s'y fassent dans de bonnes conditions.

Nous avons ensuite mené une étude par microscopie électronique en transmission (MET) des joints de grains de nos substrats composites. Comme nous l'avons dit plus haut, leurs RDs doivent accommoder à la fois une flexion et une torsion. On pourrait donc s'attendre à ce que les joints soient une simple superposition des RDs idéaux, accommodant séparément les deux désorientations : un RD 1D de dislocations mixtes pour la flexion et un RD 2D carré pour la torsion. C'est ce qui est observé pour des échantillons de type 1, pour lesquels l'angle de flexion  $\theta_{flexion}$  est très inférieur à l'angle de torsion  $\theta_{torsion}$  et les dislocations mixtes forment un angle quelconque par rapport aux directions  $\langle 011 \rangle$ . Pour les échan-

---

tillons pour lesquels les dislocations mixtes sont faiblement désorientées par rapport à une direction  $\langle 011 \rangle$ , des différences notables par rapport à cette configuration sont visibles. En effet, de telles dislocations mixtes peuvent légèrement désorienter les dislocations vis par rapport à leurs orientations naturelles  $\langle 011 \rangle$ . Mais surtout, les dislocations mixtes peuvent participer à l'accommodation d'une partie de la torsion par l'intermédiaire des composantes vis, projetées sur leur plus proche direction  $\langle 011 \rangle$  du plan de l'interface de collage, de leurs vecteurs de Burgers. Il en résulte une augmentation de la période des dislocations vis orientées selon (ou faiblement désorientées par rapport à) cette direction  $\langle 011 \rangle$ ; c'est ce qui est observé pour les échantillons de type 2, pour lesquels  $\theta_{flexion} < \theta_{torsion}$  et les dislocations mixtes sont grossièrement orientées selon une direction  $\langle 011 \rangle$ . Cette augmentation de période peut aller jusqu'à la disparition des dislocations vis orientées selon cette direction  $\langle 011 \rangle$ , pour les échantillons de type 3 (pour lesquels  $\theta_{flexion} > \theta_{torsion}$  et les dislocations mixtes sont grossièrement orientées selon une direction  $\langle 011 \rangle$ ), si les dislocations mixtes sont suffisamment nombreuses pour accommoder la torsion à leur place, de sorte que le joint de grains est alors simplement constitué d'un réseau 1D de dislocations mixtes accommodant la flexion et une partie de la torsion et d'un réseau 1D de dislocations vis accommodant le reste de la torsion, le tout formant des cellules hexagonales (les échantillons possédant de tels joints de grains appartiennent au type  $3_{hexa}$ ). Cette configuration géométrique simple peut donner lieu à la formation de cellules de taille plus faiblement dispersées et mieux ordonnées que dans la configuration attendue car il n'y a plus d'intercalage des dislocations mixtes entre les dislocations vis : dans le cas idéal, les dislocations sont réparties de manière périodique selon les deux directions de l'interface de collage. C'est pourquoi elle est apparue comme la configuration idéale pour l'organisation périodique 2D de nanostructures faiblement dispersées en taille. Pour que cette configuration soit obtenue, il faut que la période des dislocations vis soit au moins deux fois supérieure à celle des dislocations mixtes (qui, elles, doivent être faiblement désorientées par rapport à une direction  $\langle 011 \rangle$ ); cette condition est équivalente à la suivante :  $\theta_{torsion} < \frac{\sqrt{2}}{2}\theta_{flexion}$ .

Nous avons tout naturellement retenu ces RDs hexagonaux pour nos tentatives d'organisation de nanostructures auto-assemblées. Nous avons fait croître sur nos substrats composites, par épitaxie en phase vapeur aux organo-métalliques (EPVOM), des séquences GaAs/InAs/In<sub>0,15</sub>Ga<sub>0,85</sub>As/GaAs qui donnent lieu à la formation de BQs d'InGaAs sur substrat de GaAs standard. Des observations de MET en coupe transverse et en vue plane nous ont permis de montrer que les dislocations des RDs n'ont pas migré vers la surface (pour y disparaître) lors de la croissance comme cela a déjà été observé pour des couches collées plus minces. De plus, comme attendu, aucune dislocation traversante n'est observée. De même, aucune BQ n'est observée; en revanche, les observations en coupe, montrent que la couche tampon de GaAs (la première couche épitaxiée sur les substrats composites), ainsi

que la couche d'InGaAs, résultant de l'interdiffusion entre les couches déposées d'InAs et d' $\text{In}_{0,15}\text{Ga}_{0,85}\text{As}$ , présentent des modulations d'épaisseur à l'échelle nanométrique – aussi bien en hauteur qu'en dimensions latérales. Il s'agit donc de nanostructures 3D. Sur ces observations en coupe, on peut noter que ces nanostructures ne sont pas réparties de manière aléatoire : l'épaisseur de la couche d'InGaAs est plus épaisse dans les vallées de la couche de GaAs. Puisque les corrugations (négligeables) de surfaces des substrats composites, avant croissance, ne sont pas ordonnées, ces nanostructures sont l'effet direct de l'influence en surface des RDs faiblement enterrés. Des observations de MET en vue plane, de microscopie à force atomique (AFM) et l'analyse des joints de grains que nous avons menée par MET nous ont permis de montrer que ces nanostructures sont ordonnées par les RDs. A cause des interactions entre dislocations mixtes et dislocations vis, un motif de dilatation et de compression (de répartition spatiale liée à celle des dislocations enterrées) est créé en surface. La couche tampon de GaAs épitaxiée croît de manière préférentielle là où la surface de GaAs n'est ni dilatée ni compressée, tandis que la couche d'InGaAs croît là où la surface est dilatée (puisque ce matériau a un paramètre de maille supérieur à celui du GaAs). Sur la majeure partie de la surface des substrats composites de type  $\mathcal{3}_{hexa}$ , les zones de croissance préférentielle du GaAs sont situées au dessus du centre des cellules hexagonales, tandis que celles de l'InGaAs sont situées au-dessus de deux des côtés des hexagones (ces deux côtés sont des segments de dislocations mixtes). Nous sommes donc parvenus à ordonner selon deux dimensions à la fois des nanostructures auto-assemblées de GaAs et d'InGaAs grâce à des RDs faiblement enterrés : leur répartition spatiale à longue distance, leurs formes et leurs dimensions sont imposés par ces derniers.

# Perspectives

Nous aurions aimé finir cette étude par des caractérisations des propriétés d'émission optique de ces nanostructures ordonnées afin de voir notamment si les porteurs de charge  $y$  sont suffisamment confinés pour qu'ils soient peu sensibles aux dislocations des joints de grains. Malheureusement pendant les derniers mois de cette thèse, nous avons dû faire face à des problèmes de pollution du bâti d'EPVOM. A cause de cela, les couches d'arrêt de gravure chimique sélective d'AlGaAs étaient inopérantes et les couches d'AlGaAs destinées à confiner les porteurs de charge au voisinage des nanostructures étaient peu efficaces. Nous ne pouvions donc plus ni fabriquer des substrats composites, ni faire croître des structures permettant des caractérisations optiques des nanostructures. Nous avons voulu contourner le premier problème en faisant croître des couches d'arrêt de gravure par épitaxie par jets moléculaires (EJM), mais celles-ci ne résistaient pas assez longtemps à notre solution de gravure sélective. Pour la suite de cette étude, il faudra donc commencer par des caractérisations optiques puisque nos RDs faiblement enterrés sont destinés à ordonner des BQs pour des applications en photonique et en opto-électronique.

Les nanostructures ordonnées que nous avons formées jusqu'à présent ont des dimensions latérales plus grandes que celles de BQs d'InGaAs auto-assemblées car les cellules des RDs hexagonaux étaient grandes. Pour que les porteurs de charge soient fortement confinés dans les trois directions de l'espace dans ces nanostructures ordonnées et que celles-ci soient elles aussi des BQs, il faut en réduire les dimensions latérales en réduisant la taille des cellules. Pour cela, il faut imposer des désorientations angulaires plus importantes entre les cristaux collés en se plaçant toujours dans des conditions de formation de RDs hexagonaux puisque nous avons vu que c'est la configuration idéale pour une organisation 2D des nanostructures. De plus, il faudra tenter de faire en sorte que les dislocations mixtes ne soient pas plus nombreuses que nécessaire pour l'obtention de cette configuration, afin d'obtenir une organisation 2D périodique des nanostructures sur une surface aussi grande que possible. En réduisant les dimensions des cellules, leurs tailles, leurs formes, ainsi que leurs périodicités seront homogénéisées à cause d'interactions plus fortes entre dislocations voisines. Il en résultera une meilleure organisation des nanostructures qui seront également plus denses.

