



Relaxation des contraintes dans les hétérostructures épaisses (Al,Ga)N : une piste originale pour la réalisation de diodes électroluminescentes à cavité résonante

Jean-Marc Bethoux

► To cite this version:

Jean-Marc Bethoux. Relaxation des contraintes dans les hétérostructures épaisses (Al,Ga)N : une piste originale pour la réalisation de diodes électroluminescentes à cavité résonante. Matière Condensée [cond-mat]. Université Nice Sophia Antipolis, 2004. Français. NNT : . tel-00011372

HAL Id: tel-00011372

<https://theses.hal.science/tel-00011372>

Submitted on 13 Jan 2006

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 DE NICE-SOPHIA ANTIPOLIS - U.F.R. Sciences
Ecole Doctorale Sciences Fondamentales et Appliquées

THÈSE

pour obtenir le titre de

Docteur en Sciences

de l'Université de Nice Sophia-Antipolis

Discipline : Physique

présentée et soutenue publiquement le 24 Septembre 2004

par

Jean-Marc BETHOUX

Relaxation des contraintes dans les hétérostructures épaisses (Al,Ga)N : une piste originale pour la réalisation de diodes électroluminescentes à cavité résonante

Thèse dirigée par Jean-Yves Duboz

JURY

R. Kofman	professeur UNSA	président du jury
N. Grandjean	professeur EPF Lausanne	rapporteur
J.L. Rouvière	ingénieur CEA Grenoble	rapporteur
G. Guillot	professeur INSA Lyon	examineur
F. Scholz	professeur Univ. Ulm	examineur
J.Y. Duboz	directeur de recherches CNRS	directeur de thèse

Centre de recherche sur l'Hétéro-Epitaxie et ses Applications, CNRS, Valbonne

Remerciements

J'ai bénéficié pour réaliser cette thèse d'une bourse cofinancée par le Centre National de la Recherche Scientifique et la Région Provence-Alpes-Côte-d'Azur. Je tiens à témoigner ma reconnaissance à ces organismes, ainsi qu'à Mireille Georges et Claude Noerdinger de la société Lumiway pour leur soutien.

Le travail présenté dans ce manuscrit a été réalisé au Centre de Recherche sur l'Hétéro-Epitaxie et ses Applications (CRHEA).

"Celui qui n'est parti de rien pour arriver nulle part n'a de merci à dire à personne" (P. Dac)

Ce n'est pas mon cas. Je voudrais donc associer l'ensemble du personnel du CRHEA aux résultats présentés. Outre votre apport scientifique, je voudrais tous vous remercier pour avoir contribué à créer une atmosphère chaleureuse qui fait de ce labo bien plus qu'un lieu de travail.

Merci aux différents directeurs qui se sont succédés à la tête du CRHEA : Jean-Pierre Faurie qui m'a accueilli, Gérard Neu, la première personne à m'avoir présenté les activités du labo et qui a su me faire partager une certaine vision de la Physique, et enfin Jean-Yves Duboz qui, "à l'insu de son plein gré", est devenu mon directeur de thèse.

Je voudrais remercier Jean-Luc Rouvière, ingénieur au Centre d'Etudes Atomiques de Grenoble, et Nicolas Grandjean, professeur à l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, d'avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse. Je remercie également Richard Kofman, professeur à l'Université de Nice Sophia-Antipolis, d'avoir présidé le jury de thèse ainsi que Ferdinand Scholz, professeur à l'Université d'Ulm, et Gérard Guillot, professeur à l'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, d'avoir bien voulu examiner ce travail.

Je tiens également à remercier mon directeur de thèse pour sa disponibilité et son attention de chaque instant. Sans la confiance qu'il m'a témoignée, je n'aurais pu mener à bout ce travail. Enfin, je voudrais lui exprimer ma profonde reconnaissance pour m'avoir communiqué la "hargne" nécessaire à tout effort de recherche.

Le travail présenté dans ce manuscrit s'inscrit dans la continuité d'un projet de recherche allant de la réalisation de diodes électroluminescentes à base d'(In,Ga)N à la croissance de miroirs de Bragg (Al,Ga)N/GaN et à l'épitaxie de structure de diodes électroluminescentes à cavité résonante. Je voudrais donc remercier tous ceux qui ont contribué à l'acquisition au sein du CRHEA d'un savoir-faire reconnu. Je voudrais remercier, entre autres, Pierre Gibart, Bernard Beaumont, Phillipe De Mierry, Nicolas Grandjean, Hacène Larhèche, Eric Feltin et Stéphane Dalmaso. Je voudrais aussi souligner le travail de David Schenk avec qui j'ai pu partager pendant quelques mois des discussions fort enrichissantes : Félicitations pour ton mariage !

Ce travail n'aurait pas abouti sans le concours des trois Philippe.

Je voudrais remercier Philippe De Mierry de m'avoir initié à l'épitaxie, de m'avoir présenté la croissance de diodes électroluminescentes à base de nitrures, et de m'avoir permis d'accéder si facilement au bâti de croissance.

Ma profonde reconnaissance va à Philippe Vennégues pour m'avoir conforté dans l'idée que dans un laboratoire de recherche la compréhension de la physique de la matière devrait primer sur la réalisation de dispositifs. Merci de m'avoir formé à la microscopie électronique en transmission – et il a fallu répéter maintes fois les explications-, d'avoir toujours été disponible pour discuter avec moi –sans craindre la contradiction-, d'avoir lu et relu au moins une cinquantaine de fois mon manuscrit de thèse, de m'avoir poussé à présenter nos résultats à des conférences et surtout merci pour avoir supporté mon fichu caractère.

Enfin, je ne pourrais oublier de remercier Philippe Lorenzini. Mon grand regret est que nous n'ayons pas été plus en interaction au cours de cette thèse. Merci pour ta bonne humeur, ça a été un plaisir de partager ton bureau au cours des premiers mois que j'ai passés au CRHEA –et non seulement pour la présence de... Je te suis également reconnaissant de m'avoir permis d'enseigner à l'Ecole Supérieure d'Ingénieurs de Nice Sophia-Antipolis : le contact des étudiants et l'expérience de l'enseignement a souvent été pour moi une bouffée d'oxygène. Ceci dit, le fait de faire des TD en parallèle avec toi m'a montré que la pédagogie ne s'acquiert pas du jour au lendemain : les étudiants t'apprécie énormément ! J'espère arriver un jour à ta maîtrise de l'enseignement. Je voudrais d'ailleurs également remercier Anne Vigouroux pour les TP de Physique. Alain Chave, directeur de l'ESINSA, m'a confié la conduite de TD de mécanique tout en me soulageant pour la rédaction des sujets, des examens. ce qui a été plus qu'agréable, notamment pendant la rédaction de cette thèse. Je lui en suis profondément reconnaissant. Merci de m'avoir témoigné votre confiance jusqu'à assister à la soutenance de ma thèse.

Cette thèse doit beaucoup à Gillou Nataf. Sa contribution a été essentielle sur tous les plans. D'abord scientifiquement, bien que sa modestie lui fasse passer sous silence son titre de docteur et ses apports au contenu des thèses de l'équipe EPVOM. Pour la structure et la forme de ce manuscrit : il en faut du courage pour relire une centaine de fois le même brouillon ! Enfin au niveau humain, mais ce serait trop long de tout dire... Je ne désespère pas qu'un jour ta nièce adoptive te fasse grand oncle, et moi tonton par la même occasion.

Un gros merci à mon acolyte Mimi Vaille. T'es parti trop tôt à la retraite. Après ton départ, personne ne disait plus dans le couloir "je refuse de travailler dans ces conditions". Tu nous as manqué. J'espère que tu me pardonneras d'avoir soutenu ma thèse alors que tu étais au Canada.

Sébastien Pezzagna et Luan N'Guyen m'ont accompagné tout au long de cette thèse. Merci pour tous les rires, les balades... et le reste. Mais ne profitez pas de mon absence pour faire des ravages à France Télécom.

Ma présence au CRHEA est due non seulement au hasard mais aussi à Helge Haas qui m'a accueilli pour un stage d'ingénieur. Il m'a montré toutes les ficelles de la réalisation technologique ainsi que des caractérisations électriques. Enfin il est devenu bien plus qu'un collègue : tu embrasseras de ma part Isa, Mathis et Cléo.

Je voudrais remercier Olivier Tottereau non seulement pour ses explications sur l'AFM et le TEM mais également pour avoir toujours répondu présent pour chamber Philippe V. Si on est amenés à se croiser dans le Mercantour, sache que ce n'est pas moi qui piquais les pastilles AFM.

Merci à Matthieu Leroux –pour ses blagues, mais aussi pour être une "référence" pour les nitrures-, Sophie Laügt –pour ses explications des rayons X- , Marc Passerel –pour le MEB-..

Merci aux "djeuns" de l'EJM pour m'avoir fait apprécier mon autonomie.

Merci à Benjamin Damilano -l'homme qui peut dormir partout-, Frank Natali –les treizistes c'est tous des taff.. -, Stéphane Vézian –le Pierre Tchernia des séminaires-, Cyril Pernot –ah ces japonaises!-, Declan Byrne –"citruille"-, Sylvain "speedy" Joblot, Boris Poulet –rase toi la barbe-, Arnaud LeLouarn –ah ces Dunkerquoises ! -, Momo Azize -merci pour m'avoir appelé-, Seb Chenot -plus timide que moi, c'est possible- Thierry Chassagne –monsieur lapin from amg- et Maxime Hugues –j'aurais plus vite fait de les écrire les publis IEEE !

Un de mes grands regrets est la trop faible représentation de la gent féminine au sein des labos de Physique. Je suis d'autant plus reconnaissant à Isa C. –ah si seulement j'avais quelques années de plus.. – et Anne-Marie G. –ah si seulement.. – d'avoir partagé avec moi quelques moments de détente. A bientôt, j'espère. Anne-Marie : dancefloor ou paroi d'escalade ?

Je voudrais également remercier Ursula pour sa gentillesse hors pair, Isa H.R.K. pour son entrain. Avec Amélie D. –Dussaigne ou Damila.. ? – j'ai partagé pendant quelques mois le poids de savoir qu'on était les prochains à soutenir la thèse : je te dis "mer..". Pendant mes premiers mois au labo, j'ai côtoyé Florence V. qui a été un exemple pour moi : quelle efficacité pour la rédaction ! Merci à Marie-Amandine P. et Marie-Line T. de m'avoir accepté dans leur bureau.

Je dédie cet ouvrage à toutes celles qui d'une manière ou d'une autre m'ont encouragé à réaliser cette thèse.

Une pensée particulière va à Agnès qui dans un moment de profonde détresse a su trouver les mots pour me reconforter, j'en suis à jamais son débiteur. Paradoxalement, plus j'ai appris à te connaître, plus j'ai reçu.. Merci pour tout.

Enfin, à celle qui se cache derrière ces lignes :

"Jestésmy jedni dla drugich pielgrzymami,
ktorzy roznymi drogami zdazaja w tradzie na to samo spotkanieⁱ "

ⁱ Nous sommes des pèlerins l'un pour l'autre, cheminant par des voies difficiles et accidentées; ce n'est qu'en passant par des épreuves qu'on arrive au même but, enfin.

TABLES DES MATIERES

INTRODUCTION	7
1. LES NITRURES D'ELEMENTS III	9
1.1. PROPRIETES CRISTALLINES DES NITRURES D'ELEMENTS III	9
1.1.1. PARAMETRES CRISTALLINS	9
1.1.2. DEFAULTS STRUCTURAUX	10
1.1.3. HETERO-EPITAXIE DES NITRURES	11
1.2. STRUCTURE DE BANDES, PROPRIETES OPTIQUES ET PROPRIETES DE TRANSPORT	13
1.3. DISPOSITIFS	14
1.4. DIODES ELECTROLUMINESCENTES A BASE DE NITRURES	15
1.4.1. STRUCTURE DES DIODES PLANAIRES	15
1.4.2. AMELIORATION DES PERFORMANCES DES DEL	17
1.5. CROISSANCE DES NITRURES PAR EPVOM	18
1.6. METHODES DE CARACTERISATION STRUCTURALE	20
2. RELAXATION PLASTIQUE DANS LE SYSTEME (AL,GAL)N	25
2.1. INTRODUCTION	25
2.2. CONTRAINTES ELASTIQUES	27
2.2.1. L'ELASTICITE	27
2.2.2. CONTRAINTE D'EPITAXIE	30
2.2.3. CONTRAINTE THERMO-ELASTIQUE	31
2.2.4. MODELE ELASTIQUE MULTICOUCHE	32
2.2.5. COURBURE	34
2.2.6. MESURE DES CONTRAINTES / DEFORMATIONS	36
2.2.7. EPAISSEUR CRITIQUE	37
2.2.8. TAUX DE RELAXATION	38
2.3. RELAXATION DES CONTRAINTES PAR GLISSEMENT DE DISLOCATIONS	39
2.3.1. MECANISME DE MATTHEWS-BLAKESLEE	39
2.3.2. ENERGIE DES DISLOCATIONS	40
2.3.2.1. Energie de ligne	41
2.3.2.2. Energie de Peierls	42
2.3.3. ENERGIE ELASTIQUE RELAXEE PAR LES DISLOCATIONS	44
2.3.3.1. Energie elastique relaxee par une dislocation de rattrapage de désaccord paramétrique	45
2.3.3.2. Energie elastique relaxee par un réseau de dislocations	46
2.3.4. COURBURE DE DISLOCATIONS TRAVERSANTES	48
2.3.5. NUCLEATION DE DEMI-BOUCLES DE DISLOCATIONS	50
2.4. FISSURATION DE L'(AL,GAL)N EPITAXIE SUR GAN	51
2.4.1. EPAISSEUR CRITIQUE DE FISSURATION	52
2.4.2. DENSITE DE FISSURES ET TAUX DE RELAXATION	55
2.5. ALTERNATIVES A LA FISSURATION	58
2.6. CONCLUSION	62

3. CROISSANCE DE PSEUDO-SUBSTRATS D'(AL,Ga)N	65
3.1. DESCRIPTION EXPERIMENTALE	65
3.1.1. LE PSEUDO-SUBSTRAT DE GAN	65
3.1.2. CROISSANCE DE L'AL _x GA _{1-x} N	67
3.1.3. CARACTERISATIONS DU FILM D'(AL,Ga)N	68
3.2. MECANISMES DE LA RELAXATION	73
3.2.1. FISSURATION DE L'(AL,Ga)N	74
3.2.2. INTRODUCTION DE DISLOCATIONS D'INTERFACE	74
3.2.3. PROPAGATION DES FISSURES AU GAN	75
3.2.4. INTERACTIONS ENTRE DISLOCATIONS D'INTERFACE	77
3.2.5. INTERACTION AVEC LES DISLOCATIONS TRAVERSANTES	80
3.2.6. CICATRISATION DES FISSURES	82
3.2.7. CICATRISATION DES FISSURES VS. RELAXATION DES CONTRAINTES	86
3.2.8. INTERET DES FISSURES ENTERREES	86
3.2.9. RESUME DU SCENARIO DE LA RELAXATION	86
3.3. EVOLUTION DE LA RELAXATION EN FONCTION DE L'EPaisseur	87
3.3.1. CARACTERISATION MACROSCOPIQUE	88
3.3.2. CARACTERISATION MICROSCOPIQUE	91
3.3.3. DISCUSSION SUR LA RELAXATION DUCTILE	96
3.3.3.1. Extension des demi-boucles de dislocations près des fissures	96
3.3.3.2. Relaxation induite par les dislocations courbes	97
3.3.3.3. Nucléation de dislocations à partir de l'intersection de fissures	97
3.3.3.4. Relaxation induite par les dislocations droites	98
3.3.3.5. Estimation de l'énergie de nucléation des dislocations d'interface	99
3.3.4. CONSEQUENCES SUR LA CROISSANCE	101
3.4. LIMITATIONS DU PROCEDE	101
3.5. CONCLUSION	104
4. MIROIRS DE BRAGG (AL,Ga)N / GAN	107
4.1. SPECIFICATIONS	108
4.1.1. INTERET ET SPECIFICATIONS OPTIQUES	108
4.1.2. SPECIFICATIONS STRUCTURALES	112
4.1.3. SPECIFICATIONS ELECTRIQUES	115
4.2. CROISSANCE DES MIROIRS DE BRAGG	117
4.3. CARACTERISATIONS	119
4.3.1. REFLECTIVITE	119
4.3.2. CARACTERISATIONS STRUCTURALES	119
4.3.3. CONDUCTIVITE ELECTRIQUE	123
4.4. CONCLUSION	130

5. DIODES ELECTROLUMINESCENTES A CAVITE RESONANTE	133
5.1. INTERET	133
5.1.1. PROPRIETES OPTIQUES DES DIODES ELECTROLUMINESCENTES A BASE DE NITRURES	133
5.1.2. PRINCIPE DES DEL-CR	135
5.2. DEMONSTRATION DE L'EFFET DE CAVITE	137
5.3. REALISATION D'UNE DIODE A CAVITE RESONANTE SUR PSEUDO-SUBSTRAT (AL,Ga)N	142
5.4. CONCLUSION	147
6. CONCLUSION GENERALE	151
ANNEXES	155
A1. ENERGIE DE BANDE INTERDITE ET INDICE OPTIQUE DE L'(AL,Ga)N	157
A2. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE EN TRANSMISSION	158
A3. DIFFRACTION DE RAYONS X	161
A4. REALISATION TECHNOLOGIQUE DE DIODES ELECTROLUMINESCENTES	163
A5. METHODE DE LA LIGNE DE TRANSMISSION (TLM)	165
A6. MESURES I-V SUR UN MIROIR DE BRAGG (AL,Ga)N/GAN	168
A7. MODELISATION DE L'INJECTION ELECTRIQUE LE LONG DE L'AXE DES MIROIRS DE BRAGG (AL,Ga)N/GAN	169
A8. SIMULATION DE MESURES TLM SUR DES MIROIRS DE BRAGG	171

Introduction

Le travail présenté dans ce mémoire a été réalisé au Centre de Recherche sur l'Hétéro-Epitaxie et ses Applications (CRHEA-CNRS). L'activité de ce laboratoire est centrée autour de la croissance et de la caractérisation de semi-conducteurs à large bande interdite en vue d'applications opto- et micro-électroniques. Les principaux matériaux élaborés au CRHEA sont les nitrures d'éléments III (et notamment le nitrure de gallium GaN), les arséniures azotés, les composés II-VI tels que l'oxyde de zinc (ZnO), ainsi que le carbure de silicium (SiC).

L'objectif de cette thèse a été de réaliser des diodes électroluminescentes à cavité verticale en nitrures d'éléments III. Ce travail s'est inscrit dans le cadre du projet européen AGETHA (IST 1999-10292) auquel le CRHEA a participé. Ce projet visait à développer des diodes électroluminescentes (DEL) et des récepteurs pour la transmission de données à haut débit (jusqu'à 500 Mb.s^{-1}). Le principal domaine d'application visé étant l'électronique embarquée dans l'avionique et l'automobile, ces dispositifs doivent répondre à des contraintes assez sévères : environnement hostile (vibrations, températures de l'ordre de 120°C). Par ailleurs, la recherche d'un couplage optimisé avec des fibres optiques plastiques a conduit à choisir une structure de type diode électroluminescente à cavité résonante (DEL-CR). En effet, le principal intérêt de ce type de structure réside dans la directivité de l'émission et la sélectivité spectrale qui permettent d'améliorer le couplage avec les fibres optiques [1].

Les nitrures d'éléments III possèdent un caractère réfractaire illustré par des températures de fusion élevées. Ils présentent une structure de bande directe et une gamme étendue d'énergies de bande interdite qui permet de réaliser avec ces matériaux des émetteurs de lumière couvrant tout le domaine du visible jusqu'au proche UV [2]. Ce sont donc des candidats privilégiés pour la réalisation de dispositifs optoélectroniques de courte longueur d'onde, pouvant fonctionner à des températures élevées. En outre, les fibres optiques plastiques présentant des maxima de transparence à 510 et 570 nm, les nitrures sont parfaitement adaptés à la réalisation de dispositifs optoélectroniques émettant à ces longueurs d'ondes, c'est ainsi que le choix s'est porté sur la réalisation de DEL-CR à base de nitrures.

La fabrication d'une DEL-CR implique la réalisation d'une cavité optique de type Fabry-Pérot. Dans le cas des nitrures épitaxiés sur saphir, en raison de la difficulté d'enlever le substrat, une approche monolithique est privilégiée, c'est-à-dire la croissance d'un miroir de Bragg préalablement à l'épitaxie de la zone active. Or la faible différence d'indice optique

entre le GaN et l'AlN oblige à empiler de nombreuses paires (Al,Ga)N / GaN afin d'obtenir une réflectivité satisfaisante. Le désaccord de paramètre de maille entre ces matériaux est source de contraintes importantes. Leur relaxation par fissuration ou introduction de dislocations rend problématique la croissance d'hétérostructures. L'étude de la relaxation des contraintes dans le système (Al,Ga)N / GaN constituera donc l'essentiel du travail présenté dans ce mémoire.

Notre attention se portera dans un premier temps sur la compréhension des mécanismes de relaxation plastique dans les hétérostructures (Al,Ga)N / GaN. La relaxation par les dislocations et la fissuration y sera abordée.

A partir de cette étude, nous décrirons une nouvelle méthode de croissance mise au point pour l'épitaxie de films épais d'(Al,Ga)N non fissurés et de bonne qualité.

Les pseudo-substrats d'(Al,Ga)N réalisés suivant cette technique seront utilisés pour la croissance pseudomorphe de miroirs de Bragg (Al,Ga)N / GaN. Leur caractérisation fera l'objet d'un chapitre. Nous nous sommes particulièrement intéressés à décrire l'état de contrainte de ces miroirs. L'un des objectifs étant la réalisation de DEL-CR, les caractéristiques électriques de ces miroirs présentent une grande importance : une procédure de mesure de résistivité mise au point au cours de ce travail sera rapportée.

Enfin, dans le dernier chapitre, nous présenterons la réalisation de démonstrateurs DEL-CR.

1 E.F. Schubert, *Light emitting diodes*, Cambridge University Press, Cambridge (2003).

2 S. Nakamura et G. Fasol, *the Blue Laser Diode*, Springer, Berlin (1997).

1. Les nitrures d'éléments III

Les premiers travaux sur GaN datent des années 70. Néanmoins la difficulté d'obtenir un dopage de type p a très fortement freiné le développement des applications optoélectronique en nitrures d'éléments III. Cet écueil a été levé au milieu des années 80 par Amano et Akasaki. Il faut attendre 1993 et les premières diodes électroluminescentes en (In,Ga)N [1] pour voir l'explosion de l'activité de recherche sur ce système de matériaux. Depuis, les dispositifs à base de nitrures se sont multipliés tant dans le domaine de l'optoélectronique que de la microélectronique hyperfréquence.

1.1. Propriétés cristallines des nitrures d'éléments III

Les nitrures sont des semi-conducteurs à large bande interdite formés d'atomes d'éléments III (Gallium, Aluminium ou Indium) associés à l'azote. Tous les atomes sont tétracoordonnés. Ces composés III-V peuvent présenter deux phases cristallines : la structure wurtzite ou la structure sphalérite. La phase la plus stable dans les conditions normales de croissance est la structure wurtzite. Elle est hexagonale. Dans ce mémoire, nous nous intéresserons exclusivement à celle-ci.

1.1.1. Paramètres cristallins

Dans les cristaux hexagonaux, la maille cristalline est un prisme dont la base a des arêtes de même longueur (a) et désorientées de 120° , la hauteur du prisme est notée c . Il est d'usage d'utiliser une notation à 4 indices (h,k,i,l), liés aux vecteurs a_1 , a_2 , a_3 et c représentés sur la Figure 1-1. Les indices doivent respecter $h + k + i = 0$. Dans ce mémoire, nous serons amenés régulièrement à définir des directions et des plans cristallographiques. Nous rappelons donc très sommairement leur notation. Une direction $[h,k,i,l]$ est colinéaire au vecteur $\vec{u} = h\vec{a}_1 + k\vec{a}_2 + i\vec{a}_3 + l\vec{c}$ [2]. Le plan qui coupe les axes a_1 , a_2 , a_3 et c respectivement en $1/h$, $1/k$, $1/i$ et $1/l$ est noté (hkl) . Il est perpendiculaire à la direction $[h,k,i,\frac{3}{2}(\frac{a}{c})^2 l]$. A titre d'illustration, dans nos échantillons, l'axe de croissance est l'axe $[0001]$ et le plan de croissance est le plan (0001) . Une famille de directions est notée $\langle hkl \rangle$. Par exemple, on utilisera la notation $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ pour parler des trois directions équivalentes $[11\bar{2}0]$, $[1\bar{2}10]$ et $[2\bar{1}\bar{1}0]$. Les familles de plans sont notées entre accolades $\{hkl\}$.

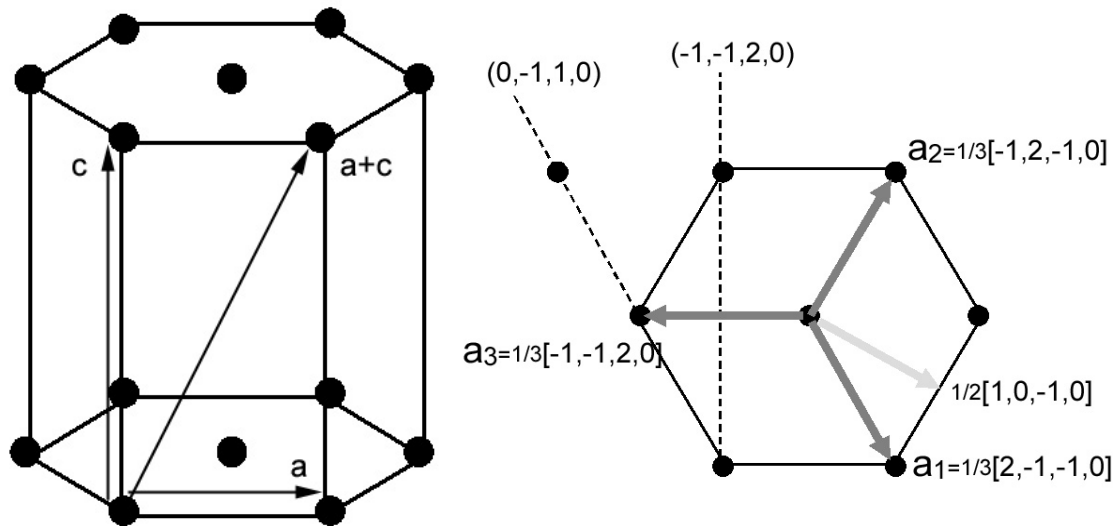


Figure 1-1 : prisme hexagonal représentatif de la structure wurtzite des nitrures d'éléments III.

Les paramètres de maille des nitrures d'éléments III sont donnés dans le tableau 1-1.

	AlN	GaN	InN
a	3,111	3,1878	3,544
c	4,980	5,1850	5,718

Tableau 1-1 : paramètres de maille des nitrures d'éléments III hexagonaux (en Å)

Dans le cas des alliages, il est d'usage d'estimer les paramètres de maille à partir de la loi de Végard. A titre d'illustration, le paramètre de maille dans le plan pour un film d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ vaut : $a(x) = x.a_1 + (1-x).a_0$, avec a_0 et a_1 les paramètres de maille dans le plan du GaN et de l'AlN.

1.1.2. Défauts structuraux

En l'absence de substrat adapté, la croissance des films en nitrures se traduit par la présence de nombreux défauts cristallins. Les principaux défauts dans les nitrures d'éléments III sont des dislocations traversantes.

Les dislocations sont des défauts linéaires définis par un vecteur de Burgers b (qui correspond à l'amplitude de la déformation locale du réseau) et par un vecteur unitaire u parallèle à la ligne de dislocation [3]. Le plan de glissement d'une dislocation est le plan qui contient ces deux vecteurs. Des études antérieures ont montré que trois types de dislocations pouvaient se propager de l'interface substrat/nitride vers la surface à travers le film [4]. On parle alors de dislocations traversantes. Ces dislocations ont une ligne parallèle à $\langle 0001 \rangle$ et présentent

comme vecteur de Burgers : $b = \langle 0001 \rangle = c$, $b = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle = a$ ou $b = 1/3 \langle 11\bar{2}3 \rangle = a + c$. Les dislocations sont des centres de recombinaisons non-radiatifs [5] et sont donc néfastes aux performances des dispositifs optoélectroniques, notamment en ce qui concerne leur durée de vie [6]. Dans les films de bonne qualité réalisés par épitaxie en phase vapeur à base d'organométalliques (EPVOM), la densité de dislocations traversantes est de quelques 10^8 cm^{-2} . Un important effort de recherche a été produit pour réduire la densité de dislocations traversantes. Les deux principales voies sont l'épaississement des films par épitaxie en phase vapeur à base d'halogénures (EPVH) et la technique de surcroissance par épitaxie latérale (ELO) [7]. Si on a recours à des techniques relativement lourdes pour réduire la densité des dislocations traversantes, c'est que leur formation dans les premiers stades de la croissance ne peut être évitée. En effet, les dislocations de type a permettent lorsqu'elles sont dans le plan de croissance, de relaxer le désaccord de maille entre le substrat et le film nitrure. Elles sont inhérentes à l'hétéroépitaxie. Par la suite lorsque ces dislocations se propagent verticalement, elles permettent de compenser les désorientations entre les sous-grains de GaN [8]. Nous détaillerons dans la suite de ce mémoire l'effet des dislocations sur la relaxation des contraintes et nous nous appliquerons à minimiser leur densité dans les films épitaxiés.

En plus des dislocations traversantes, il peut y avoir des domaines d'inversion, des fautes d'empilements ainsi que des défauts ponctuels (lacunes, interstitiels, substitutionnels, impuretés). Ces défauts ont fait l'objet de nombreuses études, notamment optiques (cf références dans [9]). On peut noter que les seuls défauts étendus observés dans les échantillons étudiés sont les dislocations traversantes.

1.1.3. Hétéro-épitaxie des nitrures

Du fait de la très haute température de fusion de ces composés, il n'existe pas de substrat en nitrures d'éléments III disponibles commercialement. La technique de cristallisation du GaN à haute pression [10] ne permet pas d'obtenir des surfaces de films de taille compatible avec la production de dispositifs optoélectroniques. Par ailleurs, leur disponibilité et leur coût sont prohibitifs. Pour réaliser des dispositifs en nitrures, nous avons donc recours à des substrats exogènes et donc à l'hétéro-épitaxie. Or il n'existe pas de substrat adapté dont la maille cristalline et le coefficient d'expansion thermique soient proches de ceux des nitrures [11]. De ce fait, la croissance des nitrures induit une densité élevée de dislocations.

La Figure 1-2 permet de présenter schématiquement la problématique de l'hétéro-épitaxie. Le matériau que l'on veut faire croître, présente des paramètres de maille relaxés : a_e et c_e . Les paramètres de maille du substrat sont a_s et c_s . Si la croissance s'effectue suivant l'axe c , l'accord de maille est obtenu si a_e égale a_s . Lorsque ce n'est pas le cas, le film se déforme afin d'épouser le paramètre de maille dans le plan du substrat (Figure 1-2b). Si l'écart entre les paramètres de maille est important, il peut être énergétiquement intéressant de rompre la cohérence des réseaux cristallins (Figure 1-2c). Dans le cas présenté, 6 plans atomiques du film épitaxié correspondent à 5 plans du substrat. En fait, afin de respecter le maximum de liaisons atomiques entre le substrat et le film, le film se déforme localement (Figure 1-2d). Le désaccord de paramètre de maille est alors compensé par l'introduction de dislocations d'interface.

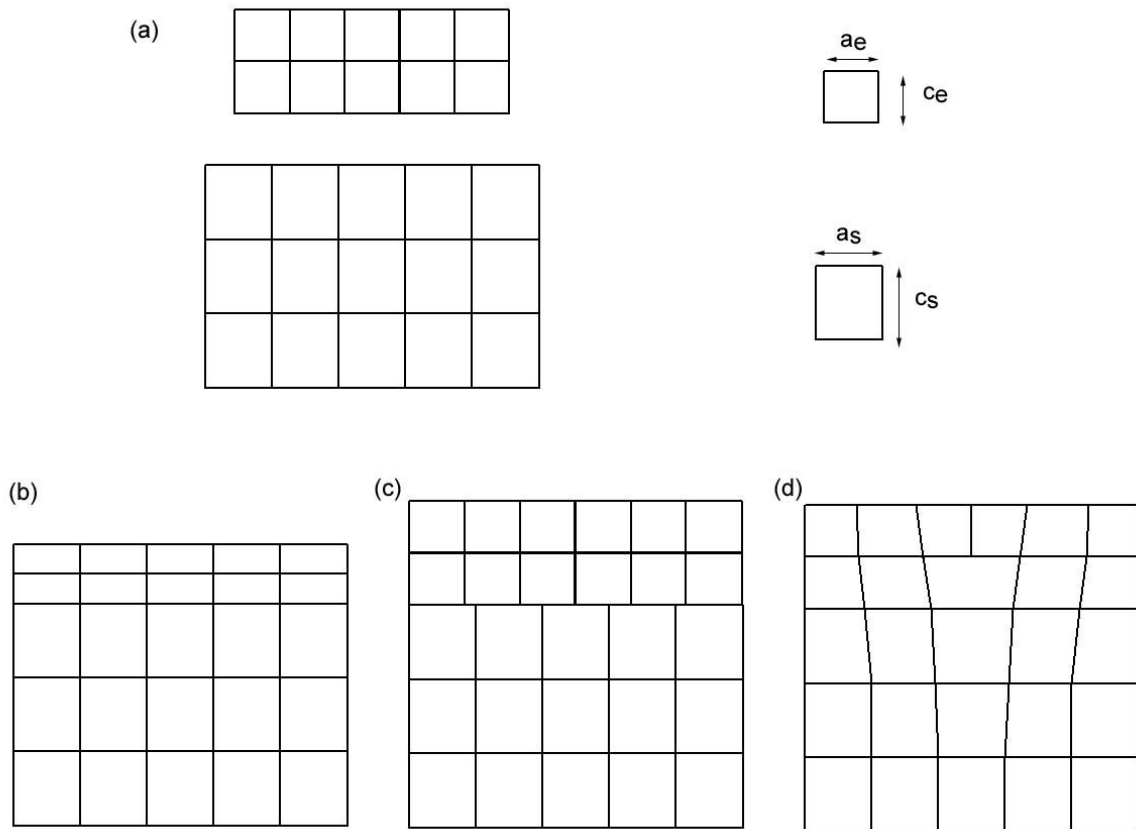


Figure 1-2 : illustration de l'hétéroépitaxie : (a) représentation des réseaux cristallins du film épitaxié et du substrat à l'état relaxé ; leur paramètres de maille sont dans le plan a_e pour le film épitaxial et a_s pour le substrat, et selon la direction de croissance c_e et c_s . (b) croissance pseudomorphe : les deux réseaux coïncident dans le plan de croissance ; pour ce faire la maille cristalline du film épitaxié a été déformée. (c) pour se rapprocher des paramètres de maille relaxés, un demi-plan supplémentaire a été inséré dans le film. Dans cet exemple, une liaison sur six a été conservée entre le substrat et le film. Les deux matériaux ne sont plus en relation d'épitaxie. (d) une dislocation a été introduite à l'interface entre le film et le substrat ; cela se traduit par la présence d'un demi-plan supplémentaire dans le film.

1.2. Structure de bandes, propriétés optiques et propriétés de transport

La plupart des nitrures d'éléments III sont des semi-conducteurs à bande interdite directe. De ce fait, ils sont tout à fait adaptés à l'optoélectronique. Leur énergie de bande interdite couvre une zone très étendue : de 0,8 eV pour l' InN^i jusqu'à 6,2 eV pour l' AlN . Cela correspond à un spectre de longueur d'onde allant de l'infrarouge ($1,55 \mu\text{m}$) jusqu'à l'ultraviolet profond (200 nm).

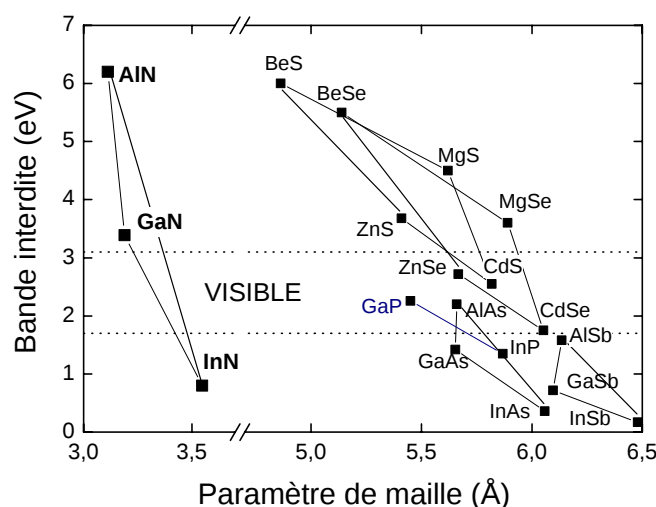


Figure 1-3 : énergie de bande interdite (à 300 K) en fonction du paramètre de maille pour les principaux semi-conducteurs.

Du fait de l'anisotropie de la structure wurtzite et du couplage spin-orbite, le sommet de la bande de valence du GaN est éclaté en trois niveaux d'énergie. Il s'ensuit que l'on peut observer par réflectivité trois transitions excitoniques dont l'énergie dépend de la contrainte [9].

Une autre particularité des nitrures d'éléments III est d'avoir des coefficients piezoélectriques élevés [9]. Par conséquent, lorsqu'ils sont soumis à une contrainte, ils présentent un fort champ électrique (de l'ordre du MV.cm^{-1} dans les puits quantiques). En outre, la polarisation spontanée conduit à l'existence d'un champ électrique dans les hétérostructures, même en l'absence de contraintes. L'effet Stark confiné quantique qui

ⁱ L'énergie de bande interdite de l' InN n'est pas connue précisément. La valeur présentée est celle généralement admise en Mai 2004.

résulte du champ électrique, a permis d'expliquer un important décalage vers le rouge de l'émission des puits quantiques [12].

Enfin, les nitrures ont des propriétés de transport très intéressantes. L'association d'un champ de claquage important ($5 \times 10^7 \text{ V.cm}^{-1}$), d'une mobilité élevée des électrons (jusqu'à $2650 \text{ cm}^2.\text{V}^{-1}.\text{s}^{-1}$ pour des gaz d'électrons bidimensionnels) ainsi que la possibilité d'obtenir d'importantes densités surfaciques d'électrons ($2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$) en réalisant des hétérostructures (Al,Ga)N / GaN, en font des matériaux de choix pour la réalisation de dispositifs microélectroniques.

	Si	GaAs	GaN	AlN	6H-SiC
E_g (eV)	1,1	1,4	3,4	6,2	2,9
bande interdite	indirecte	directe	directe	directe	indirecte
μ_e ($\text{cm}^2.\text{V}^{-1}.\text{s}^{-1}$)	1400	8500	1000	135	600
μ_p ($\text{cm}^2.\text{V}^{-1}.\text{s}^{-1}$)	600	400	30	14	40
v_{sat} (10^7 cm.s^{-1})	1	2	2,5	1,4	2
ξ_{claquage} (10^6 V.cm^{-1})	0,3	0,4	>5	-	4
K_{th} (W.cm^{-1})	1,5	0,5	1,5	2	5
T_{fusion} ($^{\circ}\text{C}$)	1400	1250	2500	3200	2400

Tableau 1-2 : comparaison des propriétés des principaux semi-conducteurs cristallins : E_g représente l'énergie de bande interdite, μ_e et μ_p la mobilité des électrons et des trous respectivement ; v_{sat} la vitesse de saturation des électrons, ξ_{claquage} le champ de claquage, K_{th} la conductivité thermique et T_{fusion} la température de fusion ; d'après [13].

1.3. Dispositifs

Les propriétés intrinsèques des nitrures d'éléments III rendent ces matériaux particulièrement attractifs pour différents types de dispositifs [14].

Leur large gamme d'énergie de bande interdite a permis de réaliser des diodes électroluminescentes allant de l'ambre à l'UV [15]. Des diodes blanches obtenues par l'association de deux à trois couleurs sont donc parfaitement envisageables [12]. Les premiers lasers bleus semi-conducteurs présentant une durée de vie supérieure à 15000 h à température ambiante ont été réalisés à base de nitrures [16,17].

D'autre part, les propriétés de transport des nitrures en font des candidats de choix pour la microélectronique hyperfréquence et de puissance [18].

Les nitrures d'éléments III présentent enfin un caractère réfractaire qui les rend incontournables à l'heure actuelle aussi bien pour l'optoélectronique que pour la microélectronique en environnement hostile.

En ce qui concerne ce mémoire, la réalisation de diodes électroluminescentes à cavité résonante, comme composant de démonstration, sera présentée.

1.4. Diodes électroluminescentes à base de nitrures

1.4.1. Structure des diodes planaires

La Figure 1-4 illustre la structure classique d'une diode électroluminescente en nitrures d'élément III épitaxiée sur saphir. Elle comprend un film de GaN dopé n, un puit quantique d'(In,Ga)N, une fine couche d'(Al,Ga)N permettant de stopper les électrons et un film de GaN dopé p.

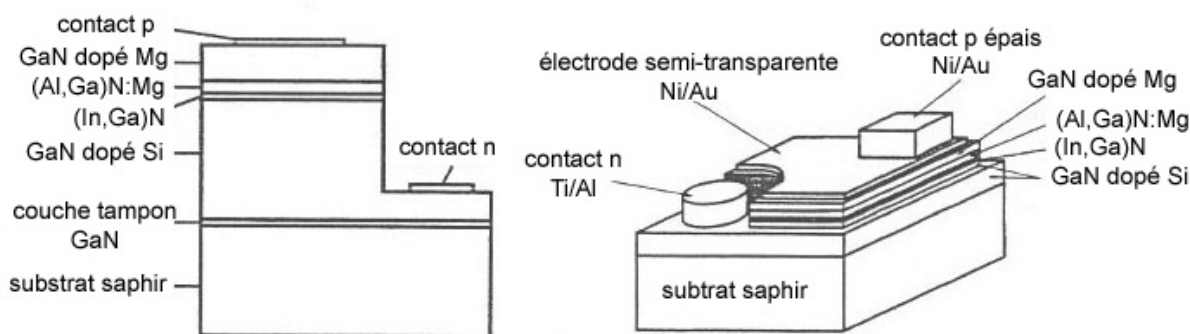


Figure 1-4 : structure d'une diode électroluminescente réalisée en technologie planaire d'après [1].