Toujours dans le but de réduire les irrégularités des cellules, il faudra réduire le nombre et la taille des cavités nanométriques présentes à l'interface de collage car celles-ci ont tendance à dévier localement les dislocations. Ces cavités résultent de la non planéité des surfaces collées ou de la présence d'impuretés. Or nous avons vu que les surfaces obtenues (avant collage) après la croissance des couches d'arrêt de gravure et de la couche de GaAs à transférer présentent des ondulations à l'échelle du micron, certainement à cause de problèmes de désorption de l'oxyde de surface sur les substrats désorientés (dont les surfaces, elles, ne sont pas ondulées). Il faut donc résoudre ce problème – éventuellement en faisant croître la structure par EJM. Un premier test nous a permis de vérifier qu'il est ainsi possible d'éliminer l'oxyde de surface et de faire croître une couche tampon de GaAs plane. Un autre moyen de réduire le nombre de cavités d'interface est évidemment de tenter d'améliorer encore la procédure de nettoyage pour éliminer aux maximum les impuretés emprisonnées à l'interface de collage. Enfin, pour réduire davantage le nombre de cavités d'interface on peut utiliser une procédure de collage un peu plus complexe à mettre en œuvre que la nôtre. Deux procédures peuvent être envisagées. Il s'agit de deux procédures qui permettent de coller sans pression des plaquettes de GaAs de diamètre allant jusqu'à 4" [97]. La première comporte trois étapes : (i) les plaquettes à coller sont recuites sous atmosphère d'hydrogène entre 580 et 620°C afin d'éliminer les polluants volatiles et les divers oxydes de surface ; (ii) sans sortir les plaquettes du four, le collage est initié par une brève et faible pression localisée (le front de collage se propage instantanément sur toute la surface de contact) ; et (iii) un recuit est réalisé à la même température pendant une à trois heures. La seconde méthode se divise en quatre étapes : (i) les plaquettes sont introduites dans un système à ultra-vide dans lequel la pression est maintenue inférieure à  $5 \times 10^{-11}$  Torr (leurs faces polies y sont séparées d'une dizaine de millimètres) ; (ii) elles subissent ensuite un recuit à 400°C ; (iii) après que l'élimination de l'eau et des polluants a été confirmée grâce à un spectromètre de masse (typiquement après 10 à 15 min), de l'hydrogène atomique produit par craquage thermique est injecté dans l'ouverture entre les deux plaquettes à 400°C, puis 500°C (pendant 30 min à chaque température) ; (iv) ces dernières sont ensuite mises en contact entre 500 et 150°C. Ces deux méthodes permettent d'éliminer les cavités d'interface dues à l'emprisonnement d'impuretés entre les cristaux. Des cavités dues à la non planéité des surfaces mises en contact peuvent apparaître, mais d'après la même équipe, il est possible de les éliminer par un recuit à 800°C de plusieurs heures à l'air [98]. Outre la possibilité d'éliminer les cavités d'interface, ces deux méthodes présentent l'énorme avantage de permettre de coller des plaquettes entières. De plus, elles permettent de s'affranchir des éventuels dégâts causés par l'application d'une pression mécanique pour maintenir les surfaces à coller en contact. D'autre part, l'absence de pression permet certainement une meilleure évacuation des produits gazeux à l'interface de collage. De plus, on peut avec ces méthodes espérer

---

un contrôle de l'angle de torsion avec une précision inférieure à  $0,1^\circ$  puisque le risque de faire bouger légèrement l'empilement lors de l'application de la pression mécanique est éliminé. Malheureusement ces méthodes sont très difficiles à mettre en œuvre surtout si l'on veut contrôler l'angle de torsion. Il faudrait disposer de bras manipulateurs très précis. Des directions cristallographiques pourraient être repérées sur les deux plaquettes par gravure chimique anisotrope (voir la thèse de F. Fournel [99]) et, grâce à une caméra à infra-rouge, l'angle de torsion désiré pourrait être imposé avec une précision dépendant de la précision des bras manipulateurs.

Mise à part l'optimisation des joints de grains pour l'organisation de BQs, d'autres points sont à explorer. Par exemple : (i) on pourrait observer nos échantillons par microscopie à effet tunnel (scanning tunneling microscope : STM) pour avoir une idée plus précise de la topologie de surface après croissance des nanostructures ; (ii) on pourrait faire croître uniquement de l'InAs sur nos substrats composites afin d'étudier l'influence des RDs enterrés sur ce seul matériau ; (iii) on pourrait tenter d'organiser des nanostructures épitaxiées par EJM – des tentatives ont été réalisées au début de cette étude, mais nous nous sommes ensuite focalisé sur l'EPVOM car cette technique permet de préparer plus facilement la surface des substrat composites, avant la reprise d'épitaxie ; (iv) on pourrait essayer de modéliser les champs élastiques induits en surface par des RDs enterrés hexagonaux – ce problème n'est pas simple car le joint de grains est constitué de segments de dislocations et non de lignes infinies ; (v) enfin, on pourrait tenter de développer une solution de gravure chimique lente du GaAs sensible à la contrainte, afin de structurer la surface de nos substrats composites et y ordonner des nanostructures (des résultats intéressants ont été obtenus pour des substrats composites Si/Si [76]) – des premiers tests nous ont montré que l'utilisation de la potasse caustique (KOH) fondue pourrait être une solution car elle ne détériore pas la surface dans les zones faiblement contraintes.



# A

## L'épitaxie en phase vapeur aux organo-métalliques (EPVOM)

Les deux techniques d'épitaxie les plus couramment utilisées sont l'épitaxie en phase vapeur aux organo-métalliques (EPVOM) et l'épitaxie par jets moléculaires (EJM) [11]. Bien que leur finalité soit la même, elles sont basées sur des mécanismes différents. Dans le cas de l'EJM, la croissance du matériau repose sur l'interaction sous ultra-vide (entre  $10^{-7}$  et  $10^{-9}$  Torr) d'un jet moléculaire avec la surface du substrat chauffé. Dans le cas de l'EPVOM, elle résulte de l'interaction entre un mélange gazeux et le substrat. C'est ce dernier procédé que nous avons choisi pour réaliser nos croissances, c'est pourquoi nous le décrivons ici brièvement (pour plus de détails, le lecteur pourra se reporter à l'ouvrage de Stringfellow [100]).

La croissance épitaxiale par EPVOM résulte de l'incorporation sur le substrat chauffé<sup>52</sup> d'espèces actives (radicaux libres, espèces atomiques) issues de la pyrolyse de molécules de la phase gazeuse. Il faut donc que ces molécules contiennent des atomes des éléments III et des éléments V que l'on veut faire croître – de telles molécules sont appelées «*précurseurs*». Ces précurseurs sont acheminés dans le réacteur par un gaz vecteur neutre (en l'occurrence, le di-hydrogène), dont le rôle est d'orienter le flux gazeux vers l'échantillon et de maintenir une pression constante dans le réacteur (60 Torr) pendant la croissance. Il s'agit de molécules organo-métalliques pour les éléments III et d'organo-métalliques ou d'hydrures pour les éléments V. Lors de nos croissances, nous avons déposé des atomes d'arsenic, de gallium, d'aluminium et d'indium. Le précurseur de l'arsenic était de l'arsine pure ( $\text{AsH}_3$ ) injectée directement sous forme gazeuse dans le réacteur ; pour le gallium et l'aluminium il s'agissait

---

<sup>52</sup>Seul le substrat et son support sont chauffés, le reste du réacteur est refroidi (le bâti dont nous disposons est un EMCORE® D125 vertical à *parois froides*) afin d'éviter tout dépôt sur les parois, puis re-dépôt sur l'échantillon – un dépôt parasite peut être une source non intentionnelle et non contrôlable de réactions chimiques secondaires.

d'organo-métalliques liquides (le triméthylgallium et le triméthylaluminium) conditionnés dans des bulleurs (Fig. 1(a)); et pour l'indium, un organo-métallique solide (le triméthylindium) sous forme de poudre conditionnée dans un diffuseur (Fig. 1(b)). Dans le cas du

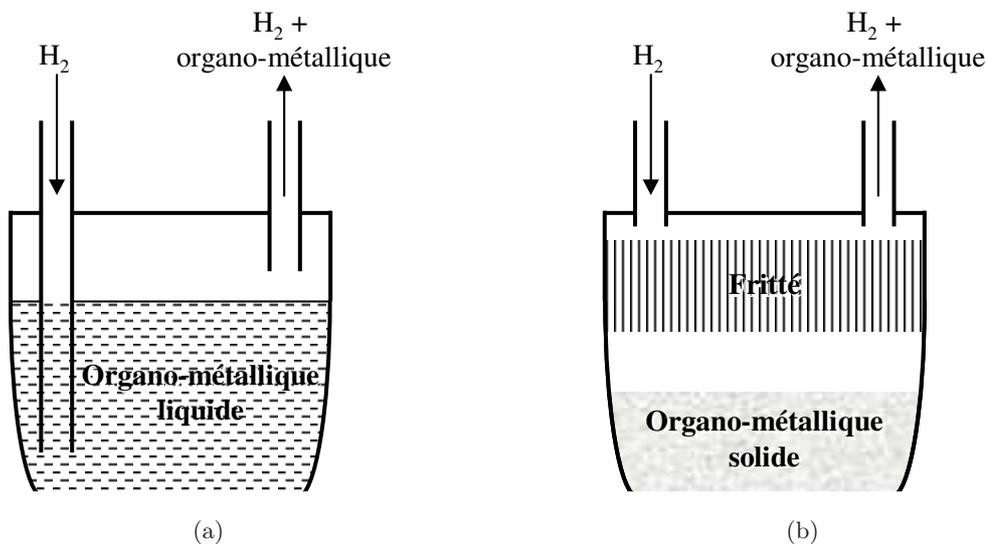


FIG. 1. Représentations schématiques (a) d'un bulleur et (b) d'un diffuseur d'EPVOM.

bulleur, le di-hydrogène barbote dans l'organo-métallique liquide, se charge en précurseur et est ensuite injecté dans le bâti. Dans le cas du diffuseur, la phase gazeuse de l'organo-métallique en équilibre avec sa phase liquide ou solide à la pression de vapeur saturante diffuse à travers une paroi poreuse appelée fritté; le gaz vecteur se charge en précurseur à son contact au dessus du fritté.

Le processus de fabrication de la phase solide par EPVOM commence par la diffusion des précurseurs contenus dans la phase gazeuse jusqu'à la surface du substrat chauffé où ils subissent une pyrolyse. Les produits de cette pyrolyse sont les espèces actives (atomes, radicaux libres) qui sont adsorbées (liées à la surface par des liaisons faibles), puis incorporées définitivement au substrat (grâce à des liaisons covalentes), et divers composés du carbone et de l'hydrogène qui, pour la plupart, restent en phase gazeuse.

## B

# La microscopie électronique en transmission (MET)

La microscopie électronique en transmission permet une caractérisation structurale des cristaux, mais surtout, elle constitue la technique de choix pour l'observation des RDs ; c'est pourquoi nous l'avons intensivement utilisée au cours de cette étude. Nous en faisons un bref descriptif dans la suite, en nous attachant aux points utiles à la compréhension de ce manuscrit (pour plus de détails, le lecteur pourra se reporter à l'ouvrage de Hirsch *et al.* [93]).

### B.1 Principe de fonctionnement

Un microscope électronique en transmission permet d'observer un échantillon avec une résolution pouvant être de quelques angströms. Contrairement à un microscope optique, ce n'est pas un faisceau lumineux qui est utilisé pour former les images, mais un faisceau cohérent d'électrons accélérés par une haute tension. Pour nos observations sur le MET Philips® CM20 du LPN, la tension accélératrice était de 200 kV, ce qui correspond à une longueur d'onde des électrons de 2,51 pm [93] (bien inférieure à celle des photons formant une image optique). C'est pourquoi (par application du critère de Rayleigh) un MET possède un pouvoir séparateur (résolution) bien meilleur que celui d'un microscope optique. D'autre part, pour agir sur le faisceau d'électrons, ce ne sont pas des lentilles en verre qui sont utilisées, mais des lentilles électromagnétiques. Elles créent un champ magnétique à l'intérieur du microscope qui agit directement sur la trajectoire des électrons. En changeant le courant qui circule dans une lentille, on change le champ magnétique qu'elle induit, de sorte qu'elle est plus ou moins focalisante. Un MET possède des lentilles de plusieurs sortes : des lentilles condenseur qui permettent de focaliser les électrons sur l'objet à analyser, une

lentille objectif qui permet de faire une première image et des lentilles de projection qui permettent l'agrandissement de l'image. Les lois de l'optique géométrique utilisées en optique photonique, peuvent s'appliquer en optique électronique. Les lentilles électromagnétiques possèdent donc un plan image où se forme l'image de l'objet, et un plan focal où tous les rayons parallèles arrivant sur la lentille se focalisent.

Les images étant formées grâce aux électrons transmis à travers l'échantillon étudié (ce ne sont donc uniquement les atomes de surface de ce dernier qui contribuent à la formation des images), il ne faut pas qu'il soit trop épais. La forte interaction électron-matière lui impose une épaisseur maximale de l'ordre de la centaine de nanomètres ; par conséquent, il est nécessaire de l'amincir.

## **B.2 Préparation des échantillons**

### **B.2.1 Pour les vues planes**

Pour les observations en vue plane, nos substrats composites sont tout d'abord collés à la cire sur un support, pour être ensuite amincis par polissage mécanique (côté substrat hôte) jusqu'à une épaisseur d'environ  $30 \mu\text{m}$ . Puis, on perce un trou par une attaque chimique au brome-méthanol ; ce sont les bords de ce trou qui seront observés car ils sont suffisamment minces pour permettre la transmission des électrons. Une grille d'observation de 3 mm de diamètre est ensuite collée sur la zone percée et une fois que la colle a séché, le pourtour de la grille est gratté afin de l'isoler du reste de l'échantillon. Pour finir, on laisse reposer le tout dans du trichloroéthylène pour éliminer la cire et récupérer la grille avec dessus la lame mince à observer.

### **B.2.2 Pour les vues en coupe**

Pour les observations en coupe, on commence par cliver une barrette d'environ 1 mm de large. Cette barrette est ensuite amincie suivant la largeur par polissage mécanique, jusqu'à une épaisseur d'environ  $30 \mu\text{m}$ . La lame ainsi obtenue est collée sur une rondelle d'observation de 3 mm de diamètre ; les portions de la lame dépassant de la rondelle sont éliminées par clivage. L'amincissement final est réalisé par un faisceau d'ions argon accélérés à quelques keV. Ce faisceau abruse la lame mince en son centre jusqu'à ce qu'elle soit percée ; c'est sur le bord de ce trou que se fera l'observation.

## B.3 Formation des diagrammes de diffraction et des images

Un MET permet à la fois d'observer l'image de la zone illuminée et sa diffraction associée simplement en changeant l'excitation de la lentille objectif, de manière à imager sur l'écran, soit le plan focal de la lentille objectif où se situe le cliché de diffraction, soit le plan image de la lentille objectif où se situe l'image de l'objet. Nous allons décrire dans la suite le mode de diffraction et deux modes d'imagerie dite conventionnelle qui ont été utilisés pour les observations de MET présentées dans ce manuscrit.

### B.3.1 Diffraction en aire sélectionnée

Pour former nos diagrammes de diffraction, nous avons eu recours à la diffraction en aire sélectionnée. Le faisceau d'électrons qui arrive sur l'objet est parallèle de sorte que les différents faisceaux diffractés ou transmis sont focalisés dans le plan focal de l'objectif. Un diaphragme situé dans le plan image de la lentille objectif permet de sélectionner la partie de l'objet qui participe au diagramme de diffraction. Cette sélection s'effectuant en mode image, on peut donc choisir la zone à étudier. Il est alors possible d'obtenir des diagrammes provenant de domaines différents et donc d'avoir des renseignements sur une région particulière du cristal.