Le silicium est généralement utilisé comme donneur dans le GaN. La profondeur du niveau donneur correspondant est d'environ 32 meV. Le taux d'incorporation élevé du silicium permet d'obtenir facilement des densités d'électrons libres allant jusqu'à 10^{19} cm^{-3} [19]. Pour nos échantillons, le dopage n est compris entre 1 et $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ et la mobilité des électrons est de l'ordre de $200 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$. La résistivité des films de GaN dopé silicium est de l'ordre de $1 \times 10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}$.

Le dopage de type p du GaN est plus délicat. Il est obtenu par incorporation de Magnésium. Lors de la croissance par épitaxie en phase vapeur à base d'organométalliques, un recuit sous azote est nécessaire afin d'activer électriquement le Mg par élimination des complexes Mg-H [19]. Par ailleurs, pour des concentrations en Mg supérieures à $3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, un phénomène d'autocompensation fait chuter la densité de trous. Le niveau accepteur est

relativement profond : 160 meV. La densité de trous dans le GaN est ainsi actuellement limitée à $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Leur mobilité est inférieure à $10 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$. La résistivité des films de GaN dopé Mg est par conséquent élevée. Elle est supérieure à $1 \text{ } \Omega \cdot \text{cm}$.

La résistivité élevée de la couche dopée p a naturellement incité à adopter la structure présentée sur Figure 1-4. L'épaisseur du film dopé Mg est minimisée afin que la résistance de la diode ne soit pas trop élevée. Une électrode semi-transparente permet d'obtenir un contact ohmique sur une large surface de la couche de GaN dopée p. Elle est réalisée en Ni / Au, ce qui permet d'allier adhérence et caractère quasi ohmique [20]. La résistance spécifique de contact est toutefois élevée. Elle est de l'ordre de $1 \times 10^{-1} \text{ } \Omega \cdot \text{cm}^2$. La transmission de la lumière au travers de l'électrode semi-transparente est de l'ordre de 60% dans le domaine visible.

Les contacts n des diodes électroluminescentes sont déposés après une étape de gravure. Un empilement Ti / Al a été utilisé. La résistance spécifique est inférieure à $1 \times 10^{-2} \text{ } \Omega \cdot \text{cm}^2$. Les principales étapes technologiques de la réalisation des diodes électroluminescentes sont présentées dans l'Annexe A4.

Afin d'avoir une émission sur toute la surface de la diode, il faut que l'électrode semi-transparente ait une conductivité élevée pour obtenir une équipotentielle à proximité du puits quantique. D'autre part, la densité de courant d'électrons arrivant au niveau de la zone active doit être homogène sur toute la surface. Pour ce faire, le film de GaN dopé Si doit présenter une conductivité et une épaisseur suffisante [19].

La zone active est constituée de puits quantiques d'(In,Ga)N. Du fait de la désorption de l'indium durant la croissance des puits quantiques, il est difficile d'obtenir des compositions supérieures à 20% en indium. La présence d'un fort champ électrique permet toutefois de décaler l'émission des puits vers le rouge grâce à l'effet Stark confiné quantique [12]. La Figure 1-5 illustre le diagramme de bandes calculé pour un simple puits quantique d' $\text{In}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ de 35Å inséré dans un film de GaN. Le champ électrique provoque un décalage de l'énergie des transitions radiatives, permettant d'obtenir ici une émission à $\lambda=530\text{nm}$. Cependant, l'élargissement des puits s'accompagne d'une séparation des fonctions d'onde des électrons et des trous. L'efficacité radiative est par conséquent diminuée. Afin d'augmenter l'efficacité des diodes, nous avons en général inséré trois puits quantiques d'(In,Ga)N séparés par des barrières de GaN non dopées.

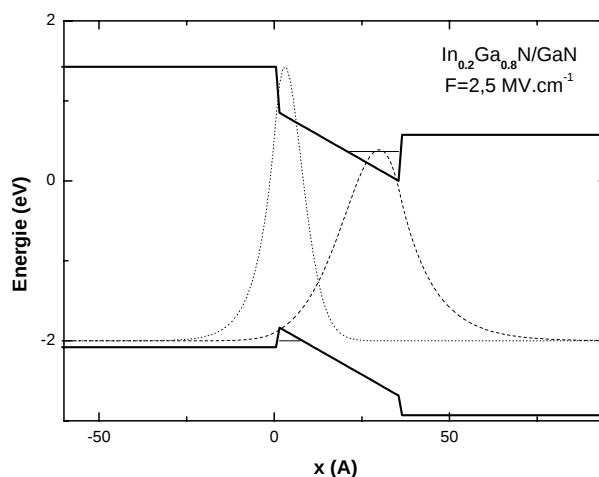


Figure 1-5 : effet Stark confiné quantique dans le cas d'un puits quantique $\text{In}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{N}$ de 3,5nm : décalage vers le rouge des énergies de transition, et séparation des fonctions d'onde calculées d'électrons (traits hachuré) et des trous (traits pointillés).

1.4.2. Amélioration des performances des DEL

Pour la structure de diode électroluminescente présentée dans le paragraphe précédent, l'émission est isotrope. Plus de la moitié de la lumière, dirigée vers le substrat, est donc perdue. En tenant compte de l'angle de réflexion critique et de l'absorption optique de l'électrode semi-transparente, le coefficient d'extraction se réduit à moins de 15%. Ce constat a poussé à des améliorations aboutissant à des structures plus complexes comme les diodes à cavité résonante.

Les caractéristiques optiques fondamentales d'une diode électroluminescente sont :

- le rendement externe ou la puissance optique,
- le spectre d'émission,
- le cône d'émission.

Le rendement externe correspond au rapport de la puissance lumineuse émise par la diode par rapport à la puissance électrique injectée. Il doit être maximisé. Il tient compte de l'efficacité radiative et du rendement d'extraction.

L'efficacité radiative représente la faculté de générer des photons à partir des porteurs électriques (paires électrons-trous). Un haut rendement interne passe par l'ingénierie de bandes de la zone active et la proscription des recombinaisons non-radiatives. Dans les nitrures, un rendement interne élevé est obtenu malgré la densité élevée de dislocations traversantes. L'efficacité quantique des puits d'(In,Ga)N s'explique par le désordre d'alliage et l'effet de localisation des porteurs qui s'ensuit. Il faut toutefois noter que les dislocations

sont des centres de recombinaison non-radiatifs. Les dislocations traversantes diminuent donc la puissance lumineuse des diodes électroluminescentes lorsque leur espacement est comparable à la longueur de diffusion des porteurs [21].

Le rendement d'extraction révèle la proportion de lumière émise par rapport à celle générée au niveau de la zone active. Un rendement d'extraction élevé peut être obtenu en encapsulant les diodes avec des matériaux polymères, en optimisant la géométrie des diodes (par exemple en façonnant des pyramides inversées) ou en favorisant la réflexion de la lumière par l'électrode de type p et en récupérant la lumière par le saphir.

Les diodes électroluminescentes à base de puits quantiques d'(In,Ga)N présentent des spectres d'émission relativement larges. Leur largeur à mi-hauteur va de 20 à 55 nm à température ambiante lorsque l'émission varie de 2,95 à 2,35 eV [22]. Le spectre d'émission des diodes utilisées dans le domaine des communications optiques doit être le plus fin possible du fait du caractère dispersif des fibres optiques. Dans le cadre du projet Agetha, une largeur à mi-hauteur ne dépassant pas 20 nm pour une émission à 2,43 eV a été spécifiée. Une diode classique ne permettant pas d'arriver à une telle finesse du spectre d'émission, une structure à cavité résonante a été naturellement adoptée. Dans cette structure, une diode électroluminescente est insérée dans une cavité optique formée entre deux miroirs. La largeur de l'émission dépend alors essentiellement de la finesse de la cavité.

Par ailleurs, les diodes planaires ont un profil d'émission du type Lambertien : l'intensité lumineuse émise est proportionnelle au cosinus de l'angle d'émission. Ce qui revient à dire que seulement la moitié de la puissance émise l'est dans un cône de 15° par rapport à la normale à l'échantillon. Le couplage dans les fibres optiques se faisant avec un angle généralement inférieur à 15° , plus de la moitié de l'émission lumineuse est ainsi perdue. Les diodes à cavité résonante qui ont une émission beaucoup plus directive, présentent donc un avantage certain par rapport aux diodes conventionnelles.

1.5. Croissance des nitrures par EPVOM

Le défaut de substrat massif de GaN mentionné auparavant, implique de réaliser des croissances hétéroépitaxiales. Les substrats ayant permis de réaliser les dispositifs les plus performants sont le saphir, le SiC et le silicium [11]. Ces substrats présentent tous des désaccords de paramètre de maille et de coefficient d'expansion thermique considérables par rapport aux nitrures. L'épitaxie des nitrures passe donc forcément par la réalisation et l'optimisation de couches de nucléation. Cette couche de nucléation sur saphir est particulièrement bien maîtrisée par la technique d'épitaxie en phase vapeur à base

d'organométalliques (EPVOM). Cette technique qui a également permis de réaliser les diodes électroluminescentes les plus performantes, a donc été naturellement choisie dans le cadre de cette étude.

L'EPVOM utilise des composés organiques comme sources d'éléments III. Ces composés se présentent sous forme de liquides ayant une forte tension de vapeur à température ambiante. Ils sont en général fortement inflammables. Un gaz vecteur (hydrogène ou azote) permet d'acheminer les précurseurs d'éléments III jusqu'au réacteur. Afin d'avoir un flux de gaz saturé en organométalliques et avec un débit régulé, un système « vent-run » est monté sur chaque ligne de gaz. Ces lignes sont en outre équipées de débitmètres massiques et de régulateurs de pressions. L'ammoniac est utilisé comme précurseur d'azote. Son faible taux de décomposition en azote atomique nécessite un débit élevé, et par conséquent un important rapport V/III en phase vapeur.

Dans le cadre de cette thèse, un bâti de croissance conçu et fabriqué au laboratoire a été utilisé. Il présente un réacteur vertical schématisé sur la Figure 1-6. Le chauffage s'opère par induction grâce à un suscepteur de graphite revêtu de SiC. La température est mesurée à l'aide d'un thermo-couple placé au dessous du suscepteur. Différents lasers (HeNe, Ar) permettent de suivre la réflectivité en cours de croissance pour les longueurs d'onde de 633nm, 543 nm et 468 nm. Enfin, un système de rotation permet de faire tourner l'échantillon.

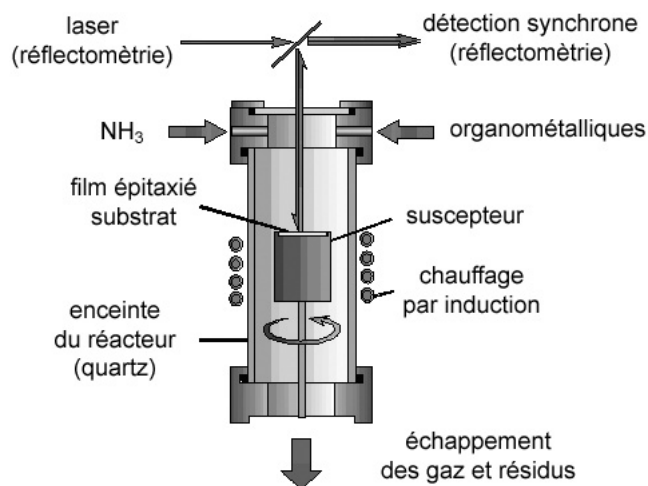


Figure 1-6 : schéma du réacteur d'épitaxie en phase vapeur à base d'organométalliques utilisé : les faisceaux lumineux permettant de suivre la réflectivité en cours de croissance ont été illustrés.

Les différents organo-métalliques que nous avons utilisés sont le triméthyl-gallium (TMGa), le triéthyl-gallium (TEGa), le triméthyl-aluminium (TMAI), le triméthyl-indium (TMIn) ainsi

que le biscyclopentadienyl-magnésium (Cp_2Mg) pour le dopage p. Le silane a permis d'obtenir un dopage n des films nitrures.

1.6. Méthodes de caractérisation structurale

Le thème de cette thèse est l'étude de la relaxation des contraintes dans le système (Al,Ga)N en vue de la réalisation de diodes électroluminescentes à cavité résonante. La première préoccupation a donc été de mesurer les contraintes présentes dans les matériaux épitaxiés par EPVOM. Pour ce faire, la diffraction des rayons X (DRX) s'est révélée un outil particulièrement adapté (cf Annexe A3).

La Figure 1-7 montre les différents pics du GaN accessibles par la diffraction des rayons X (avec λ la longueur d'onde de la transition K_{α_1} du cuivre) pour l'axe de zone $[11\bar{2}0]$. Les coordonnées d'un plan (hkl) ($Q_{0001}, Q_{10\bar{1}0}$) dans la section de l'espace réciproque ainsi définie vérifient : $Q_{0001}(hkl) = \frac{l}{c}$ et $Q_{10\bar{1}0}(hkl) = \frac{\sqrt{3}}{2} \frac{\sqrt{h^2 + h.k + k^2}}{a}$. La diffraction des pics symétriques du type $(000l)$ ne permet de mesurer que le paramètre de maille le long de l'axe de croissance. Pour déterminer l'état de contrainte, nous nous sommes donc essentiellement intéressés à l'étude des pics asymétriques du type $(10\bar{1}5)$ et $(\bar{1}015)$. La mesure précise des deux paramètres de maille permet alors de déterminer à la fois l'état de contrainte et la composition des alliages (Al,Ga)N (cf §2.2.6).

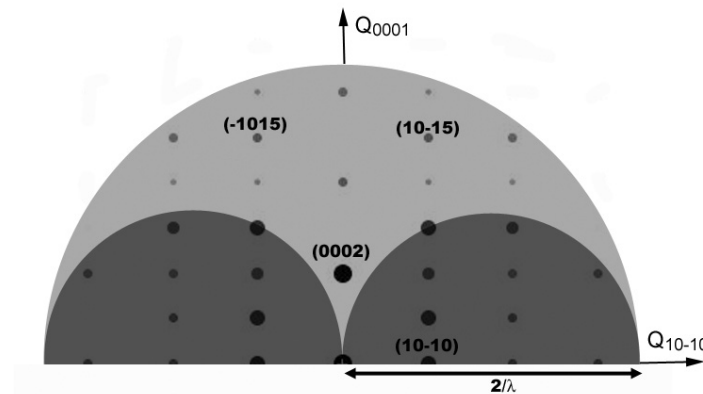


Figure 1-7 : section de l'espace réciproque du GaN vue par l'axe de zone $[11\bar{2}0]$; la zone claire correspond aux diffractions accessibles par diffraction aux rayons X ($\lambda = 1,544 \text{ \AA}$).

D'autre part, la relaxation plastique s'accompagnant de l'introduction de dislocations, la microscopie à force atomique (MFA) a permis d'estimer rapidement les densités de dislocations traversantes présentes dans les films. En effet, la surface des films de GaN

présente des dépressions qui correspondent à l'émergence de dislocations traversantes [23]. Il est d'ailleurs possible de différencier les dislocations de vecteur de Burgers $b=a$ de celles dont le vecteur est c ou $a+c$. En effet, lorsque le vecteur de Burgers d'une dislocation traversante présente une composante suivant l'axe de croissance, son émergence s'accompagne d'une double marche atomique à la surface du film, comme illustré sur la Figure 1-8.

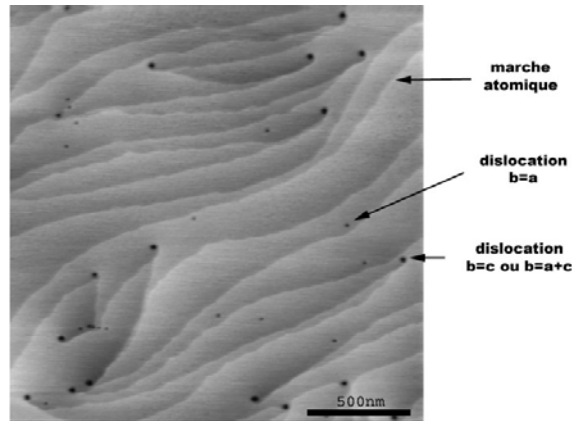


Figure 1-8 : microscopie à force atomique d'un film de GaN épitaxié par EPVOM sur substrat de saphir. Des marches atomiques et l'émergence de dislocations traversantes peuvent y être observées.

Pour les films d'(Al,Ga)N, l'oxydation du film peut rendre délicate l'observation directe des dislocations traversantes par MFA. Nous avons donc eu recours à des attaques chimiques afin de révéler les dislocations. L'acide ortho-phosphorique chauffé à 180°C a été utilisé à cette fin.

Enfin, pour caractériser plus complètement l'ensemble des dislocations présentes dans les matériaux élaborés, la microscopie électronique en transmission (MET) a été employée (cf Annexe A2). Elle permet notamment d'imager les dislocations et de déterminer leur vecteur de Burgers grâce à des règles d'extinction [24]. Elle nécessite toutefois d'avoir des spécimens fins : de l'ordre de 150 nm d'épaisseur. L'observation des films épitaxiés nécessite donc une préparation incluant notamment une étape d'amincissement ionique. Deux types de préparation ont été utilisés afin d'obtenir soit des sections transverses soit des vues planes. Les sections transverses sont particulièrement adaptées pour l'observation des empilements de films le long de l'axe de croissance ainsi que pour la caractérisation des dislocations traversantes. La rotation de l'échantillon observé autour de son axe de croissance permet d'accéder aux axes de zones $<10\bar{1}0>$ et $<11\bar{2}0>$ dont les diagrammes de diffraction sont illustrés sur la Figure 1-9. Il est alors possible de déterminer la direction d'un défaut (fissure ou dislocation).

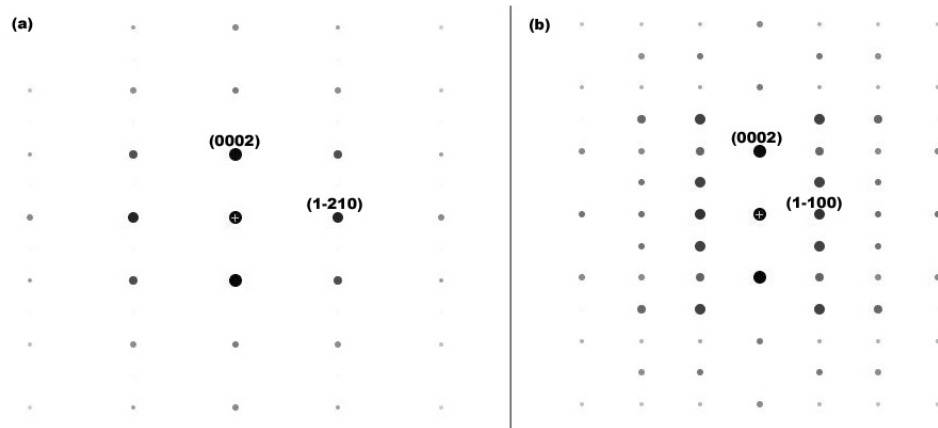


Figure 1-9 : diagrammes de diffraction électronique du GaN selon les axes de zones $[10\bar{1}0]$ (a) et $[11\bar{2}0]$ (b) ; elles permettent de voir les différentes taches de diffraction accessibles par MET pour les sections transverses.

Les vues planes sont tout à fait adaptées à l'observation de dislocations situées dans le plan de croissance telles que les dislocations d'interface qui interviennent lors de la relaxation plastique des contraintes. Elles permettent notamment d'accéder aux 6 directions $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ et $\langle 10\bar{1}0 \rangle$. Toutes les dislocations parfaites sont en contrastes dans les champs sombres (et champs clairs) $\{11\bar{2}0\}$, alors que les extinctions éventuelles dans les champs sombres $\{10\bar{1}0\}$ permettent de déterminer leur nature. La préparation des échantillons pour leur observation en vue plane est toutefois délicate. Il faut notamment que la zone d'intérêt (par exemple une interface substrat-film) se trouve dans l'épaisseur observable de l'échantillon (150nm d'épaisseur).

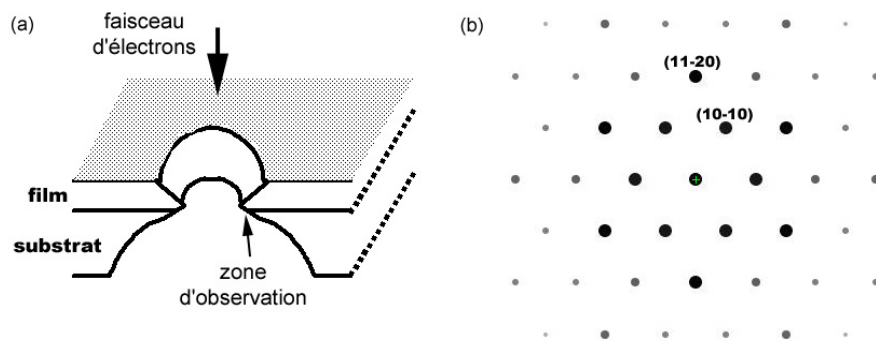


Figure 1-10 : (a) illustration d'un specimen préparé pour l'observation par MET en vue plane : la zone d'observation consiste en une fine couronne autour du trou induit par l'amincissement ionique; (b) diagramme de diffraction électronique correspondant à l'axe de zone $[0001]$.

Références du chapitre :

- 1 S. Nakamura et G. Fasol, *the Blue Laser Diode*, Springer, Berlin (1997).
- 2 C. Esnouf, cours de Caractérisation structurale, INSA Lyon.
- 3 J.P. Hirth et J. Lothe, *Theory of dislocations*, 2nd edition, Wiley, New-York (1982).
- 4 P. Ruterana, A. Sanchez et G. Nouet, Extended Defects in Wurtzite GaN Layers : Atomic Structure, Formation, and Interaction Mechanisms dans *Nitride Semiconductors Handbook on Materials and Devices*, édité par P. Ruterana, M. Albrecht et J. Neugebauer, Wiley-Vch, Weinheim (2003), p379-438.
- 5 S.J. Rosner, E.C. Carr, M.J. Ludowise et al., *Appl. Phys. Lett.* **70**, 420-422 (1997).
- 6 S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama et al., *J. Crystal Growth* **189**, 820-825 (1998).
- 7 P. Gibart, B. Beaumont et P. Vennéguès, Epitaxial Lateral Overgrowth of GaN dans *Nitride Semiconductors Handbook on Materials and Devices*, édité par P. Ruterana, M. Albrecht et J. Neugebauer, Wiley-Vch, Weinheim (2003), p.45-106.
- 8 F.A. Ponce, D.Cherns, W.T. Young et J.W. Steeds, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 770-772 (1996).
- 9 M. Leroux, les Nitrures d'Éléments III, dans *Matériaux semi-conducteurs III-V, II-VI et nitrures pour l'optoélectronique*, édité par G. Roosen, Hermes Science Publications, Paris (2003), p.169-197.
- 10 I. Grzegory, S. Krukowski, M. Leszczynski et al., dans *Nitride Semiconductors Handbook on Materials and Devices*, édité par P. Ruterana, M. Albrecht et J. Neugebauer, Wiley-Vch, Weinheim (2003), p. 3-43.
- 11 L. Liu et J.H. Edgar, *Mater. Sc. Eng.* **R37**, 6-127 (2002).
- 12 B. Damilano, Nanostructures (Ga,In,Al)N : croissance par épitaxie sous jets moléculaires, propriétés optiques, application aux diodes électroluminescentes, thèse de doctorat, Université de Nice-Sophia-Antipolis (2001).
- 13 S.J. Pearton, C.R. Abernathy, M.E. Overberg et al., *Materials Today* **5**, 24-31 (2002).
- 14 J.Y. Duboz et M. Asif-Khan, dans *Group III nitride semiconductor compounds*, édité par B. Gil, Oxford University Press, Oxford (1998).
- 15 H. Amano, Electroluminescent diodes and laser diodes, dans *Nitride Semiconductors Handbook on Materials and Devices*, édité par P. Ruterana, M. Albrecht et J. Neugebauer, Wiley-Vch, Weinheim (2003), p.529-546.
- 16 S. Nagahama, N. Isawa, M. Senoh et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **39**, L647-L650 (2000).
- 17 S. Nagahama, T. Yanamoto, M. Sano et T. Mukai, *Phys. Stat. Sol. A* **194**, 423-427 (2002).
- 18 S.J. Pearton, F. Ren, A.P. Zhang et K.P. Lee, *Mater. Sc. Eng.* **R30**, 55-212 (2000).
- 19 S. Dalmaso, Mécanismes d'injection et de recombinaisons radiatives et non radiatives dans les diodes électroluminescentes à base de nitrures d'éléments III, thèse de doctorat, Université de Nice-Sophia-Antipolis (2001).
- 20 P.J. Hartlieb, R.F. Davis et R.J. Nemanich, Ohmic contacts to GaN, dans *Nitride Semiconductors Handbook on Materials and Devices*, édité par P. Ruterana, M. Albrecht et J. Neugebauer (Wiley-Vch, Weinheim, 2003), p.491-527.
- 21 S. Nakamura, *Science* **281**, 956-961 (1998).
- 22 H.P.D. Schenk, Elaboration de diodes électroluminescentes et de miroirs sélectifs à base de nitrures d'éléments III pour diodes à cavité résonante, thèse de doctorat, Université de Nice Sophia-Antipolis (2002).
- 23 B. Heying, E.J. Tarsa, C.R. Elsass et al., *J. Appl. Phys.* **85**, 6470-6476 (1999).
- 24 D.B. Williams et C.B. Carter, *Transmission Electron Microscopy*, Plenum Press, New-York (1996).

2. Relaxation plastique dans le système (Al,Ga)N

La réalisation des diodes à cavité résonante à base de nitrures est confrontée au problème de la relaxation plastique. Celle-ci intervient de façon particulière dans les nitrures d'éléments III du fait de leur structure hexagonale.

Dans ce chapitre, quelques généralités sur les contraintes et leur relaxation seront présentées. Puis, nous détaillerons les mécanismes aboutissant à la relaxation plastique dans les hétérostructures (Al,Ga)N / GaN.

2.1. Introduction

Le problème de la relaxation intervient lorsqu'un matériau subit des forces qui tendent à le déformer. En mécanique des milieux continus, on parle de champs de contraintes et de déformations. Classiquement pour les matériaux cristallins, deux régimes mécaniques se succèdent. Le premier est l'élasticité où le matériau supporte le champ de contraintes et s'y adapte en se déformant. Dans ce domaine, la déformation est généralement linéaire avec la contrainte, et surtout, elle est réversible. Le deuxième stade est la plasticité où la contrainte est trop importante pour que le matériau s'y adapte. La relaxation plastique intervient alors. Elle correspond à une déformation irréversible de la structure qui permet de diminuer les contraintes.

Lorsqu'on réalise des hétéro-structures, il est courant que les deux matériaux n'aient pas le même paramètre de maille. Le simple fait de les faire croître l'un sur l'autre en relation épitaxiale (i.e. avec le même paramètre de maille) induit alors de fortes contraintes alors même qu'aucune force extérieure n'est appliquée sur la structure. La relaxation consiste à faire diminuer ces contraintes. La relaxation plastique peut intervenir soit par fissuration soit par génération de dislocations d'interface. Par référence à la rupture des matériaux céramiques, la fissuration est parfois dénommée relaxation fragile. La génération de dislocations, quant à elle, s'appelle relaxation ductile (comportement mécanique similaire à celui des métaux).

A priori, pour réaliser des dispositifs optoélectroniques comme les diodes électroluminescentes à cavité résonante, la présence d'une contrainte hétéro-épitaxiale ou le fait qu'elle soit relaxée n'est pas en soi rédhibitoire. Bien que la présence d'une contrainte modifie les bandes électroniques et donc les propriétés optoélectroniques [1,2], une estimation

grossière de l'effet de la contrainte sur l'émission des puits quantiques d'une diode électroluminescente nitrure montre que le décalage en longueur d'onde est limitéⁱ.

Cependant la façon dont peut s'opérer la relaxation a des conséquences importantes pour la faisabilité des dispositifs. Dans le cas des nitrures épitaxiés suivant l'axe [0001], la relaxation plastique des contraintes est souvent inévitable lors de la croissance de diodes à cavité résonante. Elle fait apparaître soit des fissures soit une grande densité de dislocations traversantes.

- (i) Les fissures rendent une technologie planaire impossible car elles empêchent le passage latéral du courant électrique. En outre, si le métal utilisé pour les contacts électriques est déposé dans les fissures, la zone active des diodes peut être court-circuitée.
 - (ii) Les dislocations sont des centres de recombinaisons non radiatifs qui diminuent la puissance des diodes électroluminescentes et diminuent leur durée de vie [3,4,5,6].
- L'augmentation de la densité de dislocations traversantes est donc à éviter.

Le choix entre fissures et dislocations est donc pour le moins problématique.

Dans le cas de couches fines subissant une forte contrainte, il existe un autre mode de relaxation que l'on appelle transition bidimensionnelle / tridimensionnelle du mode de croissance (2D/3D) ou relaxation élastique. Cela correspond à un changement de morphologie de la couche superficielle qui permet d'accommoder le désaccord paramétrique. Cela aboutit généralement à la formation d'îlots. La transition 2D/3D a déjà été observée dans les nitrures notamment lors de la croissance de GaN sur AlN et a permis d'obtenir des boîtes quantiques [7]. Récemment, la relaxation élastique a aussi permis d'expliquer les premiers stades de la relaxation d'AlN sur GaN [8]. Il faut toutefois noter que ce mode de relaxation est très sensible à l'énergie de surface du film en cours de croissance. Elle dépend donc énormément des conditions de croissance, et peut être évitée. Dans le cadre de ce travail, nous avons fait en sorte de ne pas subir ce genre de relaxation afin de conserver des interfaces planes lors de la croissance des miroirs de Bragg.

Dans ce chapitre, nous développerons tout d'abord le comportement élastique d'une hétérostructure. Ceci n'est valable que si aucune relaxation n'est intervenue auparavant. Un paramètre clé est donc la frontière qui sépare le domaine élastique du domaine plastique. Lorsqu'on s'intéresse à la croissance d'un matériau sur un autre, la contrainte d'épitaxie est définie par la nature des matériaux et leur désaccord paramétrique. Elle est quasiment

ⁱ Une déformation de -5×10^{-3} correspondant à l'hétéroépitaxie de GaN sur un alliage (Al,Ga)N ayant une composition en aluminium de 20% aurait pour effet un décalage de l'énergie de luminescence du GaN de 45meV soit un décalage en longueur d'onde d'environ 10nm vers le bleu.

constante lors de la croissance cohérente du film épitaxié. Le critère de rupture ou de relaxation n'est donc pas directement la contrainte mais l'énergie élastique emmagasinée lors de la croissance. Celle-ci est proportionnelle à l'épaisseur qui est par ailleurs un des seuls paramètres contrôlables. L'épaisseur critique de relaxation est alors définie par l'épaisseur du film déposée à partir de laquelle débute la relaxation de la structure. La relaxation des contraintes ne peut se produire que si elle est énergiquement favorable. Il alors est possible de prédire la valeur de l'épaisseur critique en comparant la diminution de l'énergie élastique engendrée par la relaxation et l'énergie qui est nécessaire au mécanisme de relaxation. Les différentes formes d'énergie présentes lors de la fissuration et de la relaxation ductile seront donc décrites ci-dessous.

2.2. Contraintes élastiques

Afin de bien comprendre la problématique de la relaxation, il faut rappeler les bases de l'élasticité et définir les champs de contraintes qui proviennent de l'épitaxie d'un matériau sur un substrat désaccordé. Cela nous permettra de définir les modules d'élasticité et la notation matricielle qui seront utilisés par la suite. D'autre part, il est important de concevoir la manifestation des contraintes, c'est pourquoi une partie sera consacrée à la courbure des échantillons et une autre aux mesures des contraintes et déformations.

2.2.1. L'élasticité

Les semi-conducteurs et en particulier les nitrures d'éléments III satisfont la théorie de l'élasticité linéaire. Les champs de contraintes (σ_{ij}) et de déformations (ε_{kl}) sont donc proportionnels. Ils sont reliés entre eux par le tenseur des constantes élastiques ou rigidités (C_{ijkl}) : $\sigma_{ij} = C_{ijkl} \cdot \varepsilon_{kl}^i$.

L'énergie élastique par unité de volume est donnée par : $\frac{E_{elast}}{V} = \frac{1}{2} \sigma_{ij} \varepsilon_{ij}$.

Pour exprimer les relations tensorielles, il est judicieux d'utiliser un système d'axes principaux. Dans la structure hexagonale, le système d'axes le mieux adapté est celui dont le troisième axe (z) est perpendiculaire au plan de base i.e. l'axe [0001]. Les deux autres axes sont contenus dans le plan de base et sont équivalents (x)=(y). Il est toutefois possible de choisir n'importe quelle orientation en appliquant une matrice de transfert [9]. La démarche

ⁱ Dans la convention d'Einstein, quand un indice intervient 2 fois dans un terme monôme, la sommation par rapport à cet indice est sous-entendue.

est assez lourde et ne sera pas abordée ici. Afin de simplifier les écritures tensorielles, nous adopterons la notation contractée de Voigt. Avec celle-ci, les contraintes et déformations sont alors :

$$\begin{aligned} \sigma_1 &= \sigma_{xx} & \sigma_2 &= \sigma_{yy} & \sigma_3 &= \sigma_{zz} & \sigma_4 &= \sigma_{yz} & \sigma_5 &= \sigma_{zx} & \sigma_6 &= 2.\sigma_{xy} \\ \varepsilon_1 &= \varepsilon_{xx} & \varepsilon_2 &= \varepsilon_{yy} & \varepsilon_3 &= \varepsilon_{zz} & \varepsilon_4 &= 2.\varepsilon_{yz} & \varepsilon_5 &= 2.\varepsilon_{zx} & \varepsilon_6 &= 2.\varepsilon_{xy} \end{aligned}$$

Le tenseur des constantes élastiques se réduit à une matrice 6x6 inversible $\{C_{ij}\}$. Du fait de la symétrie hexagonale, le tenseur de constantes élastiques revêt la formeⁱ [10] :

$$\{C\} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & . & . & . \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & . & . & . \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & . & . & . \\ . & . & . & C_{44} & . & . \\ . & . & . & . & C_{44} & . \\ . & . & . & . & . & C_{66} \end{bmatrix}$$

En plus de l'égalité des termes $C_{22}=C_{11}$, $C_{23}=C_{13}$ et $C_{55}=C_{44}$, l'isotropie dans le plan de base implique la relation : $2 C_{66}= C_{11}-C_{12}$ [9].

Avec la notation de Voigt, l'énergie élastique s'exprime par :

$$\frac{E_{elas}}{V} = \frac{1}{2} C_{11} . (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2) + \frac{1}{2} C_{33} . \varepsilon_3^2 + C_{12} . \varepsilon_1 . \varepsilon_2 + C_{13} . \varepsilon_3 . (\varepsilon_1 + \varepsilon_2) + \frac{1}{2} C_{44} . (\varepsilon_4^2 + \varepsilon_5^2) + \frac{1}{2} C_{66} . \varepsilon_6^2$$

Le tableau ci-dessous détaille les constantes élastiques pour GaN, AlN et InN. Certaines valeurs ont été mesurées par diffusion Brillouin ; d'autres proviennent de calculs. Elles ont été obtenues en recoupant différentes valeurs reportées dans la littérature et dont les références peuvent être trouvées dans la référence [11].

	GaN	AlN	InN
C_{11}	390	396	223
C_{12}	145	137	115
C_{13}	106	108	92
C_{33}	398	373	224
C_{44}	105	116	48
C_{66}	123	297	141

Tableau 2-1 : constantes élastiques des nitrures d'élément III (en GPa)

ⁱ Dans la matrice des constantes élastiques, les points représentent des zéros.

Il existe des incertitudes sur les valeurs des constantes élastiques, notamment pour l'InN. En outre, elles ont été mesurées à température ambiante. Or nous allons discuter de la relaxation qui s'opère lors de la croissance. En toute rigueur, il faudrait donc connaître les modules élastiques à température de croissance. Il faut toutefois noter que la température de fusion des nitrures d'éléments III est très élevée : 1900, 2500 et 3200°C respectivement pour l'InN, le GaN et l'AlN [12]. Les constantes élastiques ne devraient donc pas beaucoup varier entre la température ambiante et la température de croissance, particulièrement pour les alliages nitrures ne contenant pas d'indium.

L'épitaxie fait généralement intervenir des contraintes planes biaxiales. Les seules composantes non nulles sont les contraintes normales contenues dans le plan d'épitaxie. Les tenseurs de contraintes et de déformations se résument alors à :

$$\{\sigma\}_{biax} = \begin{bmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_1 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \end{bmatrix} \quad \{\varepsilon\}_{biax} = \begin{bmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_1 \\ \varepsilon_3 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \end{bmatrix}$$

L'absence de contrainte suivant c implique une relation entre la déformation dans le plan (ε_1) et celle suivant c (ε_3) : $2.C_{13}.\varepsilon_1 + C_{33}.\varepsilon_3 = 0$. Le facteur qui les relie est appelé coefficient de

Poisson biaxial (ν_c) : $\nu_c = \frac{2C_{13}}{C_{33}}$ tel que $\varepsilon_3 = -\nu_c.\varepsilon_1$. Ce coefficient biaxial ne doit pas être

confondu avec le coefficient de Poisson isotrope (ν) qui représente le rapport des déformations transverse et longitudinal dans le cas d'un essai mécanique uniaxial et qui n'est vraiment défini que pour des solides isotropes. Le coefficient de Poisson isotrope est de l'ordre de 0,2-0,3 pour les nitrures d'éléments III. La confusion entre le coefficient de Poisson biaxial et celui uniaxial a été faite dans plusieurs articles concernant les énergies des dislocations dans les nitrures [13,14]. Or du point de vue de la stabilité, il est impossible d'avoir un coefficient de Poisson isotrope supérieur à 0,5 (cette propriété peut être démontrée en dérivant l'énergie élastique d'un solide [15]).

Pour des contraintes planes biaxiales comme celles dues à l'épitaxie, il est commode de définir le module biaxial qui relie la déformation à la contrainte dans le plan :

$$M = C_{11} + C_{12} - 2\frac{C_{13}^2}{C_{33}} \text{ tel que } \sigma_1 = M.\varepsilon_1.$$

L'énergie élastique est alors donnée par $\left. \frac{E_{elas}}{V} \right)_{biax} = M \cdot \varepsilon_1^2$ soit $\frac{E_{elas}}{S} = M \cdot h \cdot \varepsilon_1^2$ lorsque

l'énergie élastique est ramenée par unité de surface dans le plan de base.

Les dislocations génèrent des champs de contraintes complexes non-biaxiaux. Nous aurons donc besoin de modules ne tenant pas compte de la directivité de l'application des contraintes. Nous aurons donc recours aux moyennes de Voigt : μ_V et λ_V . Dans le cas de matériaux hexagonaux, elles s'expriment par : $\mu_V = \frac{1}{30}(7C_{11} - 5C_{12} + 2C_{33} + 12C_{44} - 4C_{13})$ et $\lambda_V = \frac{1}{15}(C_{11} + 5C_{12} + C_{33} - 4C_{44} + 8C_{13})$ [9]. μ_V est aussi dénommé le module de cisaillement.

A partir des moyennes de Voigt, on peut approximer le module biaxial (M^*), le module d'Young (E^*), le module de compression (K^*) et le coefficient de Poisson (ν^*). Ils représentent une moyenne suivant toutes les orientations du cristal.

$$M^* = \lambda_V + 2\mu_V \quad E^* = \frac{\mu_V(3\lambda_V + 2\mu_V)}{\lambda_V + \mu_V} \quad K^* = \frac{1}{3}(3\lambda_V + 2\mu_V) \quad \nu^* = \frac{\lambda_V}{2(\lambda_V + \mu_V)}$$

	GaN	AlN	InN
M (Gpa)	478,5	470,5	262,4
ν_C	0,53	0,58	0,82
μ_V (Gpa)	121,2	126,4	54,7
λ_V (Gpa)	129,4	123,6	104,4
M^* (Gpa)	371,9	376,5	213,9
E^* (Gpa)	305,1	315,4	145,4
K^* (Gpa)	210,2	207,9	140,9
ν^*	0,26	0,25	0,33

Tableau 2-2 : modules biaxiaux (M et M^*), coefficient de Poisson biaxial (ν_C), coefficients de Lamé (μ_V et λ_V), module d'Young (E^*), module de compression (K^*) et coefficient de Poisson (ν^*) des nitrures d'élément III.

2.2.2. Contrainte d'épitaxie

La croissance des nitrures se fait généralement suivant l'axe [0001] à partir d'un substrat dont le paramètre de maille dans le plan de base (a_S) est différent du paramètre relaxé

du nitrure épitaxié (a_E^*). La différence de paramètre de maille induit une contrainte dans le plan de base. Si on considère que le film se déforme pour avoir le même paramètre de maille que le substrat, la relation d'épitaxie s'exprime par l'égalité des paramètre de maille dans le plan : $a_S = a_E = a_E^* (1 + \varepsilon_E)$ où ε_E est la déformation dans le plan de base du film épitaxié.

Les champs de déformation et contrainte dans le film épitaxié s'expriment donc par :

$$\{\sigma\}_E = M \cdot \varepsilon_E \cdot \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \end{bmatrix} \quad \{\varepsilon\}_E = \varepsilon_E \cdot \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \end{bmatrix} \quad \text{avec } \varepsilon_E = \frac{a_S - a_E^*}{a_E^*}$$

Avec cette approche qui considère que le film s'accorde sur le paramètre de maille du substrat, il n'y a pas de déformation ni de contrainte dans le substrat. Ceci n'est pas réaliste puisque aucune contrainte dans le substrat n'équilibre la contrainte dans le film. C'est pour cela que nous introduirons dans la section 2.2.4 un modèle élastique multicouche qui nous servira à décrire les déformations présentes lors de la croissance de films d'(Al,Ga)N sur un pseudo-substrat de GaN.

2.2.3. Contrainte thermo-élastique

En plus du désaccord de paramètre de maille, il peut y avoir une différence entre les coefficients de dilatation thermique du matériau épitaxié et du substrat. C'est le cas entre les nitrures et les substrats habituellement utilisés pour leur épitaxie, notamment le saphir. Le Tableau 2-3 détaille les coefficients de dilatation thermique des nitrures et du saphir.

	GaN	AlN	saphir
$\alpha^a \times 10^6 \text{ (K}^{-1}\text{)}$	5,59	5,3	7,5
$\alpha^c \times 10^6 \text{ (K}^{-1}\text{)}$	7,75	4,2	8,5

Tableau 2-3 : coefficients de dilatation thermique d'après [10]

L'épitaxie des nitrures est réalisée à haute température : 1100°C pour le GaN par EPVOM. Lorsque l'épaisseur du film épitaxié est faible par rapport à celle du substrat, le film épitaxié subit la même expansion thermique que le substrat. Lors du refroidissement, le paramètre de maille du film évolue alors proportionnellement au coefficient de dilatation thermique du substrat, ce qui génère une contrainte. Elle est dénommée contrainte thermo-élastique. La

déformation induite vaut : $\varepsilon_{th} = \frac{(\alpha_s - \alpha_E)\Delta T}{1 + \alpha_s \cdot \Delta T}$ (equ. 2-1). Pour l'épitaxie de nitrures sur saphir dont la croissance a été effectuée à 1100°C, la déformation thermo-élastique peut alors être estimée à $\varepsilon_{th} \approx -2 \times 10^{-3}$ [16].