### B.3.2 Images en mode «deux ondes»

Pour ce mode d'imagerie, le cristal étudié est orienté par rapport au faisceau incident d'électrons, de sorte que seule une famille de plans cristallographiques est en condition de Bragg. Donc seuls le faisceau transmis et le faisceau diffracté par ces plans contribuent majoritairement à la répartition d'intensité sur les images ; c'est pourquoi on parle d'images en mode deux ondes. Ces images peuvent être soit en champ clair soit en champ sombre, selon que grâce à un diaphragme placé dans le plan focal, on sélectionne respectivement soit le faisceau transmis, soit le faisceau diffracté. Dans le premier cas, les zones ayant interagi avec le faisceau incident d'électrons apparaîtront sombres sur un fond clair (car seul le faisceau non diffracté contribue à l'intensité des images), tandis que pour le deuxième cas, ce sera le contraire.

Pour les images en deux ondes présentées dans ce manuscrit, nous avons sélectionné deux types de faisceaux diffractés : 022 ou 002. Pour le premier type, les modulations de contraste des images sont essentiellement dues à des modulations de déformations, tandis que pour le deuxième type, elles sont essentiellement dues à des modulations de composition et/ou d'épaisseur (plus précisément, elles sont dues à des variations locales du facteur de structure intégré sur l'épaisseur de la lame mince).

### **B.3.3 Images en mode «faisceau faible»**

En mode faisceau faible, on peut obtenir des images très fines des défauts contenus dans les matériaux cristallins. Pour décrire cette méthode, nous allons nous baser sur le cas particulier de nos images en faisceau faible. C'est une tache de diffraction de type 022 qui a été systématiquement sélectionnée pour les former (il s'agit donc d'images en champ sombre); ainsi, ce sont les électrons diffractés par les plans {022} qui contribuent à l'intensité des images. Cependant, ce ne sont pas ces plans qui étaient orientés en condition de Bragg, mais des plans d'incidence plus élevés {0n} (où n est un entier); c'est pourquoi on parle d'images en faisceau faible : l'intensité diffractée par les plans {022} est faible. Ce n'est qu'à des endroits où ces plans sont fortement déformés par des défauts (tels que des dislocations) qu'ils seront en condition de Bragg et que l'intensité diffractée sera forte. Dans le cas de dislocations, c'est leur cœur (siège d'une forte déformation) qui sera imagé et pas des zones déformées à plus longue distance comme en mode deux ondes; c'est pourquoi le mode faisceau faible est particulièrement adapté à l'observation des dislocations.

## C

# La microscopie à force atomique (AFM)

Nous avons souvent caractérisé par microscopie à force atomique (atomic force microscopy : AFM) l'état de surface de nos échantillons, que ce soit après les différentes étapes de nettoyage ou de gravure précédent le collage, après ce dernier ou après la croissance. Nous en faisons un bref descriptif dans les quelques lignes qui suivent.

### C.1 Principe de fonctionnement

Le principe de fonctionnement d'un AFM est relativement simple. Une pointe gravée sous l'extrémité d'un micro-levier est approchée de la surface à imager et lorsqu'elle en est suffisamment proche, elle interagit avec elle (Fig. 1). Il s'agit d'interactions de type

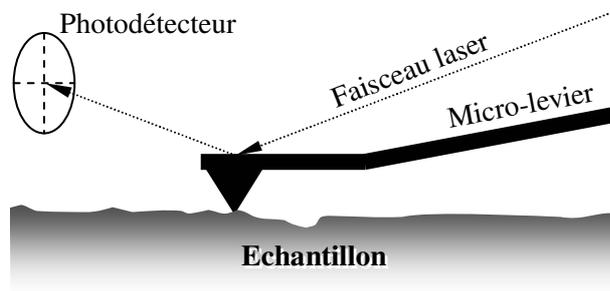


FIG. 1. Schéma de principe d'un AFM (voir description dans le texte).

forces de van der Waals entre dipôles électrostatiques. Il en résulte une flexion  $\Delta z$  du levier, proportionnelle au module  $F$  de la force s'exerçant entre l'extrémité de la pointe et la surface de l'échantillon (via la loi de Hooke :  $\Delta z = \frac{F}{k}$  où  $k$  est la constante de raideur du levier); l'intensité de cette force est uniquement liée à la distance entre la pointe et la

surface de l'échantillon (Fig. 2). Pour mesurer cette flexion, un faisceau laser est pointé sur

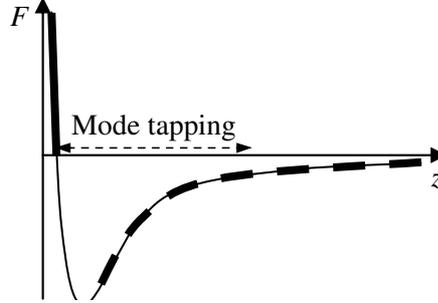


FIG. 2. Module  $F$  de la force d'interaction entre l'extrémité d'une pointe d'AFM et la surface imagée, en fonction de la distance  $z$  qui les sépare. Si  $F$  est négatif (respectivement positif), la force est attractive (respectivement répulsive). La zone d'utilisation du mode contact est surlignée en trait continu épais, tandis que la zone d'utilisation du mode non-contact est surlignée en trait épais discontinu.

l'extrémité du micro-levier de sorte que sa réflexion soit dirigée sur un photodétecteur (Fig. 1); la position du spot laser sur le détecteur est liée à celle du laser sur le levier et donc à la flexion de ce dernier. D'autre part, des cristaux piézo-électriques  $x$ ,  $y$  et  $z$  permettent de déplacer le porte-échantillon dans les trois directions orthogonales de l'espace ( $x$  et  $y$  : horizontales;  $z$  verticale), tandis que le reste de l'instrument est maintenu immobile; en particulier, il est isolé des vibrations mécaniques grâce à une table à coussin d'air. Par l'intermédiaire d'une boucle de rétroaction électronique contrôlant la tension appliquée au «piézo»  $z$  et donc la distance entre la pointe et la surface de l'échantillon, on peut contrôler la position du spot laser sur le photodétecteur et ainsi maintenir constante la flexion ou l'amplitude d'oscillation (selon le mode de fonctionnement choisi – voir section suivante) du levier. En déplaçant la pointe sur la surface de l'échantillon grâce aux piézos  $x$  et  $y$ , on peut donc former une image de la topographie de cette surface à partir de la tension appliquée au piézo  $z$ , en fonction de la position en  $x$  et  $y$  de la pointe. Cette topographie est souvent caractérisée par sa rugosité RMS (Root Mean Square) qui n'est autre que l'écart-type des  $n$  hauteurs  $z_i$  mesurées ( $i$  variant de 1 à  $n$ ) :

$$\text{RMS} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (z_i - \langle z \rangle)^2}, \quad (1)$$

où  $\langle z \rangle$  est la valeur moyenne des hauteurs. Plus sa valeur est faible, moins la surface est rugueuse.

## C.2 Les différents modes de fonctionnement

Suivant la distance à laquelle l'extrémité de la pointe se trouve de la surface, il existe plusieurs modes de fonctionnement de l'AFM qui sont, à distance  $z$  croissante : le mode *contact*, le mode «*tapping*» (tapotant) et le mode «*non-contact*» (oscillant).

### C.2.1 Mode contact

Comme son nom l'indique, lorsque ce mode est utilisé, la pointe est en contact permanent avec la surface à imager. Le risque d'endommager la surface en y créant des sillons est donc important. D'autre part, lorsque l'AFM opère à l'air libre (comme celui que nous avons utilisé) et non sous vide, un ménisque d'eau se forme sous la pointe et induit une attraction capillaire parasite.

### C.2.2 Mode non-contact (ou oscillant)

Dans ce mode d'imagerie, le micro-levier est mis en vibration à environ 5 nm au-dessus de l'échantillon (dans le régime attractif donc ; fig. 2). Les interactions entre la pointe et la surface modifient l'amplitude des vibrations ; en enregistrant la tension appliquée au piézo  $z$  pour maintenir cette amplitude constante la topographie de la surface peut être restituée. Ce mode présente l'immense avantage de ne détériorer ni la pointe ni l'échantillon. Cependant, à cause de la grande distance entre la pointe et la surface, la force d'interaction entre ces dernières est faible et donc la résolution également. C'est pourquoi, le mode non contact est en pratique peu utilisé et qu'on lui préfère le mode tapping.

### C.2.3 Mode tapping (ou tapotant)

Il s'agit d'un compromis entre les modes oscillant et contact : comme pour le mode oscillant, le micro-levier oscille mais plus près de la surface puisqu'il la tapote, ce qui permet d'améliorer la résolution par rapport au mode oscillant tout en n'endommageant pas la surface qui n'est qu'effleurée – par opposition au mode contact. Ce mode de fonctionnement, moins éprouvant pour la pointe et la surface que le mode contact permet aussi de s'affranchir, à l'air, de la pellicule d'eau adsorbée en surface. C'est ce qui en fait le meilleur compromis pour un AFM à l'air ; c'est celui que nous avons retenu pour toutes nos observations.

## C.3 Limitations de l'AFM

A cause du rayon de courbure de la pointe de l'AFM (variant entre 2 et 10 nm pour nos observations), la topographie imagée n'est pas la topographie réelle de l'échantillon. En effet,

une image d'AFM résulte de la convolution de la forme de la pointe avec la surface ; c'est pourquoi la résolution latérale est de l'ordre du rayon de courbure de la pointe. Il en découle, que les structures de surface imagées apparaissent plus larges que les structures réelles (Fig 3). A cause du même phénomène, si une aspérité de surface a un rayon de courbure inférieur

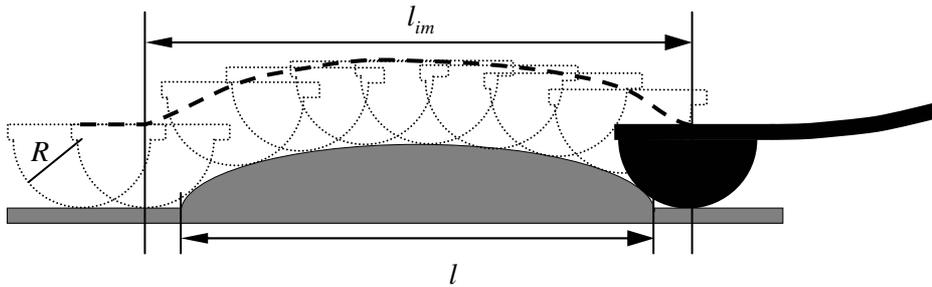


FIG. 3. Schéma d'un profil de hauteur obtenu par AFM (en trait discontinu), résultant de la convolution de la forme de la pointe (de rayon de courbure  $R$ ) avec celle d'une structure de surface (de rayon de courbure supérieur). La structure imagée a une largeur  $l_{im}$  supérieure à la largeur  $l$  de la structure réelle.

à celui de la pointe, c'est plutôt la pointe elle-même qui est imagée par l'aspérité et non le contraire (Fig. 4).

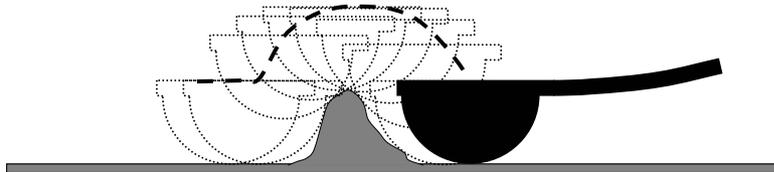


FIG. 4. Schéma d'un profil de hauteur obtenu par AFM (en trait discontinu), résultant de la convolution de la forme de la pointe avec celle d'une structure de surface de rayon de courbure inférieur à celui de la pointe. Dans ce cas c'est plutôt la structure qui image la pointe.

# D

## Publications et communications

### 1 Articles

- *Organization of III-V nanostructures mediated by an underlying dislocation network*, **J. Coelho**, C. Mériadec, C. David, I. Sagnes, G. Saint-Girons, L. Largeau, F. Glas and G. Patriarche, *J. Phys. : Condens. Matter* **16**, 7941 (2004).
- *Buried dislocation networks designed to organize the growth of III-V semiconductor nanostructures*, **J. Coelho**, G. Patriarche, F. Glas, G. Saint-Girons, I. Sagnes and L. Largeau, *Phys. Rev. B* **70**, 155329 (2004) ; sélectionné pour le numéro du 15 novembre 2004 du Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology (<http://www.vjnano.org>).
- *Metal-Organic Vapour-Phase Epitaxy of defect-free InGaAs/GaAs quantum dots emitting around 1.3  $\mu\text{m}$* , G. Saint-Girons, G. Patriarche, L. Largeau, **J. Coelho**, A. Mereuta, J.M. Gérard and I. Sagnes, *J. Cryst. Growth* **235**, 89 (2002).
- *Bimodal distribution of indium composition in arrays of Low-Pressure Metal-Organic Vapour-Phase Epitaxy grown InGaAs/GaAs quantum dots*, G. Saint-Girons, G. Patriarche, L. Largeau, **J. Coelho**, A. Mereuta, J.M. Moison, J.M. Gérard and I. Sagnes, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2157 (2001).

### 2. Conférences

Le nom de l'orateur est souligné.

#### 2.1 Conférences internationales

##### 2.1.1 Avec comité de lecture et publication des actes

##### Présentations orales

- *Dislocation networks adapted to order the growth of III-V semiconductor nanostructures*, **J. Coelho**, G. Patriarche, I. Sagnes, G. Saint-Girons, and F. Glas, accepté pour publication dans les actes de : International Conference on Extended Defects in Semiconductors (EDS 2004), Chernogolovka (Russie) (septembre 2004).
- *Buried dislocation networks for the controlled growth of III-V semiconductor nanostructures*, **F. Glas**, **J. Coelho**, G. Patriarche, G. Saint-Girons, accepté pour publication dans les actes de : 14th International Conference on Crystal Growth (ICCG 14), Grenoble (août 2004).
- *Stress-engineered ordering of self-assembled III-V semiconductor nanostructures*, **J. Coelho**, G. Patriarche, F. Glas, I. Sagnes and G. Saint-Girons, accepté pour publication dans les actes de : 7th Expert Evaluation and Control of Compound Semiconductor Materials and Technologies (EXMATEC 2004), Montpellier (juin 2004).

#### Présentation par affiche

- *Stress-driven self-ordering of III-V nanostructures*, **J. Coelho**, G. Patriarche, F. Glas, G. Saint-Girons and I. Sagnes, accepté pour publication dans les actes de : 14th International Conference on Crystal Growth (ICCG 14), Grenoble (août 2004).

#### 2.1.2 Sans acte ou avec actes à diffusion restreinte

##### Présentations orales

- *Nanoscale chemical investigation of InGaAs/GaAs quantum dots*, **D. Imhoff**, G. Patriarche, **J. Coelho**, A. Lemaître and F. Glas, 13th European Microscopy Congress (EMC 2004), Antwerp (Belgique) (août 2004).
- *Buried dislocation networks used to organize the growth of III-V semiconductor nanostructures*, **J. Coelho**, **G. Patriarche**, I. Sagnes, G. Saint-Girons and F. Glas, présentation orale invitée à 4th International Conference on Alternative Substrates (ICAST 4), Chamonix (mars 2004).

## 2.2 Conférences nationales

### 2.2.1 Avec actes à diffusion restreinte

#### Présentation orale

- *Vers l'organisation d'îlots In(Ga)As grâce à un réseau de dislocations sous-jacent*, **J. Coelho**, G. Patriarche, C. Mériadec, C. David, I. Sagnes, G. Saint-Girons, L. Largeau et F. Glas, Congrès de la Société Française de Physique, Lyon (août 2003).

#### Présentations par affiche

- 
- *Auto-organisation de nanostructures III-V induite par un réseau de dislocations sous-jacent*, **J. Coelho**, C. Mériadec, C. David, I. Sagnes, G. Saint-Girons, L. Largeau, F. Glas et G. Patriarche, Journées Surfaces et Interfaces (JSI 2004), Mulhouse (janvier 2004).
  - *Vers l'organisation d'îlots In(Ga)As grâce à un réseau de dislocations sous-jacent*, **J. Coelho**, C. Meriadec, C. David, F. Glas et G. Patriarche, Journée Nationale Boîtes Quantiques, Marcoussis (juin 2003).
  - *Vers l'organisation d'îlots In(Ga)As grâce à un réseau de dislocations sous-jacent*, **J. Coelho**, C. Mériadec, F. Glas et G. Patriarche, Journées Nationales de la Micro et de l'Optoélectronique (JNMO), Saint-Aygulf (septembre 2002).