Nous voudrions toutefois faire quelques remarques.

- (1) Tout d'abord la contrainte thermo-élastique ne suppose pas qu'il y ait une relation d'épitaxie entre les deux matériaux. Les premiers travaux concernant la contrainte thermo-élastique ont d'ailleurs été effectués sur des thermostats métalliques bilames. Le seul fait que le substrat et le film soient en contact et que le refroidissement n'entraîne pas la décohésion du film, justifie la présence de cette contrainte. Ceci est donc le cas même si la relaxation de la contrainte d'épitaxie s'est produite lors de la croissance.
- (2) D'autre part, comme pour la contrainte d'épitaxie, l'expression 2-1 a été obtenue en négligeant les contraintes dans le substrat. Il est plus rigoureux de tenir compte d'un équilibre de forces entre le substrat et la couche épitaxiale.
- (3) Enfin, lorsqu'on veut exprimer des contraintes d'épitaxie à température de croissance, il faut considérer les paramètres relaxés des matériaux à cette température. Toutefois les coefficients d'expansion thermiques dans le plan de base sont très proches pour le GaN et l'AlN. Donc dans le cas des hétérostructures à base d'(Al,Ga)N, l'erreur faite en considérant les paramètres relaxés à température ambiante est faible.

2.2.4. Modèle élastique multicouche

Lorsqu'on réalise des hétérostructures, il faut considérer la déformation de tous les matériaux constitutifs. En l'absence de relaxation, tous les matériaux ont le même paramètre de maille dans le plan de croissance. Celui-ci est tel que l'énergie élastique de la structure est la plus faible possible. Ainsi, la croissance d'un matériau sur un autre entraîne la variation du paramètre de maille du matériau qui sert de substrat. Le paramètre de maille de la structure évolue alors vers une valeur comprise entre les deux paramètres de maille des matériaux relaxés.

L'hétérostructure la plus simple comprend deux films (par exemple un film et un substrat). Pour bien se rendre compte des contraintes internes à l'hétérostructure, il faut s'intéresser au rapport des épaisseurs entre les deux films (h_A et h_B). Les déformations dans le

plan de croissance sont données par : $\varepsilon_B = \frac{a - a_B^*}{a_B^*}$ et $\varepsilon_A = \frac{a - a_A^*}{a_A^*}$ où a représente le paramètre de maille de l'hétérostructure dans le plan de croissance, a_A^* et a_B^* les paramètres de maille relaxés des films A et B respectivement. Autrement dit, la relation d'épitaxie est alors : $a = a_A^* (1 + \varepsilon_A) = a_B^* (1 + \varepsilon_B)$. Lorsqu'on considère une hétérostructure libre de toute contrainte externe, la dérivée de l'énergie élastique par rapport au paramètre de maille a permet de déterminer le paramètre de maille à l'équilibre de la structure. Il correspond au minimum d'énergie élastique de la structure. L'énergie élastique par unité de surface du plan de base (0001) est : $E_{elast} = M_A \cdot h_A \cdot (\varepsilon_A)^2 + M_B \cdot h_B \cdot (\varepsilon_B)^2$. D'où la dérivée :

$$\frac{dE_{elast}}{da} = 0 = -2 \cdot \left[M_B \cdot h_B \cdot (a_A^*)^2 \cdot (a_B^* - a) + M_A \cdot h_A \cdot (a_B^*)^2 \cdot (a_A^* - a) \right] \cdot (a_A^* \cdot a_B^*)^{-2}$$

Le paramètre de maille à l'équilibre de la structure est donc :

$$a = a_A^* \cdot a_B^* \frac{M_A \cdot h_A \cdot a_B^* + M_B \cdot h_B \cdot a_A^*}{M_A \cdot h_A \cdot (a_B^*)^2 + M_B \cdot h_B \cdot (a_A^*)^2} \quad (\text{equ. 2-2})$$

Soient $r = \frac{h_B}{h_A}$ et $\rho = \frac{M_B}{M_A}$ les rapports des épaisseurs et des modules biaxiaux entre les deux films. La déformation dans le plan pour le film B (film épitaxié) peut s'exprimer par :

$$\varepsilon_B = \frac{a - a_B^*}{a_B^*} = \frac{M_A \cdot h_A \cdot (a_B^*)^2}{M_A \cdot h_A \cdot (a_B^*)^2 + M_B \cdot h_B \cdot (a_A^*)^2} \cdot \frac{(a_A^* - a_B^*)}{a_B^*} \approx \frac{1}{1 + r \cdot \rho} \varepsilon^\infty \quad \text{avec} \quad \varepsilon^\infty = \frac{(a_A^* - a_B^*)}{a_B^*}.$$

Le film A (le substrat) subit, lui aussi, une déformation dans le plan de base. Elle vaut :

$$\varepsilon_A = \frac{-M_B \cdot h_B \cdot (a_A^*)^2}{M_A \cdot h_A \cdot (a_B^*)^2 + M_B \cdot h_B \cdot (a_A^*)^2} \cdot \frac{(a_A^* - a_B^*)}{a_A^*} \approx \frac{-r \cdot \rho}{1 + r \cdot \rho} \varepsilon^\infty$$

Il est à noter que le rapport des contraintes entre les deux films est proportionnel à celui des épaisseurs : $\frac{\varepsilon_A}{\varepsilon_B} \approx -r \cdot \rho$ et $\frac{\sigma_A}{\sigma_B} \approx -r$. Ainsi, pour un substrat épais, la déformation du substrat

est négligeable et on retrouve la relation 2-2 pour le film épitaxié.

Une autre manière d'exprimer l'interaction entre le film épitaxié et le substrat, est de calculer la différence entre les déformations des deux matériaux :

$$m = \varepsilon_B - \varepsilon_A = \frac{M_B \cdot h_B \cdot a_B^* \cdot a_A^* + M_A \cdot h_A \cdot (a_B^*)^2}{M_A \cdot h_A \cdot (a_B^*)^2 + M_B \cdot h_B \cdot (a_A^*)^2} \cdot \frac{(a_B^* - a_A^*)}{a_B^*} \approx \varepsilon^\infty$$

Dans le cas d'une structure multicouche, comme les miroirs de Bragg, la démarche est la même, avec l'énergie élastique : $E_{elast} = \sum M_i . h_i . (\varepsilon_i)^2$.

Ainsi pour une structure constituée de N couches du matériau A (a_A^* , M_A) d'épaisseur h_A chacune et de N couches du matériau B (a_B^* , M_B) d'épaisseur h_B chacune, le paramètre de maille à l'équilibre est :

$$\bar{a}_{SL}^* = a_A^* . a_B^* \frac{M_A . h_A . a_B^* + M_B . h_B . a_A^*}{M_B . h_B . (a_A^*)^2 + M_A . h_A . (a_B^*)^2} .$$

2.2.5. Courbure

Jusqu'à présent nous avons considéré que le substrat et le film épitaxié restaient plans. Mais en fait, la contrainte génère une courbure de l'échantillon. En général, on considère que la courbure vaut : $\frac{1}{R} \approx \frac{-6M_B h_B \varepsilon_B}{M_A . h_A^2}$

Cette expression est connue sous l'appellation d'équation de Stoney. Elle a été obtenue en considérant l'équilibre des moments de flexion sur des systèmes lamellaires. A l'origine, l'étude de la courbure a été motivée par la flexion de thermostats sous l'effet de la contrainte thermo-élastique. Dans l'expression de la courbure, il est important de constater que la courbure est proportionnelle à la contrainte présente dans le film épitaxié. Elle pourra donc servir pour mesurer les contraintes. Une autre conséquence de la courbure est de faire apparaître un gradient de déformation dans l'épaisseur des films.

Bien que la courbure des films permette de mesurer les contraintes, elle est avant tout un inconvénient. En effet la présence d'une courbure importante rend inutilisables les films épitaxiés pour la réalisation de dispositifs. Ceci rend particulièrement difficile la croissance de films de GaN autosupportés. Nous verrons que dans notre cas, la courbure n'est pas rédhibitoire pour la réalisation de diodes électroluminescentes à cavité résonante.

L'équation de Stoney est obtenue en considérant qu'il n'y a pas de contrainte due à l'épitaxie dans le substrat. Marcus [17] a reporté un calcul plus rigoureux de la courbure en tenant compte des rapports des épaisseurs (r) et des modules biaxiaux (ρ). La courbure s'exprime alors par :

$$\frac{1}{R} = -6 . h_A . m . \rho . r \frac{1+r}{1+4.\rho.r+6\rho.r^2+4.\rho.r^3+\rho^2.r^4} \approx \frac{-6.m.\rho.r}{h_A} . (1+(1-4\rho).r)$$

avec $r = \frac{h_B}{h_A}$ le rapport des épaisseurs, $\rho = \frac{M_B}{M_A}$ le rapport des modules biaxiaux et

$m = \varepsilon_B - \varepsilon_A$ la différence des déformations estimées sans courbure. Cette expression permet d'étendre la validité des mesures de courbure lorsque les films épitaxiés sont épais.

La déformation moyenne dans le film, en tenant compte de la courbure, est de $\bar{\varepsilon}_B \approx m(1 - 5\rho.r)$ alors que la déformation élastique du film épitaxié exprimée sans courbure était estimée à $m_B = m.(1 - \rho.r)$. On peut noter que la déformation dans le film en prenant en compte la courbure est en moyenne plus faible que lorsque la structure était considérée à plat. Cependant, la différence est très faible, environ 2% dans les cas de nos échantillons.

Le gradient de déformation dans le film épitaxié est très faible. La différence de déformation entre l'interface avec le substrat ($\varepsilon_B^{\text{int}}$) et la surface libre ($\varepsilon_B^{\text{surf}}$) ne s'exprime qu'au deuxième

ordre en $r = \frac{h_B}{h_A}$, le rapport des épaisseurs, : $(\varepsilon_B^{\text{int}} - \varepsilon_B^{\text{surf}}) = -\frac{h_B}{R} \approx 6m.\rho.r^2$.

Pour le substrat, la déformation moyenne est donnée par : $\bar{\varepsilon}_A = m_A + \frac{h_A(\beta - \frac{1}{2})}{R} \approx -2m.\rho.r$

c'est-à-dire le double de la déformation élastique en considérant la structure à plat. L'écart

maximal de déformation dans le substrat vaut : $(\varepsilon_S^{\text{int}} - \varepsilon_S^{\text{fond}}) = \frac{h_A}{R} \approx -6m.\rho.r$. Il faut constater

que la contrainte change de signe dans l'épaisseur du substrat (de compression à tension) : elle

vaut $\varepsilon_S^{\text{int}} \approx -5m.\rho.r$ à l'interface et $\varepsilon_S^{\text{fond}} \approx +m.\rho.r$ sur la face arrière.

Ainsi, la courbure n'entraîne que peu de changement en ce qui concerne la contrainte dans le film. La contrainte dans le substrat reste faible mais elle change de signe. Cela se traduit pour l'épitaxie des nitrures sur saphir, par une tension du saphir près de l'interface avec le film épitaxié. Cette contrainte a pu permettre d'expliquer la fissuration du saphir pour l'épitaxie de couches épaisses de GaN [18].

Enfin, il faut signaler que pour une structure contenant plusieurs films la courbure s'obtient en sommant les moments de flexion dus aux différents films

épitaxiés : $\frac{1}{R} \approx \frac{-6}{M_S.h_S^2} \sum M_i.h_i.\sigma_i$.

2.2.6. Mesure des contraintes / déformations

Dans le cas de films minces épitaxiés, la mesure des contraintes peut s'effectuer à partir de l'évaluation des paramètres de mailles, de la courbure ou à l'aide de mesures optiques.

Parmi les techniques permettant de mesurer les paramètres de mailles, la diffraction aux électrons rasant (RHEED) est très intéressante dans le cas de l'épitaxie par jets moléculaires car elle permet de mesurer l'évolution de la contrainte en cours de croissance. Cependant elle ne permet de déterminer qu'un paramètre de maille dans le plan. Elle n'est pas très précise et elle dépend énormément de l'état de surface (rugosité, reconstruction de surface). Pour la méthode de croissance que nous avons utilisée, l'EPVOM, la pression dans le réacteur ne permet pas d'utiliser cette technique. Nous avons donc mesuré les paramètres de maille à température ambiante. Pour ce faire, nous avons essentiellement utilisé la diffraction aux rayons X (DRX).

A partir des mesures des deux paramètres de maille (a et c), il est possible, lorsqu'on connaît les paramètres de maille relaxés, de déterminer directement la déformation dans le plan (ε_a) et suivant l'axe c (ε_c). Dans le cas d'alliages comme l'(Al,Ga)N, cela suppose de connaître parfaitement la composition, ce qui n'est pas le cas. Il est alors plus prudent de calculer à la fois la composition et la déformation à partir des mesures de paramètres de maille. Il faut alors faire une hypothèse concernant la relation entre les déformations ε_a et ε_c . Si l'on suppose que la contrainte est strictement biaxiale, et que l'alliage suit la loi de Végard, on obtient : $a(x, \varepsilon_a) = (1 + \varepsilon_a)[x.a_1 + (1-x).a_0]$ et $c(x, \varepsilon_c) = (1 - \nu_c.\varepsilon_a)[x.c_1 + (1-x).c_0]$ où dans le cas d'alliage (Al,Ga)N, x représente la composition en Aluminium, a_1 et c_1 sont les paramètres de maille relaxés de l'AlN et a_0 et c_0 ceux du GaN, $\nu_c \approx 0,5$ est le coefficient de Poisson biaxial supposé constant. La déformation dans le plan est alors obtenue par la racine de l'équation :

$$\begin{aligned} & -\varepsilon_a^2.\nu_c.(c_0.(a_1 - a_0) - a_0.(c_1 - c_0)) \\ & + \varepsilon_a[-\nu_c.(c_1 - c_0).[a(x, \varepsilon_a) - a_0] - a_0.(c_1 - c_0) + c_0.(a_1 - a_0) - \nu_c.c_0.(a_1 - a_0) - c(x, \varepsilon_c).(a_1 - a_0)] \\ & + [(c_1 - c_0).(a(x, \varepsilon_a) - a_0) + (a_1 - a_0).(c_0 - c(x, \varepsilon_c))]] = 0 \end{aligned}$$

Puis la composition de l'alliage est estimée par : $x = \frac{a(x, \varepsilon_a) - a_0.(1 + \varepsilon_a)}{(a_1 - a_0)(1 + \varepsilon_a)}$.

Nous avons vu dans le paragraphe précédent que la courbure est proportionnelle au produit de l'épaisseur et de la contrainte. La mesure de la courbure peut donc permettre de quantifier la contrainte. Différentes techniques permettent de mesurer la courbure d'un échantillon. La plus rudimentaire est l'utilisation d'un profilomètre mécanique mais cette mesure est complètement faussée si l'échantillon présente un gradient d'épaisseur. La diffraction aux rayons X permet aussi d'estimer la courbure. En effet la courbure entraîne un décalage en ω des pics de diffractions symétriques ($000l$) lors d'un déplacement le long d'un diamètre. Le tracé des valeurs des maxima des pics de diffractions symétriques permet alors d'estimer la courbure de l'échantillon par une simple régression linéaire. Enfin, la mesure de la réflectivité de plusieurs faisceaux lasers séparés radialement permet de mesurer la courbure des échantillons en cours de croissance. Cette technique a été déjà utilisée pour les nitrures d'éléments III [19].

Par ailleurs, les contraintes entraînent une modification des bandes électroniques. Il est alors possible de mesurer des contraintes au moyen de mesures optiques telles que la photoluminescence et la réflectivité [20], la cathodo-luminescence [21] ou la spectroscopie Raman [22]. Une discussion à propos de l'effet des contraintes sur les propriétés optoélectroniques des nitrures peut être trouvée dans la Référence 10. L'évolution des énergies des différents excitons en fonction de la contrainte est bien connue pour le GaN [1] : le potentiel de déformation cristallin a été évalué pour l'énergie de l'exciton libre A du GaN à $\delta E_A / \delta \varepsilon_a \approx 9 \text{ eV}$ [20]. Pour les alliages (Al,Ga)N, la valeur du potentiel de déformation cristallin n'est pas précisément connue. De plus, l'énergie de la transition optique mesurée dépend à la fois de la composition de l'alliage et de la contrainte. Donc pour mesurer la contrainte, il est impératif de connaître précisément la composition. Enfin, l'interprétation des mesures optiques devient difficile si le film présente une inhomogénéité de composition induite par exemple par la ségrégation de l'Aluminium [23].

2.2.7. Epaisseur critique

Jusqu'à présent, nous avons décrit le comportement élastique d'une hétérostructure. Cependant ceci n'est valable que si aucune relaxation des contraintes n'est intervenue. Le paramètre clé est donc la frontière qui sépare le domaine élastique du domaine plastique. Lorsqu'on s'intéresse à la croissance d'un matériau sur un autre, la contrainte d'épitaxie est définie par la nature des matériaux et leur désaccord paramétrique. Elle est quasiment constante lors de la croissance cohérente de la couche épitaxiale. Le critère de rupture ou de relaxation n'est donc pas directement la contrainte mais l'énergie élastique emmagasinée lors

de la croissance cohérente de la couche épitaxiale. Celle-ci est proportionnelle à l'épaisseur qui est par ailleurs un des seuls paramètres contrôlables. On définit alors l'épaisseur critique de relaxation. Celle-ci correspond à l'épaisseur de la couche déposée à partir de laquelle débute la relaxation de la structure.

La relaxation ne peut se produire que si elle est énergiquement favorable. Il est alors possible de prédire la valeur de l'épaisseur critique en comparant la diminution de l'énergie élastique engendrée par la relaxation et l'énergie qui est nécessaire au mécanisme de relaxation. C'est le critère de Griffith :

$$\Delta E_{\text{elast}})_{\text{relaxation}} \geq E_{\text{relax}}$$

Nous nous intéresserons donc particulièrement à décrire les différentes formes d'énergie présentes lors de la fissuration et de la relaxation ductile. Il faut toutefois noter que c'est une approche à l'équilibre, qui ne tient pas compte des aspects cinétiques.

2.2.8. Taux de relaxation

La relaxation plastique est un moyen de faire diminuer les contraintes (et donc l'énergie élastique). Elle se fait par fissuration ou par introduction de dislocations d'interface. Le taux de relaxation se définit comme le rapport qui permet d'estimer l'état de contrainte par rapport à ses deux valeurs extrêmes : d'une part, l'état totalement contraint ($\tau_{\text{relax}}=0\%$) et d'autre part le maximum de relaxation ($\tau_{\text{relax}}=100\%$) pour lequel le film recouvre son

paramètre de maille massif. Il vaut $\tau_{\text{relax}} = \frac{\varepsilon^{\text{elast}} - \varepsilon}{\varepsilon^{\text{elast}}} = \frac{\sigma^{\text{elast}} - \sigma}{\sigma^{\text{elast}}}$, $\varepsilon^{\text{elast}}$ et σ^{elast} étant la

déformation et la contrainte avant relaxation.

La déformation peut s'exprimer à partir du taux de relaxation et de la déformation initiale :

$$\varepsilon = (1 - \tau_{\text{relax}}) \times \varepsilon^{\text{elast}}.$$

La diminution due à la relaxation de l'énergie élastique par unité de surface dans le plan de

croissance vaut $\frac{\Delta E}{S} = M \times h \times (\varepsilon^{\text{elast}})^2 \times [1 - (1 - \tau_{\text{relax}})^2] \approx 2\tau_{\text{relax}} \times E^{\text{elast}}$ où E^{elast} représente

l'énergie élastique avant la relaxation.

La relaxation opère symétriquement sur les deux matériaux constituant l'hétérostructure. Une diminution de contrainte pour l'un implique une diminution proportionnelle de la contrainte appliquée sur l'autre. La différence des déformations entre le film épitaxié et le substrat diminue proportionnellement avec le taux de relaxation : $m = (1 - \tau_{\text{relax}}) \times m^{\text{elast}}$. La courbure

est proportionnelle aux contraintes. Ainsi, lors de la relaxation, la courbure diminue (i.e. le rayon de courbure augmente) : $\frac{1}{R} = (1 - \tau_{relax}) \frac{1}{R_{elast}}$.

2.3. Relaxation des contraintes par glissement de dislocations

Les nitrures d'éléments III cristallisent généralement dans la structure hexagonale. Ils sont épitaxiés suivant l'axe [0001]. Ceci a des conséquences importantes sur la relaxation des contraintes dans les hétérostructures. Notamment cela explique que lors de la croissance des alliages (Al,Ga)N directement sur du GaN, on n'observe pas la relaxation des contraintes par l'introduction de dislocations d'interface comme c'est le cas dans les semi-conducteurs cubiques.

2.3.1. Mécanisme de Matthews-Blakeslee

Dans les semi-conducteurs cubiques, le glissement de dislocations a permis d'obtenir des hétérostructures non fissurées. C'est le cas pour les hétérostructures SiGe/Si [24], les phosphures (Ga,In)P ou les arséniures (Ga,In,Al)As. La relaxation des contraintes s'obtient alors par l'extension de segments de dislocations d'interface formés à partir de dislocations traversantes. Ce mécanisme a été décrit par Matthews et Blakeslee [25]. Les segments d'interface peuvent être formés grâce à la courbure des dislocations préexistantes ou par la génération de demi-boucles de dislocations à partir de la surface [26].

La Figure 2-1 illustre ces deux mécanismes. Le plan de glissement est représenté en grisé. Il s'agit d'un plan qui contient à la fois le vecteur de Burgers et la ligne de la dislocation. Une des exigences pour que s'opère la relaxation par le mécanisme de Matthews-Blakeslee est de pouvoir étendre des segments de dislocations présentant un vecteur de Burgers dont la projection dans le plan d'interface possède une composante coin. Il ne peut se faire que sur des plans inclinés. Ainsi, dans les matériaux cubiques dont la croissance s'effectue suivant l'axe [001], le mécanisme de Matthews-Blakeslee s'opère sur les plans {111}.

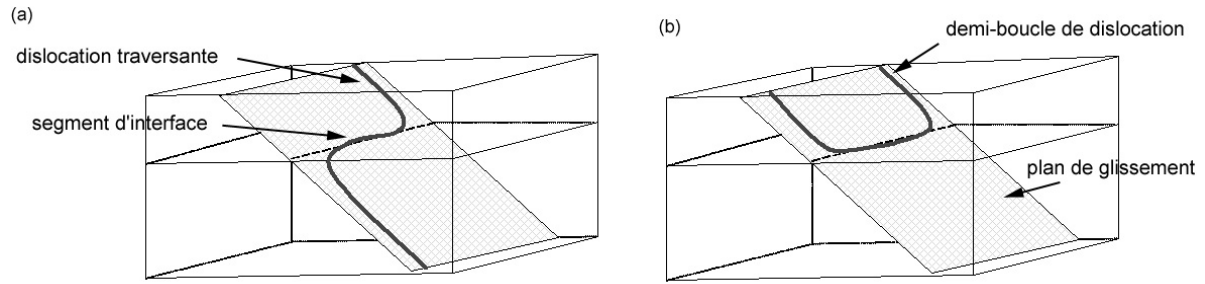


Figure 2-1 : schémas représentant la formation d'un segment d'interface à partir de la courbure d'une dislocation traversante (a) ou du glissement d'une demi-boucle de dislocation depuis la surface (b).

La force motrice pour l'extension des segments d'interface est bien évidemment la contrainte d'épitaixie. Cependant, des forces s'y opposent. Tout d'abord, la présence d'une dislocation génère un champ de contraintes qui déforme le réseau cristallin à son voisinage. On associe au champ de contraintes généré par une dislocation, une énergie qui est d'autant plus importante que la dislocation est étendue. Cette énergie est dénommée « énergie de ligne ». Nous la détaillerons dans la suite de cette section. Cependant, nous pouvons prévoir que pour minimiser l'énergie de ligne, une force tendra à réduire la longueur de la dislocation et donc s'opposera à l'extension des segments d'interface. D'autre part, pour étendre les segments de dislocations dans le plan d'interface, il faut déplacer les segments de dislocation traversants. Le mouvement des dislocations s'effectue préférentiellement par glissement car il ne nécessite pas de déplacement de matière. Il existe toutefois une force de friction exercée par le réseau cristallin qui s'oppose au glissement des dislocations : c'est la force de Peierls.

2.3.2. Énergie des dislocations

Plusieurs termes énergétiques sont associées aux dislocations : le terme primordial qui est intrinsèque à la présence d'une dislocation dans un cristal est l'énergie de ligne. Le glissement fait intervenir un deuxième terme qui est l'énergie de Peierls. Ces deux paramètres étant prépondérants seront seuls considérés dans cette étude. Cependant, on peut noter que d'autres termes énergétiques pourraient être considérés. La présence d'une surface libre crée une force d'attraction sur les dislocations. On parle de « force image ». D'autre part, la présence d'autres dislocations ou d'une manière générale de tout autre défaut cristallin générant une contrainte dans le matériau, fait apparaître une énergie d'interaction. De plus, la nucléation d'une dislocation à partir d'une surface induit la création d'une marche sur la surface, qui elle-même requiert une énergie proportionnelle à l'énergie de surface.

2.3.2.1. Énergie de ligne

La présence d'une dislocation dans un cristal génère une distorsion du réseau cristallin. Les dislocations sont donc des sources de contraintes internes. En particulier, si l'on considère une dislocation coin, elle induira de la compression dans la région au-dessus de son plan de glissement, région qui contient un demi-plan supplémentaire, alors qu'elle générera de la tension dans la région en dessous du plan de glissement. Cette propriété est à la base de l'effet des dislocations d'interface sur la relaxation des contraintes. Cependant, il faut noter que parallèlement au rattrapage de la contrainte d'épitaxie, les dislocations induisent des contraintes de cisaillement qui participent à l'augmentation de l'énergie élastique du cristal. L'augmentation de l'énergie élastique du cristal sous l'effet d'une dislocation est appelée énergie de ligne d'une dislocation. La théorie des dislocations n'est pas très claire lorsque les dislocations se trouvent à l'interface entre deux cristaux. Par soucis de simplicité, nous assimilerons donc l'énergie de ligne des dislocations d'interface à celle des dislocations dans un cristal homogène.

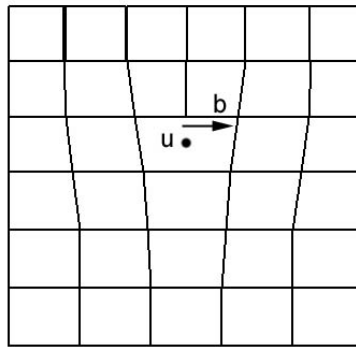


Figure 2-2 : représentation d'une dislocation coin dans un cristal cubique ; **b** représente le vecteur de Burgers et **u** la direction de la ligne de dislocation.

On estime l'énergie de ligne d'une dislocation droite par $E_L/L = \frac{Kb^2}{4\pi} \cdot \ln\left(\frac{L}{e \cdot \rho}\right)$ [27] avec

$K = \mu \left(\cos^2 \phi + \frac{\sin^2 \phi}{1 - \nu} \right)$, μ le module de cisaillement, ϕ l'angle entre la ligne et le vecteur de

Burgers, b la norme du vecteur de Burgers, L la longueur de la dislocation,

$\rho = \frac{b}{2\alpha} \cdot \exp\left(\frac{1-2\nu}{4(1-\nu)}\right)$, ν le coefficient de Poisson et α un terme relatif à l'énergie de cœur.

On considère généralement que α vaut 4 pour les semi-conducteurs. Dans l'expression de l'énergie de ligne par unité de longueur de dislocation, la longueur de la dislocation intervient dans un terme logarithmique ; elle n'a donc que peu d'effet. En fait, cette énergie dépend

essentiellement de la norme du vecteur de Burgers. Un calcul sommaire aboutit à des valeurs comprises entre 1 et $4 \times 10^{-7} \text{ J.m}^{-1}$ (pour des vecteurs de Burgers a, c et a+c). Dans les autres semi-conducteurs, les dislocations ont des énergies de ligne tout à fait comparables.

Le Tableau 2-4 énumère le module des vecteurs de Burgers des dislocations parfaites dans les nitruresⁱ.

dislocation	$b = a = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$	$b = c = \langle 0001 \rangle$	$b = a + c = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}3 \rangle$
AlN	3,111	4,980	5,872
GaN	3,1878	5,1850	6,087
InN	3,544	5,718	6,727

Tableau 2-4 : norme du vecteur de Burgers des dislocations dans les nitrures (en Å)

Nous serons amenés dans la suite de ce mémoire à nous intéresser à des dislocations d'interfaces contenues dans le plan (0001). Si l'on veut tenir compte de l'anisotropie du cristal, le coefficient K peut être exprimé par $K_s = (C_{44} \cdot C_{66})^{1/2}$ pour les dislocations vis et

$$K_e = (\bar{C}_{11} + C_{13}) \left[\frac{C_{44} \cdot (\bar{C}_{11} - C_{13})}{C_{33} (\bar{C}_{11} + C_{13} + 2C_{44})} \right]^{1/2} \text{ avec } \bar{C}_{11} = (C_{11} C_{33})^{1/2} \text{ pour les dislocations coin}$$

dans le plan de base [28], et $K = K_e \cdot \sin^2 \phi + K_s \cdot \cos^2 \phi$ pour les dislocations mixtes.

D'où l'énergie de ligne des dislocations d'interface :

$$E_L/L = \frac{(K_e \cdot \sin^2 \phi + K_s \cdot \cos^2 \phi) b^2}{4\pi} \cdot \ln \left(\frac{L}{e \cdot \rho} \right).$$

	μ	$K_s^{(0001)}$	$K_e^{(0001)}$
GaN	121	114	164
AlN	126	155	170

Tableau 2-5 : module de cisaillement (μ) et coefficients énergétiques pour les dislocations vis ($K_s^{(0001)}$) et coin ($K_e^{(0001)}$) glissant dans le plan de base dans le GaN et l'AlN (en GPa)

2.3.2.2. Énergie de Peierls

Le glissement d'une dislocation est un mouvement qui ne nécessite aucun déplacement de matière (mouvement conservatif). Il s'agit uniquement d'un déplacement de liaisons pendantes. Il faut toutefois fournir de l'énergie pour permettre de déplacer les liaisons

ⁱ Le module d'un vecteur $\langle u, v, i, w \rangle$ est donnée par $L_{\langle u, v, i, w \rangle} = \sqrt{3 \cdot a^2 \cdot (u^2 + u \cdot v + v^2) + c^2 \cdot w^2}$.

pendantes. Cette énergie a été calculée par Peierls et Nabarro en considérant la périodicité du réseau cristallin et en supposant que lors de leur glissement les dislocations se translatent d'une vallée de potentiel à la suivante. Le modèle de Peierls a été modifié à de nombreuses reprises mais l'ordre de grandeur de l'énergie requise pour le glissement est le même dans tous les cas. D'une manière générale, tous les modèles prévoient que plus les plans de glissement sont espacés plus l'énergie nécessaire est faible, ce qui se conçoit assez bien puisque la force de Peierls traduit la friction exercé par le cristal sur le glissement de la dislocation. De plus, l'énergie de Peierls est minimale lorsque le noyau de la dislocation est fin, c'est le cas pour les vecteurs de Burgers de faible module et les dislocations coins. Nous avons opté dans ce mémoire pour la formulation de Dietze [29]. L'énergie de Peierls vaut

$$\text{alors : } E_p/L = \frac{K.b^2}{\pi} . \omega . \exp\left(-2\pi\omega \frac{d}{b}\right) \text{ avec } K = \mu \left(\cos^2 \phi + \frac{\sin^2 \phi}{1-\nu} \right), \mu \text{ le module de cisaillement, } \phi \text{ l'angle entre la ligne de la dislocation et son vecteur de Burgers, } b \text{ la norme du vecteur de Burgers, } d \text{ la distance entre les plans de glissement et } \omega = \exp\left(\frac{4\pi^2 . kT}{5 . \mu . v_a}\right) \text{ où } T$$

est la température de croissance et v_a le volume occupé par un atome du réseau

$$v_a = \frac{c.a^2 . \sqrt{3}/2}{4}. \text{ Le terme } \omega \text{ permet d'introduire une dépendance en température. Mais il}$$

varie très peu que ce soit avec les différentes conditions de croissance (MOCVD, EJM) ou avec les différents alliages (Al,Ga,In)N. Il reste compris entre 1 et 1,1.

Dans la formulation de l'énergie de Peierls, la norme du vecteur de Burgers (b) et la distance inter-planaire entre les plans de glissement (d) sont primordiales. Les normes des vecteurs de Burgers des dislocations et les distances interplanairesⁱ entre les plans de glissement sont détaillées dans les tableaux 2-4 et 2-6.

plans	(0002)	(10 $\bar{1}$ 0)	(11 $\bar{2}$ 0)	(10 $\bar{1}$ 1)	(11 $\bar{2}$ 2)
AlN	2,490	2,694	1,556	2,370	1,319
GaN	2,593	2,761	1,594	2,437	1,358
InN	2,859	3,069	1,772	2,704	1,506

Tableau 2-6 : distances entre plans réticulaires dans les nitrures d'élément III (en Å)

ⁱ La distance entre plans réticulaires (h,k,i,l) est $\frac{1}{d^2} = \frac{4}{3} \frac{h^2 + h.k + k^2}{a^2} + \left(\frac{l}{c}\right)^2$.

La Figure 2-3 illustre l'énergie de Peierls par unité de longueur de dislocation en fonction du rapport entre la distance entre plans de glissements et la norme du vecteur de Burgers pour les dislocations parfaites dans le GaN. Ce graphe montre clairement que les dislocations de type a sont les plus faciles à faire glisser.

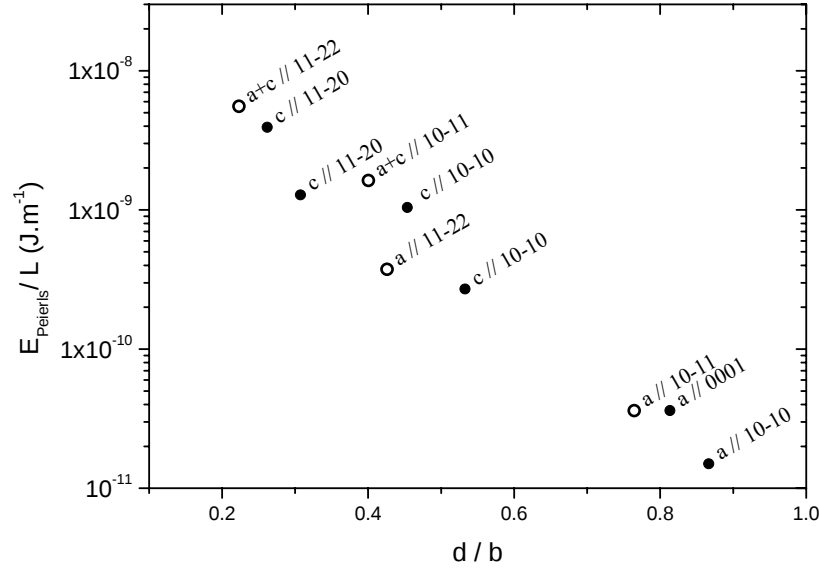


Figure 2-3 : énergie de Peierls des dislocations dans le GaN en fonction du rapport entre la distance inter-réticulaire des plans de glissement et le module du vecteur de Burgers

A titre de comparaison, dans le silicium, pour les dislocations de vecteur de Burgers $b = \frac{1}{2} \langle 110 \rangle$ glissant sur les plans $\{111\}$, l'énergie de Peierls vaut $9 \times 10^{-10} \text{ J.m}^{-1}$ (en considérant un module de cisaillement de 68 GPa et un paramètre de maille de 5,4 Å). Or, dans le système SiGe, la relaxation des contraintes s'opère par le glissement de dislocations. L'énergie de Peierls des dislocations dans les nitrures est du même ordre de grandeur que celle dans le silicium. L'énergie de Peierls ne permet donc pas a priori d'expliquer pourquoi la relaxation ductile est inopérante dans les nitrures.

2.3.3. Énergie élastique relaxée par les dislocations

Lorsqu'il existe un champ de contraintes ($\bar{\sigma}$), une force s'exerce sur les dislocations. Cette force s'exprime par $\frac{\bar{F}}{L} = (\bar{\sigma} \cdot \bar{b}) \wedge \bar{u}$ [30]. Dans le cas de l'épitaxie, nous avons montré précédemment que le champ de contrainte est biaxial et ne présente des composantes non nulles que dans le plan de croissance. La valeur de la contrainte dans le plan de base (0001)

est : $\sigma = M \times \varepsilon$. Il est intéressant maintenant de déterminer comment agit ce champ de contrainte sur les dislocations et en déduire l'énergie élastique relaxée par la présence des dislocations.

2.3.3.1. Énergie élastique relaxée par une dislocation de rattrapage de désaccord paramétrique

Considérons la dislocation rectiligne illustrée sur la Figure 2-4. Le vecteur de Burgers (**b**) fait un angle ϕ par rapport à la direction de la ligne (vecteur directeur **u**). Ces deux vecteurs définissent le plan de glissement de la dislocation (qui apparaît en grisé sur la Figure 2-4). Soient β l'angle entre le plan de croissance et le plan de glissement, et **z** le vecteur unitaire portée par l'axe de croissance. Le vecteur unitaire **i** est porté par l'intersection du plan de croissance et du plan de glissement. Les normales à la direction **i** contenue respectivement dans le plan de croissance et le plan de glissement seront dénotées **j** et **k**. Les vecteurs **i**, **j** et **z** seront orientés de telle façon que le système d'axes (**i,j,z**) soit un système d'axes orthonormés direct. L'angle α est l'angle entre le vecteur de Burgers et la direction **i**.

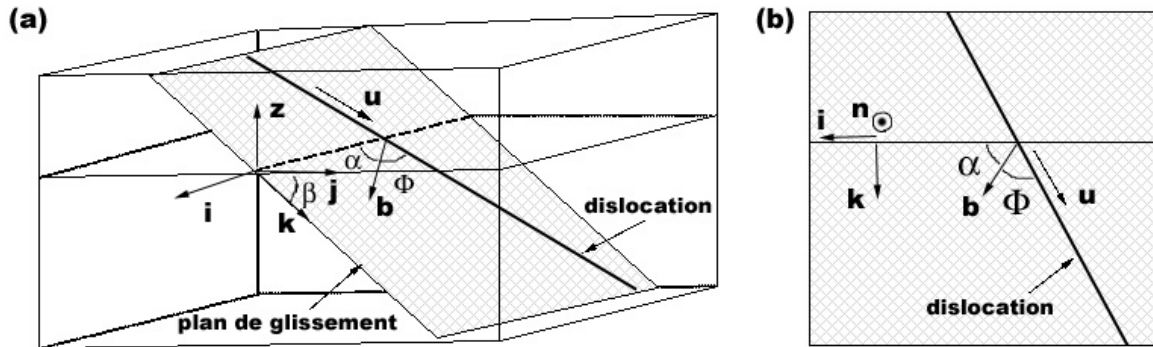


Figure 2-4 : schémas représentant une dislocation traversante glissant sur un plan incliné : (a) vue tridimensionnelle (b) projection dans le plan de glissement de la dislocation ; **u** représente le vecteur directeur de la dislocation, **b** son vecteur de Burgers ; les systèmes d'axes (**i,j,z**) et (**i,k,z**) sont orthonormés directs ; les angles α , β et ϕ sont définis dans le texte.

Le vecteur de Burgers (**b**) et le vecteur directeur (**u**) de la dislocation peuvent s'exprimer par :

$$\vec{b} = b \cdot \cos \alpha \cdot \vec{i} + b \cdot \sin \alpha \cdot \vec{k} = b \cdot \cos \alpha \cdot \vec{i} + b \cdot \sin \alpha \cdot \cos \beta \cdot \vec{j} - b \cdot \sin \alpha \cdot \sin \beta \cdot \vec{z}$$

$$\text{et } \vec{u} = \cos(\phi - \alpha) \cdot \vec{i} - \sin(\phi - \alpha) \cdot \vec{k} = \cos(\phi - \alpha) \cdot \vec{i} - \sin(\phi - \alpha) \cdot \cos \beta \cdot \vec{j} + \sin(\phi - \alpha) \cdot \sin \beta \cdot \vec{z}.$$

La force s'exerçant sur la dislocation sous l'effet de la contrainte d'épitaxie vaut :

$$\frac{\vec{F}_{misfit}}{L} = (\vec{\sigma} \cdot \vec{b}) \wedge \vec{u} = Mb\varepsilon \times \begin{cases} \sin \alpha \sin(\phi - \alpha) \cos \beta \sin \beta \times \vec{i} \\ - \cos \alpha \sin(\phi - \alpha) \sin \beta \times \vec{j} \\ - \sin \phi \cos \beta \times \vec{z} \end{cases}.$$

Pour la dislocation illustrée sur la Figure 2-4, si le film supérieur est en tension ($\varepsilon > 0$), la force due au désaccord de paramètre de maille tend à amener la dislocation dans l'interface et à générer un segment d'interface. Ce mécanisme est représenté sur la Figure 2-5a.

L'énergie élastique relaxée correspond au travail que l'on devrait fournir pour extraire la dislocation du cristal alors que la contrainte d'épitaxie s'y opposerait. Elle s'obtient par exemple en intégrant la composante suivant l'axe de croissance de la force due au désaccord paramétrique sur l'épaisseur de film à l'aplomb de la dislocation. Pour un segment de dislocation dont la position par rapport à la surface est h , l'énergie élastique relaxée

$$\text{vaut donc: } \delta E_M / \delta L = \int_{z=0}^h \left(\frac{\vec{F}_{\text{misfit}}}{L} \cdot \vec{z} \right) dz = -M \times h \times \varepsilon \times b \times \sin \phi \times \cos \beta.$$

Nous pouvons remarquer que $b \sin \phi \cos \beta$ est la projection de la composante coin du vecteur de Burgers dans le plan de base. Le facteur $\sin \phi \cos \beta$ est appelé coefficient de Schmidt. Il permet de comparer l'efficacité des différents types de dislocations pour relaxer un désaccord paramétrique.

Pour des dislocations situées dans le plan de croissance que l'on appellera dans la suite du mémoire « dislocations d'interface », la force induite par la contrainte d'épitaxie est exclusivement dirigée suivant l'axe de croissance et vaut $F_{\text{misfit}} / L = -M \times \varepsilon \times b \times \sin \phi$. Il faut toutefois remarquer que c'est alors une force de montée : cette force est perpendiculaire au plan de glissement de la dislocation (cf Figure 2-5b).

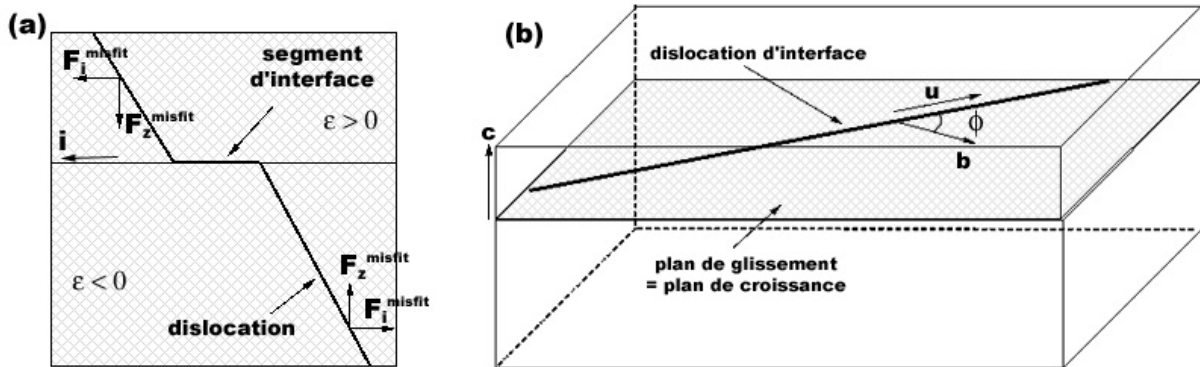


Figure 2-5 : (a) illustration de la force exercée par le désaccord de paramètre de maille sur une dislocation traversante ; (b) schéma représentant une dislocation d'interface.

2.3.3.2. Énergie élastique relaxée par un réseau de dislocations

Dans les semi-conducteurs cubiques, où le mécanisme de Matthews-Blakeslee est opérationnel, les segments de dislocations d'interface sont étendus et forment un réseau carré dans le plan d'interface [26]. Chaque dislocation relaxe une partie de l'énergie élastique

$E_M/L = -M.h.\varepsilon.b.\sin\phi.\cos\beta$. La relaxation s'opère perpendiculairement à la ligne de dislocation. Ainsi si l'on considère un ensemble de dislocations alignées suivant une direction, la relaxation de l'énergie élastique vaut $\frac{\Delta E_{elast}}{S} = \frac{1}{\delta_D} \frac{E_M}{L}$ avec δ_D la distance moyenne entre dislocations parallèles. En terme de déformation, chaque dislocation induit un allongement correspondant à la composante coin de son vecteur de Burgers d'où la déformation: $\Delta\varepsilon_D = \frac{b.\sin\phi.\cos\beta}{\delta_D}$. L'autre famille de dislocations est à 90° dans les semi-conducteurs cubiques. La déformation a donc la même valeur dans toutes les directions du plan de base. Autrement dit, la relaxation est isotrope.

Dans les nitrures, du fait de la symétrie d'ordre 3 de la structure hexagonale, il faut faire intervenir un facteur $g = 3/2$ pour exprimer la déformation induite par un réseau hexagonal de dislocations. La Figure 2-6b illustre la relaxation induite par des dislocations d'interface réparties suivant trois directions équivalentes. La déformation induite par les dislocations est alors $\Delta\varepsilon_D = \frac{3}{2} \frac{b.\sin\phi.\cos\beta}{\delta_D}$.

Lorsque la structure est totalement relaxée, $\Delta\varepsilon_D = \varepsilon_0$. Dans le cas général, la relaxation n'est pas totale et la déformation dépend de l'épaisseur du film. Dans ce cas, la déformation à l'équilibre pour une épaisseur donnée est atteinte lorsque l'énergie de la structure est minimale. L'énergie de la structure comprend l'énergie élastique du film

$$\frac{E^{elast}}{S} = M.h.\varepsilon^2 \text{ et l'énergie du réseau de dislocations } \frac{E_{reseau}}{S} = \frac{g}{\delta_D} \cdot \frac{E_D}{L}.$$

En exprimant l'espacement entre dislocations en fonction de la déformation $\delta_D = \frac{g.b.\sin\phi.\cos\beta}{\varepsilon^0 - \varepsilon}$, on

obtient :

$$\frac{\partial \left(\frac{E^{elast}}{S} + \frac{E_{reseau}}{S} \right)}{\partial \varepsilon} = 2.M.h.\varepsilon - \frac{1}{b.\sin\phi.\cos\beta} \frac{E_D}{L} + \frac{(\varepsilon^0 - \varepsilon)}{b.\sin\phi.\cos\beta} \frac{\partial (E_D/L)}{\partial \varepsilon} = 0.$$

Si l'énergie des dislocations ne dépend pas de la déformation, c'est-à-dire en négligeant tout durcissement dû à l'interaction entre dislocations, la déformation à l'équilibre vaut:

$$\varepsilon_{equ.} = \frac{1}{2.M.b.\sin\phi.\cos\beta} \frac{E_D}{L} \frac{1}{h}.$$

La déformation à l'équilibre est donc inversement proportionnelle à l'épaisseur.

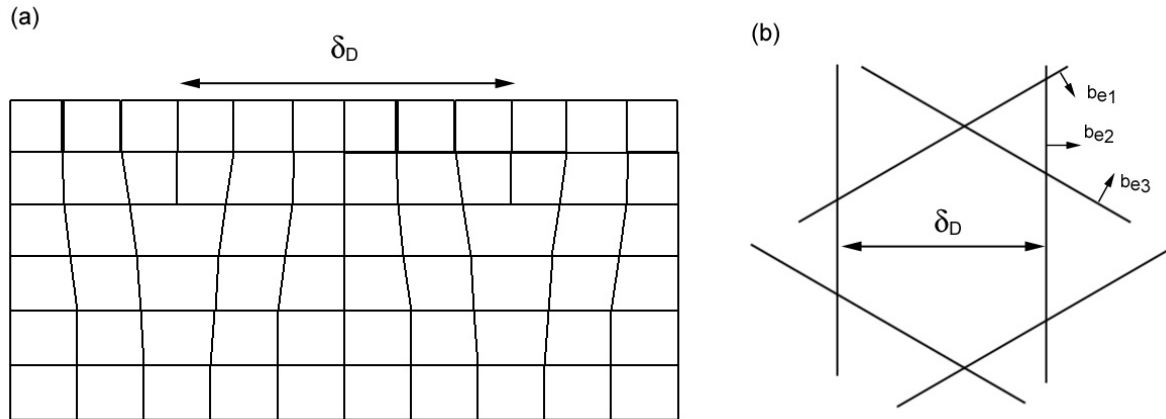


Figure 2-6 : réseau de dislocations rectilignes d'interface : (a) illustration d'une section transverse avec δ_D la distance entre dislocations parallèles ; (b) illustration d'une vue plane dans le cas d'un réseau hexagonal. Les vecteurs b_{e_i} représentent les directions de relaxation des trois familles de dislocations.

2.3.4. Courbure de dislocations traversantes

L'énergie de ligne des dislocations traversantes n'est pas particulièrement élevée dans les nitrures d'éléments III. L'énergie de glissement est encore plus faible et n'est donc pas a priori une barrière à la relaxation des hétérostructures. Pourtant la relaxation des hétérostructures par des mécanismes du type Matthews-Blakeslee n'est pas observée dans les nitrures. Ceci résulte de la structure hexagonale qui ne permet pas de générer par glissement des segments de dislocations d'interface susceptibles de relaxer l'énergie élastique due à la contrainte d'épitaxie.

En effet, seules les dislocations dont le vecteur de Burgers comporte une composante dans le plan de base peuvent relaxer le désaccord paramétrique lors de la croissance d'hétérostructures le long de l'axe [0001]. Les dislocations de type c sont donc inefficaces pour la relaxation des contraintes. D'autre part, les dislocations observées dans les nitrures épitaxiés suivant l'axe [0001] présentent des lignes verticales. Les plans de glissement des dislocations a et a+c sont donc des plans prismatiques $\{10\bar{1}0\}$. Les systèmes de glissement correspondants sont illustrés sur la Figure 2-7a et b. On peut constater que le segment d'interface qui serait généré à partir d'une dislocation traversante de vecteur de Burgers $b = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$ serait colinéaire au vecteur de Burgers. Autrement dit, les dislocations traversantes de type a formeraient par glissement un segment vis dans le plan d'interface et ne relaxeraient donc pas le désaccord de maille. Il en est de même pour les dislocations de type a+c glissant sur les plans $\{10\bar{1}0\}$.

Si on s'intéresse au coefficient de Schmidt, une dislocation verticale implique que $\beta = 90^\circ$. Le coefficient de Schmidt est donc nul. Quel que soit son vecteur de Burgers, une dislocation verticale est donc inefficace pour relaxer la contrainte d'épitaixie.

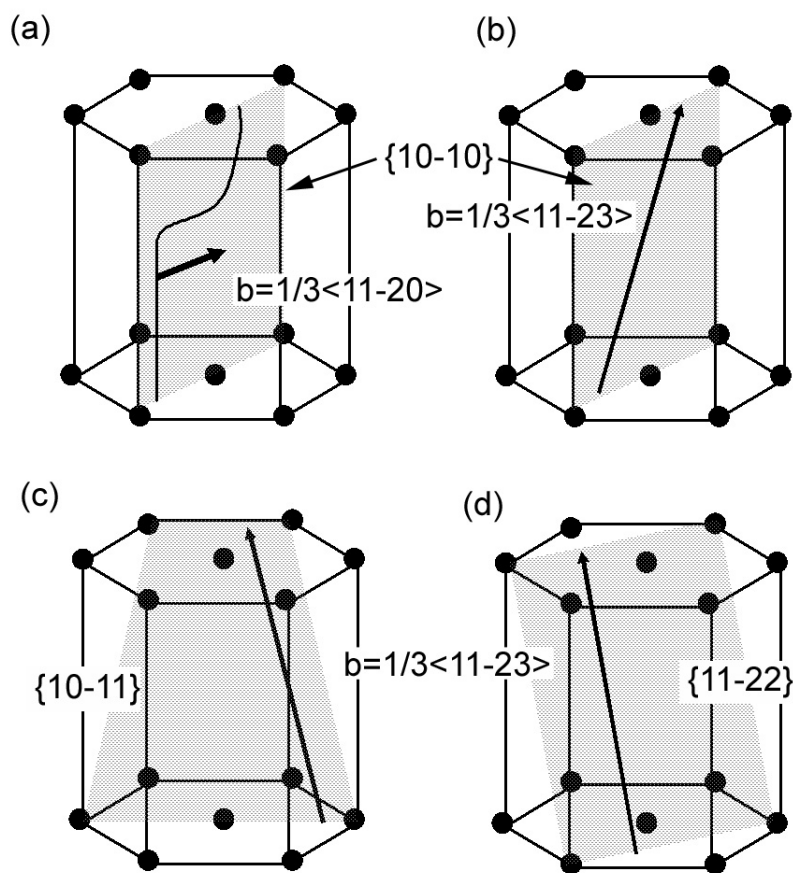


Figure 2-7 : schéma représentant les systèmes de glissement dans les nitrures d'éléments III. Les flèches représentent les vecteurs de Burgers, les plans de glissement sont en gris. (a) dislocation de type $b = a = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$ glissant dans un plan $\{10\bar{1}0\}$ (b) dislocation de type $b = a + c = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}3 \rangle$ glissant dans un plan $\{10\bar{1}0\}$ (c) dislocation de type $b = a + c$ glissant dans un plan $\{10\bar{1}1\}$ et (d) dislocation de type $b = a + c$ glissant dans un plan $\{11\bar{2}2\}$.

En fait, seules pourraient relaxer les dislocations de type $a+c$ glissant sur des plans inclinés du type $\{10\bar{1}1\}$ ou $\{11\bar{2}2\}$ (cf. Figure 2-7c et d). Or, ce système de glissement n'a jamais été observé dans les nitrures. La nucléation de telles dislocations et leur glissement à partir de la surface sous l'effet de la contrainte d'épitaixie pourraient tout de même être envisagés.

2.3.5. Nucléation de demi-boucles de dislocations

Dans les semi-conducteurs cubiques lorsqu'il n'y a pas suffisamment de dislocations traversantes se courbant pour relaxer la contrainte d'épitaxie, il a été montré que des demi-boucles de dislocations peuvent être nucléées à la surface libre du film et glisser sur des plans inclinés jusqu'à l'interface entre les deux matériaux désaccordés [26].

Dans les cristaux hexagonaux, comme nous l'avons expliqué précédemment, ce mécanisme est susceptible de s'opérer uniquement pour les dislocations de type a+c glissant sur les plans compacts $\{10\bar{1}1\}$ ou $\{11\bar{2}2\}$.

En tenant compte uniquement de l'énergie de ligne et de l'énergie élastique relaxée par une demi-boucle de dislocation, l'épaisseur critique de nucléation de demi-boucles (h_c) vérifie :

$$\frac{h_c}{\sin \beta} = \frac{b.(1 - \nu \cos^2 \alpha)}{2\pi.\varepsilon.\sin \alpha.\cos \beta.\sin \beta.(1 + \nu)} \left(1 + \ln \left(\frac{h_c / \sin \beta}{e.\rho} \right) \right) \quad (\text{equ. 2-3})$$

où ε représente la déformation dans le plan, ν le coefficient de Poisson, b le module du vecteur de Burgers de la dislocation ; l'expression de ρ est donnée page 41 ; les angles α et β ont été définis au paragraphe précédents et sont reportés dans le Tableau 2-7.

plans	$\{10\bar{1}1\}$	$\{11\bar{2}2\}$
α (°)	74,8	90
β (°)	28	31,6

Tableau 2-7 : angles entre le plan de glissement et le plan d'interface (β) et entre le vecteur de Burgers et le segment d'interface (α) pour les dislocations a+c glissant sur les plans inclinés du GaN.

La Figure 2-8 illustre l'épaisseur critique de relaxation par le glissement de ces dislocations estimée d'après l'équation 2-3. Sur ce graphe, figure également l'épaisseur critique de fissuration dont le calcul sera détaillé au paragraphe suivant. On peut constater que cette dernière est supérieure à l'épaisseur critique de relaxation par glissement de demi-boucles de dislocations. Or, expérimentalement, nous avons observé que la relaxation intervient par la fissuration du film. Ce désaccord peut être imputé au fait que le modèle que nous avons utilisé pour estimer l'épaisseur critique de relaxation via le glissement de dislocations, est un modèle statique qui ne tient pas compte de la cinétique de relaxation ni de l'énergie proprement dite de nucléation des dislocations. On peut en outre noter que les

épaisseurs critiques observées sur d'autres familles de semi-conducteurs sont généralement supérieures à celles déduites de relations théoriques.

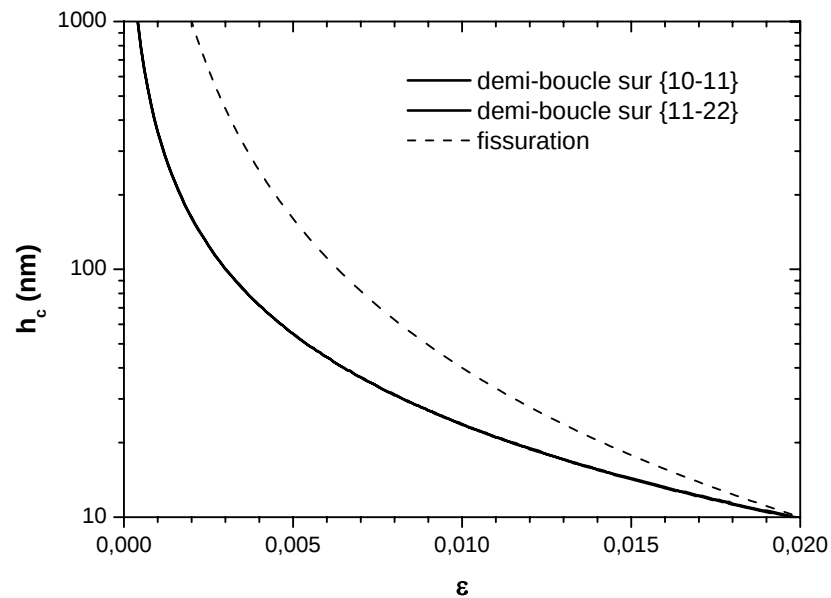


Figure 2-8 : épaisseurs critiques de relaxation par glissement de demi-boucles de dislocations depuis la surface sur des plans $\{10\bar{1}1\}$ et $\{11\bar{2}2\}$ (les deux courbes sont superposées) et épaisseur critique de fissuration (trait en pointillés).

2.4. Fissuration de l'(Al,Ga)N épitaxié sur GaN

La fissuration des films de nitrures intervient lorsqu'ils sont en tension. Elle a fait l'objet de nombreuses études. La fissuration concerne la croissance des nitrures sur des substrats ayant un coefficient de dilatation thermique inférieur à celui des nitrures, comme le silicium [31] ou le carbure de silicium (SiC) [32], ce qui induit au refroidissement une contrainte extensive dans le film épitaxié. La fissuration de film de GaN sur saphir a aussi été observée pour des films épais [18]. Elle a pour origine la présence d'une tension résiduelle dans le film de GaN qui provoque sa fissuration en cours de croissance. La fissuration peut aussi intervenir lors de la croissance d'hétérostructures ; c'est notamment le cas lorsque des films d'(Al,Ga)N sont épitaxiés sur du GaN [33,34,35]. La fissuration intervient alors en cours de croissance afin de relaxer la contrainte d'épitaxie.

Les fissures s'étendent généralement depuis la surface le long de l'axe de croissance (fissuration de type I). Le fait qu'elles émergent à la surface a un effet désastreux pour la réalisation de composants tels que les diodes électroluminescentes. En effet, les dispositifs en

nitrides sont réalisés en technologie planaire car le saphir est isolant. Les fissures verticales sont alors des barrières au passage du courant électrique entre les contacts métalliques déposés sur la face avant. Or, les distances entre fissures sont bien plus petites que la dimension des contacts : les plus petits motifs de diodes électroluminescentes utilisés dans ce mémoire ont une largeur de 150 μm alors que la distance entre fissures est généralement de l'ordre de la dizaine de micromètres (Figure 2-9). En outre, lors du recuit nécessaire pour obtenir des contacts ohmiques, la présence de fissures risque d'entraîner la diffusion des métaux en profondeur et de court-circuiter la zone active des diodes. Il est donc primordial de pouvoir prédire l'épaisseur critique à partir de laquelle la fissuration se produit.

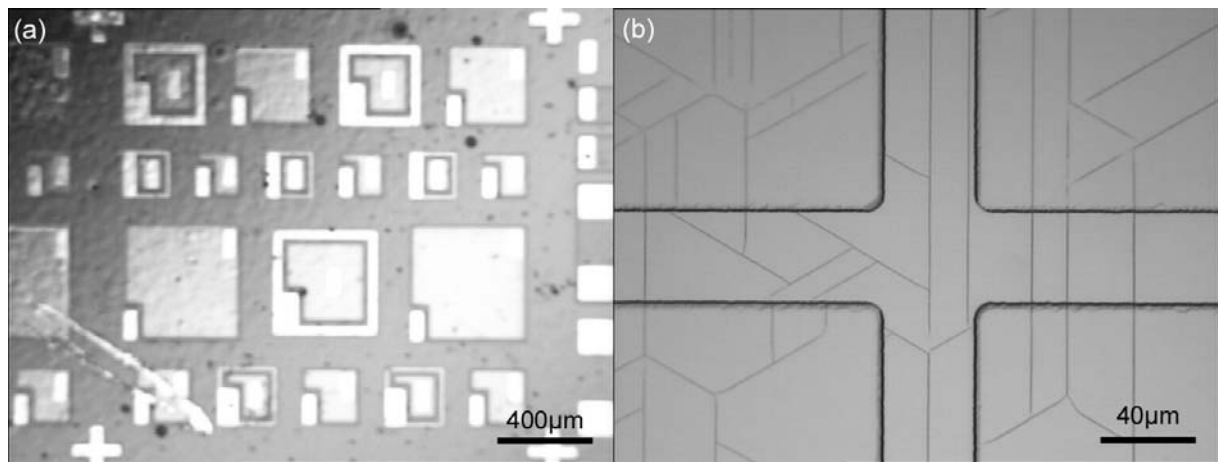


Figure 2-9 : microscopies optiques : (a) diodes électroluminescentes (b) film d'(Al,Ga)N épitaxié sur un échantillon de GaN localement gravé (zone centrale). Un réseau de fissures est observable sur l'image de droite rendant impossible la réalisation de diodes électroluminescentes ; noter le facteur 10 entre les deux échelles.

2.4.1. Epaisseur critique de fissuration

L'étude de la fissuration de films minces est relativement récente (1990). Les premiers calculs ont été effectués de façon analytique par Tada, Thouless, Hutchinson et Suo [36] en considérant une relaxation linéaire le long de la profondeur des fissures. Plus récemment, des calculs par éléments finis [37] ont mis en évidence une importante variation des contraintes près des fissures. Néanmoins l'énergie élastique ainsi calculée ne diffère des calculs analytiques que pour des réseaux de fissures très denses. Un des principaux résultats de cette nouvelle branche de la mécanique des solides est que la fissuration de films contraints uniformément intervient à partir d'une certaine épaisseur appelée l'épaisseur critique de fissuration. Celle-ci s'exprime par une équation générale :

$$h_E^{crit} = \frac{\Gamma}{Z.M.\varepsilon_E^2} \text{ (equ. 2-4)}$$

où M est le module biaxial du matériau subissant la fissuration et ε_E est la déformation avant fissuration. Γ est l'énergie qu'il faut produire pour former les fissures, c'est-à-dire pour créer deux nouvelles surfaces. Ainsi $\Gamma = 2\gamma$, γ étant l'énergie par unité de surface des plans de clivage le long desquels se produit la fissuration. Z est le coefficient qui permet de relier la diminution de l'énergie élastique de la structure, exprimée par unité de surface (0001), à l'aire d'une fissure. Ce coefficient dépend donc de la géométrie des fissures : en particulier de leur espacement et de leur profondeur.

La fissuration est un mécanisme progressif. D'abord, de petites fentes peu profondes et non étendues (des "embryons de fissures") se forment à une épaisseur correspondant à $Z=3,951$ [36]. L'énergie élastique augmentant avec l'épaisseur du film, les fissures progressent alors en profondeur et en longueur. Un réseau de fissures est enfin obtenu pour une épaisseur correspondant à $Z=1,975$ dans l'équation 2-4. C'est en général à ce stade qu'on estime l'épaisseur critique de fissuration.

Dans les hétérostructures (Al,Ga)N / GaN, les fissures sont majoritairement orientées le long des directions $\langle 11\bar{2}0 \rangle$. L'énergie de surface qu'il faut considérer est donc celle des plans de clivage $\{10\bar{1}0\}$. Elle a été calculée ab-initio par Northrup et Neugebauer pour le GaN [38], mais aucune valeur n'a pu être déterminée expérimentalement.

Surfaces	$\{10\bar{1}0\}$	$\{11\bar{2}0\}$
γ (J.m ⁻²)	GaN 1,89 [38] AlN 2,512 [39]	GaN 1,97 [38]

Tableau 2-8 : énergie de surfaces du GaN.

Pour estimer la déformation du film en cours de croissance, nous avons considéré plusieurs cas :

- (i) Nous pouvons supposer qu'avant la fissuration, l'(Al,Ga)N est totalement contraint sur le pseudo-substrat de GaN. Ceci revient à faire l'hypothèse de la croissance de l'(Al,Ga)N sur un substrat semi-infini de GaN. Les épaisseurs critiques ainsi déterminées sont représentées par la courbe pleine sur la Figure 2-10.
- (ii) Avant le début de la croissance, le substrat de saphir est soumis à un traitement à haute température sous flux conjugués de silane et d'ammoniac (traitement Si/N). La couche tampon de GaN épitaxiée à basse température (580 °C) a alors tendance à former des îlots lorsque la température est augmentée (jusqu'à 1080 °C). Les îlots de GaN coalescent ensuite progressivement lors de la croissance du film. La coalescence des

ilots entraîne une légère tension du GaN [40]. On peut donc imaginer que non-seulement le film d'(Al,Ga)N mais aussi celui de GaN fissurera. Dans ce cas, la fissuration intervient lorsque l'énergie de la structure entière vérifie $M(h_A \cdot \varepsilon_A^2 + h_G \cdot \varepsilon_G^2) = \Gamma/Z$ où les indices $_A$ et $_G$ représentent respectivement l'(Al,Ga)N et le GaN. La déformation de l'(Al,Ga)N lorsque le GaN est en tension, est plus petite que lorsque l'on considère le GaN relaxé : $\varepsilon_A = \varepsilon_A^\infty - \varepsilon_G$. L'épaisseur critique de fissuration

est alors $h_A = \frac{\Gamma - M \cdot h_G \cdot \varepsilon_G^2}{M \cdot (\varepsilon_A^\infty - \varepsilon_G)}$. La courbe en tirets sur la Figure 2-10 est obtenue en

considérant une déformation de 6×10^{-4} pour le GaN, ce qui est la valeur maximale mesurée par Hearne et al [19].

Ces deux premiers cas supposent que l'(Al,Ga)N n'induit pas de variation de la déformation du GaN. Or, il a été reporté que la croissance d'(Al,Ga)N provoque une compression du GaN sous-jacent [41]. Les épaisseurs critiques de fissuration doivent donc être légèrement supérieures à celles calculées dans ces deux premiers cas. En toute rigueur, il faudrait, en fait, s'intéresser à l'ensemble des deux films et à leur interaction, ce qui est réalisée dans une troisième approche.

- (iii) On considère donc une bi-couche élastique formée du pseudo-substrat de GaN et du film d'(Al,Ga)N (cf §2.2.4). La déformation de l'(Al,Ga)N dépend alors du rapport des épaisseurs entre les films de GaN et d'(Al,Ga)N. La courbe en pointillés (Figure 2-10) illustre l'évolution de l'épaisseur critique de fissuration ainsi calculée en fonction de la composition en Aluminium du film d'(Al,Ga)N.

Nous ne pouvons apprécier une différence entre ces trois estimations de la déformation de l'(Al,Ga)N que pour de faibles compositions d'Aluminium. Pour des compositions en Aluminium supérieures à 20%, les épaisseurs critiques de fissuration données par ces différentes approches sont tout à fait comparables.

Pour des films d'(Al,Ga)N dont la composition en Aluminium est de 20% ou 30%, les épaisseurs critiques de fissuration ont été estimées expérimentalement par observation en microscopie optique de films d'épaisseur différente. Ces films ont été épitaxiés sur des couches de GaN d'épaisseur 2 μm déposées sur substrat saphir. Des résultats tirés des références [33,34,35] complètent les résultats de cette étude. Les mesures d'épaisseur critiques de Hearne et al [33] ont été obtenues en notant le changement de courbure des échantillons en cours de croissance indiquant une relaxation des contraintes. Les films de la référence [35] ont été épitaxiés par épitaxie par jets moléculaires.

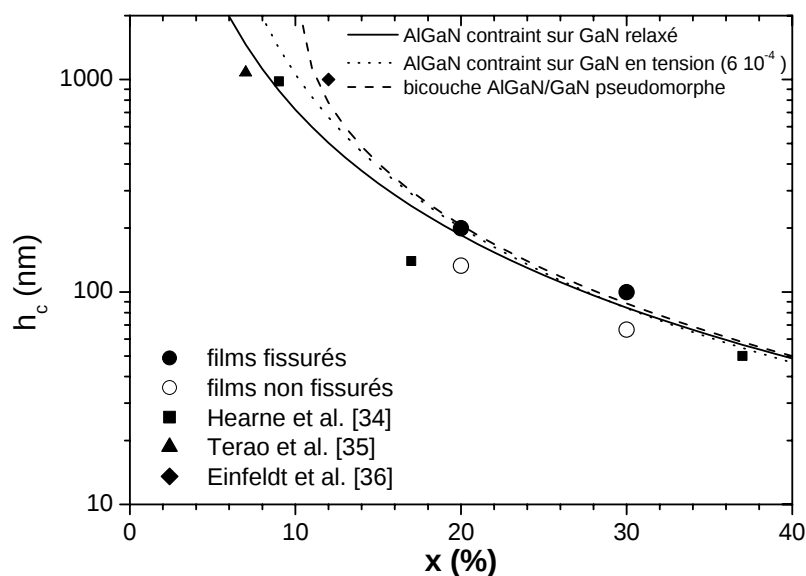


Figure 2-10 : épaisseur critique de fissuration pour de l'(Al,Ga)N épitaxié sur GaN.

Un bon accord entre les valeurs expérimentales et théoriques de l'épaisseur critique de fissuration est obtenu malgré les incertitudes sur les valeurs des énergies de surface. Le fait que l'on ait considéré les valeurs des modules biaxiaux à température ambiante et non à température de croissance n'a pas non plus d'effet notable. Il est à noter que l'épaisseur critique de fissuration est faible (inférieure à $1\mu\text{m}$) dès que l'on vise une composition d'Aluminium supérieure à 10%.

2.4.2. Densité de fissures et taux de relaxation

Au delà de l'épaisseur critique de fissuration, lorsqu'on épaissit les films d'(Al,Ga)N, le réseau de fissures a tendance à se densifier. Le Tableau 2-9 détaille les distances entre fissures pour différents films d'(Al,Ga)N/GaN/saphir dont la composition en Aluminium est de 20% (avec une incertitude de 1%). L'espacement moyen entre fissures diminue lorsque l'épaisseur du film d'(Al,Ga)N augmente, puis atteint une valeur minimale de $15\mu\text{m}$ à partir d'une épaisseur de couche de 500 nm. Le même espacement limite entre fissures ($15\mu\text{m}$) a été obtenu pour des films épais d'(Al,Ga)N dans la gamme de compositions en Aluminium 15%-40%.

échantillon	h (nm)	$\langle \xi \rangle$ (μm)	$\xi_{\min}$ (μm)	$\xi_{\max}$ (μm)
A	200	90	15	200
B	350	30	8	100
C	500	14	7	57
D	1000	15	7	50
F	6000	15	7	40

Tableau 2-9 : distances entre fissures parallèles (moyenne, minimale et maximale) pour des films d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ dont l'épaisseur varie de 200nm à 6 μm .

Les distances minimales et maximales entre fissures reflètent avant tout l'inhomogénéité de la fissuration pour les films minces, comme la Figure 2-11 l'illustre. On constate que plus la fissuration progresse, plus le réseau de fissures s'homogénéise, la distance entre fissures tendant à s'établir vers 15 μm .

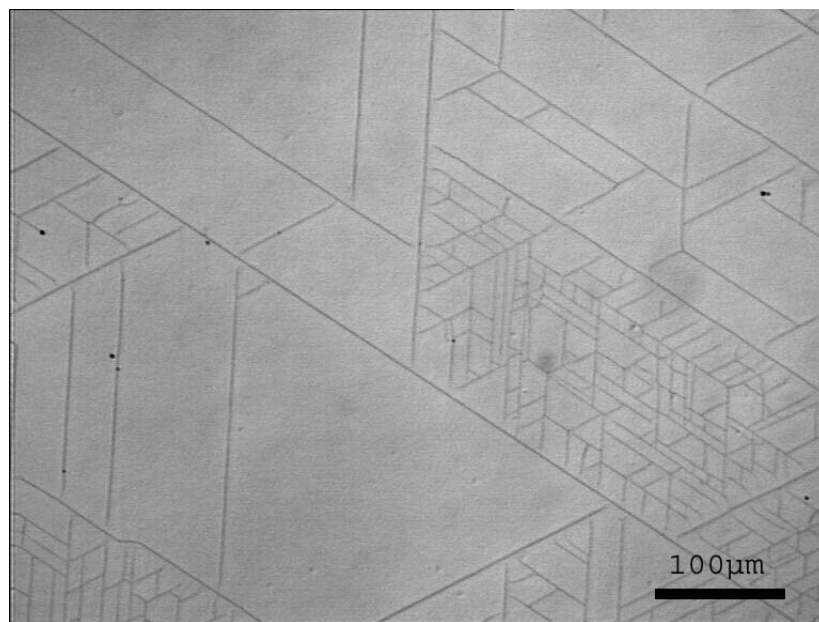


Figure 2-11 : microscopie optique d'un film d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ de 350nm d'épaisseur présentant un réseau inhomogène de fissures.

Le fait que le réseau de fissures soit inhomogène peut fausser les mesures de déformations. Pour contourner ce problème, nous nous sommes placés de manière à mesurer par diffraction des rayons X une déformation moyenne. Pour ce faire, nous n'avons pas utilisé de fente verticale en sortie du monochromateur. Le faisceau frappant l'échantillon est alors fin et allongé. Sa hauteur est d'environ 15mm alors que sa largeur est d'environ 50 μm . Sachant que

la distance maximale entre fissures est de 200 μm , la mesure de la déformation s'effectue sur une zone contenant un très grand nombre de fissures. Le taux de relaxation τ_{exp} est ensuite estimé en tenant compte d'une déformation thermique $\varepsilon_{th} = -1,9 \times 10^{-3}$ et d'une déformation initiale $\varepsilon_0 = 5 \times 10^{-3}$ correspondant à une croissance pseudomorphe sur GaN. Le taux de relaxation est ainsi calculé par $\tau_{\text{exp}} = \frac{\varepsilon_0 - (\varepsilon_{\text{exp}} - \varepsilon_{th})}{\varepsilon_0}$.

échantillon	h (nm)	$\langle \xi \rangle$ (μm)	$10^3 \times \varepsilon_{xx}$	τ_{exp} (%)	τ_{fissu} (%)
A	200	90	3,1	0	0,7
B	350	30	3,0	2	3,2
C	500	14	1,1	40	10,4
D	1000	15	-0,2	66	18,4
F	6000	15	-1,6	94	31,4

Tableau 2-10 : taux de relaxation estimé par DRX et à partir des caractéristiques du réseau de fissures dans le cas d'hétérostructures $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ / GaN.

Pour les différents films fissurés présentés dans le Tableau 2-10, nous avons calculé le taux de relaxation induit par la fissuration τ_{fissu} . Pour un réseau hexagonal de fissures, le taux de

relaxation s'exprime par $\tau = \frac{3}{2} \frac{Zh}{L}$, h étant l'épaisseur du film fissuré, L l'espacement entre fissures et Z le facteur géométrique défini précédemment. Pour le calculer, nous avons utilisé l'expression polynomiale reportée dans la Référence [42] :

$$Z = 2,0 - 0,96 \times h/L - 25,0 \times (h/L)^2 + 70,4 \times (h/L)^3 - 73,2 \times (h/L)^4 + 26,9 \times (h/L)^5.$$

Les valeurs calculées du taux de relaxation induit par la fissuration, reportées dans le Tableau 2-10, ne sont en accord avec les valeurs mesurées par DRX que pour les deux films les plus minces. Ces deux films sont d'ailleurs quasiment contraints ($\tau < 3\%$). Pour les films plus épais, le taux de relaxation mesuré est beaucoup plus important que celui estimé à partir de la densité de fissures. On peut donc supposer qu'il y a un autre mode de relaxation, à savoir l'introduction de dislocations une fois que le film est fissuré.

2.5. Alternatives à la fissuration

Dans les nitrures, la fissuration est un réel problème pour réaliser des dispositifs comprenant des films d'(Al,Ga)N relativement épais comme les diodes UV ou les diodes à cavité résonante. Un important effort a donc été produit pour essayer de l'éviter.

La première approche a été d'effectuer la croissance de couches pseudomorphes ou en compression, autrement dit de faire croître un film épais d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ puis de réaliser des hétéro-structures d' $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$ / GaN dont la composition en Aluminium est suffisamment faible pour éviter la fissuration du film. Les débuts de la croissance épitaxiale de l'AlN et des alliages (Al,Ga)N remontent aux années 1970 [43]. Il a été montré que certaines conditions permettaient d'améliorer la qualité des films notamment une température un peu plus élevée que celle adoptée pour la croissance de GaN, ainsi qu'une pression plus basse. Néanmoins, du fait d'une moindre diffusion de surface, les progrès réalisés sur le GaN via la croissance 3D ne sont pas applicables à l'(Al,Ga)N dès que la composition excède quelques pourcents d'Aluminium. De ce fait, la densité de dislocations traversantes des films d'(Al,Ga)N épitaxiés sur saphir est importante : de quelques 10^9 cm^{-2} pour les faibles compositions en Aluminium jusqu'à 10^{11} cm^{-2} pour une composition en Aluminium de 80% [44]. Pour les mêmes raisons de diffusion de surface, la technique de surcroissance par épitaxie latérale (ELO) qui permet de réduire la densité de dislocations pour les films de GaN, s'avère inopérante sur l'alliage : elle aboutit au dépôt d'îlots d'(Al,Ga)N polycristallins sur les masques [45].

Etant donné que la croissance directe de l'(Al,Ga)N ne permet pas d'aboutir à une qualité équivalente à celle du GaN, l'utilisation de pseudo-substrats de GaN a été privilégiée pour réaliser la croissance d'(Al,Ga)N. L'insertion de films épitaxiés à basse température s'est révélée efficace pour éviter la fissuration du film final [33,44]. Des auteurs ont aussi reporté l'insertion de couches d'AlN et d'(Al,Ga)N épitaxiées à haute température [46], ou l'utilisation de super-réseaux AlN / GaN pour éviter la fissuration du GaN sur silicium [31]. La caractérisation structurale, notamment en ce qui concerne la densité de dislocations, n'est en général pas mentionnée. Lorsqu'il en est fait état, la densité de dislocations traversantes est supérieure à $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ [44], comme illustré sur la Figure 2-12.

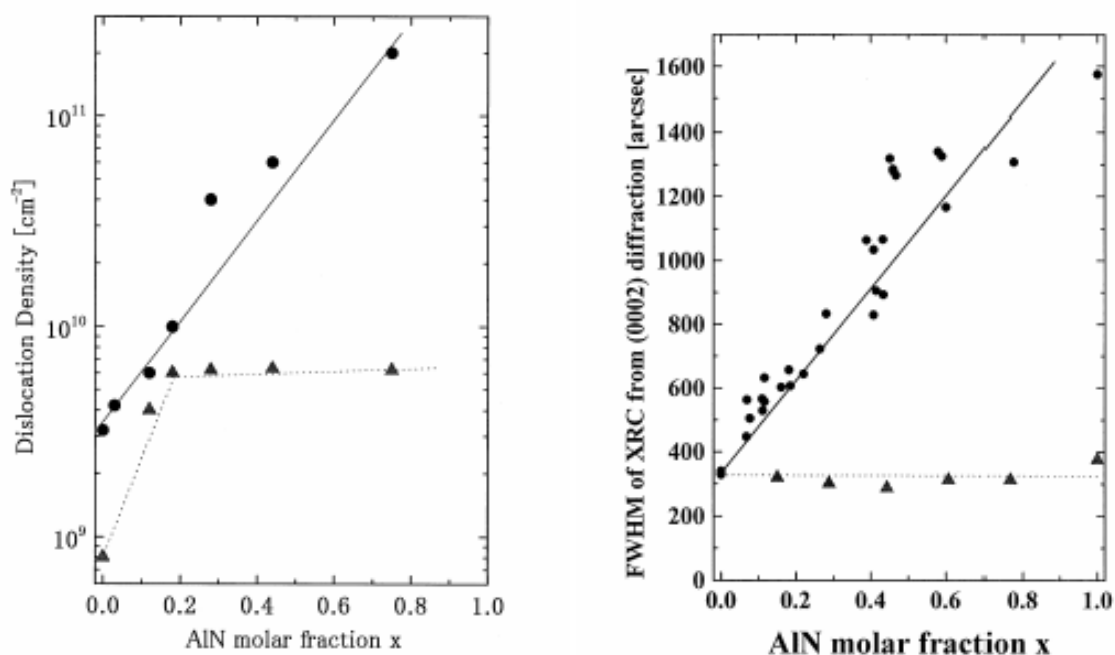


Figure 2-12 : (a) évolution de la densité de dislocations traversantes et de la largeur des pics (0002) par DRX en fonction de la composition en Aluminium de films (Al,Ga)N directement épitaxiés sur saphir (cercles) ou avec une couche intermédiaire d'AlN (triangles); d'après [44].

Nous avons réalisé la croissance de miroirs de Bragg (Al,Ga)N / GaN en insérant un film d'AlN épitaxié à basse température (700°C) ou un super-réseau AlN / GaN. Dans les deux cas, nous avons constaté une augmentation importante de la densité de dislocations traversantes. Celle-ci vient du fait que la relaxation des contraintes s'opère alors par la nucléation de demi-boucles de dislocations présentant des bras verticaux. Bourret et al. [47] ont proposé un mécanisme de nucléation de telles demi-boucles de dislocations qui ne fait pas intervenir le glissement de dislocations. L'introduction de dislocations d'interface serait alors initiée par l'augmentation de la rugosité du film et la formation de « plateaux ». L'image MET réalisée sur un miroir $\text{Al}_{0,30}\text{Ga}_{0,70}\text{N}$ / GaN épitaxié à l'aide d'un super réseau AlN/GaN permet de bien se rendre compte de l'augmentation de la densité de dislocations (Figure 2-13). Des clichés en champ sombre par microscopie électronique en transmission ont permis de vérifier que les dislocations introduites étaient de type a. L'augmentation de la densité de dislocations traversantes de type a est également mise en évidence par microscopie à force atomique, comme l'illustre la Figure 2-14 réalisée sur un film où une couche d'adaptation d'AlN a été épitaxiée à basse température (700°C) avant la croissance des miroirs de Bragg $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ / GaN.