# Bibliographie

- [1] <http://www.nanomicro.recherche.gouv.fr/>
- [2] R. Feynman, «There's Plenty of Room at the Bottom»,  
<http://www.zyvex.com/nanotech/feynman.html>
- [3] Y. Arakawa and H. Sakaki, «Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current», *Appl. Phys. Lett.* **40**, 939 (1982).
- [4] M. Asada, Y. Miyamoto and Y. Suematsu, «Gain and the threshold of three-dimensional quantum-box lasers», *IEEE Quant. Electron. Lett.* **22**, 1915 (1986).
- [5] J. P. Reithmaier and A. Forchel, «Recent advances in semiconductor quantum-dot lasers», *C. R. Physique* **4**, 611 (2003).
- [6] V. Berger et J.-M. Gérard, «Sources semiconductrices de photons uniques ou de photons jumeaux pour l'information quantique», *C. R. Physique* **4**, 701 (2003).
- [7] G. Saint-Girons, «Epitaxie en phase vapeur aux organométalliques et caractérisations structurales et optiques de boîtes quantiques d'In(Ga)As pour l'émission autour de 1,3  $\mu\text{m}$  sur substrat de GaAs», thèse de doctorat de l'Université de Paris VI (2002).
- [8] D. M. Eigler and E. K. Schweizer, «Positioning single atoms with a scanning tunneling microscope», *Nature*, **344**, 524 (1990).
- [9] D. Bimberg, M. Grundmann, N. N. Ledentsov, S. S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, J. Heydenreich, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev, and Zh. I. Alferov, «Self-organization processes in MBE-grown quantum dot structures», *Thin Solid Films* **267**, 32 (1995).
- [10] L. Landau et E. Lifchitz, *Théorie de l'élasticité* (Editions Mir, Moscou, 1967).
- [11] Veeco<sup>®</sup>, [http://www.veeco.com/learning/learning\\_molecularbeam.asp](http://www.veeco.com/learning/learning_molecularbeam.asp)
- [12] L. Goldstein, F. Glas, J.-Y. Marzin, M.N. Charasse and G. Le roux, «Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices», *Appl. Phys. Lett.* **47**, 1099 (1985).
- [13] J. M. Gérard, O. Cabrol and B. Sermage, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 3123 (1996).
- [14] D. Leonard, K. Pond and P.M. Petroff, «Critical layer thickness for self-assembled InAs island on GaAs», *Phys. Rev. B* **50**, 11687 (1994).

- [15] Shchukin, V. A., N. N. Ledentsov, P. S. Kop'ev, and D. Bimberg, «Spontaneous ordering of arrays of coherent strained islands», *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2968 (1995).
- [16] V.I Marchenko, «Possible structures and phase transitions on the surface of crystals», *JETP Lett.* **33**, 381 (1981).
- [17] Shchukin, V. A., and D. Bimberg, «Strain-driven self-organization of nanostructures on semiconductor surfaces», *Appl. Phys. A* **67**, 687 (1998).
- [18] N.N. Ledentsov, M. Grundmann, N. Kirstaedter, O. Schmidt, R. Heitz, J. Böhrer, D. Bimberg, V.M. Ustinov, V.A. Shchukin, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, S.S. Ruvimov, A.O. Kosogov, P. Werner, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich, «Ordered arrays of quantum dots : formation, electronic spectra, relaxation phenomena, lasing», *Solid State Electron.* **40**, 785 (1996).
- [19] F. Tinjod, «Mécanismes de formation des boîtes quantiques semiconductrices, application aux nanostructures II-VI et étude de leurs propriétés optiques», thèse de doctorat de l'Université Joseph Fourier – Grenoble I (2003).
- [20] J.W. Matthews, «Defects associated with the accomodation of misfit between crystals», *J. Vac. Sci. Technol.* **12**, 126 (1975).
- [21] J. Tersoff, F.K. LeGoues, «Competing relaxation mechanisms in strained layers», *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3570 (1994).
- [22] J.-M. Gérard, «Prospects of high-efficiency quantum boxes obtained by direct epitaxial growth», dans *Confined Electrons and Photons*, édité par E. Burstein et C. Weisbuch (Plenum Press, New York 1995).
- [23] C.W. Snyder, J.F. Mansfield and B.G. Orr, «Kinetically controlled critical thickness for coherent islanding and thick highly strained pseudomorphic films of  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  on  $\text{GaAs}(100)$ », *Phys. Rev. B* **46**, 9551, (1992).
- [24] K.E. Khor and S. Das Sarma, «Quantum dot self-assembly in growth of strained-layer thin films : A kinetic Monte Carlo study», *Phys. Rev. B* **62**, 16657, (2000).
- [25] B. Voigtländer, M. Kawamura, N. Paul and V. Cherepanov, «Formation of Si/Ge nanostructures at surfaces by self-organization», *J. Phys. : Cond. Matter* **16**, S1535 (2004).
- [26] Y. W. Mo, J. Kleiner, M. B. Webb, and M. G. Lagally, «Activation energy for surface diffusion of Si on Si(001) : A scanning-tunneling-microscopy study», *Phys. Rev. Lett.* **66**, 1998 (1991).
- [27] P. Kratzer and M. Scheffler, «Reaction-limited island nucleation in molecular beam epitaxy of compound semiconductors», *Phys. Rev. Lett.* **88**, 036102 (2002).
- [28] D. G. Welkie and M. G. Lagally, «Correlation of short-range order and sputter dose in  $\text{GaAs}(110)$  using a vidicon-based LEED system», *J. Vac. Sci. Technol.* **16**, 784 (1979).

- 
- [29] R. Leon, T. J. Senden, Y. Kim, C. Jagadish and A. Clark, «Nucleation Transitions for InGaAs Islands on Vicinal (100) GaAs», *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4942 (1997).
- [30] Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen and N.P. Kobayashi, «Vertically Self-Organized InAs Quantum Box Islands on GaAs(100)», *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2542 (1995).
- [31] M. Krishnamourthy, B.K. Yang, J.D. Weil and C.G. Slough «Heterogeneous nucleation of coherently strained islands during epitaxial growth of Ge on Si(110)», *Appl. Phys. Lett.* **70**, 49, (1997).
- [32] Y. Chen and J. Washburn, «Structural Transition in Large-Lattice-Mismatch Heteroepitaxy», *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4046 (1996).
- [33] N.P. Kobayashi, T.R. Ramachandran, P. Chen and A. Madhukar, «*In situ*, atomic force microscope studies of the evolution of InAs three-dimensional islands on GaAs(001)», *Appl. Phys. Lett.* **68**, 3299 (1996).
- [34] G. Saint-Girons, G. Patriarche, L. Largeau, J. Coelho, A. Mereuta, J.M. Moison, J.M. Gérard and I. Sagnes, «Bimodal distribution of Indium composition in arrays of low-pressure metalorganic-vapor-phase-epitaxy grown In(Ga)As/GaAs quantum dots», *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2157 (2001).
- [35] F. Patella, A. Sgarlata, F. Arciprete, S. Nufri, P. D. Szkutnik, E. Placidi, M. Fanfoni, N. Motta and A. Balzarotti, «Self-assembly of InAs and Si/Ge quantum-dots on structured surfaces», *J. Phys. : Cond. Matter* **16**, S1503 (2004).
- [36] M. Sussiau, «Films minces magnétiques à topologie modulée», thèse de doctorat de l'Université Paris VII (1997).
- [37] M. Kitamura, M. Nishioka, J. Oshinowo and Y. Arakawa, «*In situ* fabrication of self-aligned InGaAs quantum dots on GaAs multiaatomic steps by metalorganic chemical vapor deposition», *Appl. Phys. Lett.* **66**, 3663 (1995).
- [38] H. J. Kim, Y. J. Park, Y. M. Park, E. K. Kim, and T. W. Kim, «Fabrication of wirelike InAs quantum dots on 2°-off GaAs (100) substrates by changing the thickness of the InAs layer», *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3253 (2001).
- [39] D. Chambliss, R. Wilson and S. Chiang, «Nucleation of ordered Ni island arrays on Au(111) by subsurface-lattice dislocations», *Phys. Rev. Lett.* **66**, 1721 (1991).
- [40] J. Meyer, I. Baikie, E. Kopatzki and R. Behm, «Preferential island nucleation at elbows of Au(111) herringbone reconstruction through place exchange», *Surf. Sci.* **365**, L647 (1996).
- [41] V. Repain, G. Baudot, H. Ellmer and S. Rousset, «Two-dimensional long-range-ordered growth of uniform cobalt nanostructures on a Au(111) vicinal template», *Europhys. Lett.* **58**, 730 (2002).