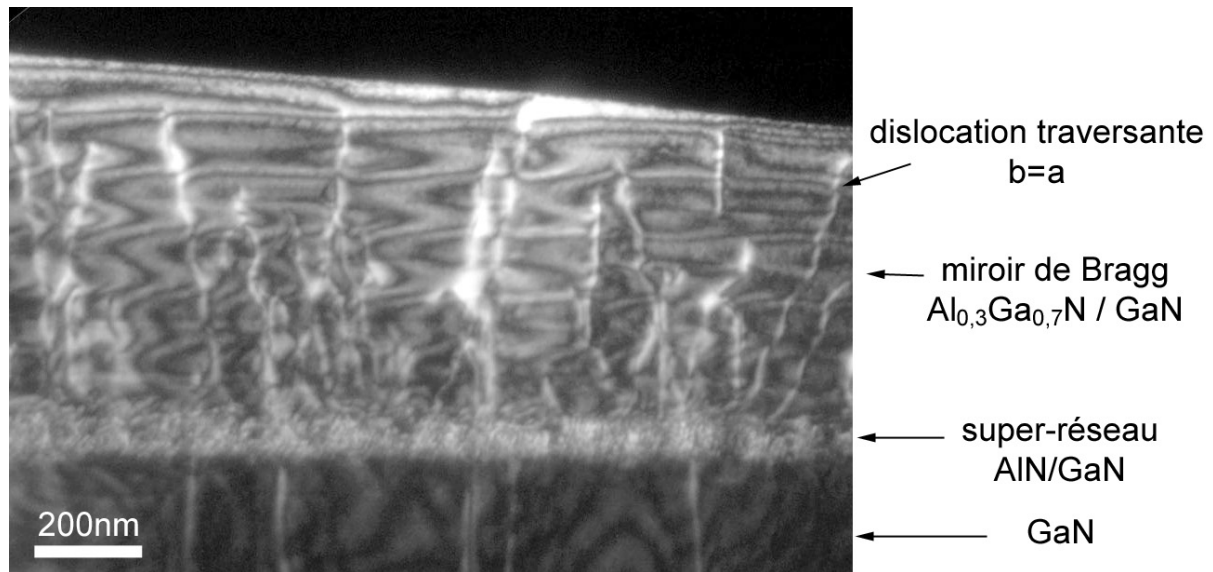


Figure 2-13 : image MET en section transverse d'un miroir de Bragg $\text{Al}_{0,30}\text{Ga}_{0,70}\text{N} / \text{GaN}$ épitaxié sur GaN en ayant intercalé un super réseau AlN / GaN ; champ sombre $g = (11\bar{2}0)$: de nombreuses dislocations traversantes ont été introduites au niveau du super-réseau ; elles sont de type a ; leur densité est supérieure à $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

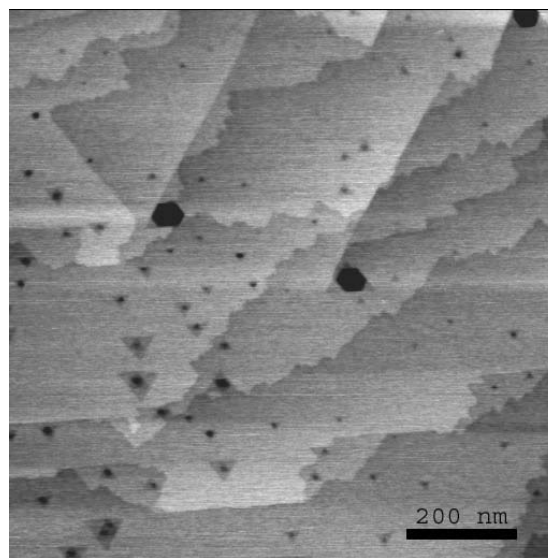


Figure 2-14 : microscopie à force atomique d'un film contenant des miroirs de Bragg $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N} / \text{GaN}$ et une couche d'adaptation d' AlN épitaxié à basse température (700°C) : de nombreuses dislocations traversantes ont été révélées par attaque chimique (densité supérieure à $7 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$).

Plusieurs phénomènes peuvent expliquer que l'insertion de films déposés à basse température favorise la relaxation ductile. La qualité des films est moindre lorsqu'ils sont épitaxiés à basse température et leur rugosité peut faciliter la nucléation de dislocations d'interface. La présence de lacunes peut aussi permettre aux dislocations de se courber par montée.

Pour éviter que la croissance d'(Al,Ga)N ne se traduise par l'augmentation dramatique de la densité de dislocations, Amano et Akasaki [48] ont proposé que la croissance de l'(Al,Ga)N soit effectuée sur un pseudo-substrat de GaN ayant subi une gravure. L'insertion d'un film épitaxié à basse température est, dans ce cas aussi, nécessaire pour éviter la fissuration du film. Elle se traduit par une densité élevée de dislocations traversantes au dessus des bandes de GaN qui étaient masquées lors de la gravure (autour de 10^{10} cm^{-2}). Toutefois la présence de facettes inclinées influence la propagation des dislocations lors de la croissance de l'(Al,Ga)N. Cela permet d'obtenir une densité de dislocations traversantes relativement faible au-dessus des tranchées (de l'ordre de 10^8 cm^{-2}), comme on peut l'observer sur la Figure 2-15. Un masque mieux adapté lors de la gravure du GaN, devrait d'ailleurs permettre d'augmenter la surface où la densité de dislocations traversantes est faible. Cependant, cette technique nécessite la gravure du GaN, et deux étapes de croissance distinctes : elle est par conséquent relativement onéreuse.

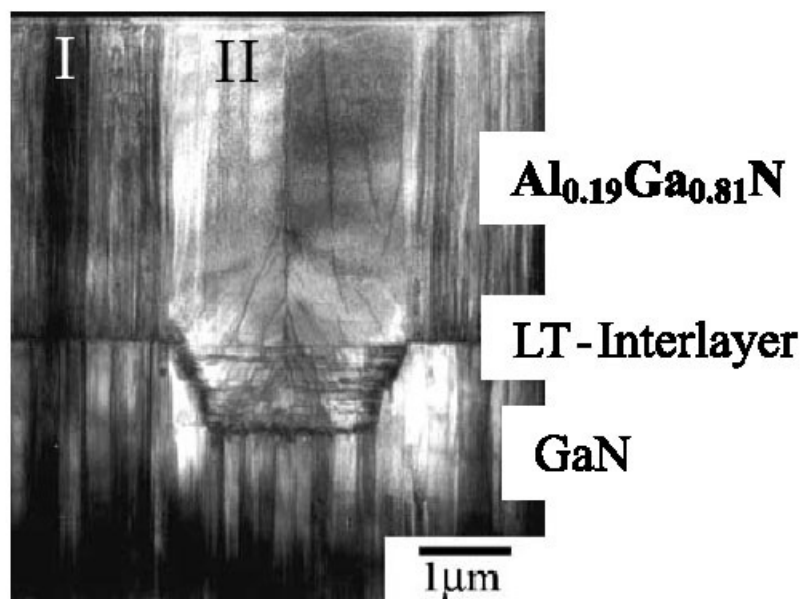


Figure 2-15 : image MET d'un film d'(Al,Ga)N épitaxié sur un pseudo-substrat de GaN rainuré, d'après [48]. Au dessus des tranchées de GaN (zone II), la densité de dislocation traversante est plus faible que dans la zone I.

Dans le même ordre d'idée, des substrats rainurés en saphir et SiC ont été utilisés pour la croissance du GaN et de films d'(Al,Ga)N de faible composition en Aluminium [49]. Mais comme on peut le voir sur la Figure 2-16, la faible vitesse de croissance latérale rend difficile la coalescence des bandes d'(Al,Ga)N et l'obtention d'un film lisse. De plus, la densité de dislocations traversantes au dessus des plots du substrat est élevée.

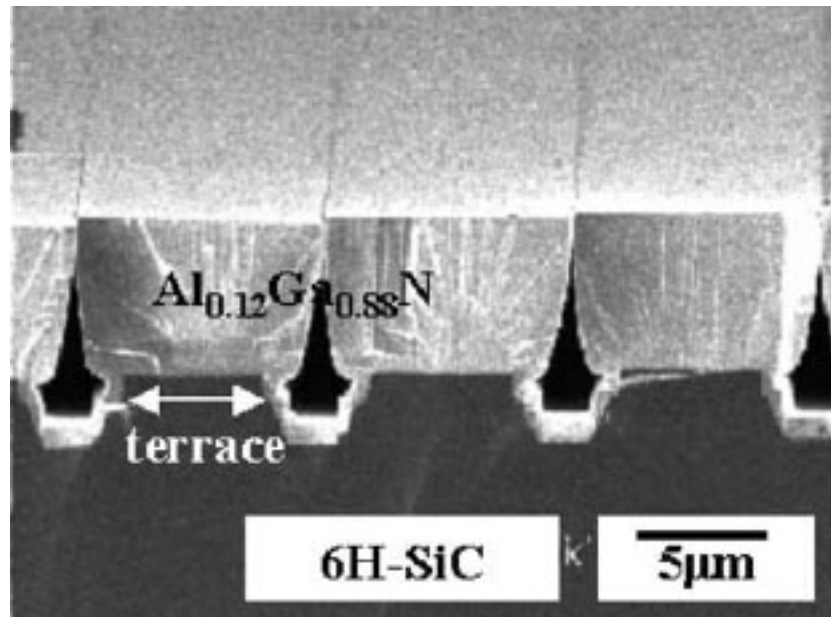


Figure 2-16 : microscopie électronique en balayage d'un film d'(Al,Ga)N épitaxié sur un substrat de SiC rainuré, d'après [49]

2.6. Conclusion

Lors de la croissance de films d'(Al,Ga)N sur des pseudo-substrats de GaN, la relaxation plastique des contraintes fait intervenir la fissuration du film. Or la présence de fissures rend impossible la réalisation de dispositifs optoélectroniques. Les épaisseurs critiques de fissuration sont relativement faibles et ne permettent pas de réaliser des dispositifs comprenant des films épais d'(Al,Ga)N ou des succession de films d'(Al,Ga)N comme c'est le cas pour les diodes électroluminescentes à cavité résonante.

La croissance directe d'(Al,Ga)N sur saphir ou l'insertion de couches intermédiaires se traduisent par des densités élevées de dislocations traversantes. Les performances des dispositifs sont alors fortement diminuées.

Ce constat nous a poussé à imaginer une méthode de croissance permettant de relaxer la contrainte d'épitaxie tout en conservant une densité de dislocations traversantes compatible avec la réalisation de dispositifs optoélectroniques. C'est ce qui va être exposé dans le chapitre suivant.

Références du chapitre :

- 1 B. Gil et O. Briot, Phys. Rev. B **55**, 2530-2534 (1997).
- 2 M. Leroux, Hamiltonien de Hopfield et effets de contrainte hétéroépitaxiale (0001) dans les wurtzites, document interne, CRHEA, Valbonne (2000).
- 3 S.J. Rosner, E.C. Carr, M.J. Ludowise et al., Appl. Phys. Lett. **70**, 420-422 (1997).
- 4 M. Leroux, N. Grandjean, B. Beaumont et al., J. Appl. Phys. **86**, 3721-3728 (1999).
- 5 X.A. Cao, J.A. Teetsov, F. Shahedipour-Sandvik et S.D. Arthur, J. Crystal Growth **264**, 172-177 (2004).
- 6 M. Takeya, T. Mizuno, T. sasaki et al., Phys. Stat. Sol. C **7**, 2292-2295 (2003).
- 7 B. Damilano, Nanostructures (Ga,In,Al)N : croissance par épitaxie sous jets moléculaires, propriétés optiques, application aux diodes électroluminescentes, thèse de doctorat, Université de Nice-Sophia-Antipolis (2001).
- 8 M. Gherasimova, G. Cui, Z. Ren et al., J. Appl. Phys. **95**, 2921-2923 (2004).
- 9 J.P. Hirth et J. Lothe, *Theory of dislocations*, 2nd édition, Wiley, New-York (1982), p423.
- 10 M. Leroux, les Nitrures d'Elements III, dans *Matériaux semi-conducteurs III-V, II-VI et nitrures pour l'optoélectronique*, édité par G. Roosen, Hermes Science Publications, Paris (2003) p.169-197.
- 11 A. Polian, M. Grimsditch et I. Grzegory, J. Appl. Phys. **79**, 3343-3344 (1996).
- 12 I. Gregory, S. Krukowski, M. Leszczynski et al., High Pressure crystallization of GaN, dans *Nitride Semiconductors Handbook on Materials and Devices*, édité par P. Ruterana, M. Albrecht et J. Neugebauer, Wiley-Vch, Weinheim (2003), p3-43.
- 13 B. Jahnen, M. Albrecht, W. Dorsch et al., Internet J. Nitride Semicond. Res. **3**, 39 (1998).
- 14 S. Srinivasan, L. geng, R. Liu, et al., Appl. Phys. Lett. **83**, 5187-5189 (2003).
- 15 M. Boivin et G. Fantozzi, cours de Mécanique des milieux continus, INSA de Lyon.
- 16 T. Kozawa, T. Kachi, H. Kano et al., J. Appl. Phys. **77**, 4389-4392 (1995).
- 17 P.M. Marcus, Phys. Rev. B **53**, 7460-7465 (1996).
- 18 N. Itoh, J.C. Rhee, T. Kawabata et S. Koike, J. Appl. Phys. **58**, 1828-1837 (1985).
- 19 S. Hearne, E. Chason, J. Han et al., Appl. Phys. Lett. **74**, 356-358 (1999).
- 20 H. Lahreche, Croissance de Nitrures d'éléments III par épitaxie en phase vapeur d'organométalliques sur substrats 6H-SiC et Si(111), thèse de doctorat, I.N.P. de Grenoble (2000).
- 21 S. Einfeldt, M. Dießelberg, H. Heinke et al., J. Appl. Phys. **92**, 118-123 (2002).
- 22 M. Kuball, Surf. Interface analysis **31**, 987-999 (2001).
- 23 M. Laügt, E. Bellet-Amalric, P. Ruterana et F. Omnès, Phys. Stat. Sol. (b) **236**, 729-739 (2003).
- 24 W. Wegscheider et H. Cerva, J. Vac. Sci. Technol. B **11**, 1056-1063 (1993).
- 25 J.W. Matthews et A.E. Blakeslee, J. Cryst. Growth **27**, 118-125 (1974).
- 26 P.M.J. Marée, J.C. Barbour, J.F. Van der Veen et al., J. Appl. Phys. **62**, 4413-4420 (1987).
- 27 J.P. Hirth et J. Lothe, *Theory of dislocations* 2nd édition, p. 161, Wiley, New-York (1982).
- 28 J.P. Hirth et J. Lothe, *Theory of dislocations* 2nd édition, p. 459, Wiley, New-York (1982).
- 29 H.D. Dietze, Z. Phys. **132**, 107 (1952) citée dans Chidambarrao et al. Appl. Phys. Lett. **57**, 1001-1003 (1990).
- 30 J.P. Hirth et J. Lothe, *Theory of dislocations* 2nd édition, p. 91, Wiley, New-York (1982).
- 31 E. Feltn, Hétéro-épitaxie de nitrure de gallium sur substrat de silicium (111) et applications, thèse de doctorat, Univ. Nice Sophia-Antipolis (2002).
- 32 J. Yamamoto, M. Kurimoto, M. Shibara et al., J. Crystal Growth **189**, 193-196 (1998).
- 33 S.J. Hearne, J. Han, S.R. Lee et al., Appl. Phys. Lett. **76**, 1534-1536 (2000).
- 34 S. Terao, M. Iwaya, R. Nakamura et al., Jpn. J. Appl. Phys. **40**, L195-L197 (2001).
- 35 S. Einfeldt, V. Kirchner, H. Heinke et al., J. Appl. Phys. **88**, 7029-7036 (2000).
- 36 J.W. Hutchinson et Z. Suo, Adv. Appl. Mech **29**, 62 (1992).
- 37 S.C. Jain, H.E. Maes et K. Pinardi, Thin Solid Films **292**, 218-226 (1997).
- 38 J.E. Northrup et J. Neugebauer, Phys. Rev. B **53**, R10477-R10480 (1996).
- 39 J.E. Northrup et R. DiFelice, Phys. Rev. B **55**, 13878-13883 (1997).
- 40 S. Einfeldt, T. Böttcher, S. Figge et D. Hommel, J. Crystal Growth **230**, 357-360 (2001).
- 41 G. Steude, B. K. Meyer, A. Göldner et al., Jpn. J. Appl. Phys., **38**, L498-L500 (1999).
- 42 E.V. Etzkorn et D.R. Clarke J. Appl. Phys. **89**, 1025-1034 (2001).
- 43 W. Kim, E.J. Stofko, P.J. Zanzucchi et al., J. Appl. Phys. **44**, 292-296 (1973).
- 44 S. Kamiyama, M. Iwaya, N. Hayashi et al., J. Cryt. Growth **223**, 83-91 (2001).
- 45 Y. Kato, S. Kitamura, K. Hiramatsu et N. Sawaki, J. Cryst. Growth **144**, 133-140 (1994).
- 46 I.H. Lee, T.G. Kim et Y. Park, J. Crystal Growth **234**, 305-310 (2002).
- 47 A. Bourret, C. Adelmann, B. Daudin et al., Phys. Rev. B **63**, 245307, 1-13 (2001).
- 48 H. Amano et I. Akasaki, Optical Materials **19**, 219-222 (2002).
- 49 S. Mochizuki, T. Detchprohm, S. Sano et al., J. Cryst. Growth **237**, 1065-1069 (2002).

3. Croissance de pseudo-substrats d'(Al,Ga)N

L'hétéroépitaxie, inhérente à la croissance des nitrures d'éléments III, rend délicate l'obtention de films d'(Al,Ga)N de bonne qualité. Nous sommes généralement confrontés au dilemme : fissures ou dislocations. Or la fissuration est incompatible avec la réalisation de diodes électroluminescentes et une densité élevée de dislocations traversantes nuit à leurs performances.

Nous proposons une méthode alternative pour la croissance de films d'(Al,Ga)N. Elle repose sur la croissance latérale de l'(Al,Ga)N qui devrait permettre de retrouver une surface lisse après la fissuration du film et sa relaxation via l'introduction de dislocations d'interface. On suppose que cette méthode permettra d'obtenir un film relaxé de bonne qualité bien qu'elle fasse intervenir des mécanismes de relaxation a priori néfastes (fissuration et dislocations).

3.1. Description expérimentale

La croissance de nitrures d'éléments III sur saphir ne permet d'obtenir une densité de dislocations traversantes inférieure à $5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ que pour les films de GaN. Nous avons donc systématiquement réalisé la croissance d'un film de GaN avant celle de l'(Al,Ga)N. Ce film de GaN est relativement épais (2 μm), relaxé, lisse et de bonne qualité. Il sera appelé pseudo-substrat. Dans un premier temps, les caractéristiques du pseudo-substrat de GaN seront présentées. Puis nous évoquerons la croissance du film d'(Al,Ga)N et présenterons les résultats obtenus sur une structure (Al,Ga)N / GaN / saphir comprenant un film de 6 μm d'épaisseur d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ épitaxié sur un pseudo-substrat de GaN.

3.1.1. Le pseudo-substrat de GaN

Le nitrure de gallium présente un important désaccord de maille avec le saphir (environ 14%). De ce fait, sa croissance nécessite le dépôt à basse température d'une couche de nucléation soit en AlN [1, 2] soit en GaN [3]. La couche de nucléation est généralement de qualité cristallographique médiocre mais elle permet de relaxer très rapidement la contrainte d'épitaxie via l'introduction de dislocations à l'interface nitrure/saphir [4,5]. Suivant les procédures utilisées, la croissance sera entièrement bidimensionnelle ou, au contraire, dans les premiers stades, la croissance tridimensionnelle (3D) sera favorisée [6]. Quoi qu'il en soit, la croissance fera intervenir plusieurs étapes, à savoir la nitruration du saphir, le dépôt d'une

couche de nucléation à basse température, suivi d'un traitement thermique puis de la croissance à haute température.

Afin d'obtenir une densité de dislocations relativement faible, le traitement Si/N a été utilisé car il permet de favoriser le mode de croissance 3D [7,8]. Lors de ce procédé, l'exposition au silane avant le dépôt de la couche de nucléation permet d'influencer la morphologie de cette couche. La couche de nucléation élaborée à basse température, qui est lisse et couvre tout le substrat, forme ensuite des îlots dispersés lorsque la température est augmentée. Pendant la deuxième phase de croissance, les îlots grossissent et finissent par coalescer. Pour la durée du traitement Si/N adoptée dans ce mémoire, les films de GaN redeviennent lisses à partir d'une épaisseur d'environ 1 μm . La Figure 3-1 illustre la courbe de réflectivité obtenue lors de la croissance d'un film de GaN. La première phase correspond à la nitruration du saphir et au traitement Si/N, la deuxième à la croissance de la couche tampon à 580 °C. La troisième phase montre la croissance à haute température, avec la coalescence des îlots qui s'accompagne d'une augmentation d'amplitude de la réflectivité. Une fois le film redevenu lisse, la réflectivité oscille entre 8% et 27% qui sont les valeurs attendues.

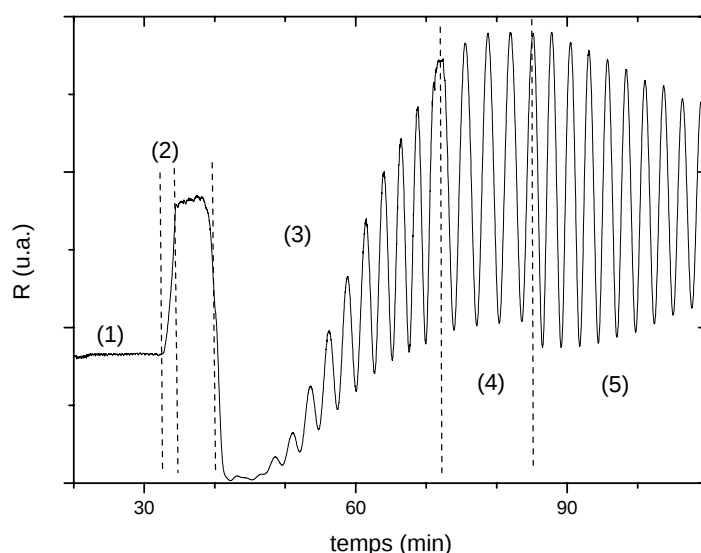


Figure 3-1 : courbe de réflectivité in-situ ($\lambda=543$ nm) : phases (1) à (4) croissance de GaN avec traitement Si/N ; phase (5) croissance d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$.

La densité de dislocations traversantes sur les films de GaN ainsi obtenus est comprise entre 2 et $6 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ (cf Figure 3-2). L'observation par microscopie électronique en

transmission a permis de déterminer les proportions des différents types de dislocations : il y a à peu près le même nombre de dislocations de type a et de type a+c, et très peu de dislocations de type c. La largeur à mi-hauteur des spectres de DRX enregistrés sur le pic (0002), varie de 310 à 380 arcsec. La déformation dans le plan de croissance est de l'ordre de $-1,5 \times 10^{-3}$ à température ambiante. La déformation à température de croissance peut donc être estimée à environ 5×10^{-4} .

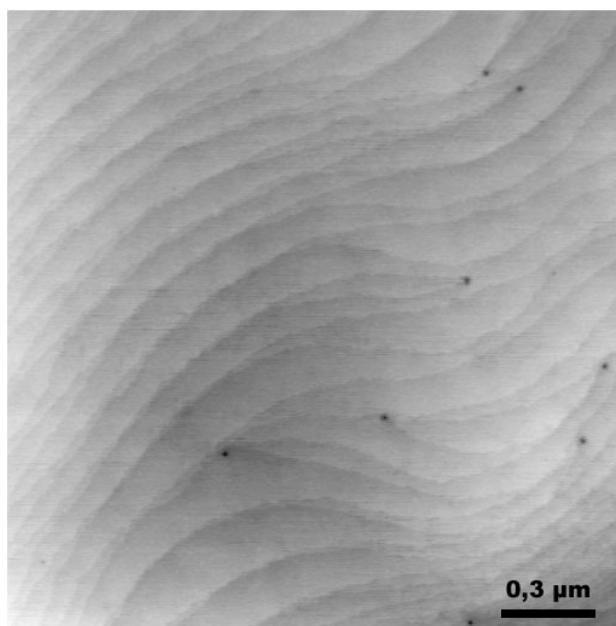


Figure 3-2 : microscopie à force atomique d'un film de GaN obtenu par le traitement Si/N

3.1.2. Croissance de l' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$

Lors de la croissance par épitaxie en phase vapeur à base d'organométalliques (EPVOM), les différents paramètres dont nous disposons sont la température, la pression et les débits des différents gaz.

Du fait de la forte réactivité de l'Aluminium, la température doit être relativement élevée afin de réduire la présence d'oxygène en phase vapeur. De plus, la pression du réacteur doit être relativement basse afin d'éviter les réactions parasites en phase gazeuse [9,10]. Pour la croissance de l'(Al,Ga)N, nous avons donc utilisé une température de croissance de 1100°C et une pression dans le réacteur de 300 mbar. Dans ces conditions et pour la gamme de composition en Aluminium adoptée dans ce mémoire, la composition en phase solide a une dépendance quasiment linéaire avec celle en phase vapeur [8]. La vitesse de croissance de l'(Al,Ga)N pour les films présentés dans cette étude varie de 1,5 à 2,6 $\mu\text{m.h}^{-1}$.

Pour les films d'(Al,Ga)N épais, nous avons observé une diminution de l'amplitude des oscillations de la réflectivité in-situ (Figure 3-3). Cette diminution apparaît aussi lors de la croissance de film épais de GaN. Elle est probablement due à l'absorption optique dans les films épitaxiés.

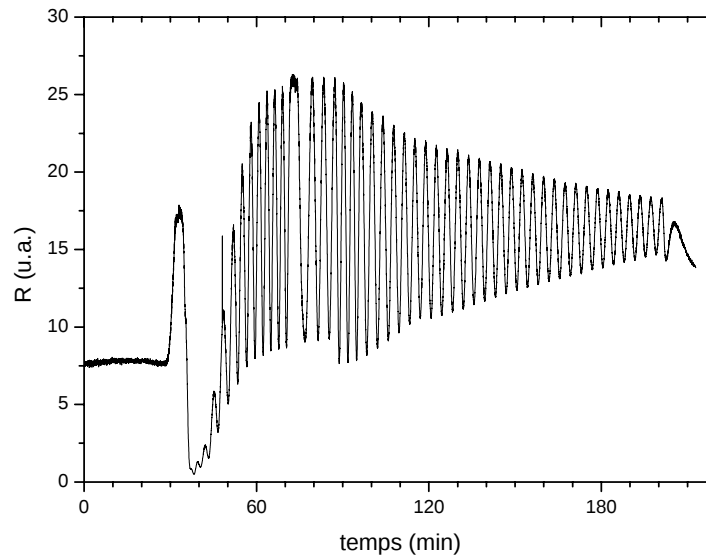


Figure 3-3 : courbe de réflectivité in-situ obtenue lors de la croissance d'un film épais d'(Al,Ga)N sur un pseudo-substrat de GaN.

3.1.3. Caractérisations du film d'(Al,Ga)N

A titre d'exemples, les caractérisations réalisées sur un film d'(Al,Ga)N dont la composition en Aluminium est de 20% et l'épaisseur de $6\mu\text{m}$, sont détaillées. Etant donné que l'épaisseur de ce film est très supérieure à l'épaisseur critique de fissuration, le film aurait dû être fissuré. Pourtant, son observation en microscopie électronique à balayage a montré que la surface de l'échantillon ne présentait pas de fissure (cf Figure 3-4a). En observant à l'aide d'un microscope optique, il est toutefois possible de déceler un réseau de fissures en opérant la focalisation en dessous de la surface (cf Figure 3-4b). Le film présente donc des fissures enterrées. La fissuration est donc bien intervenue lors de la croissance de l'(Al,Ga)N puis l'épaississement du film a permis de cicatriser les fissures et d'obtenir une surface lisse.

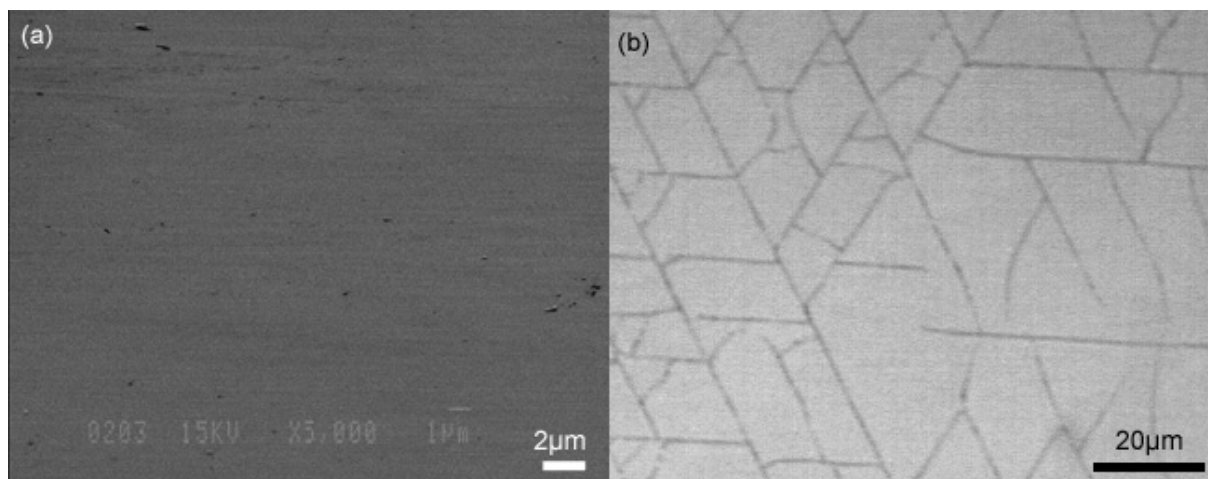


Figure 3-4 : (a) microscopie électronique à balayage et (b) microscopie optique focalisée sous la surface d'un échantillon d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ de $6\mu\text{m}$ d'épaisseur.

La densité de dislocations traversantes mesurée sur ce film est de $6 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$. Cette valeur est comparable aux densités de dislocations traversantes mesurées sur les films de GaN obtenus par le traitement Si/N standard (de 3 à $6 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$). Elle est inférieure d'une décade par rapport aux meilleurs résultats reportés pour des films d' $(\text{Al,Ga})\text{N}$ épais, de même composition et non fissurés [11]. La morphologie de la surface est tout à fait similaire à celle des films de GaN épitaxiés par EPVOM. On peut notamment distinguer très clairement les marches atomiques sur la Figure 3-5. La valeur de la rugosité mesurée sur une surface de $15 \times 15 \mu\text{m}^2$ est inférieure à 1 nm , ce qui est faible pour un film de nitrure.

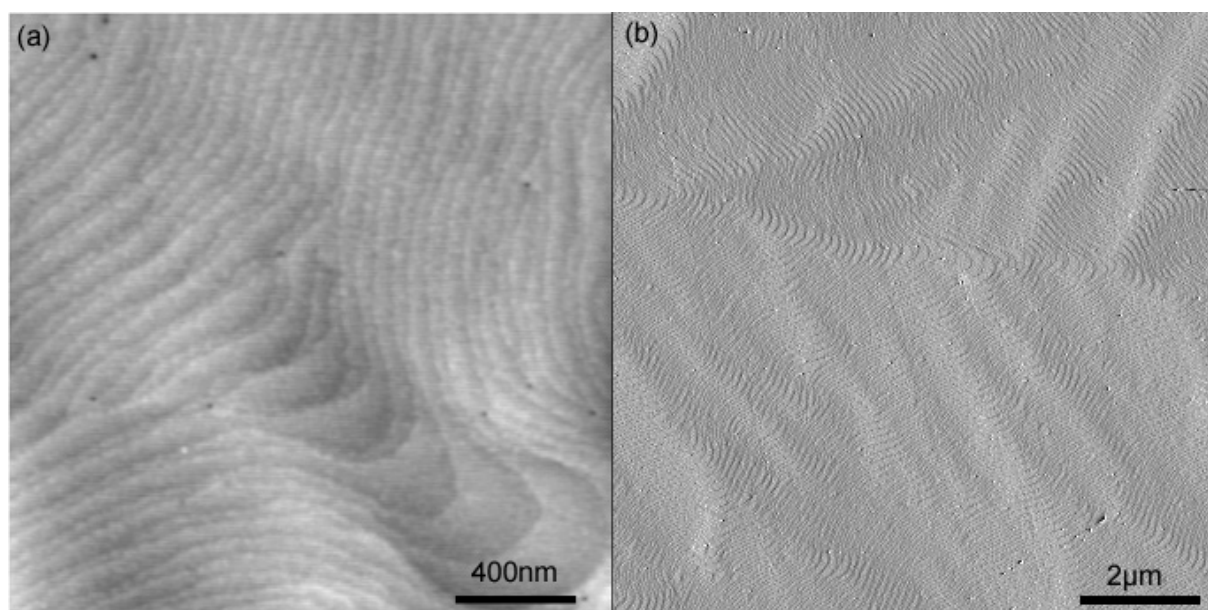


Figure 3-5 : microscopies à force atomique d'un échantillon d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ de $6\mu\text{m}$ d'épaisseur épitaxié sur un pseudo-substrat de GaN : (a) image topologique (b) image de la dérivée.

La diffraction de rayons X a permis de déterminer une déformation dans le plan de $-1,6 \times 10^{-3}$ (i.e. en compression). Le taux de relaxation correspondant peut être estimé à environ 96 %. Le film est donc quasiment relaxé à température de croissance. La Figure 3-6 présente le spectre DRX obtenu autour de la raie symétrique (0002). L'épaule vers les faibles valeurs de ω est dû au film de GaN sous-jacent. La largeur à mi-hauteur du pic relatif à l'(Al,Ga)N est de 320 arcsec. Celle du pic asymétrique ($\bar{1}015$) est de 400 arsec. La qualité cristallographique de l'(Al,Ga)N épitaxié suivant cette technique est donc très bonne, et tout à fait comparable à celle du GaN.

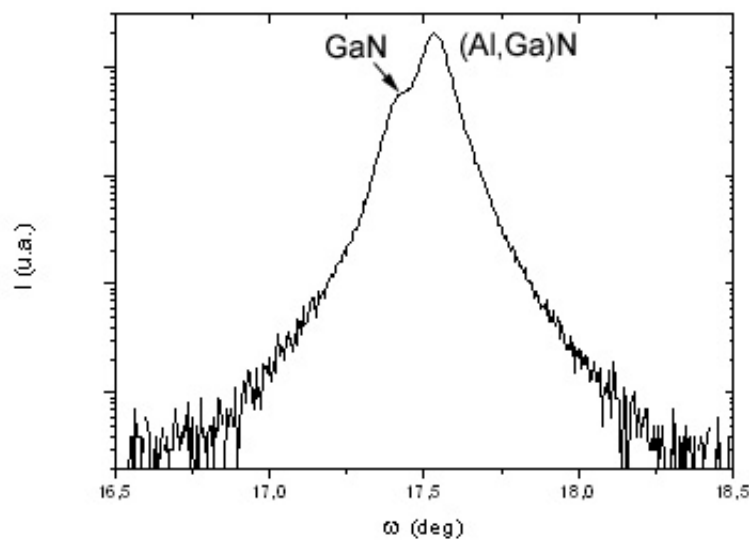


Figure 3-6 : balayage en $\omega/2\theta$ du pic (0002) par DRX d'un échantillon d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ de $6\mu\text{m}$ d'épaisseur épitaxié sur un pseudo-substrat de GaN .

L'observation par microscopie électronique en transmission a permis de localiser les fissures enterrées (cf Figure 3-7). Celles-ci sont allongées verticalement. Elles sont situées à proximité de l'interface (Al,Ga)N / GaN et s'étendent essentiellement dans le film de GaN. Leur profondeur varie de 200 nm à $1,2\mu\text{m}$ et leur largeur va jusqu'à 100 nm. Toutefois il faut noter que les images par MET sont obtenues après amincissement ionique. La forme des fissures enterrées a donc pu être altérée durant la préparation des échantillons MET. Nous avons tout de même pu vérifier que les fissures enterrées s'étendent dans les directions $\langle 11\bar{2}0 \rangle$, ce qui est en accord avec les observations en vue plane par microscopie optique (cf Figure 3-4).

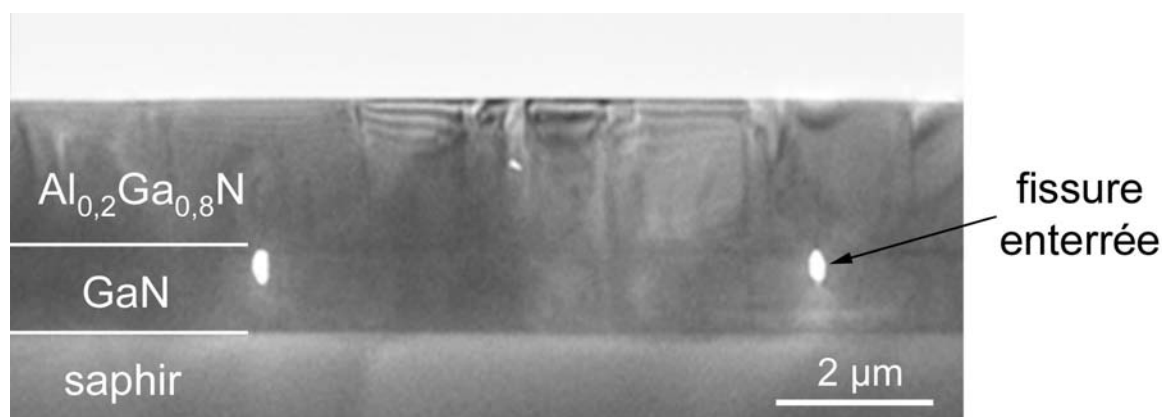


Figure 3-7 : image MET en section transverse à faible grandissement d'un film d' $\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{N}$ de $6\mu\text{m}$ d'épaisseur épitaxié sur GaN sur saphir. L'axe de zone $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ correspond à la direction des fissures enterrées.

A grandissement plus important, des dislocations peuvent être observées non seulement à l'interface (Al,Ga)N/GaN mais aussi dans le film de GaN en dessous de l'interface, à hauteur des fissures (cf Figure 3-8). Ces dislocations ont donc pu permettre de relaxer le film d'(Al,Ga)N. Elles sont éteintes dans les champs sombres (0002) indiquant qu'elles n'ont pas de composante c . A priori, leur vecteur de Burgers est donc $\frac{1}{3}\langle 11\bar{2}0 \rangle$, ce que nous avons vérifié ultérieurement sur des images en vue plane.

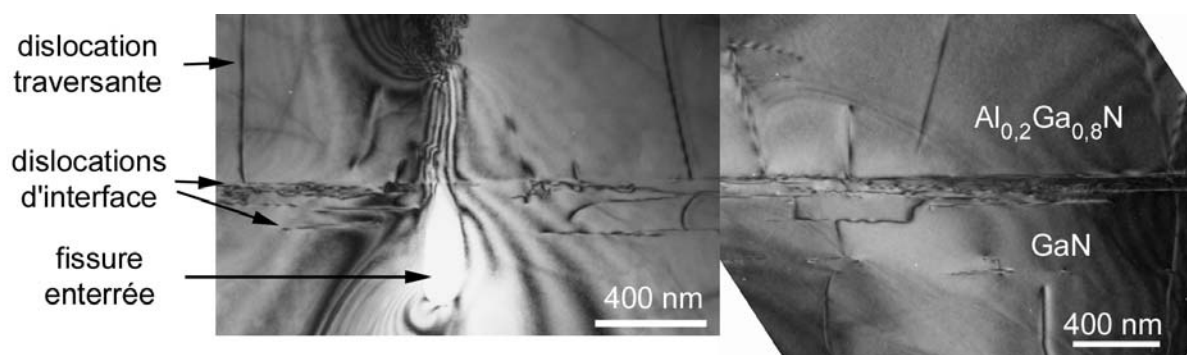


Figure 3-8 : images MET en section transverse d'un film d' $\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{N}$ épitaxié sur GaN sur saphir ; champ clair en condition 2 ondes $g = (11\bar{2}0)$.

Sur certains clichés, nous avons pu compter les dislocations parallèles à l'axe de zone $[11\bar{2}0]$: ces dislocations apparaissent donc sous forme d'un point sur l'image. Leur densité (λ) est estimée grossièrement à $1,4 \times 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$. À partir de cette valeur, en supposant que la direction de leur vecteur de Burgers est à 60° de leur ligne et en estimant qu'elles représentent un tiers des dislocations d'interface (3 directions $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ équivalentes), on obtient la

déformation équivalente : $\Delta\varepsilon_D = \frac{3}{2}\lambda \times a \frac{\sqrt{3}}{2} \approx 5,8 \times 10^{-3}$. Cette estimation est légèrement supérieure à la déformation due au désaccord de maille de l' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ épitaxié sur GaN. Ainsi, il semble clair que ce sont les dislocations d'interface qui ont permis de relaxer la contrainte d'épitaxie.

La densité de dislocations traversantes entre les fissures enterrées est comparable dans le film de GaN et celui d' $(\text{Al,Ga})\text{N}$. Seules quelques dislocations traversantes partent des zones à la verticale des fissures enterrées (cf Figure 3-9). Mais au final en tenant compte de l'espacement entre fissures et d'une épaisseur de 100 nm pour l'échantillon aminci pour l'observation par MET, nous estimons que les dislocations qui y sont générées induisent une augmentation de la densité de dislocations traversantes de 2 à $3 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$. Malgré cette légère augmentation, la densité finale de dislocations traversantes ($6 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$) est tout à fait acceptable pour l'élaboration de diodes électroluminescentes. Elle est inférieure d'un ordre de grandeur aux meilleures valeurs reportées pour des films d' $(\text{Al,Ga})\text{N}$. Ce résultat représente donc l'état de l'art pour la croissance d' $(\text{Al,Ga})\text{N}$.

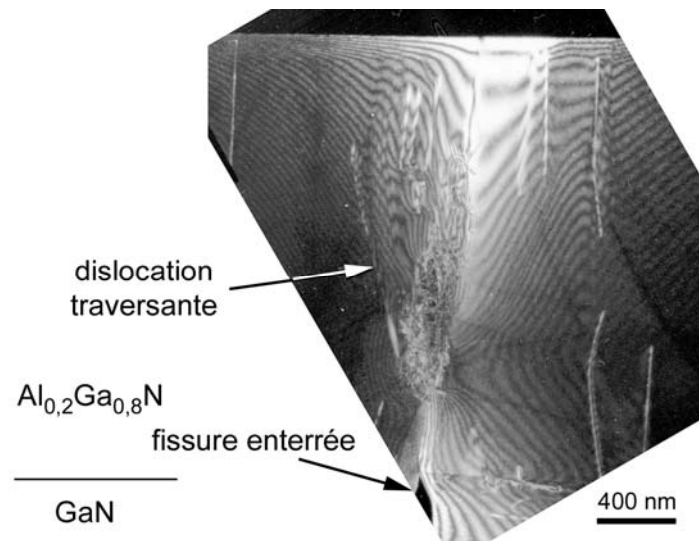


Figure 3-9 : image MET en section transverse d'un film d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ épitaxié sur GaN sur saphir : des dislocations traversantes peuvent être observées à la verticale des fissures enterrées ; champ sombre $g = (11\bar{2}0)$.

La Figure 3-10 présente des spectres EDX réalisées à la verticale d'une fissure enterrée et dans le volume du film d' $(\text{Al,Ga})\text{N}$. Une quantification précise de la composition en Aluminium n'a pas été possible du fait de la largeur de la zone sondée. Néanmoins, il apparaît clairement que la composition en Aluminium à la verticale des fissures enterrées est inférieure à celle présente dans le reste de la couche d' $(\text{Al,Ga})\text{N}$. Il y a donc eu probablement

un transport de masse. Cela a dû permettre de former les cavités dans le GaN et favoriser la cicatrisation des fissures de l'(Al,Ga)N.