- [42] S. Rousset, V. Repain, G. Baudot, Y. Garreau and J. Lecoer, «Self-ordering of Au(111) vicinal surfaces and application to nanostructure organized growth», *J. Phys. : Condens. Matter* **15**, S3363 (2003).
- [43] L. Leprince, «Rugosité de surface de semiconducteurs III-V», thèse de doctorat de l'Université Paris XI (1993).
- [44] G. Jin, J. L. Liu, S. G. Thomas, Y. H. Luo, K. L. Wang, and B. Y. Nguyen, «Controlled arrangement of self-organized Ge islands on patterned Si (001) substrates», *Appl. Phys. Lett.* **75**, 2752 (1999).
- [45] G. Jin, J. L. Liu, and K. L. Wang, «Regimented placement of self-assembled Ge dots on selectively grown Si mesas», *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3591 (2000).
- [46] G. Jin, J. Wan, Y. H. Luo, J. L. Liu and K. L. Wang, «Uniform and ordered self-assembled Ge dots on patterned Si substrates with selectively epitaxial growth technique», *J. Cryst. Growth* **227**, 1100 (2001).
- [47] S. C. Lee, A. Stintz and S. R. J. Brueck, «Nanoscale limited area growth of InAs islands on GaAs(001) by molecular beam epitaxy», *J. Appl. Phys.* **91**, 3282 (2002).
- [48] Z. Zhong, A. Halilovic, T. Fromherz, F. Schäffler and G. Bauer, «Two-dimensional periodic positioning of self-assembled Ge islands on prepatterned Si (001) substrates», *Appl. Phys. Lett.* **82**, 4779 (2003).
- [49] Z. Zhong and G. Bauer, «Site-controlled and size-homogeneous Ge islands on prepatterned Si (001) substrates», *Appl. Phys. Lett.* **84**, 1922 (2004).
- [50] J. Tersoff, C. Teichert and M.G. Lagally, «Self-Organization in Growth of Quantum Dot Superlattices», *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1675 (1996).
- [51] G. Capellini, M. De Seta, C. Spinella and F. Evangelisti, «Ordering self-assembled islands without substrate patterning», *Appl. Phys. Lett.* **82**, 1772 (2003).
- [52] Z. M. Wang, K. Holmes, Yu. I. Mazur, and G. J. Salamo, «Fabrication of (In,Ga)As quantum-dot chains on GaAs(100)», *Appl. Phys. Lett.* **84**, 1931 (2004).
- [53] G. Springholz V. Holy, M. Pinczolit and C. Bauer, «Self-organized growth of three dimensional quantum-dot crystals with fcc-like stacking and a tunable lattice constant», *Science* **282**, 734 (1998).
- [54] V. Holý, G. Springholz, M. Pinczolit and G. Bauer, «Strain Induced Vertical and Lateral Correlations in Quantum Dot Superlattices», *Phys. Rev. Lett.* **83**, 356 (1999).
- [55] P. Liu, Y. W. Zhang and C. Lu, «Three-dimensional finite-element simulations of the self-organized growth of quantum dot superlattices», *Phys. Rev. B* **68**, 195314 (2003). O. G.

- 
- [56] O. G. Schmidt, N. Y. Jin-Phillipp, C. Lange, U. Denker, K. Eberl, R. Schreiner, H. Gräbeldinger, and H. Schweizer, «Long-range ordered lines of self-assembled Ge islands on a flat Si (001) surface», *Appl. Phys. Lett.* **77**, 4139 (2000).
- [57] S. Kohmoto, H. Nakamura, S. Nishikawa and K. Asakawa, «Three-dimensional site control of self-organized InAs quantum dots by *in situ* scanning tunneling probe-assisted nanolithography and molecular beam epitaxy», *J. Vac. Sci. Technol. B* **20**, 762 (2002).
- [58] Y. Nakamura, O. G. Schmidt, N. Y. Jin-Phillipp, S. Kiravittaya, C. Müller, K. Eberl, H. Gräbeldinger and H. Schweizer, «Vertical alignment of laterally ordered InAs and InGaAs quantum dot arrays on patterned (001) GaAs substrates», *J. Cryst. Growth* **242**, 339 (2002).
- [59] T. Yang, S. Kohmoto, H. Nakamura, and K. Asakawa, «Effects of lateral quantum dot pitch on the formation of vertically aligned InAs site-controlled quantum dots», *J. Appl. Phys.* **93**, 1190 (2003).
- [60] H. Heidemeyer, C. Müller and O.G. Schmidt, «Highly ordered arrays of In(Ga)As quantum dots on patterned GaAs (001) substrates», *J. Cryst. Growth* **261**, 444 (2004).
- [61] M. Kammler, R. Hull, M. C. Reuter and F. M. Ross, «Lateral control of self-assembled island nucleation by focused-ion-beam micropatterning», *Appl. Phys. Lett.* **82** 1093 (2003).
- [62] H. Omi, D. J. Bottomley and T. Ogino, «Strain distribution control on the silicon wafer scale for advanced nanostructure fabrication», *Appl. Phys. Lett.* **80**, 1073 (2002).
- [63] H. Omi, D. J. Bottomley, Y. Homma and T. Ogino, «Wafer-scale engineering on silicon for fabrication of ultimately controlled nanostructures», *Phys. Rev. B* **67**, 115302 (2003).
- [64] J. P. Hirth and J. Lothe, *Theory of dislocations*, 2<sup>nd</sup> edition (Wiley, New York, 1982).
- [65] S. Fafard, M. Spanner, J. P. McCaffrey, and Z. R. Wasilewski, «Coupled InAs/GaAs quantum dots with well-defined electronic shells», *Appl. Phys. Lett.* **76**, 2268 (2000).
- [66] B. Szafran, S. Bednarek, and J. Adamowski, «Parity symmetry and energy spectrum of excitons in coupled self-assembled quantum dots», *Phys. Rev. B* **64**, 125301 (2001).
- [67] A. E. Romanov, P. M. Petroff, et J. S. Speck, «Lateral ordering of quantum dots by periodic subsurface stressors», *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2280 (1999).
- [68] A. Bourret, «How to control the self-organization of nanoparticles by bonded thin layers», *Surf. Sci.* **432**, 37 (1999).
- [69] S. Yu Shiryayev, F. Jensen, J. L. Hansen, J. W. Petersen and A. N. Larsen, «Nanoscale structuring by misfit dislocations in Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>/Si epitaxial systems», *Phys. Rev. Lett.* **78**, 503 (1997).