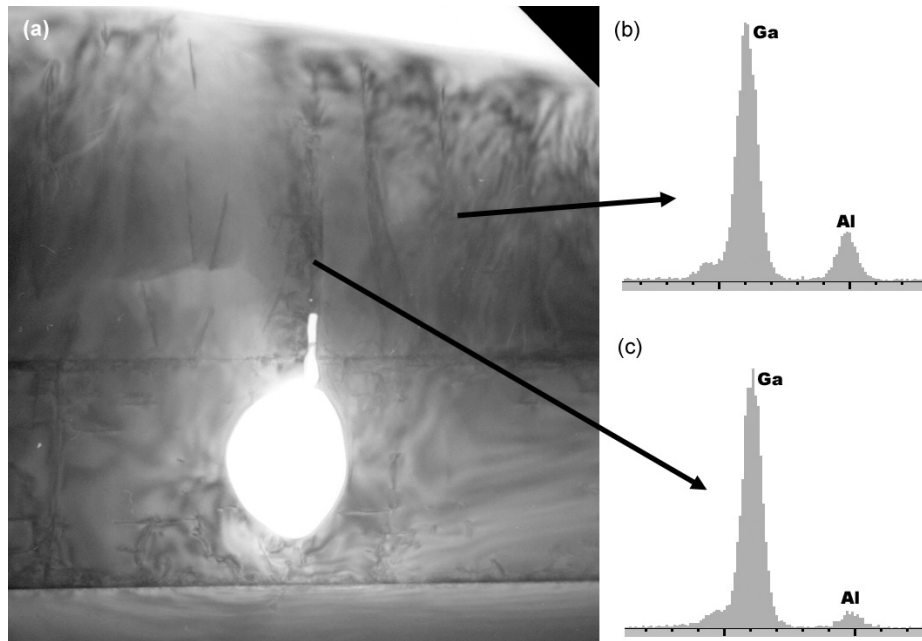


Figure 3-10 : image MET en section transverse d'un film d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ épitaxié sur GaN sur saphir (a) et spectres EDX enregistrés dans la matrice d'(Al,Ga)N (b) et à la verticale d'une fissure enterrée (c) : la composition en Aluminium à la verticale des fissures enterrées est inférieure à la composition nominale du film d'(Al,Ga)N.

3.2. Mécanismes de la relaxation

La croissance d'un film épais d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ a permis de vérifier qu'il était possible d'obtenir un film lisse d'(Al,Ga)N relaxé et de bonne qualité. Dans ce film, des fissures enterrées et des dislocations d'interface ont été observées. Les fissures enterrées s'étendent verticalement au dessous de l'interface (Al,Ga)N/GaN. Certaines dislocations d'interface se trouvent dans le film sous-jacent de GaN à hauteur des fissures enterrées. La densité des dislocations d'interface permet de rendre compte de la relaxation de l'(Al,Ga)N.

Au vu de ces observations, nous proposons un scénario pour expliquer la relaxation des contraintes dont nous allons détailler chaque étape. Il comprend :

- la fissuration du film d'(Al,Ga)N,
- l'introduction de dislocations d'interface,
- la propagation des fissures au GaN,
- l'achèvement de la relaxation,
- et la cicatrisation des fissures.

3.2.1. Fissuration de l'(Al,Ga)N

Étant donné qu'aucune couche intermédiaire n'est insérée avant la croissance de l'(Al,Ga)N, celui-ci fissure rapidement. La fissuration des films d'(Al,Ga)N épitaxié sur GaN a été détaillée dans la partie 2.4. Pour de l' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ épitaxié sur GaN, l'épaisseur critique de fissuration que nous avons mesurée est comprise entre 150 et 200 nm. Le taux de relaxation calculé à partir de la distance entre fissures est faible. Pour des films dont l'épaisseur d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ est inférieure à 350 nm, ce taux est inférieur à 3%.

3.2.2. Introduction de dislocations d'interface

Une fois que des surfaces prismatiques ont été créées par la fissuration, des dislocations d'interface peuvent être introduites. Elles ont comme vecteur de Burgers $\frac{1}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$ et glissent dans le plan de base. Ces dislocations sont celles qui ont la plus faible énergie de ligne car celle-ci est proportionnelle au carré de la longueur du vecteur de Burgers. L'énergie de Peierls correspondant à ce système de glissement est une des plus faibles (cf §2.3.2). La nucléation des dislocations d'interface peut s'opérer par l'extension de demi-boucles. À la différence du mécanisme de Matthews-Blakeslee où les demi-boucles de dislocations glissent sur des plans inclinés, ici les dislocations sont beaucoup plus efficaces pour relaxer la contrainte d'épitaxie dans la mesure où la relaxation s'opère sur l'intégralité de l'épaisseur du film d'(Al,Ga)N.

L'introduction de dislocations d'interface permet de réduire la tension du film d'(Al,Ga)N. Nous avons d'ailleurs vérifié que la densité de ces dislocations permettait de rendre compte de la relaxation totale du film d'(Al,Ga)N. La diminution de la tension de l'(Al,Ga)N s'assortit de la contraction des surfaces d'(Al,Ga)N comprises entre les fissures. Autrement dit, l'introduction de dislocations d'interface entraîne l'écartement des bords des fissures, comme nous l'avons schématisé sur la Figure 3-11. D'une façon générale, la déformation correspond au rapport de l'allongement sur la longueur. Dans le cas présent, nous

avons donc $\Delta\varepsilon = g \frac{\delta_c}{W_c}$ où δ_c représente l'écartement entre les bords des fissures, W_c

l'espacement moyen entre fissures parallèles, le facteur $g=1,5$ venant de la symétrie d'ordre 3 du réseau de fissures. On peut donc estimer l'espace laissé entre les bords des fissures par :

$\delta_c = \frac{W_c \times \Delta\varepsilon_D}{g}$. Pour une distance moyenne entre fissures de 15 μm , l'espacement entre les

flancs d'une fissure peut être estimé à 50 nm lors de la relaxation totale de l' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$

($\Delta\epsilon_D = 5 \times 10^{-3}$). Cette valeur est comparable à la largeur des fissures enterrées observées par MET.

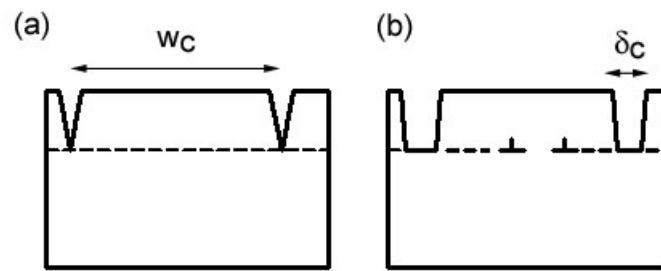


Figure 3-11 : illustration de la géométrie de fissures avant (a) et après (b) l'introduction de dislocations d'interface : la relaxation du film d'(Al,Ga)N provoque l'espacement des flancs des fissures.

3.2.3. Propagation des fissures au GaN

La présence de fissures enterrées dans le film de GaN ne peut s'expliquer a priori que par la présence d'une contrainte en extension dans le GaN. Or, même si la croissance de GaN a tendance à faire apparaître une légère tension du fait de la coalescence des îlots, celle-ci ne provoque la fissuration des films qu'au-delà de plusieurs dizaines de micromètres [12]. D'autre part, il a été reporté que la croissance d'(Al,Ga)N sur GaN induisait la mise en compression du film sous-jacent de GaN [13], conformément au modèle élastique bicouche que nous avons introduit dans la section 2.2.4.

Récemment, pour expliquer la propagation des fissures dans les substrats, un modèle a été développé par Zhang et al. [14]. Dans ce modèle, il est fait l'hypothèse qu'aucune contrainte n'est présente dans le substrat. La prise en compte de la propagation des fissures au substrat se traduit par une légère modification du facteur géométrique Z . Il vaut alors $Z=2,0756$. D'après ce modèle, l'épaisseur critique est donc un peu plus faible que celle que nous avons reportée au chapitre 2.4 (4,8% plus faible). Et la profondeur des fissures vaut 1,2 fois l'épaisseur du film épitaxié. Lors de la fissuration, l'épaisseur du film d'(Al,Ga)N est de l'ordre de 200 nm. Les fissures ne devraient donc pas s'étendre au-delà de 40nm au-dessous de l'interface (Al,Ga)N/GaN. La prise en compte de la compression induite sur le film de GaN par la croissance de l'(Al,Ga)N réduirait encore la profondeur des fissures. Or ce n'est pas ce qui est observé : certaines fissures enterrées s'étendent verticalement sur toute l'épaisseur du GaN. L'hypothèse la plus vraisemblable est que la fissuration proviendrait de la discontinuité du champ de contraintes dans le GaN à l'aplomb des fissures.

Des études par éléments finis ont montré que la présence de films contraints, lorsque ces derniers étaient structurés latéralement, générant des contraintes dans le substrat. C'est notamment le cas lors de l'épitaxie locale d'hétérostructures et lors du refroidissement après un dépôt effectué à haute température. Les résultats reportés par Jain et al sur des bandes de SiGe épitaxiées sur un substrat de silicium [15] peuvent dans une certaine mesure être transposés à notre étude. En effet, le rapport des modules d'élasticité entre le matériau constituant les bandes et le substrat sont voisins dans ces deux cas. Il est de 0,9 dans la plupart des simulations effectuées par Jain et al, alors qu'il vaut 1 dans notre cas. La structure simulée consiste en une bande de largeur $2L$ et d'épaisseur h , déposée sur un substrat semi-infini. Pour un film couvrant entièrement le substrat, la contrainte du film serait σ_0 (assimilable à la contrainte d'épitaxie).

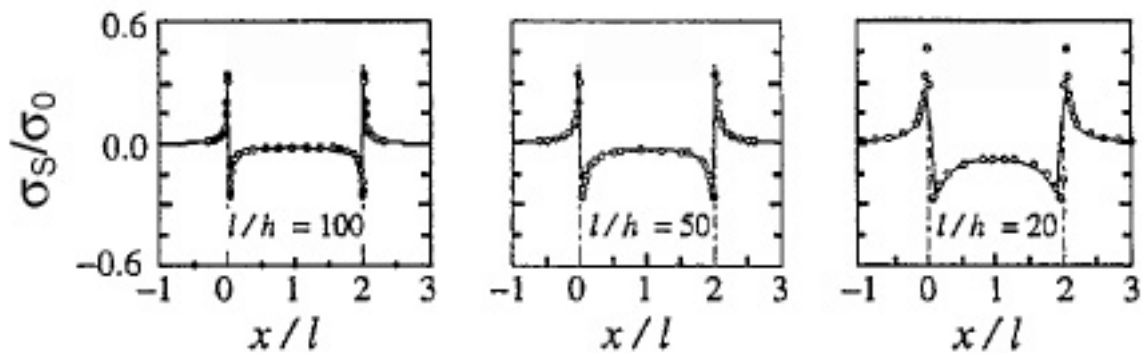


Figure 3-12 : contrainte dans le substrat d'après [15] lors du dépôt d'une bande contrainte ; la bande a une épaisseur h et une largeur $2L$; elle se situe entre $x=0$ et $x=2L$; σ_0 représente la contrainte d'épitaxie. Par analogie avec les films fissurés d'(Al,Ga)N illustrés sur la Figure 3-11, il est vraisemblable que la contrainte dans le GaN présente une discontinuité au niveau des fissures. Elle passe notamment de la compression à la tension. D'après ces calculs, la tension du GaN sous l'ouverture laissée par les fissures serait de l'ordre de la moitié de la contrainte présente dans le film d'(Al,Ga)N.

La contrainte présente dans le substrat (cf Figure 3-12) est relativement faible sous la bande. Mais elle présente une discontinuité au niveau des bords de la bande. Elle passe notamment de la compression sous les bandes à la tension entre les bandes (en prenant $\sigma_0 > 0$). Le maximum d'intensité de la contrainte dans le substrat est d'environ la moitié de la contrainte présente dans la bande. Maintenant si au lieu d'une bande, on considère deux bandes légèrement séparées (comme c'est le cas pour nos films fissurés), il faut superposer la contribution de chacune des bandes. De ce fait, nous pouvons estimer que la contrainte présente dans le GaN sous l'ouverture laissée par les fissures, est comparable à la contrainte présente dans le film d'(Al,Ga)N avant que les fissures ne se propagent au GaN.

Nous avons expliqué précédemment que l'ouverture des fissures était induite par l'introduction de dislocations à l'interface (Al,Ga)N/GaN. Celles-ci opérant une relaxation partielle des contraintes, la contrainte σ_0 qu'il faut considérer est donc plus faible que la contrainte initiale due à l'épitaxie. Nous avons vu que le réseau de fissures n'évoluait plus à partir d'une épaisseur d'(Al,Ga)N d'environ 500 nm alors que pour cette épaisseur le taux de relaxation est inférieur à 50% (cf paragraphe 2.4). La contrainte en tension dans le GaN doit donc être au moins égale à la moitié de la contrainte d'épitaxie. Or, l'épaisseur du pseudo-substrat de GaN ($\sim 2 \mu\text{m}$) est beaucoup plus grande que l'épaisseur critique de fissuration de l' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ ($\sim 0,2 \mu\text{m}$). La propagation des fissures au GaN peut donc être expliquée par la contrainte en extension du GaN sous les ouvertures laissées par l'écartement des flancs de fissures.

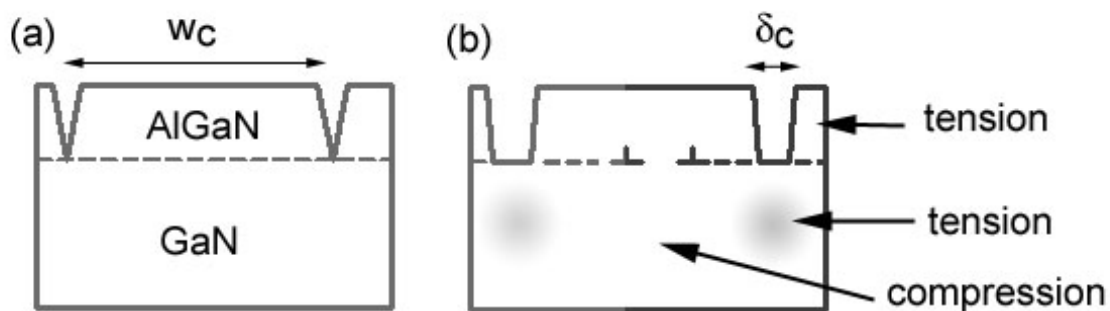


Figure 3-13 : illustration des contraintes présentes dans les films fissurés (Al,Ga)N/GaN : après la relaxation partielle du film d'(Al,Ga)N, une contrainte en tension apparaît dans le film de GaN sous les fissures.

3.2.4. Interactions entre dislocations d'interface

Une fois que les fissures se sont propagées au GaN, des dislocations peuvent être introduites dans le film de GaN et glisser dans le plan de base. Elles permettent de relaxer la contrainte extensive dans le film d'(Al,Ga)Nⁱ. Mais dans le même temps, elles induisent au-dessus de leur ligne une compression dans le GaN. Cela se traduit par une force qui tend à les amener dans l'interface comme nous l'avons déjà mentionné dans le paragraphe 2.3.3.1. La valeur de cette force s'exprime par $F_{misfit} = -M \times \varepsilon \times b_e$ où b_e représente la composante coin du vecteur de Burgers et ε la déformation dans le plan de base présente dans le film de GaN avant l'introduction de la dislocation. Or, des dislocations d'interface ont été observées dans

ⁱ Et si il y a une contrainte résiduelle en tension dans le GaN près de la fissure, la nucléation de ces dislocations peut être favorisée afin de relaxer celle-ci.

le film de GaN. Nous pouvons donc penser qu'une autre force en compensant la force due à la compression du GaN soit responsable de la répartition des dislocations d'interface. Nous avons observé que les dislocations étaient relativement proches. Les forces d'interactions entre dislocations pourraient donc expliquer que des dislocations soient introduites dans le film de GaN.

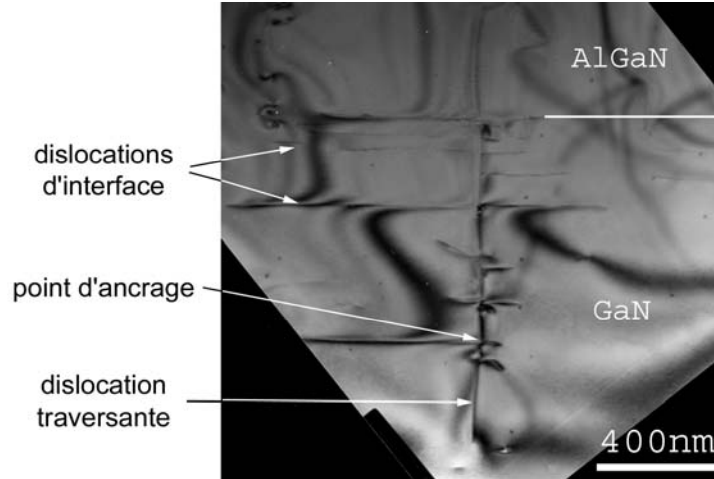


Figure 3-14 : image MET en section transverse d'un film d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ épitaxié sur GaN sur saphir, champ clair $g = (10\bar{1}0)$: de nombreuses dislocations d'interface sont présentes dans le film de GaN en dessous de l'(Al,Ga)N ; de plus on peut observer l'ancrage des dislocations d'interface le long d'une dislocation traversante.

Afin d'estimer la force d'interaction entre dislocations, considérons tout d'abord la force qu'exerce une dislocation d'interface sur une autre dislocation d'interface parallèle. Soient z leur espacement vertical et x leur espacement dans le plan de base. On suppose que l'angle (ϕ) entre le vecteur de Burgers et la ligne est le même pour les deux dislocations. Pour qu'elles puissent contribuer à la relaxation de la contrainte d'épitaxie, il est évident qu'elles doivent avoir des composantes coin de même signe. Par contre, afin de minimiser la répulsion entre elles, leurs composantes vis seront a priori opposées. Dans ces conditions, la force d'interaction entre dislocations d'interface parallèles s'exprime par : [16]

$$\vec{F}_{\text{inter_disloc}} = \frac{b^2}{2\pi} \left[K_e \cdot \sin^2 \phi \frac{z(3x^2 + z^2)}{(x^2 + z^2)^2} - K_s \cdot \cos^2 \phi \frac{z}{x^2 + z^2} \right] \vec{z} + \frac{b^2}{2\pi} \left[K_e \cdot \sin^2 \phi \frac{x(x^2 - z^2)}{(x^2 + z^2)^2} - K_s \cdot \cos^2 \phi \frac{x}{x^2 + z^2} \right] \vec{x}$$

où $\vec{z}$ est un vecteur unitaire porté par l'axe de croissance et $\vec{x}$ un vecteur unitaire contenu dans le plan de base et perpendiculaire à la direction des dislocations. Les valeurs des coefficients énergétiques K ont été données au paragraphe 2.3.2 (les indices e et s

correspondent respectivement aux composantes coin et vis). Pour des dislocations à 60° , la composante coin a beaucoup plus de poids que la composante vis : la prise en compte de l'attraction des composantes vis n'entraîne que 23% de diminution de la force. En première approximation, la contribution des composantes vis à la force d'interaction entre dislocations parallèles sera donc négligée. Pour des dislocations coins alignées verticalementⁱ, la force de

$$\text{répulsion se réduit alors à } F_{\text{inter_disloc}} = \frac{K_e b_e^2}{2\pi} \frac{1}{z}.$$

Ainsi, si une dislocation est présente à l'interface, nous pouvons supposer qu'une deuxième dislocation sera introduite à une distance telle que la force d'interaction entre les dislocations d'une part et la force due à la compression du GaN d'autre part se compensent. Nous pouvons donc estimer l'espacement vertical entre dislocations d'interface à $z^* = \frac{b_e K_e}{2\pi M \varepsilon}$ où ε est la déformation dans le GaN.

Si l'on s'intéresse maintenant à la déformation dans le film de GaN, elle peut être estimée à partir du modèle élastique multicouche (cf §2.2.4). En considérant que la propagation des fissures au GaN se produit pour une épaisseur d'(Al,Ga)N de 400 nm et que le taux de relaxation vaut alors 50%, la déformation du GaN est alors d'environ $\varepsilon_{\text{GaN}} \approx -4 \times 10^{-4}$. La distance verticale entre dislocations vaut alors $z^* \approx 36 \text{ nm}$. La force due à l'interaction entre dislocations étant constante dans toute l'épaisseur du GaN, l'espacement vertical entre dislocations parallèles sera répété à mesure que des dislocations seront introduites plus en profondeur dans le GaN. La distance verticale minimale entre dislocations a été estimée par MET à environ 40 nm verticalement. Un bon accord est donc obtenu entre la valeur expérimentale et l'estimation tenant compte de l'interaction répulsive entre dislocations d'interface. En outre, l'espacement entre dislocations est inversement proportionnel à la déformation. Or, la déformation dans le GaN est très inférieure à celle rencontrée dans l'(Al,Ga)N. Ceci explique que des dislocations d'interface aient été observées dans le film de GaN et non dans celui d'(Al,Ga)N, la force de répulsion entre dislocations et celle due à la contrainte d'épitaxie étant inférieures à celles rencontrées si les dislocations se trouvaient dans le film d'(Al,Ga)N.

Ce paragraphe a donc expliqué comment s'opérait la distribution des dislocations d'interface. On peut donc conclure que pour limiter les interactions entre dislocations d'interface, leur espacement doit être le plus important possible. Pour cela, il faut les

ⁱ On parle alors de « small angle pure tilt boundary »

introduire hors de l'interface dans le matériau le moins contraint, c'est-à-dire dans le film sous-jacent de GaN.

3.2.5. Interaction avec les dislocations traversantes

Le rôle des interactions entre dislocations d'interface ayant été déterminé, il faut maintenant tenir compte de la présence de dislocations traversantes. En effet, une fois que les dislocations d'interfaces auront été nucléées au niveau des fissures, elles vont glisser dans le plan de base afin de relaxer la contrainte d'épitaxie. Lors de leur glissement, elles vont rencontrer des dislocations traversantes. L'effet de leur interception sera plus ou moins important sur la relaxation suivant le type de la dislocation traversante. D'une manière générale, lorsque deux dislocations se croisent, chacune acquiert un décrochement (ou « jog ») correspondant au vecteur de Burgers de l'autre. Leur énergie de création est suffisamment faible pour ne pas avoir d'influence sur la relaxation des contraintes. Cependant si les décrochements produits sur les dislocations d'interface sont hors du plan de croissance, ils limitent leur glissement et peuvent donc freiner la relaxation.

Considérons une dislocation traversante de vecteur de Burgers $b=a$ comme illustré sur la Figure 3-15. Lorsqu'une dislocation d'interface intercepte une dislocation de ce type, le décrochement qui se forme sur la dislocation d'interface est dans le plan de base et ne limite donc pas son glissement. Cependant, pour former le décrochement équivalent sur la dislocation traversante, il faut pouvoir la faire glisser dans la direction du vecteur de Burgers de la dislocation d'interface. Pour ce faire, il faut que les deux dislocations aient des vecteurs de Burgers colinéaires (Figure 3-15 b). Dans les 2/3 des cas, les vecteurs de Burgers ne sont pas colinéaires. Il est probable que la dislocation d'interface s'étende de part et d'autre de la dislocation traversante (Figure 3-15c). On parle alors d'ancrage de dislocations (ou « pinning »).

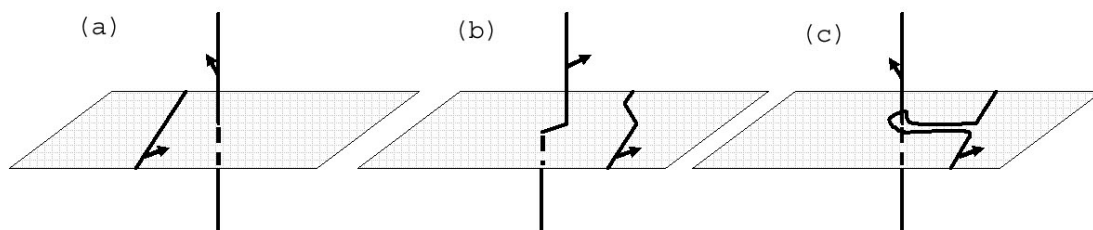


Figure 3-15 : intersection d'une dislocation d'interface avec une dislocation traversante de type a : (a) avant l'intersection, (b) formation de jogs et (c) ancrage de la dislocation d'interface sur la dislocation traversante; les flèches correspondent aux vecteurs de Burgers des dislocations.

Le même processus apparaît lors de l'intersection d'une dislocation d'interface avec une dislocation traversante vis (de type c) ou mixte (a+c). Dans ce cas, c'est la formation du décrochement sur la dislocation d'interface qui est problématique. En effet, ce décrochement ayant une composante suivant l'axe de croissance, sa formation impliquerait le glissement de la dislocation d'interface sur un plan prismatique ; il faudrait alors qu'elle soit vis et elle n'aurait alors aucun effet sur la relaxation de la contrainte d'épitaxie (Figure 3-16b).

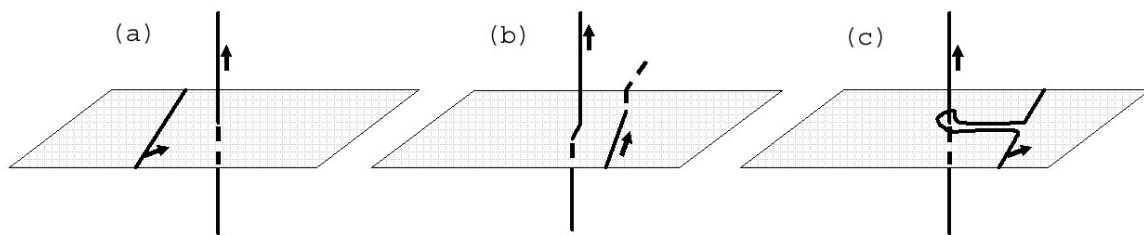


Figure 3-16 : intersection d'une dislocation d'interface avec une dislocation traversante de type c : (a) avant l'intersection (b) formation de jogs (c) ancrage de la dislocation d'interface sur la dislocation traversante.

Il n'est donc pas surprenant d'avoir observé l'ancrage de dislocations d'interface le long d'une dislocation traversante, comme nous l'avons montré sur la Figure 3-14. Il faut toutefois préciser que le blocage des dislocations d'interface au niveau d'une dislocation traversante peut aboutir à la formation d'une boucle autour de la dislocation traversante (cf Figure 3-17). C'est le mécanisme d'Orowan [17]. La dislocation d'interface peut ensuite continuer à glisser.

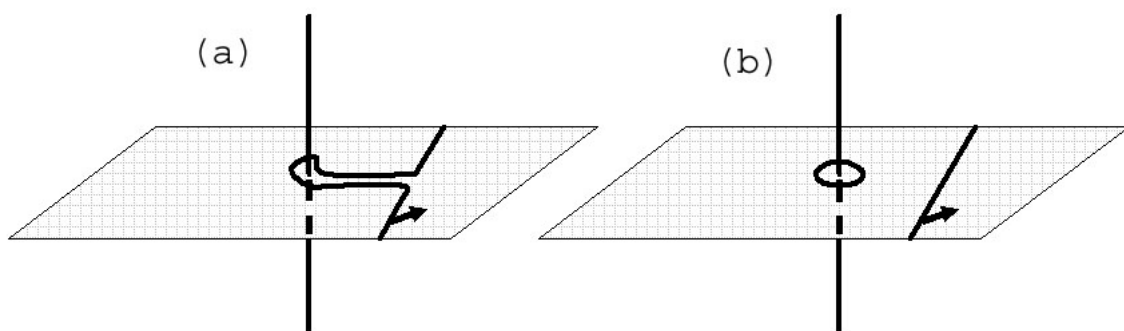


Figure 3-17 : formation d'une boucle de dislocation autour d'une dislocation traversante lors du glissement d'une dislocation d'interface : (a) ancrage de la dislocation d'interface sur la dislocation traversante (b) glissement de la dislocation d'interface après la formation d'une boucle de dislocation autour de la dislocation traversante.

3.2.6. Cicatrisation des fissures

La cicatrisation des fissures repose sur la croissance latérale de l'(Al,Ga)N. L'anisotropie de croissance du GaN a fait l'objet de nombreuses études. Elle est notamment utilisée dans la technique de l'ELO (epitaxial lateral overgrowth) afin de réduire la densité de dislocations traversantes [6]. La croissance latérale de l'(Al,Ga)N est plus difficile à obtenir que celle du GaN du fait d'une plus faible diffusion de surface de l'Aluminium. Elle repose cependant sur les mêmes mécanismes.

Lors de la croissance d'un matériau semi-conducteur III-V par EPVOM, l'anisotropie de croissance provient de l'incorporation des espèces moléculaires diffusant en surface sur des sites cristallographiques préférentiels. La vitesse de croissance est essentiellement contrôlée par la diffusion des espèces chimiques (« adatoms ») sur la surface. Par conséquent, l'anisotropie de croissance dépend fortement des paramètres de croissance tels que la température, le rapport V/III en phase vapeur, la pression dans le réacteur et la composition du gaz vecteur (N_2, H_2). Les flux de dopants ont aussi un effet notable sur l'anisotropie de croissance, ceci vient du fait que certains de ces atomes bloquent l'incorporation des adatoms sur certains sites cristallographiques, ou favorisent leur diffusion.

Lorsque différentes facettes sont présentes, comme c'est le cas après la fissuration du film d'(Al,Ga)N, elles ne progressent généralement pas à la même vitesse. La Figure 3-18 illustre les facettes présentes sur un film fissuré. Les fissures s'étendent essentiellement le long des directions $\langle 11\bar{2}0 \rangle$. Par conséquent, les films d'(Al,Ga)N fissurés présentent des facettes $\{10\bar{1}0\}$. Pour que ces fissures puissent être cicatrisées sans nécessiter une épaisseur importante d'(Al,Ga)N, il faut que le rapport des vitesses $V_{\langle 10\bar{1}0 \rangle} / V_{\langle 0001 \rangle}$ soit le plus important possible, c'est-à-dire qu'il faut favoriser la diffusion des espèces sur le plan de croissance afin de permettre un transport de matière vers les fissures et l'incorporation préférentielle des adatoms sur les facettes $\{10\bar{1}0\}$.

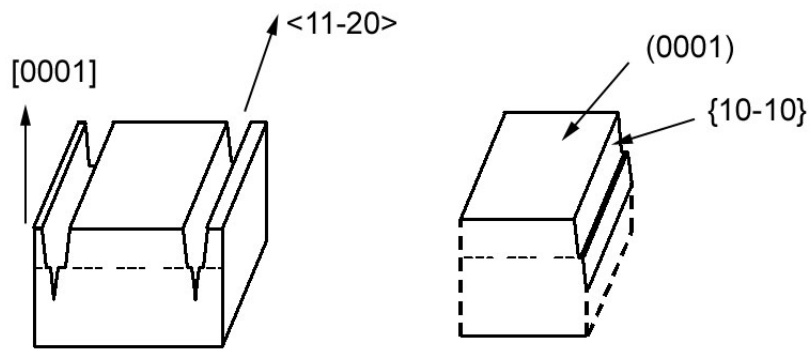


Figure 3-18 : représentation schématique des films fissurés ; sont représentés la direction des fissures $\langle 11\bar{2}0 \rangle$, la direction de croissance $[0001]$, le plan de croissance (0001) et les facettes des fissures $\{10\bar{1}0\}$

Les réactions chimiques (que ce soit entre la phase vapeur et la surface, ou au niveau de l'incorporation des adatoms) ne sont pas suffisamment connues pour que nous puissions modéliser correctement la cinétique de croissance de l'(Al,Ga)N en fonction des facettes cristallographiques et des conditions de croissance. Afin de déterminer les conditions optimales de croissance pour cicatrifier les fissures, nous nous appuierons donc sur les études effectuées sur du GaN épitaxié par surcroissance latérale (ELO) en EPVOM.

En général, l'épitaxie par surcroissance latérale (ELO) est réalisée à partir de bandes orientées suivant la direction $\langle 10\bar{1}0 \rangle$. La température et la pression permettent de discerner différentes régions en fonction de la morphologie des bandes, comme illustré sur la Figure 3-19. Dans les zones I et II, les bords des bandes présentent des facettes $\{11\bar{2}2\}$. En augmentant la température et en diminuant la pression, les bords ont tendance à se redresser jusqu'à devenir des facettes verticales $\{11\bar{2}0\}$ dont l'avancée permet d'obtenir la coalescence des bandes pour une épaisseur réduite de GaN (zones III et IV).

Lorsque les bandes sont orientées suivant la direction $\langle 11\bar{2}0 \rangle$, l'aspect des bandes est fondamentalement différent. Quelle que soient les conditions de température et de pression, la croissance se fait sur les plans $\{10\bar{1}1\}$ et on observe des bandes à section triangulaire. L'obtention d'une surface plane après coalescence des bandes de GaN est difficile dans ce cas et nécessite une épaisseur importante.

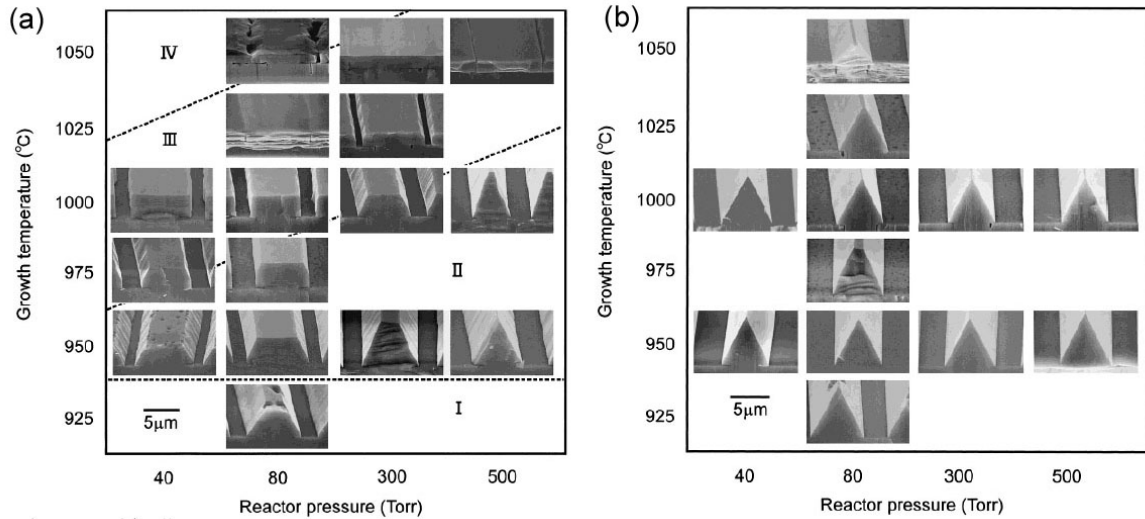


Figure 3-19 : morphologie du GaN obtenu par ELO à partir de bandes orientées suivant la direction $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ (a) ou $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ (b), en fonction de la température de croissance et de la pression du réacteur, d'après [18].

La morphologie obtenue par ELO peut être traduite en terme de vitesse de croissance relative en fonction des orientations, ce qui permet de s'affranchir de la période des bandes. La Figure 3-20 illustre schématiquement la variation des vitesses de croissance relatives en fonction de la pression et de la température. Il faut noter que plus la vitesse de croissance est élevée dans une direction, plus les facettes correspondantes auront tendance à disparaître. La coalescence des bandes d'ELO correspond donc à une vitesse relative de croissance du plan (0001) la plus faible possible par rapport à celles des plans prismatiques.

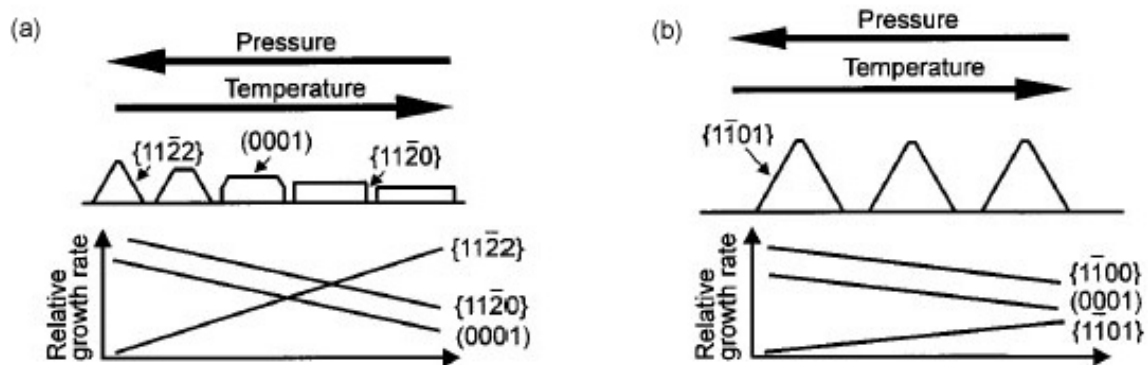


Figure 3-20 : évolution des vitesses de croissance relative en fonction de la pression et de la température pour des bandes de GaN élaboré par ELO d'après [18] ; la direction des bandes est respectivement $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ (a) et $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ (b).

Dans les films d'(Al,Ga)N fissurés, les fissures s'étendent le long des directions $\langle 11\bar{2}0 \rangle$. Il s'agit donc des conditions les moins favorables à la coalescence des bandes, et

donc à la cicatrisation des fissures. D'après la Figure 3-20, le rapport des vitesses $V_{\langle 10\bar{1}0 \rangle} / V_{\langle 0001 \rangle}$ reste relativement constant dans la gamme de pression et de température étudiée par Hiramatsu et al. Par contre, le rapport $V_{\langle 10\bar{1}1 \rangle} / V_{\langle 0001 \rangle}$ augmente avec la température et la diminution de la pression. Afin de favoriser la cicatrisation des fissures, nous nous sommes donc placés à une température relativement élevée (1100°C) et une pression basse (300mbar). Ces conditions sont d'ailleurs propices à la qualité de l'(Al,Ga)N. De plus, nous avons utilisé un fort débit d'ammoniac ce qui permet d'avoir un rapport V/III élevé en phase vapeur. Il a été reporté en particulier que des arrêts de croissance sous flux d'ammoniac (ce qui correspond à un rapport V/III infiniment grand) permettaient de stabiliser les facettes $\{10\bar{1}0\}$ par rapport aux surfaces $\{10\bar{1}1\}$ [19]. Avec un rapport V/III trop faible (~ 2800), nous avons observé des facettes $\{10\bar{1}1\}$ à l'émergence des fissures (cf Figure 3-21).

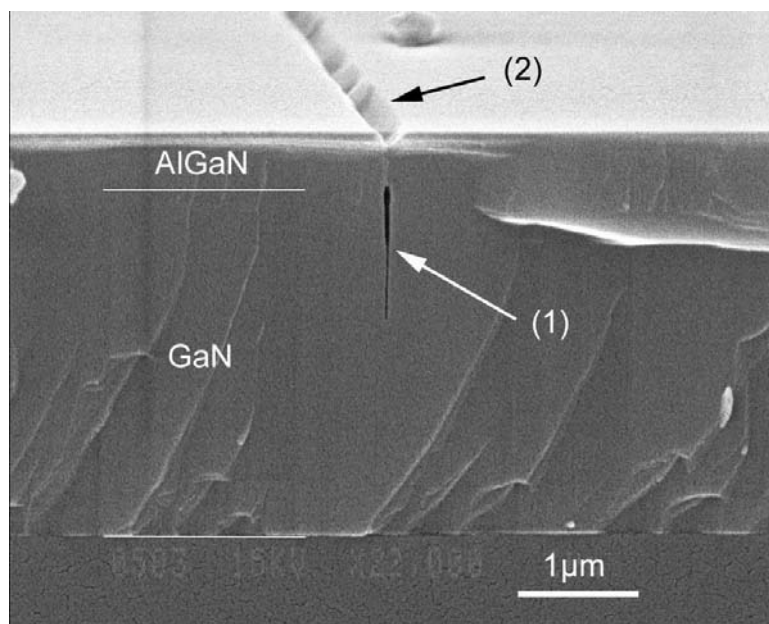


Figure 3-21 : microscopie électronique en balayage d'un film fissuré d'(Al,Ga)N épitaxié sur GaN : (1) fissure enterrée dans le GaN et (2) facettes inclinées $\{10\bar{1}1\}$ au niveau de l'émergence de la fissure.

Pour les films épais d'(Al,Ga)N où nous recherchions à cicatiser les fissures, un rapport V/III supérieur à 4000 a été utilisé. Dans ce cas, les fissures ont généralement pu être cicatisées. Il ne restait alors que des fissures enterrées.

Nous voudrions d'ailleurs signaler que des fissures enterrées ont déjà été observées sur des films épais de GaN épitaxiés sur saphir [20] ainsi que sur des films de GaN très fortement dopés [21].

3.2.7. Cicatrisation des fissures vs. relaxation des contraintes

L'introduction de dislocations à partir des fissures ne peut se faire que si les fissures émergent à la surface. En effet, les dislocations d'interface peuvent être vues comme des demi-plans supplémentaires qui s'étendent de l'interface (Al,Ga)N/GaN jusqu'à la surface libre (0001) de l'échantillon. Il n'est possible d'introduire ces demi-plans que si il existe des surfaces prismatiques libres. Ainsi, la croissance latérale et la relaxation des contraintes sont deux mécanismes compétitifs. Une fois les fissures cicatrisées, la relaxation des contraintes est interrompue. Et si la vitesse de croissance latérale est trop élevée, la relaxation des contraintes peut n'être que partielle.

3.2.8. Intérêt des fissures enterrées

Nous avons vu que les dislocations d'interface permettaient de relaxer efficacement la contrainte d'épitaxie alors que seules les dislocations traversantes dégradent les propriétés des dispositifs. La limitation de l'insertion de couches intercalaires (cf paragraphe 2.5) vient du fait que les dislocations d'interface qui y sont introduites, présentent des bras verticaux qui se propagent jusqu'à la zone active du dispositif. Une dislocation étant un défaut linéaire, pour que ses deux extrémités ne se propagent pas jusqu'au dispositif, il faut que des fissures enterrées interviennent pour servir de zones d'ancrage pour ces dislocations. Le fait de pouvoir laisser des cavités dans les couches (Al,Ga)N/GaN après la cicatrisation des fissures est donc primordial dans notre procédé. La densité de dislocations traversantes des films n'y est alors que peu augmentée.