- [70] H. Brune, M. Giovannini, K. Bromann and K. Kern, «Self-organized growth of nanostructures arrays on strain-relief patterns», *Nature* **394**, 451 (1998).
- [71] Y. H. Xie, S. B. Samavedam, M. Bulsara, T. A. Langdo and E. A. Fitzgerald, «Relaxed template for fabricating regularly distributed quantum dots arrays», *Appl. Phys. Lett.* **71**, 3586 (1997).
- [72] F. Leroy, J. Eymery, P. Gentile and F. Fournel, «Ordering of Ge quantum dots with buried Si dislocation networks», *Appl. Phys. Lett.* **80**, 3078 (2002).
- [73] M. Benamara, «Contribution à l'étude des interfaces de soudure directe dans le silicium», thèse de doctorat de l'Université de Toulouse III - Paul Sabatier (1996).
- [74] Z. L. Liao and D. E. Mull, «Wafer fusion : a novel technique for optoelectronic device fabrication and monolithic integration», *Appl. Phys. Lett.* **56**, 737 (1990).
- [75] G. Patriarche, F. Jeannès, J.-L. Oudar et F. Glas, «Structure of the GaAs/InP interface obtained by direct wafer bonding optimised for surface emitting optical devices», *J. Appl. Phys.* **82**, 4892 (1997).
- [76] F. Leroy, J. Eymery, P. Gentile and F. Fournel, «Controlled surface nanopatterning with buried dislocation arrays», *Surf. Sci.* **545**, 211 (2003).
- [77] J. et Julia R. Weertman, *Théorie élémentaire des dislocations* (Masson, Paris, 1970).
- [78] *Dislocations in Solids*, édité par F. R. N. Nabarro (North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1979).
- [79] S. Amelinckx, «Dislocations in particular structures», dans *Dislocations in solids*, volume 2, chapitre 6 , édité par F. R. N. Nabarro (North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1979).
- [80] R. Bonnet et J. L. Verger-Gaugry, «Couche épitaxiale mince sur un substrat semi-infini : rôle du désaccord paramétrique et de l'épaisseur sur les distortions élastiques», *Phil. Mag. A*, **66**, 849 (1992).
- [81] F. E. Ejeckam, Y. H. Lo, S. Subramanian, H. Q. Hou and B. E. Hammons, «Lattice engineered compliant substrate for defect-free heteroepitaxial growth», *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1685 (1997).
- [82] Y. H. Lo, «New approach to grow pseudomorphic structures over the critical thickness», *Appl. Phys. Lett.* **59**, 2311 (1991).
- [83] G. Patriarche, C. Mériadec, G. Le Roux, C. Deparis, I. Sagnes, J.-C. Harmand and F. Glas, «GaAs/GaAs twist-bonding for compliant substrates : interface structure and epitaxial growth», *Appl. Surf. Sci.* **164**, 15 (2000).
- [84] G. Patriarche, E. Le Bourhis, «Nanoindentation of GaAs compliant substrates», *Phil. Mag. A* **80**, 2899 (2000).

- 
- [85] G. Patriarche, E. Le Bourhis, «Twist-bonded compliant substrates for III-V semiconductors heteroepitaxy», *Appl. Surf. Sci.* **178**, 134 (2001).
- [86] G. Patriarche, E. Le Bourhis, «Onset of plasticity in a  $\Sigma = 5$  GaAs compliant structure», *Phil. Mag. Lett.* **81**, 813 (2001).
- [87] G. Patriarche, E. Le Bourhis, «Influence of the twist angle on the plasticity of the GaAs compliant substrates realized by wafer bonding», *J. Phys. : Cond. Matter* **14**, 12967 (2002).
- [88] G. Patriarche, E. Le Bourhis, «Improvement of heteroepitaxy growth by the use of twist-bonded compliant substrate : role of the surface plasticity», *J. Eletron. Mater.* **32**, 861 (2003).
- [89] S. Guruswamy, R. S. Rai, K. T. Faber, J. P. Hirth, J. E. Clemans, S. McGuigan, R. N. Thomas and W. Mitchel, «Influence of solute doping on the high-temperature deformation behavior of GaAs», *J. Appl. Phys.* **65**, 2508 (1989).
- [90] K. Rousseau, «Etude géométrique, structurale et chimique par microscopie électronique en transmission de joints de grains de surface de Si», thèse de doctorat de l'Université de Paris VI (2002).
- [91] E.-A Moon and J.-L. Lee, «Selective wet etching of GaAs on  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  for Al-GaAs/InGaAs/AlGaAs pseudomorphic high electron mobility transistor», *J. Appl. Phys.* **84**, 3933 (1998).
- [92] Z. Song, S. Shogen, M. Kawasaki and I. Suemune, «X-ray photoelectron spectroscopy and atomic force microscopy surface study of GaAs(100) cleaning procedures», *J. Vac. Sci. Technol. B* **13**, 77 (1995).
- [93] P. B. Hirsch, A. Howie, R. B. Nicholson, D. W. Pashley and M. J. Whelan, *Electron microscopy of thin crystals*, 2<sup>nd</sup> edition (Krieger, Malabar, 1977).
- [94] I. C. Bassignana, D.A. Macquistan, G. C. Hillier, R. Streater, D. Beckett, A. Majeed and C. Miner, «Variation in the lattice parameter and crystal quality of commercially available Si-doped GaAs substrates», *J. Cryst. Growth* **178**, 445 (1997).
- [95] G. Saint-Girons, G. Patriarche, L. Largeau, J. Coelho, A. Mereuta, J.M. Gérard and I. Sagnes, «Metal-organic vapor-phase epitaxy of defect-free InGaAs/GaAs quantum dots emitting around 1.3  $\mu\text{m}$ », *J. of Cryst. Growth* **235**, 89 (2002).
- [96] G. Patriarche, L. Largeau, J.-C. Harmand and D. Gollub, «Morphology and composition of highly strained InGaAs and InGaAsN layers grown on GaAs substrate», *Appl. Phys. Lett.* **84**, 203 (2004).
- [97] G. Kästner, T. Akatsu, S. Senz, A. Plössl and U. Gösele, «Large-area wafer bonding of GaAs using hydrogen and ultrahigh vacuum atmospheres», *Appl. Phys. A* **70**, 13 (2000).

- [98] G. Kästner, O. Breitenstein, R. Scholz, M. Reiche, «Compound semiconductor interfaces obtained by direct wafer bonding in hydrogen or forming gas», *J. Mat. Sci. : Mat. Electron.* **13**, 593 (2002).
- [99] F. Fournel, «Réalisation par adhésion moléculaire d'un substrat induisant l'auto-organisation latérale et contrôlée du dépôt de nanostructures», thèse de doctorat de l'Université Grenoble I (2001).
- [100] G. B. Stringfellow, *Organometallic Vapor-Phase Epitaxy : theory and practice* (Academic Press, Boston, 1989).



## Résumé

Les nanostructures auto-assemblées sont particulièrement intéressantes pour des applications en opto-électronique et en photonique, notamment sur substrat de GaAs. Néanmoins, leur répartition spatiale à longue distance est aléatoire, leur densité est difficile à contrôler, leur distribution en taille peut être large et leurs formes peuvent être différentes. En palliant ces limitations, on devrait pouvoir améliorer les performances de dispositifs existants ou d'en fabriquer de nouveaux. Ce travail étudie la possibilité d'organiser à longue distance des nanostructures auto-assemblées sur substrat de GaAs, grâce aux champs élastiques produits en surface par des réseaux de dislocations (RDs) périodiques faiblement enterrés. Ces RDs se forment à l'interface cristalline entre une fine couche de GaAs et un substrat de GaAs (jointes par «collage épitaxial») pour accommoder des désorientations entre leurs plans cristallins. Nous avons montré par l'intermédiaire d'une étude de microscopie électronique en transmission que les désorientations peuvent être choisies de sorte que les dislocations forment un réseau hexagonal périodique présentant des caractéristiques favorables à l'organisation bidimensionnelle à longue distance de nanostructures. Nous avons démontré expérimentalement une telle organisation pour des nanostructures auto-assemblées de GaAs et d'InGaAs.

**Mots-clés:** GaAs, nanostructures, réseaux de dislocations, collage épitaxial, MET.

## Abstract

Self-assembled nanostructures are particularly interesting for optoelectronic and photonic applications, especially on GaAs substrate. Nevertheless, their long-range spatial distribution is random, their density is difficult to control, their size distribution can be large and their shapes can be different. By overcoming these drawbacks, it should be possible to improve the performances of existing devices or to fabricate new ones. This work studies the possibility to order on a long-range self-assembled nanostructures on GaAs substrate, by means of the elastic fields induced at the surface by shallowly buried periodic dislocation networks (DNs). These DNs form at the crystalline interface between a thin GaAs layer and a GaAs substrate (joined together by «epitaxial bonding») in order to accommodate crystalline misorientations between their crystallographic planes. We showed by means of a transmission electron microscopy study that the misorientations can be chosen so that the dislocations form a periodic hexagonal network, which possesses characteristics favorable to the two-dimensional long-range ordering of nanostructures. We demonstrated experimentally such an ordering for GaAs and InGaAs self-assembled nanostructures.

**Keywords:** GaAs, nanostructures, dislocation network, epitaxial bonding, TEM.