3.2.9. Résumé du scénario de la relaxation

Le schéma ci-dessous résume les principales étapes du scénario de la relaxation que nous proposons. Lorsque le film d'(Al,Ga)N dépasse l'épaisseur critique de fissuration, un réseau de fissures apparaît (b). Les fissures présentent des facettes qui sont des surfaces prismatiques libres à partir desquelles des dislocations peuvent être nucléées et glisser le long de l'interface (Al,Ga)N / GaN (c). L'introduction de ces dislocations s'accompagne de la contraction du film d'(Al,Ga)N et donc d'une ouverture conséquente entre les bords des fissures. Une contrainte en tension apparaît alors dans le film de GaN sous les ouvertures laissées par les fissures. Ceci aboutit à la propagation des fissures au film de GaN (d). L'introduction de dislocations dans le film de GaN contribue alors à la relaxation de la contrainte d'épitaxie (e). Une fois la relaxation achevée, la croissance latérale de l'(Al,Ga)N

permet de cicatriser les fissures et d'obtenir une surface lisse (f) sur laquelle un dispositif pourra être réalisé.

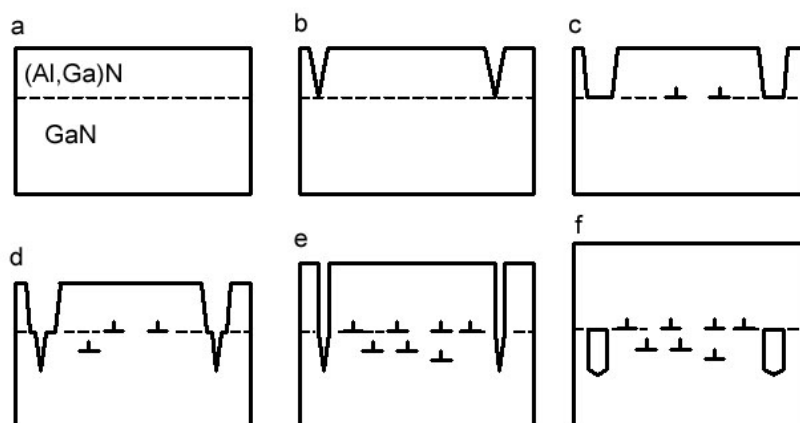


Figure 3-22 : schéma illustrant le procédé de croissance d'(Al,Ga)N et le scénario de la relaxation: (a) croissance pseudomorphe d'(Al,Ga)N sur GaN (b) fissuration du film d'(Al,Ga)N (c) introduction de dislocations à l'interface (Al,Ga)N / GaN (d) propagation des fissures au film de GaN (e) achèvement de la relaxation (f) cicatrisation des fissures.

3.3. Evolution de la relaxation en fonction de l'épaisseur

Nous avons démontré qu'il était possible d'obtenir un film d'(Al,Ga)N relaxé, de bonne qualité et sans fissure émergente. La densité de dislocations traversantes obtenue est tout à fait comparable à celle des films de GaN épitaxiés par EPVOM. Un tel film pourra être utilisé comme pseudo-substrat pour la croissance de miroirs de Bragg dont le paramètre de maille moyen devra être accordé sur celui de l'(Al,Ga)N. Il sera ainsi possible de réaliser des diodes électroluminescentes à cavité résonante dont les performances ne seront pas altérées par une trop forte densité de dislocations traversantes.

Une des conditions essentielles lorsqu'on veut produire des dispositifs, est d'avoir un procédé maîtrisé, reproductible et dont le coût soit le plus faible possible. Notre méthode a l'énorme avantage par rapport aux techniques faisant intervenir la gravure localisée du GaN [22,23] de ne présenter qu'une phase de croissance et de ne pas nécessiter d'étape technologique. Cependant, un effort supplémentaire peut être fait afin de réduire l'épaisseur du film d'(Al,Ga)N (donc le coût) et de contrôler la relaxation de l'(Al,Ga)N. Ces deux objectifs sont d'ailleurs intimement liés puisque la cicatrisation des fissures ne doit s'opérer qu'après la relaxation totale de l'(Al,Ga)N. Nous avons donc étudié l'évolution du taux de relaxation en fonction de l'épaisseur du film d'(Al,Ga)N.

3.3.1. Caractérisation macroscopique

Le bâti de croissance EPVOM que nous avons utilisé ne permet pas de mesurer les contraintes pendant la croissance. Les films ont donc été caractérisés après croissance. En particulier la déformation a été mesurée par diffraction de rayons X. La croissance d'échantillons d'épaisseur différente a été réalisée afin de déterminer l'évolution de l'état de contraintes de ces films en fonction de leur épaisseur. La composition en Aluminium a été maintenue à environ 20%.

La Figure 3-23 illustre l'évolution de la déformation de l'(Al,Ga)N en fonction de l'épaisseur du film. Les carrés représentent les échantillons bruts de croissance. Nous pouvons remarquer que les films d'(Al,Ga)N les plus minces (jusqu'à 350 nm ; échantillons A et B) présentent une déformation d'environ 3×10^{-3} à température ambiante. Ramenée à température de croissance, cette valeur correspond à la déformation d'épitaxie de l' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ sur GaN. Autrement dit, les films minces d'(Al,Ga)N sont quasi-totalement contraints bien qu'ils soient fissurés. A l'opposé, les films les plus épais (E et F) présentent une contrainte en compression à température ambiante. Elle équivaut à la contrainte thermo-élastique due au saphir. Les films épais sont donc relaxés à température de croissance. Cependant, la relaxation est très progressive et n'est significative que pour des films d'(Al,Ga)N dont l'épaisseur dépasse 1 μm .

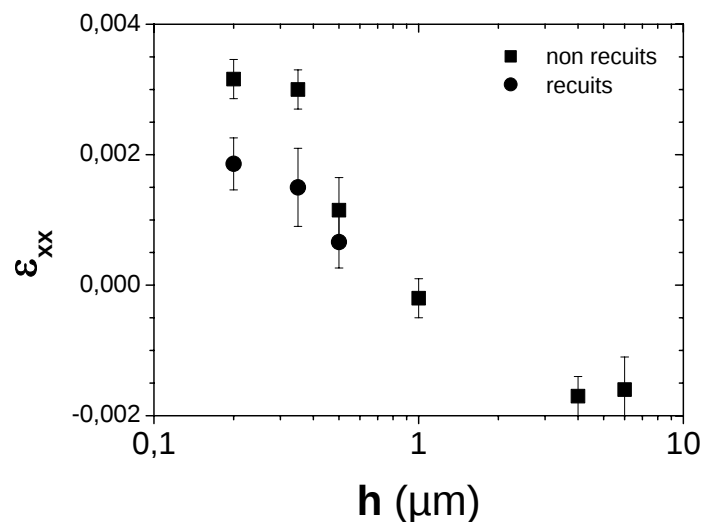


Figure 3-23 : évolution de la déformation de l' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ en fonction de l'épaisseur du film : films bruts de croissance (carrés) et recuits (cercles).

Des recuits à 1100 °C pendant 20 minutes ont été effectués sous atmosphère d'azote et d'ammoniac pour vérifier si des facteurs cinétiques ne limitaient pas la relaxation des contraintes. Les échantillons recuits sont notés avec un dièse; les mesures de déformation correspondantes sont représentées par des cercles dans la Figure 3-23. Le recuit induit une augmentation significative du taux de relaxation pour les films les plus minces : jusqu'à 30% pour l'échantillon B#. Mais à partir d'1 µm d'(Al,Ga)N, le recuit n'a plus aucun effet sur la relaxation. Pour ces films, la durée de la croissance de l'(Al,Ga)N est supérieure à 30 minutes. La croissance est donc suffisamment longue pour que la déformation à l'équilibre soit obtenue sans nécessiter de recuit post-croissance. Nous avons d'ailleurs vérifié en procédant à des recuits additionnels que la durée du recuit était suffisante pour atteindre l'équilibre dynamique sur les films les plus fins.

La forte dépendance de la déformation avec l'épaisseur des films d'(Al,Ga)N peut être transposée en terme d'énergie élastique. Celle-ci peut être estimée par : $E_{elast} = M \times h \times (\varepsilon_{exp} - \varepsilon_{th})^2$ où la déformation thermique vaut $\varepsilon_{th} \approx -2 \times 10^{-3}$, $M = 480$ GPa représente le module biaxial de l'(Al,Ga)N et h est l'épaisseur du film estimée à partir de la réflectivité in-situ. Le trait horizontal sur la Figure 3-24 représente l'énergie de création de nouvelles fissures ($2\gamma/Z$). Celle-ci vaut $1,91 \text{ J.m}^{-2}$ en prenant $Z=1,975$ et l'énergie des surfaces $\{10\bar{1}0\}$ $\gamma=1,89 \text{ J.m}^{-2}$. L'énergie élastique calculée à température de croissance des films minces non recuits (A-C) est supérieure à l'énergie de création de nouvelles fissures. Ceux-ci sont donc a priori dans un état hors-équilibreⁱ. Il n'est donc pas étonnant que le réseau de fissures se densifie avec l'épaisseur et les recuits.

ⁱ Cette approche est purement statique et elle néglige notamment la nucléation des fissures. Par ailleurs, pour des réseaux denses de fissures, la valeur de Z doit être modifiée mais ce n'est pas le cas ici.

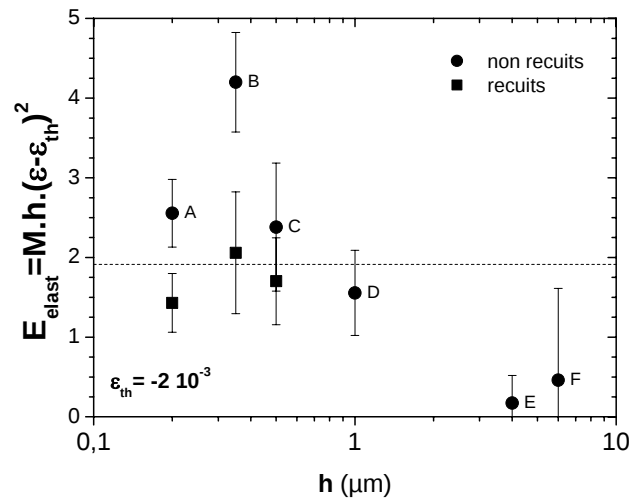


Figure 3-24 : évolution de l'énergie élastique estimée à température de croissance en fonction de l'épaisseur du film d'(Al,Ga)N

Le Tableau 3-1 détaille l'espacement moyen entre fissures, la déformation de l'(Al,Ga)N mesurée par DRX, le taux de relaxation estimé à partir de la mesure de déformation ainsi que le taux de relaxation induit par le réseau de fissures calculé à partir de l'équation 2-3. Il apparaît clairement que la relaxation ne peut pas s'expliquer par la simple fissuration des films. Elle est donc essentiellement due à l'introduction de dislocations d'interface, une fois que des fissures ont été créées.

La manifestation de la relaxation lors des recuits est troublante. En effet, les recuits s'accompagnent d'une densification du réseau de fissures. Le gain correspondant à cette fissuration additionnelle en terme de taux de relaxation est toutefois nettement inférieure à la relaxation mesurée : 0,2% dû à la fissuration complémentaire pour le film A à comparer à 24% mesurés; 3,7% contre 30% pour le film B. Le fait que l'énergie élastique de ces échantillons avant recuit soit supérieure à l'énergie de création de nouvelles fissures provient d'une relaxation insuffisante par les dislocations d'interface. La densification du réseau de fissures s'explique donc par une faible vitesse de nucléation des dislocations à partir des flancs des fissures. Mais parallèlement, le taux de relaxation des films recuits s'explique essentiellement par les dislocations d'interface. Il faut toutefois remarquer que plus il y a de fissures, plus il y a a priori de sites de nucléation pour les dislocations d'interface.

échantillon	h (nm)	$\langle \xi \rangle$ (μm)	$\xi_{\min}$ (μm)	$\xi_{\max}$ (μm)	$10^3 \times \varepsilon$	τ_{fissu} (%)	τ_{exp} (%)
A	200	90	15	200	3,1	0,7	0
B	350	30	8	100	3,0	3,2	2
C	500	14	7	57	1,1	10,4	40
D	1000	15	7	50	-0,2	18,4	66
F	6000	15	7	40	-1,6	31,4	94
A#	200	70	12	200	1,9	0,9	24
B#	350	15	5	40	1,5	6,9	32

Tableau 3-1 : espacement entre fissures parallèles de films d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$. h représente l'épaisseur du film d'(Al,Ga)N et ε sa déformation dans le plan de base à température ambiante mesurée par DRX. Les échantillons marqués d'un dièse ont été recuits à 1100 °C pendant 20 minutes.

3.3.2. Caractérisation microscopique

De plus amples caractérisations structurales ont été réalisées afin de mieux comprendre les mécanismes de nucléation des dislocations. Les films fissurés d'(Al,Ga)N ont été observés par cathodo-luminescence (CL) et microscopie électronique en transmission (MET) en vue plane.

La nucléation des dislocations d'interface via l'extension de demi-boucles de dislocations à partir des fissures est confirmée par l'observation par MET (Figure 3-25). En effet, de nombreuses dislocations peuvent être observées au voisinage des fissures. Elles semblent présenter des orientations préférentielles. Certaines sont plutôt parallèles à la fissure alors que d'autres partent quasiment à la perpendiculaire de la fissure avant de se courber. Toutes ces dislocations observées sur la Figure 3-25 sont éteintes dans un champ sombre ($10\bar{1}0$) particulier, ce qui indique qu'elles ont toutes le même vecteur de Burgers $b = \frac{1}{3}[11\bar{2}0]$. Nous avons représenté deux de ces dislocations dans la Figure 3-26, ainsi que leurs vecteurs de Burgers dont nous avons déterminé l'orientation d'après les règles d'extinction ($\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$). Il semble que les deux familles de dislocations observées ici témoignent de stades d'extension différents. Sous l'effet du gradient de contrainte, certaines dislocations se sont probablement éloignées de la fissure en développant des bras perpendiculaires à la fissure. Toutefois, toutes ces dislocations sont semblables : elles sont

toutes ancrées sur la fissure, elles sont relativement courbes et ont le même vecteur de Burgers. L'espace entre deux dislocations parallèles à la fissure est de l'ordre de 60 nm à son voisinage.

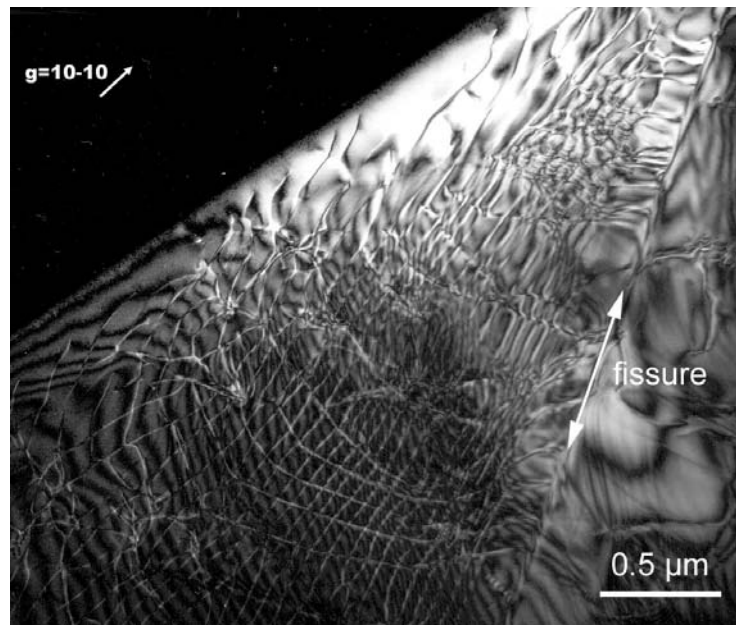


Figure 3-25 : image MET en vue plane de l'échantillon A ; champ sombre $g = (10\bar{1}0)$; la présence d'une fissure a été signalée par une flèche sur la droite de l'image.

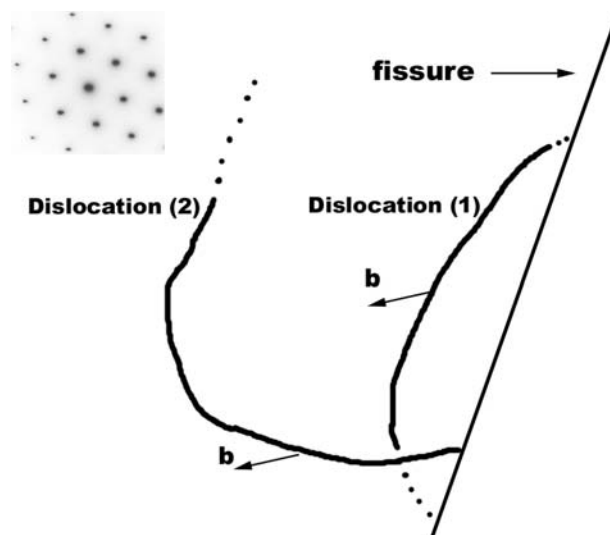


Figure 3-26 : représentation schématique des deux familles de dislocations observées dans la Figure 3-25. En haut à gauche, la diffraction électronique correspondant à l'axe de zone (0001).

Les dislocations d'interface dans ce film d'(Al,Ga)N de 200 nm d'épaisseur (échantillon A) ne sont présentes que près des fissures. La Figure 3-27 est un assemblage de clichés MET où l'on peut observer la distribution des dislocations d'interface en fonction de leur éloignement d'une fissure. Près de la fissure, les dislocations présentent une forte densité.

Elles s'entrelacent et, à ce grandissement, elles donnent vraiment l'impression de provenir de l'extension de demi-boucles. Leur densité diminue progressivement en s'éloignant de la fissure. Et à un peu plus de 10 μm de la fissure, seules des dislocations traversantes sont observables. Ces dernières apparaissent sous forme de points sur l'image en vue plane. La relaxation n'est donc effective qu'au voisinage des fissures.

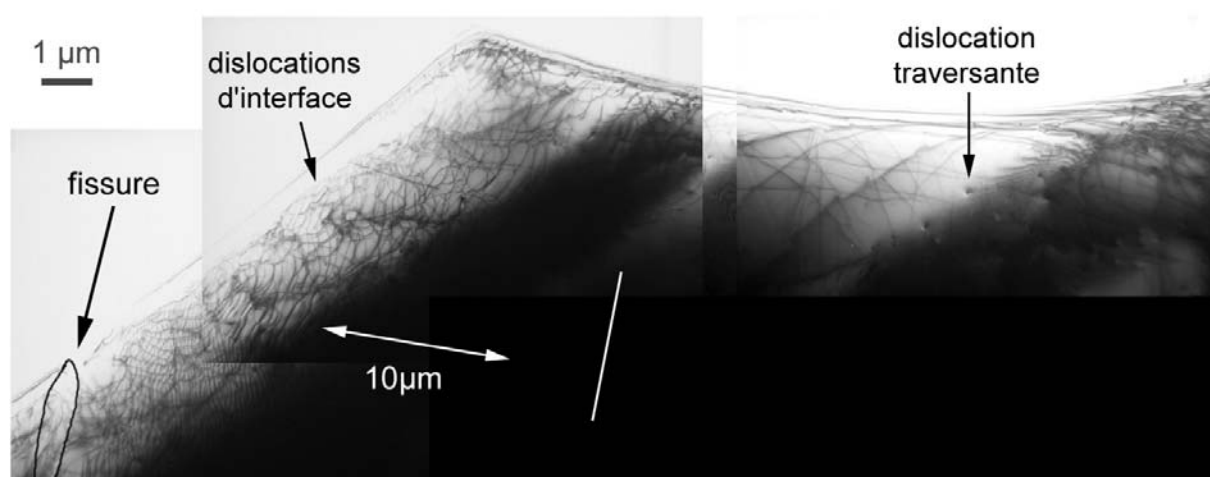


Figure 3-27 : image MET en vue plane de l'échantillon A ; champ clair en condition 2 ondes $g = (11\bar{2}0)$: des dislocations d'interface sont présentes près d'une fissure.

Sur les images obtenues par CL sur les films minces non recuits (cf Figure 3-28), différentes zones apparaissent. Des bandes sombres s'étendent le long des fissures. Leur largeur est d'environ 20 μm . Elles correspondent aux zones présentant une densité élevée de dislocations d'interface, près des fissures. Ailleurs, le contraste obtenu par CL est tout à fait similaire à celui obtenu sur du GaN de bonne qualité (densité de dislocations traversantes de 2 à $5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$), à l'exception de lignes noires qui se propagent suivant les directions $\langle 10\bar{1}0 \rangle$. Ces lignes sont très étendues ; certaines se propagent même de part et d'autre d'une fissure. Elles sont de plus très espacées (plusieurs dizaines de micromètres).

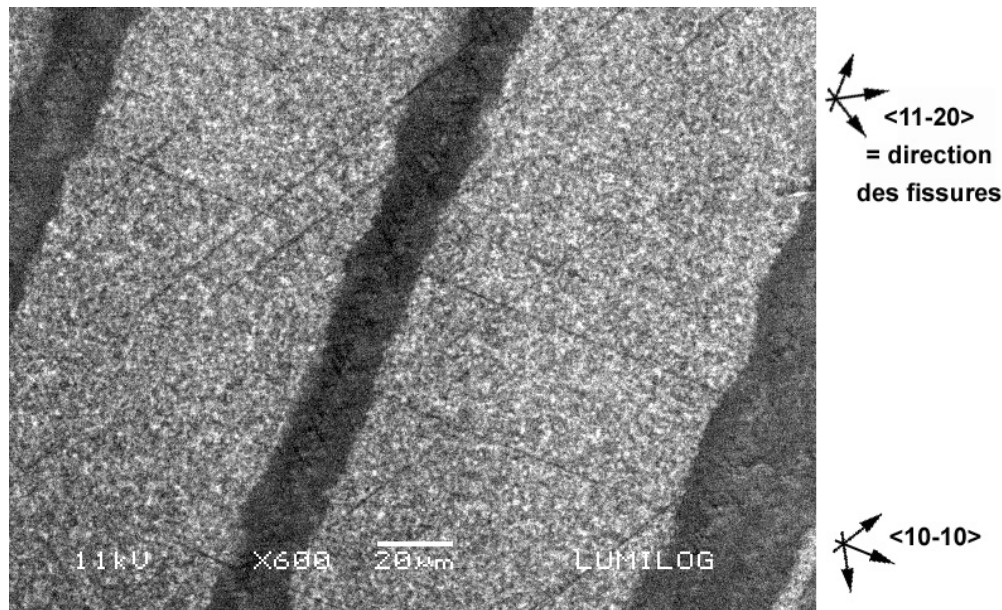


Figure 3-28 : image par CL panchromatique de l'échantillon A : les zones sombres correspondent aux zones présentant une densité élevée de dislocations d'interface.

Sur les images CL obtenues sur les films d'(Al,Ga)N recuits (A#, B#) ou plus épais (C), le contraste dépend fortement de la densité de fissures, comme la Figure 3-29 l'illustre. Lorsque les fissures sont relativement espacées, on observe des lignes droites orientées suivant les directions $\langle 10\bar{1}0 \rangle$. Leur densité est beaucoup plus élevée qu'elle ne l'était dans les films minces non recuits (cf. Figure 3-28). Près des fissures, le contraste est flouⁱ. Il correspond aux zones où une densité élevée de dislocations d'interface a été observée par MET. La largeur de ces zones proches des fissures n'a d'ailleurs pas évolué : elles s'étendent approximativement à 10 µm de part et d'autre des fissures. Lorsque les fissures sont proches, ces zones se recoupent. On n'observe alors qu'un contraste flou par CL.

ⁱ Afin de faire ressortir les lignes orientées selon les directions $\langle 10\bar{1}0 \rangle$, nous avons joué sur l'intensité du signal de CL. De ce fait, les zones près des fissures apparaissent claires, mais elles sont tout à fait comparables aux bandes sombres observées sur la Figure 3-26.

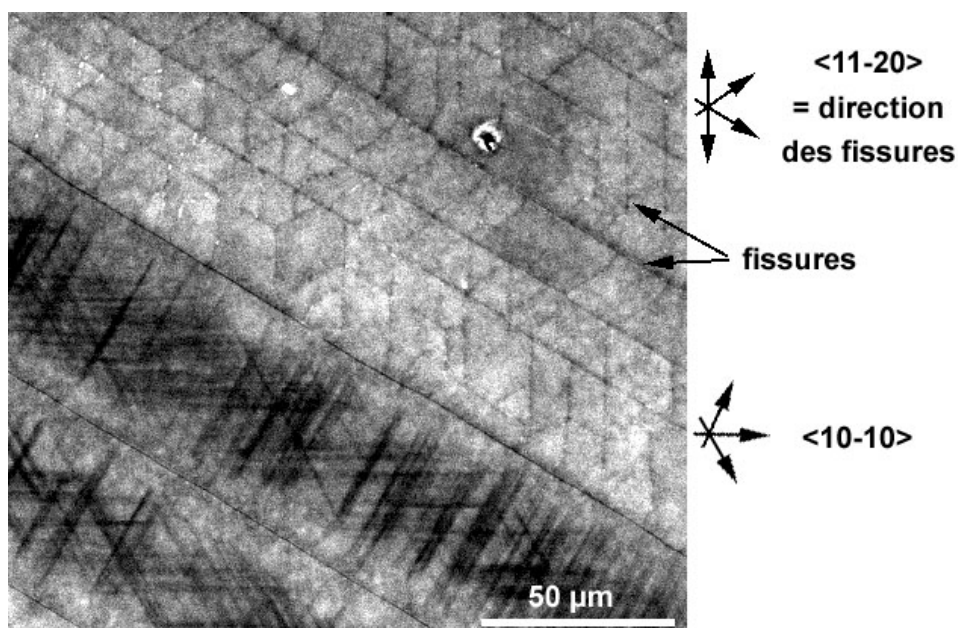


Figure 3-29 : image par CL de l'échantillon C : deux zones peuvent être distinguées en fonction de la densité de fissures ; dans les zones où les fissures sont espacées (en bas à gauche), des lignes s'étendent le long des directions $\langle 10\bar{1}0 \rangle$.

Nous avons caractérisé par MET les lignes orientées suivant les directions $\langle 10\bar{1}0 \rangle$. Elles correspondent à des dislocations d'interface pure coin. Elles sont réparties de façon homogène dans les trois directions $\langle 10\bar{1}0 \rangle$, ce qui permet d'obtenir une relaxation isotrope. L'espacement entre deux dislocations parallèles est de quelques centaines de nanomètres. Il est d'environ 300nm dans le film recuit où l'épaisseur de l'(Al,Ga)N est de 350 nm.

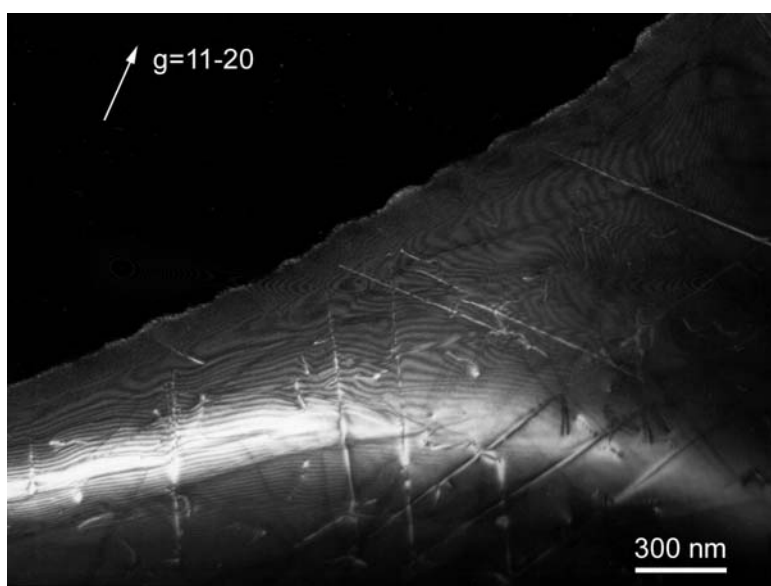


Figure 3-30 : image MET en vue plane de l'échantillon B# ; champ sombre $g = (11\bar{2}0)$: des dislocations d'interface rectilignes sont observables ; leur ligne s'étend le long des directions $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ et leur vecteur de Burgers est perpendiculaire à leur ligne (dislocations pures coins).

3.3.3. Discussion sur la relaxation ductile

On a donc observé à la fois des dislocations d'interface droites et étendues, et d'autres, courbées, plus courtes et présentes seulement au voisinage des fissures. Ces différents types de dislocations n'ont probablement pas la même origine. D'autre part, des régions très différentes en terme de densité de fissures ont été observées.

Dans ce chapitre, on s'interrogera sur l'origine des dislocations d'interface et sur l'effet des recuits sur la relaxation. D'autre part, on cherchera à définir une méthodologie permettant d'obtenir un film relaxé avec une faible densité de fissures.

3.3.3.1. Extension des demi-boucles de dislocations près des fissures

L'énergie élastique relaxée par une demi-boucle de dislocation est proportionnelle à la distance entre les deux points d'ancrage de la dislocation sur la fissure : $E_{misfit} = M \times h \times \varepsilon \times b \times \sin \alpha \times L_{//}$, M étant le module biaxial, h l'épaisseur du film d'(Al,Ga)N, ε sa déformation, b la norme du vecteur de Burgers, α l'angle entre le vecteur de Burgers et la direction de la fissure, $L_{//}$ étant la distance séparant les deux points d'ancrage de la dislocation sur la fissure. Une fois nucléée, la dislocation a donc tendance à s'étendre le long de la fissure. Cela explique que la plupart des dislocations observées au voisinage des fissures sont relativement parallèles aux fissures (voir la famille de dislocations notée 1 dans la Figure 3-26). L'extension des demi-boucles de dislocations le long de la fissure peut être limitée par la présence de plusieurs sites de nucléation et donc de l'extension simultanée et concourante d'autres dislocations.

Certaines dislocations s'étendent perpendiculairement aux fissures avant de se courber (dislocation notée 2 dans la Figure 3-26). Cela permet de répartir les dislocations et de relaxer une zone plus étendue. On peut d'ailleurs associer à cet étalement des dislocations le gradient de contrainte perpendiculairement aux fissures. Cependant, l'éloignement des dislocations par rapport à la fissure où elles sont ancrées coûte de l'énergie puisqu'elles doivent développer des bras qui n'ont aucun effet sur la relaxation. A titre d'illustration, sur la Figure 3-31, seul le segment (2) est efficace pour relaxer la contrainte d'épitaxie alors que les segments (1) et (3) ont des effets opposés qui se compensent. Ceci explique que les demi-boucles de dislocations ne sont observées que dans des régions relativement étroites ($\sim 10 \mu\text{m}$), le long des fissures.

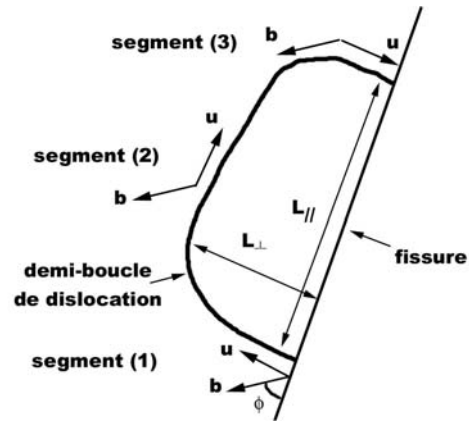


Figure 3-31 : schéma représentant l'extension d'une demi-boucle de dislocation d'interface nucléée à partir d'une fissure.

3.3.3.2. Relaxation induite par les dislocations courbes

La relaxation due aux demi-boucles de dislocations d'interface peut être estimée par $\Delta\epsilon_D = \frac{b \cdot \sin \alpha}{\delta_D}$, où α est l'angle entre leur vecteur de Burgers et la fissure, et δ_D l'espacement entre segments de dislocations parallèles à la fissure.

Pour le film de 200nm d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$, l'espacement entre dislocations parallèles est d'environ 60nm au voisinage immédiat (moins d'un micromètre) d'une fissure. La relaxation correspondante vaut $4,6 \times 10^{-3}$ avec $\alpha = 60^\circ$. Cette valeur est très proche de la déformation due à l'épitaxie de l'(Al,Ga)N sur le pseudo-substrat de GaN. Ainsi localement, le film d'(Al,Ga)N est quasiment relaxé. Pourtant, les mesures par diffraction aux rayons X indiquent que ce film est quasi-totalement contraint sur le GaN. En fait, les zones proches des fissures, où la relaxation est significative, ne couvrent qu'une faible surface. En moyenne, la relaxation est donc faible. Par contre, le film subit un fort gradient de contrainte à proximité des fissures.

La densification des fissures observée lorsqu'on épaissit le film d'(Al,Ga)N ou lors des recuits, permet d'augmenter la proportion des zones proches des fissures. L'introduction de demi-boucles de dislocations à partir de ces nouvelles fissures permet alors de relaxer totalement la contrainte d'épitaxie. Etant donné que les demi-boucles de dislocations d'interface s'étendent jusqu'à environ 10 μm des fissures, il n'est d'ailleurs pas surprenant que l'espacement entre fissures ne diminue pas en dessous de 15 μm .

3.3.3.3. Nucléation de dislocations à partir de l'intersection de fissures

L'extension latérale des demi-boucles de dislocation à partir des flancs des fissures est limitée. En effet, l'extension des bras de dislocation perpendiculaires à la fissure ($L_\perp$)

s'accompagne d'une augmentation de l'énergie de ligne alors que ces bras n'ont aucun effet sur la relaxation. Un mode de nucléation des demi-boucles beaucoup plus efficace peut s'opérer au niveau de l'intersection de deux fissures. En effet, les dislocations peuvent alors s'orienter de façon à ne présenter alors qu'un segment, comme il est illustré sur la Figure 3-32. Toute la ligne contribue alors à la relaxation des contraintes. La relaxation est maximale lorsque la dislocation est pure coin ($\phi = 90^\circ$).

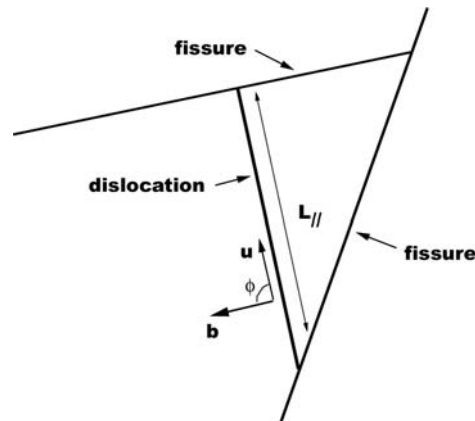


Figure 3-32 : schéma représentant l'extension d'une demi-boucle de dislocation à partir de l'intersection de deux fissures

Ce mode de nucléation à partir de l'intersection des fissures pourrait donc expliquer la présence de dislocations droites, étendues, pure coin, alignées selon les directions $\langle 10\bar{1}0 \rangle$. Cependant, la densité des dislocations droites n'est pas plus élevée près de l'intersection de fissures. Une autre possibilité pour la nucléation des dislocations droites est leur émission lors de la propagation des fissures. En effet, il a été reporté que des dislocations peuvent être émises depuis la pointe des fissures. La contrainte est localement très importante au niveau de cette dernière. De ce fait, les dislocations pourraient y être nucléées sur toute la longueur de la fissure, avoir une énergie importante et glisser sur le plan de base. Il faut tout de même signaler que les dislocations droites sont orientées suivant les directions $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ alors que les fissures sont le long des directions $\langle 11\bar{2}0 \rangle$. Cependant, avec l'orientation $\langle 10\bar{1}0 \rangle$, les dislocations sont pures coins et relaxent donc le plus efficacement possible la contrainte d'épitaxie.

3.3.3.4. Relaxation induite par les dislocations droites

Pour le film recuit d'(Al,Ga)N de 350 nm d'épaisseur, nous avons estimé la déformation à $1,5 \times 10^{-3}$; ce qui correspond à une relaxation de $\Delta \varepsilon_D = 1,5 \times 10^{-3}$. En

considérant un réseau hexagonal de dislocations, l'espacement entre dislocations parallèles peut s'exprimer en fonction de la relaxation par : $\delta_D = \frac{3}{2} \frac{b \cdot \sin \phi}{\Delta \varepsilon_D}$ où $b=a$ est la norme du vecteur de Burgers des dislocations d'interface et $\phi = 90^\circ$ est l'angle entre le vecteur de Burgers et la ligne de dislocation. La valeur de la distance entre dislocations ainsi déterminée (i.e. $\delta_D = 300$ nm) est en accord avec les observations expérimentales (par MET et CL). L'introduction de dislocations d'interface droites permet donc d'expliquer la relaxation de la contrainte d'épitaxie.

Lors du recuit, nous avons observé suivant les endroits, une augmentation de la densité de fissure ou de celle des dislocations droites. Ainsi, les deux types de dislocations, courbes et droites, sont a priori équivalents du point de vue de la relaxation. Celle-ci peut donc se faire soit par introduction de dislocations coin, rectilignes et étendues, soit par la densification du réseau de fissures qui s'accompagne de la nucléation de demi-boucles de dislocations au voisinage des fissures.

3.3.3.5. Estimation de l'énergie de nucléation des dislocations d'interface

Lorsque les dislocations d'interface forment un réseau, la déformation à l'équilibre peut s'exprimer en fonction de l'énergie par unité de longueur des dislocations (E_D/L) et de l'épaisseur du film (h): $\varepsilon_{equ.} = \frac{1}{2.M.b.\sin \phi} \frac{E_D}{L} \frac{1}{h} + \varepsilon_{th}$ (equ. 3-1) où M est le module biaxial, b la norme du vecteur de Burgers et ϕ l'angle entre la ligne de dislocation et son vecteur de Burgers, ε_{th} représente la déformation thermo-élastique. Cette expression est obtenue en supposant que la relaxation fait intervenir exclusivement l'introduction de dislocations droites et que leur énergie ne dépend pas du taux de relaxation (pas de phénomène de durcissement). Sur la Figure 3-33, on peut constater que la déformation des films minces recuits et des films épais ne peut pas se décrire aussi simplement. La forme de la dépendance de la déformation avec l'épaisseur s'apparente plutôt à une exponentielle décroissante. La relaxation des contraintes sur les films présentés se fait essentiellement par nucléation de demi-boucles de dislocations à partir des fissures. Le modèle n'est donc probablement pas très bien adapté. Cependant les deux mécanismes de relaxation (dislocations droites et courbes) coexistent et semblent équivalents pour la relaxation, leurs énergies doivent donc être comparables. Sur la Figure 3-33, nous avons tracé la déformation à l'équilibre d'un réseau de dislocations rectilignes pures coins pour des valeurs d'énergies par unité de longueur de dislocation de

2×10^{-7} et $5 \times 10^{-7} \text{ J.m}^{-1}$. Cet intervalle permet d'estimer l'ordre de grandeur de l'énergie des dislocations. L'énergie des dislocations ainsi estimée comprend l'énergie de ligne, l'énergie de Peierls et différentes formes d'énergie provenant de l'interaction avec les autres dislocations et les surfaces libres. L'énergie de ligne est généralement le terme prépondérant.

Or, l'énergie de ligne calculée à partir de son expression théorique vaut environ $1,2 \times 10^{-8} \text{ J.m}^{-1}$ ⁽ⁱ⁾ pour des dislocations d'interface. Cette valeur est largement inférieure à celle estimée à partir des mesures de déformation. Cette différence peut provenir soit de l'interaction entre dislocations, soit d'une résistance du cristal plus élevée que prévue, due par exemple à l'ionicté des liaisons, soit plus probablement, du processus de nucléation des dislocations lui-même. Par ailleurs, le fait que l'énergie des dislocations soit plus importante que l'estimation théorique peut expliquer qu'on n'observe pas la nucléation de demi-boucles de dislocations à partir de la surface des films non-fissurés (cf §2.3.5).

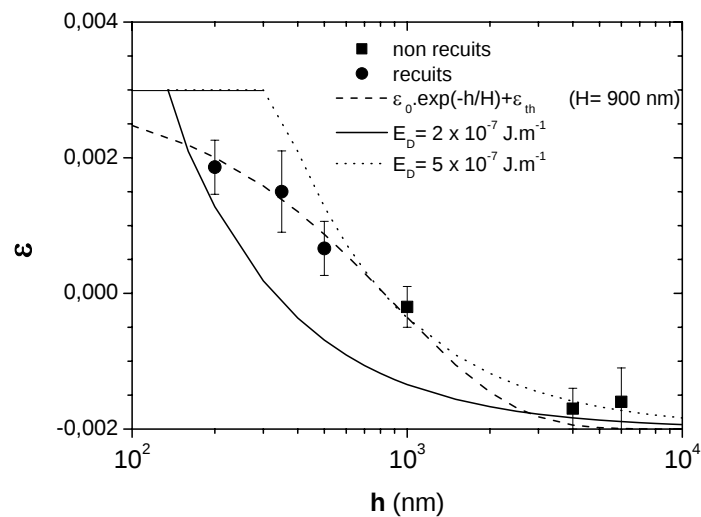


Figure 3-33 : déformation de l'(Al,Ga)N déterminée par DRX sur des films recuits ou épais ; les courbes en trait plein et en pointillés sont obtenues à partir de l'équation 3-1 en considérant une énergie des dislocations de 2×10^{-7} et $5 \times 10^{-7} \text{ J.m}^{-1}$ respectivement.

ⁱ la longueur de dislocation qui intervient dans le terme logarithmique a été prise à environ $10 \mu\text{m}$; la dépendance de l'énergie de ligne avec la longueur de la dislocation est toutefois faible.

3.3.4. Conséquences sur la croissance

La relaxation des films d'(Al,Ga)N fissurés est progressive. Elle dépend fortement de l'épaisseur et peut être favorisée par des recuits. Ceci nous amène à émettre quelques recommandations pour la croissance de l'(Al,Ga)N :

- la vitesse de croissance ne doit pas être trop élevée afin de permettre l'introduction de dislocations d'interface,
- une épaisseur relativement importante est nécessaire afin d'avoir un film relaxé,
- et par conséquent, la croissance latérale ne doit être favorisée qu'à partir d'une certaine épaisseur d'(Al,Ga)N.

3.4. Limitations du procédé

Des films épais d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ avec une surface lisse et une densité de dislocations traversantes relativement faible ont été obtenus. Nous pouvons désormais nous demander s'il est possible d'appliquer cette méthode à d'autres compositions en Aluminium. La méthode de croissance de films d'(Al,Ga)N que nous avons proposée, repose d'une part sur la relaxation des contraintes grâce à la fissuration du film et l'introduction de dislocations d'interface. D'autre part, la croissance latérale de l'(Al,Ga)N permet de recouvrir une surface lisse après la relaxation du film. La limitation du procédé peut donc provenir soit d'une relaxation plastique insuffisante soit d'une faible croissance latérale.

Plus la composition en Aluminium est élevée, plus la croissance latérale devient difficile. D'autre part, la contrainte d'épitaxie augmente avec la composition en Aluminium. De ce fait, pour relaxer cette contrainte, il faut que beaucoup de dislocations soient introduites. On peut alors craindre que l'interaction entre dislocations devienne importante et limite le taux de relaxation.

Pour estimer la plage de composition en Aluminium où notre méthode reste applicable, nous avons procédé à la croissance de films d'(Al,Ga)N épais dont la composition varie entre 16% et 40%. La Figure 3-34 présente la morphologie des films observée par microscopie optique. Pour le film dont la composition en Aluminium est de 16%, les fissures sont enterrées et le film présente une surface lisse. C'est la même chose pour le film d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ à l'exception de quelques trous émergeant en surface qui résultent d'un défaut de coalescence. La densité de ces trous est faible. Lorsqu'on augmente la composition en Aluminium, la densité des trous dus à un défaut de coalescence augmente. La plupart d'entre

eux sont alignés le long de certaines fissures. Enfin, pour le film d' $\text{Al}_{0,40}\text{Ga}_{0,60}\text{N}$, de nombreuses fissures émergent et d'autres zones sont parsemées de trous. Du fait de la faible croissance latérale de l' $(\text{Al,Ga})\text{N}$, une épaisseur importante est donc nécessaire afin d'obtenir une surface lisse pour des films de composition en Aluminium supérieure à 30%.

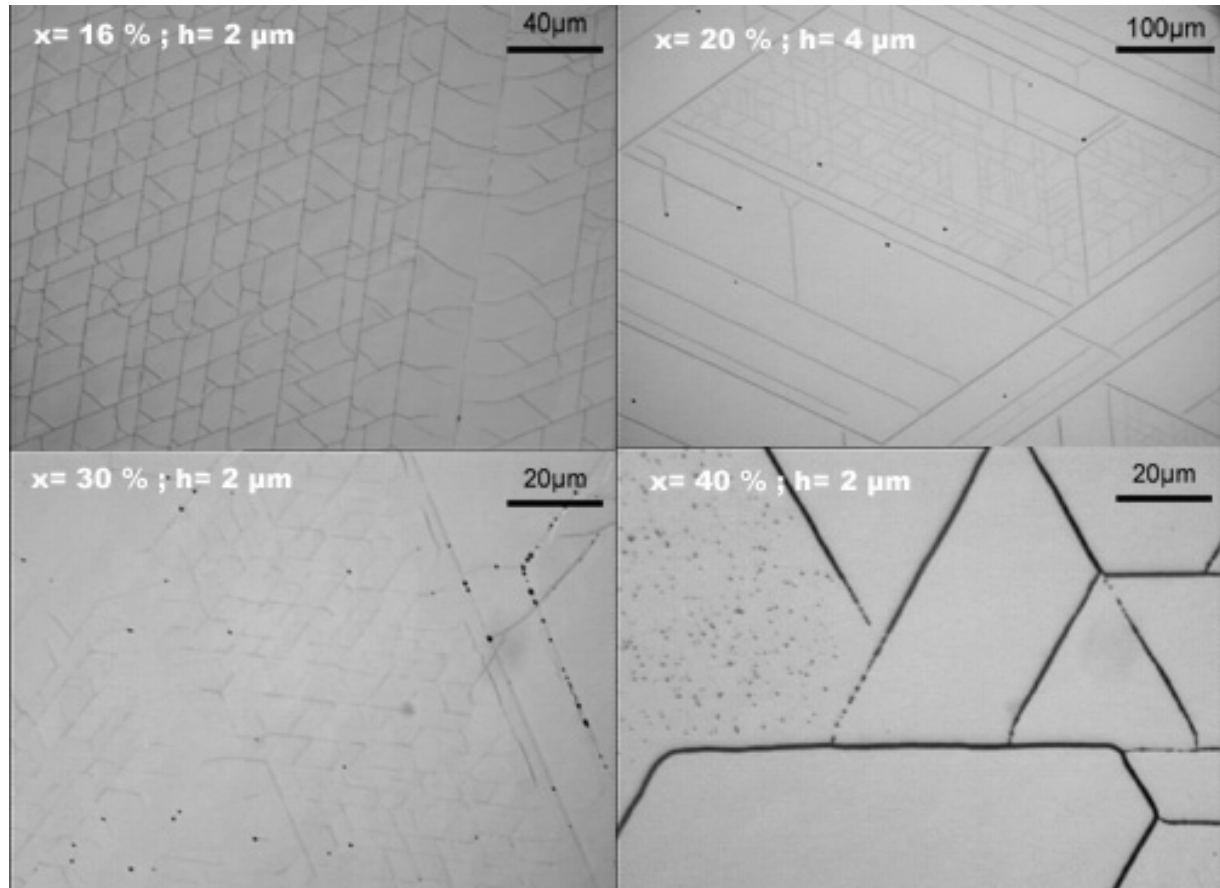


Figure 3-34 : microscopies optiques de films d' $(\text{Al,Ga})\text{N}$; x représente la composition en Aluminium et h l'épaisseur du film d' $(\text{Al,Ga})\text{N}$.

La déformation résiduelle de ces films est présentée dans la Figure 3-35, à la fois, pour le GaN et l' $(\text{Al,Ga})\text{N}$. La déformation résiduelle à température de croissance est du même ordre pour l' $(\text{Al,Ga})\text{N}$ que pour le GaN. La déformation du film d' $\text{Al}_{0,16}\text{Ga}_{0,82}\text{N}$ est toutefois un peu plus élevée que pour les autres films. Il est vraisemblable que la croissance latérale relativement élevée pour les faibles compositions en Aluminium n'a pas permis l'introduction de suffisamment de dislocations pour relaxer totalement la contrainte d'épitaxie. Pour les films d' $(\text{Al,Ga})\text{N}$ dont la composition est supérieure à 20%, la déformation résiduelle de l' $(\text{Al,Ga})\text{N}$ semble légèrement augmenter avec la composition (compression moindre à température ambiante). Cependant, lorsqu'on calcule le taux de relaxation à partir de la déformation mesurée, on s'aperçoit que celui-ci reste supérieur à 90% pour tous les films dont la composition excède 20% (cf Figure 3-36). Pour ces films, la compétition entre relaxation et

croissance latérale va donc au profit de la relaxation des contraintes. De plus, nous n'observons pas dans la gamme de composition étudiée de phénomène de durcissement dû à l'interaction entre dislocations. Il faut noter que la relaxation du GaN sur saphir (désaccord de maille de -13,8%) fait intervenir des dislocations d'interface très proches sans que la relaxation en soit affectée. La limitation du procédé pour les fortes compositions est donc essentiellement due à la faible vitesse de croissance latérale.

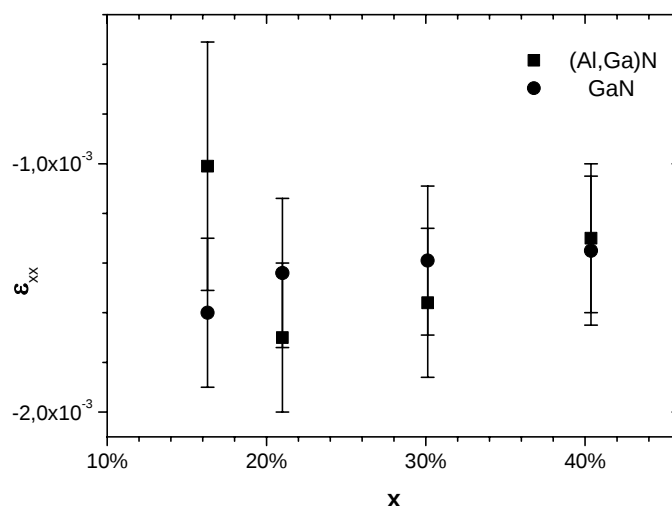


Figure 3-35 : déformation à température ambiante du GaN et de l'(Al,Ga)N en fonction de la composition en Aluminium pour des hétérostructures (Al,Ga)N / GaN dont l'épaisseur des films d'(Al,Ga)N est de 2 μm (excepté pour celui de 20%, dont l'épaisseur est de 4 μm).

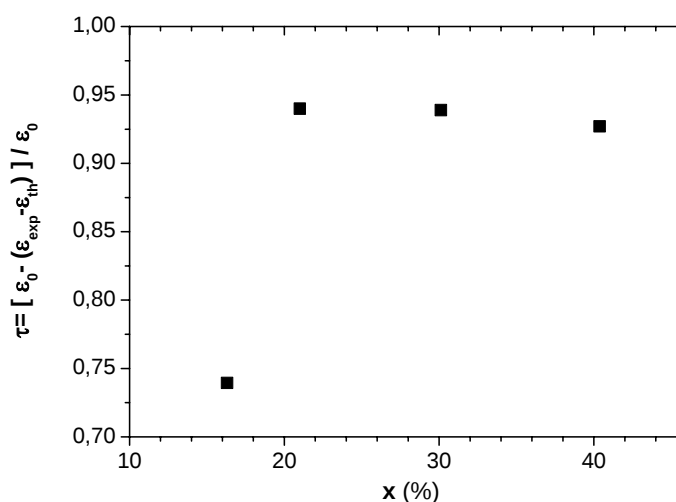


Figure 3-36 : taux de relaxation estimé à température de croissance en fonction de la composition en Aluminium pour des hétérostructures (Al,Ga)N / GaN dont l'épaisseur des films d'(Al,Ga)N est de 2 μm (excepté pour celui de 20%, dont l'épaisseur est de 4 μm).

Pour les compositions en Aluminium inférieures à 20%, il est possible d'adopter des conditions de croissance où la vitesse de croissance latérale est suffisamment faible pour permettre la relaxation des contraintes. Nous voudrions toutefois préciser que pour procéder à la croissance de films d'(Al,Ga)N relaxés via notre méthode, la fissuration du film est un préalable nécessaire à sa relaxation. Or, pour les compositions inférieures à 10%, l'épaisseur critique de fissuration devient importante : elle est supérieure à 1 μm . La structure finale sera alors très épaisse. Il vaut alors mieux essayer de réaliser des dispositifs dont l'épaisseur n'excède pas l'épaisseur critique de fissuration.

Ainsi, la méthode de croissance que nous avons proposée ne semble adaptée qu'à une gamme limitée de compositions en Aluminium, allant approximativement de 10% à 30%. Pour les compositions plus élevées, la limitation provient essentiellement de la faible croissance latérale. Il est donc possible d'appliquer notre méthode, mais cela se traduit par une épaisseur de film importante, l'utilisation d'un débit élevé d'ammoniac et donc une augmentation du prix de revient de la croissance.

3.5. Conclusion

Nous avons conçu une méthode de croissance de pseudo-substrats d'(Al,Ga)N faisant intervenir la fissuration du film, la relaxation par introduction de dislocations d'interface puis la croissance latérale qui permet de recouvrir une surface lisse après la relaxation des contraintes. Nous avons ainsi obtenu des films épais d'(Al,Ga)N de très bonne qualité (densité de dislocations autour de $5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$), lisses et relaxés. Nous avons expliqué les mécanismes de relaxation de l'(Al,Ga)N épitaxié sur GaN. L'évolution de la relaxation a été étudiée en fonction de l'épaisseur du film d'(Al,Ga)N. La relaxation de l'(Al,Ga)N est influencée à la fois par des facteurs cinétiques (efficacité des recuits) et dynamiques. Nous avons pu estimer l'ordre de grandeur de l'énergie des dislocations d'interface. Par ailleurs, nous avons spécifié des recommandations pour la croissance et discuté du domaine d'application de notre méthode.

Références du chapitre :

- 1 S. Yoshida, S. Misawa et S. Gonda, Appl. Phys. Lett. **42**, 427-429 (1983).
- 2 H. Amano, N. Sawahi, I. Akasaki et Y. Toyoda, Appl. Phys. Lett. **48**, 353-355 (1986).
- 3 S. Nakamura, Jpn. J. Appl. Phys. **30**, L1705-L1707 (1991).
- 4 V. Narayanan, K. Lorenz, W. Kim et S. Mahajan, Appl. Phys. Lett. **78**, 1544-1546 (2001).
- 5 X.H. Wu, P. Fini, E.J. Tarsa et al., J. Crystal Growth **189**, 231-243 (1998).
- 6 P. Gibart, B. Beaumont et P. Vennéguès, Epitaxial Lateral Overgrowth of GaN, dans *Nitride Semiconductors Handbook on Materials and Devices*, édité par P. Ruterana, M. Albrecht et J. Neugebauer, p.45-106, Wiley-Vch, Weinheim (2003).
- 7 S. Haffouz, Croissance optimisée de GaN et (Al,Ga)N pour l'élaboration de composants optoélectroniques, thèse de doctorat, Université de Nice-Sophia-Antipolis (1999).
- 8 H.P.D. Schenk, Elaboration de diodes électroluminescentes et de miroirs sélectifs à base de nitrures d'éléments III pour diodes à cavité résonante, thèse de doctorat, Université de Nice Sophia-Antipolis (2002).
- 9 F. Nakamura, S. Hashimoto, M. Hara et al., J. Crystal Growth **195**, 280-285 (1998).
- 10 S. Kim, J. Seo, K. Lee et al., J. Crystal Growth **245**, 247-253 (2002).
- 11 S. Kamiyama, M. Iwaya, N. Hayashi et al., J. Cryst. Growth **223**, 83-91 (2001).
- 12 N. Itoh, J.C. Rhee, T. Kawabata et S. Koike, J. Appl. Phys. **58**, 1828-1837 (1985).
- 13 G. Steude, B.K. Meyer, A. Göldner et al., Jpn. J. Appl. Phys., **38**, L498-L500 (1999).
- 14 T.Y. Zhang et M.H. Zhao, Eng. Fract. Mech. **69**, 589-596 (2002).
- 15 S.C. Jain, H.E. Maes et K. Pinardi, Thin Solid Films **292**, 218-226 (1997).
- 16 D. Hull et D.J. Bacon, *Introduction to dislocations*, 4ème édition, p.76, Butterworth-Heinemann, Oxford (2001).
- 17 D. Hull et D.J. Bacon, *Introduction to dislocations*, 4ème édition, p.136, Butterworth-Heinemann, Oxford (2001).
- 18 K. Hiramatsu, K. Nishiyama, A. Motogaito et al., Phys. Stat. Sol. (a) **176**, 535-543 (1999).
- 19 R.S. Qhalid Fareed, J.W. Yang, J. Zhang et al., Appl. Phys. Lett. **77**, 2343-2345 (2000).
- 20 E.V. Etzkorn et D.R. Clarke, J. Appl. Phys. **89**, 1025-1034 (2001).
- 21 S.J. Chua, M. Hao, J. Zhang et E.K. Sia, Phys. Stat. Solidi A **188**, 421-424 (2001).
- 22 S. Sano, T. Detchprohm, M. Yano et al., Mat. Sc. And Eng. **B93**, 197-201 (2002).
- 23 L. Liu et J.H. Edgar, Mat. Sc. Eng. **R37**, 61-127 (2002).

4. Miroirs de Bragg (Al,Ga)N / GaN

Les structures à cavité verticale (diodes à cavité résonante et laser à cavité verticale) suscitent un grand intérêt du fait des perspectives en terme d'extraction externe, et de leur sélectivité en longueur d'onde et en émission angulaire [1]. Ces structures sont constituées d'une diode électroluminescente insérée entre deux miroirs sélectifs. La réalisation de ces structures peut se faire soit de manière monolithique, soit en déposant des films diélectriques ou métalliques de part et d'autre d'une diode électroluminescente.

Le dépôt de miroirs diélectriques de part et d'autre de la diode électroluminescente permet d'aboutir à des réflectivités élevées et donc d'avoir une finesse de cavité élevée. Mais, leur réalisation technologique est délicate et passe par l'élimination totale du substrat d'origine et par le report du film sur un substrat d'accueil. Le contrôle de l'épaisseur de la cavité est particulièrement difficile. De plus, l'étape d'élimination du substrat entraîne généralement une rugosité qui dégrade les propriétés de la structure résonante. Dans l'optique d'utiliser un substrat sacrificiel, l'utilisation du silicium qui se décape facilement par des voies classiques serait la plus adaptée. Cependant, la puissance des diodes électroluminescentes épitaxiées sur silicium (111) reste un ordre de grandeur inférieure à celles réalisées sur substrat de saphir [2,3].

La croissance monolithique de miroirs de Bragg est avantageuse dans la mesure où elle ne nécessite pas d'étapes technologiques supplémentaires par rapport à la réalisation des contacts nécessaire à l'injection électrique dans la diode électroluminescente. De plus, la réflectométrie in-situ permet de contrôler en cours de croissance les épaisseurs des alternances du miroir et de la cavité. Afin d'éviter l'absorption de la lumière émise par la diode électroluminescente, les matériaux constitutifs du miroir de Bragg doivent présenter des énergies de bande interdite supérieures à l'énergie de l'émission lumineuse. Pour une émission dans le visible, des miroirs (Al,Ga)N / GaN ont donc été naturellement adoptés. Cependant, du fait de la faible différence d'indice optique et du fort désaccord de paramètres de maille entre l'AlN et le GaN, la croissance des miroirs de Bragg (Al,Ga)N / GaN nécessite une ingénierie des contraintes sans laquelle les miroirs peuvent se fissurer en cours de croissance. C'est pourquoi nous avons insisté dans les premiers chapitres sur la relaxation des contraintes dans le système (Al,Ga)N. La méthode présentée pour la croissance de pseudo-substrats d'(Al,Ga)N n'a été conçue que tardivement au cours de la préparation de cette thèse. L'ensemble de miroirs de Bragg dont il est question ici, ont donc des caractéristiques très

diverses : certains sont fissurés, d'autres ont une densité de dislocations traversantes élevée et enfin des miroirs épitaxiés sur pseudo-substrats d'(Al,Ga)N sont également présentés.

Dans ce chapitre, les spécifications des miroirs pour la réalisation de diodes électroluminescentes à cavité résonante seront présentées, puis leur croissance proprement dite sera abordée. Enfin, nous détaillerons l'état de contraintes de ces structures et nous proposerons une méthode de mesure de leur conductivité électrique.

4.1. Spécifications

4.1.1. Intérêt et spécifications optiques

Les miroirs de Bragg (DBR) sont des empilements périodiques de films d'indices optiques différents permettant d'obtenir des réflexions constructives. Pour ce faire, les épaisseurs des alternances doivent vérifier la condition : $h = \lambda/4n$ où λ est la longueur d'onde visée dans le vide et n l'indice optique du matériau. La propriété essentielle d'une telle structure est de présenter une réflectivité maximale dans une certaine gamme de longueur d'onde, la bande d'arrêt. En outre, les miroirs de Bragg présentent une sélectivité angulaire. Les propriétés optiques des miroirs de Bragg dépendent essentiellement du contraste d'indice et du nombre d'alternances [1,4,5].

L'objectif de ce chapitre est de présenter un aperçu des propriétés optiques de miroirs de Bragg (Al,Ga)N / GaN. Pour cela, nous présenterons le résultat de simulations de la réflectivité de structures types, illustrées sur la Figure 4-1, dont nous avons réalisé la croissance. Leur réflectivité à incidence normale a été calculée par la méthode de matrices de transfert, détaillée dans la Réf. 4.

La Figure 4-2 illustre la courbe de réflectivité en incidence normale, calculée pour des structures comprenant 50 paires $\text{Al}_{0,40}\text{Ga}_{0,60}\text{N}$ / GaN. La structure DBR1 correspond à un miroir de Bragg épitaxié sur pseudo-substrat de GaN ; la structure DBR2 comprend une couche d'AlN comme première alternance du miroir ; enfin le miroir DBR3 est épitaxié sur un pseudo-substrat d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$. L'épaisseur optique des pseudo-substrats est un multiple impair de la demi-longueur d'onde visée pour le miroir ($n.h = (2k+1)\lambda/2$), nous avons pris $2k+1=41$ ce qui correspond à une épaisseur de l'ordre de $2\text{ }\mu\text{m}$). Les indices optiques ont été estimés à partir des formules de Sellmeier [6,7], en considérant la variation de l'énergie de bande interdite de l'(Al,Ga)N en fonction de la composition¹. Nous pouvons vérifier que la

¹ Se reporter à l'annexe A1. En toute rigueur, il faudrait aussi tenir compte de la contrainte.

réflectivité de la structure dépend essentiellement des miroirs de Bragg. Le fait qu'ils soient épitaxiés sur un pseudo-substrat de GaN, d'(Al,Ga)N ou sur une couche intermédiaire d'AlN, n'influe pas sur leurs propriétés optiques. Le choix du pseudo-substrat sera donc essentiellement guidé par l'effet de la relaxation des contraintes sur les performances de la zone active de la diode électroluminescente; c'est-à-dire la recherche de l'absence de fissures et d'une densité de dislocations traversantes relativement faible.

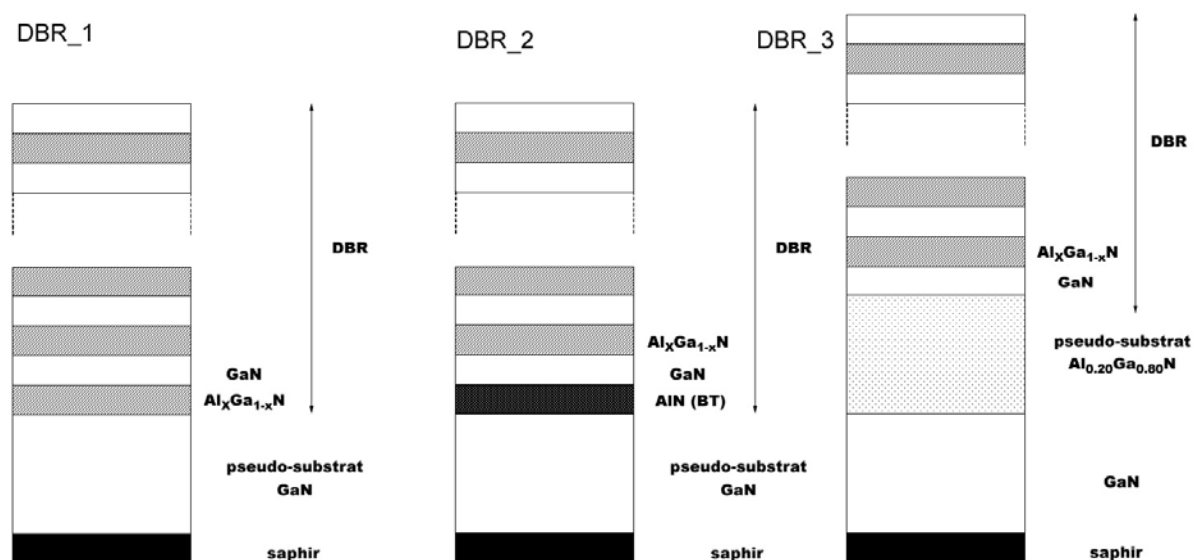


Figure 4-1 : miroirs de Bragg (Al,Ga)N / GaN épitaxiés sur pseudo-substrat de GaN (DBR_1), avec un film intermédiaire d'AlN épitaxié à basse température (DBR_2) et miroir de Bragg (Al,Ga)N / GaN épitaxié sur pseudo-substrat d'(Al,Ga)N (DBR_3).

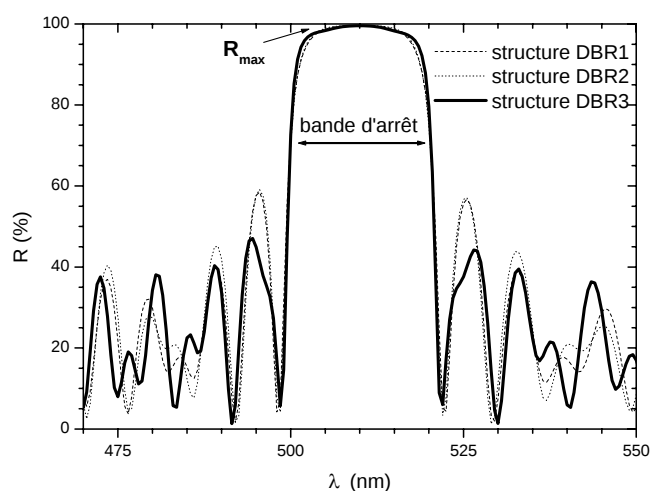


Figure 4-2 : courbes de réflectivité calculées pour des miroirs de Bragg centrés à 510nm et constitués de 50 paires ($\text{Al}_{0,40}\text{Ga}_{0,60}\text{N}$ / GaN) correspondant aux trois structures types illustrée sur la Figure 4-1 : le maximum de réflectivité et la largeur de la bande d'arrêt du miroir sont les mêmes pour les trois structures.

En fait, on peut penser que la manière dont s'opère la croissance peut influencer la réflectivité de la structure. Celle-ci devrait être notamment diminuée si il y a des phénomènes de diffusion par des fissures, d'absorption optique par les dislocations par exemple, de rugosité aux interfaces ou de ségrégation d'alliage. Néanmoins, les mesures de réflectivité des miroirs de Bragg à base de nitrures reportées dans la littérature sont proches des valeurs théoriques. A titre d'illustration, les miroirs épitaxiés par EPVOM directement sur saphir sont généralement fissurés. C'est le cas des miroirs présentés dans la thèse de David Schenk [4]. Il n'y est pourtant reporté une diminution de réflectivité de seulement 2 à 4%. En outre, l'influence des dislocations devrait pénaliser en premier lieu les miroirs épitaxiés par épitaxie par jets moléculaires; or ces miroirs sont généralement de bonne qualité optique [5,8]. De même, nous avons obtenu de très bonnes réflectivités sur les échantillons où nous avons inséré une couche d'AlN ou un super-réseau AlN/GaN et qui présentent donc une densité de dislocations traversantes élevée. De plus, malgré le faible contraste d'indice optique entre les nitrures, des réflectivités supérieures à 98% ont été obtenues avec des miroirs (Al,Ga)N / GaN [9,10].

La valeur de la réflectivité du miroir que l'on recherche dépend du dispositif envisagé [11] : diodes électroluminescentes à cavité résonante (DEL-CR) ou laser à cavité verticale. En ce qui concerne la conception de diodes électroluminescentes à cavité résonante à base de nitrures, il est intéressant d'utiliser en face avant un miroir métallique qui en plus de son caractère réfléchissant, fait office de contact électrique. L'émission lumineuse se fait alors à travers le saphir. Le miroir de Bragg (Al,Ga)N / GaN n'a alors pas besoin de présenter une réflectivité élevée : une réflectivité de l'ordre de 50% est tout à fait acceptable. Le miroir ne requiert donc pas beaucoup d'alternances, entre 5 et 15 paires suivant la composition en Aluminium et la largeur de l'émission des puits quantiques [12].

Il faut toutefois signaler que lorsque le miroir est constitué d'un faible nombre d'alternances, le caractère « passe-bande » de la courbe de réflectivité avec une bande d'arrêt bien marquée tend à disparaître (cf. Figure 4-3).

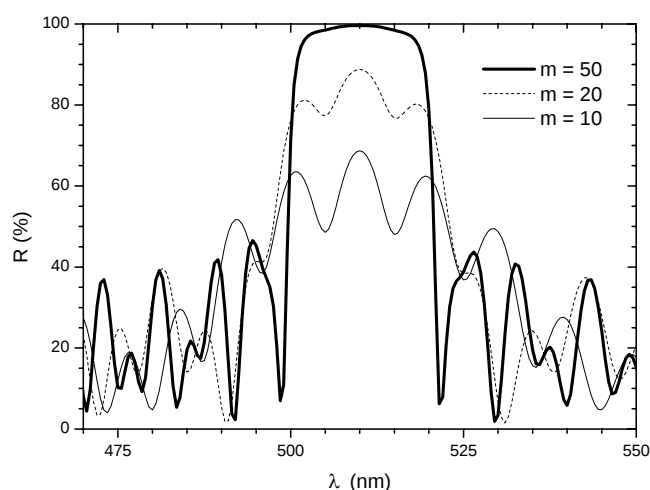


Figure 4-3 : variation du spectre de réflectivité calculé en fonction du nombre d'alternances pour un miroir de Bragg ($\text{Al}_{0,40}\text{Ga}_{0,60}\text{N}$ / GaN) épitaxié sur pseudo-substrat d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ (structure DBR3) : la bande d'arrêt du miroir n'est bien définie que pour un nombre conséquent d'alternances de Bragg.

D'autre part, la largeur de la bande d'arrêt est proportionnelle au contraste d'indice et donc à la composition des alternances d' $(\text{Al,Ga})\text{N}$ (cf Figure 4-4).

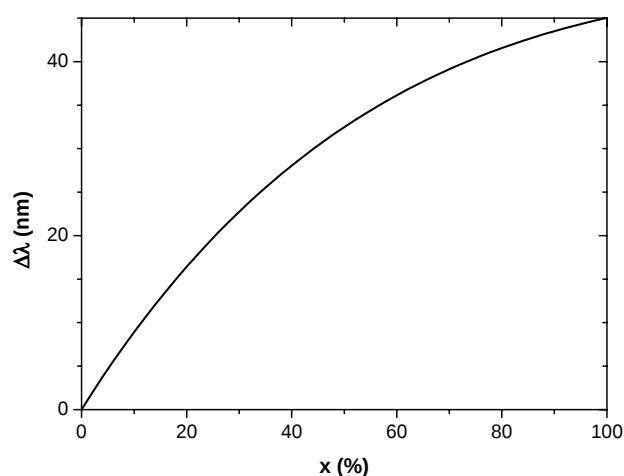


Figure 4-4 : largeur de la bande d'arrêt en fonction de la composition en Aluminium pour un miroir $(\text{Al,Ga})\text{N}/\text{GaN}$ centré à 510nm.

Pour la réalisation d'une diode électroluminescente à cavité résonante, l'accord entre la longueur d'onde centrale du miroir et celle de l'émission des puits quantiques est donc d'autant plus critique que la composition en Aluminium est faible ou que le nombre de paires est petit.

4.1.2. Spécifications structurales

Nous avons vu que la relaxation des contraintes est problématique dans les nitrures d'éléments III épitaxiés suivant l'axe [0001]. Elle s'accompagne soit d'une augmentation de la densité de dislocations traversantes soit de la fissuration du film. La puissance des diodes électroluminescentes est alors diminuée ou leur réalisation devient carrément impossible.

Lorsque nous avons réalisé la croissance de miroirs de Bragg avec l'insertion d'une couche d'AlN épitaxiée à basse température ou un super-réseau AlN/GaN, nous avons constaté que ces structures ne fissuraient pas. Par contre, la densité de dislocations traversantes était supérieure à $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. La puissance des diodes électroluminescentes réalisées au-dessus de ces miroirs était de ce fait sensiblement diminuée en comparaison des diodes classiques, épitaxiées sur un pseudo-substrat de GaN sans miroir de Bragg. Ainsi, parmi les structures présentées sur la Figure 4-1, nous ne nous intéresserons qu'aux miroirs épitaxiés directement sur pseudo-substrat de GaN ou d'(Al,Ga)N (DBR1 et DBR3). Pour que de tels miroirs puissent servir à la réalisation de DEL-CRs, il faut éviter leur fissuration. Nous nous attacherons donc à spécifier leurs épaisseurs critiques de fissuration.

Dans une structure multi-couche telle que les miroirs de Bragg, chaque alternance doit être inférieure à l'épaisseur critique de relaxation, mais dans le même temps, la structure totale ne doit pas dépasser son épaisseur critique. L'épaisseur d'une alternance d'un miroir de Bragg doit respecter le quart d'onde, soit $h = \lambda/4n$. Si on note A et B les deux matériaux

constitutifs du miroir, l'épaisseur du miroir sera: $h_{DBR} = \frac{m \cdot \lambda}{2 \cdot \bar{n}_{DBR}} = m \frac{\lambda}{4} \left(\frac{1}{n_A} + \frac{1}{n_B} \right)$ où m est le

nombre de paires du miroir et $\bar{n}_{DBR}$ l'indice effectif du miroir. Nous avons vu précédemment que la fissuration intervient lorsque l'épaisseur d'un film en tension excède une valeur

critique définie par $h_E^{crit} = \frac{\Gamma}{Z \cdot M \cdot \mathcal{E}_E^2}$.

La Figure 4-5 illustre les épaisseurs critiques de fissuration pour un film d'(Al,Ga)N épitaxié sur pseudo-substrat de GaN ou d'Al_{0,20}Ga_{0,80}N. Ces épaisseurs sont à comparer à l'épaisseur correspondant au quart d'onde. Nous avons considéré ici un miroir centré sur 510nm. Il s'ensuit que sur un pseudo-substrat de GaN, la composition en Aluminium des couches d'(Al,Ga)N constitutives du miroir doit être inférieure à 35% ; cette valeur limite devient 55% lorsqu'un pseudo-substrat d'Al_{0,20}Ga_{0,80}N est utilisé. Ces compositions donnent donc les limites pour la non-fissuration de la première alternance du miroir.

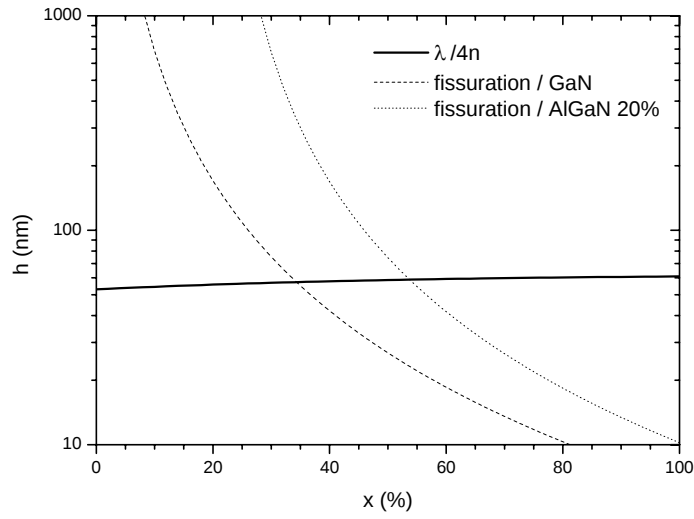


Figure 4-5 : épaisseur d'une alternance quart d'onde correspondant à une longueur d'onde de 510nm (trait plein) et épaisseur critique de fissuration de films d'(Al,Ga)N épitaxiés sur substrat de GaN (pointillé) ou pseudo-substrat $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$.

Pour un miroir constitué de plusieurs paires (Al,Ga)N / GaN, il est logique de s'attendre à des restrictions encore plus importantes. Le paramètre de maille à l'équilibre d'un miroir est donné par :

$$a_{DBR} = a_A^* \cdot a_B^* \frac{M_A \cdot h_A \cdot a_B^* + M_B \cdot h_B \cdot a_A^*}{M_A \cdot h_A \cdot (a_B^*)^2 + M_B \cdot h_B \cdot (a_A^*)^2} \quad (\text{cf } 2.2.4).$$

La déformation moyenne d'un miroir contraint sur un pseudo-substrat de paramètre de maille

$a_{\text{Pseudo-Substrat}}$ vaut $\varepsilon_{DBR} = \frac{a_{\text{Pseudo-Substrat}} - a_{DBR}}{a_{DBR}}$. Le nombre maximal de paires permettant

d'aboutir à un miroir non fissuré, peut alors être déterminé en fonction de la composition de l'(Al,Ga)N.

La Figure 4-6 présente le nombre maximal de paires d'un miroir (Al,Ga)N / GaN centré à 510nm, épitaxié sur un pseudo-substrat de GaN. Nous pouvons constater que pour une composition en Aluminium supérieure à 20%, les miroirs doivent présenter moins de 5 paires pour ne pas être fissurés. Si une réflectivité élevée est visée, il est préférable d'utiliser une faible composition en Aluminium et un nombre élevé d'alternances. Cependant dans ce cas, la bande d'arrêt du miroir sera réduite.

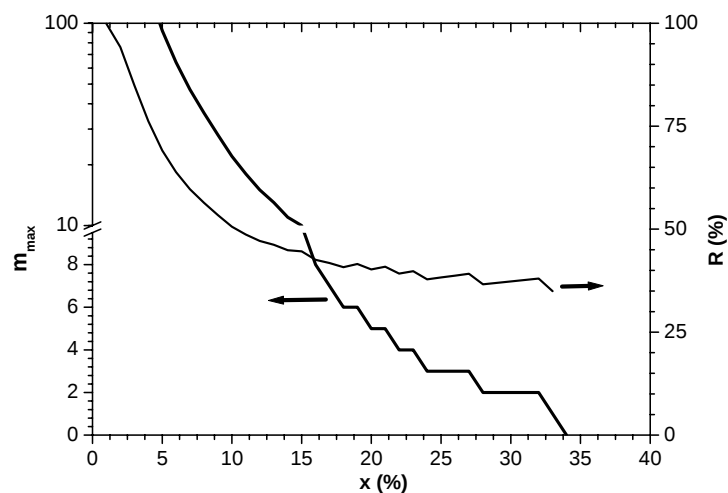


Figure 4-6 : nombre maximal de paires (Al,Ga)N/GaN avant fissuration et maximum de réflectivité correspondant pour un miroir (Al,Ga)N/GaN centré à 510nm, épitaxié sur pseudo-substrat de GaN (structure DBR1).

Pour les miroirs épitaxiés sur pseudo-substrat (Al,Ga)N (DBR3), il est possible de faire en sorte que la structure soit en accord de maille avec le substrat. Par exemple, un miroir $\text{Al}_{0,386}\text{Ga}_{0,614}\text{N}$ / GaN sera pseudomorphe sur un substrat d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$. Il ne sera donc pas à priori sujet à la relaxation plastique (que ce soit par fissuration ou introduction de dislocations). Ainsi, le nombre de paires ne sera pas limité et la réflectivité de la structure pourra atteindre théoriquement les 100%. La Figure 4-7 illustre la réflectivité qu'on peut attendre d'une telle structure en fonction du nombre de paires du miroir. La largeur de la bande d'arrêt pour ce miroir est de 28 nm. Elle est bien supérieure à celle que l'on pouvait attendre d'un miroir non-fissuré épitaxié sur pseudo-substrat de GaN.

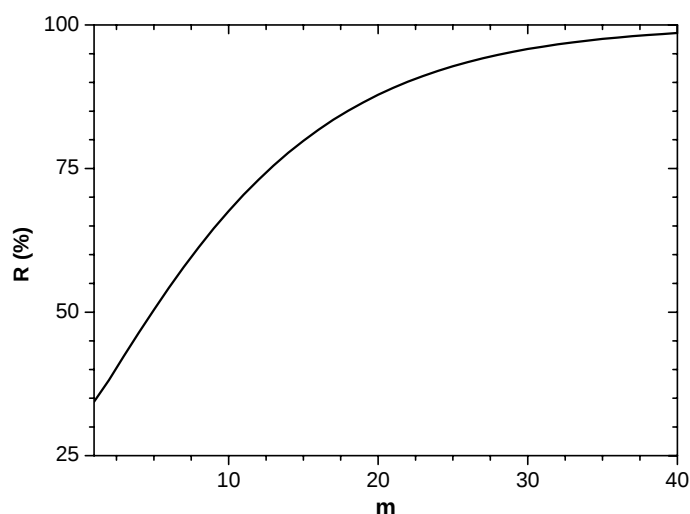


Figure 4-7 : réflectivité d'un miroir $\text{Al}_{0,386}\text{Ga}_{0,614}\text{N}$ / GaN épitaxié sur pseudo-substrat de $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ sur GaN sur saphir (structure DBR3), en fonction du nombre de paires du miroir.

La croissance de pseudo-substrats d'(Al,Ga)N relaxés et de bonne qualité présente donc un avantage indéniable pour la réalisation de diodes électroluminescentes à cavité résonante.

4.1.3. Spécifications électriques

La Figure 4-8 présente la structure d'une diode classique et celle d'une diode à cavité résonante. Hormis l'insertion d'un miroir de Bragg (Al,Ga)N/GaN, la principale différence réside dans l'épaisseur de la couche de GaN dopée n. En effet, afin d'avoir d'une part un gain intégral raisonnable pour la DEL-CR et d'autre part une séparation conséquente des modes de cavité, l'épaisseur de la cavité doit être aussi fine que possible. Elle doit être un multiple entier de $\lambda/2n$. L'épaisseur de la couche de GaN dopé n inclus dans la cavité sera donc de l'ordre de $\lambda/4n$. Pour une résonance à 510 nm, $\lambda/4n$ vaut environ 55 nm. A titre de comparaison, l'épaisseur du film de GaN dopé n est d'environ 2 μm pour les diodes électroluminescentes classiques.

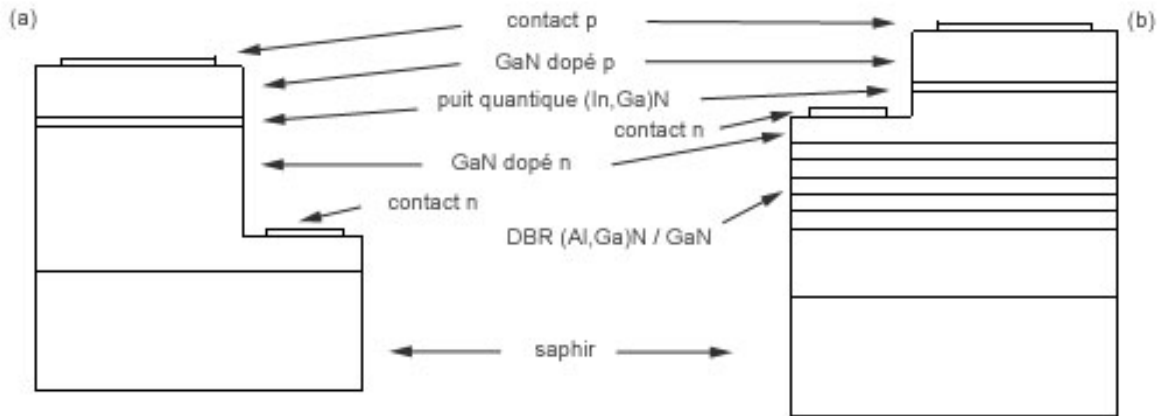


Figure 4-8 : structure d'une diode électroluminescente classique (a) et d'une diode électroluminescente à cavité résonante (b).

Guo et Schubert ont reporté une discussion sur l'étalement des flux de courant dans une structure de type mésa [13]. Cette structure est classiquement celle des diodes en nitrures épitaxiées sur substrat saphir. La densité de courant varie latéralement. Elle est maximale au bord de la structure mésa. Elle peut s'exprimer par : $J(x) = J_0 \times \exp(-x/L_s)$, J_0 étant la densité de courant au bord de la mésa, $L_s = \sqrt{(\rho_c + \rho_p t_p) t_n / \rho_n}$ avec ρ_c la résistance spécifique de contact sur le GaN de type p, ρ_p et t_p la résistivité et l'épaisseur du film de GaN de type p, ρ_n et t_n la résistivité et l'épaisseur du film de GaN de type n.

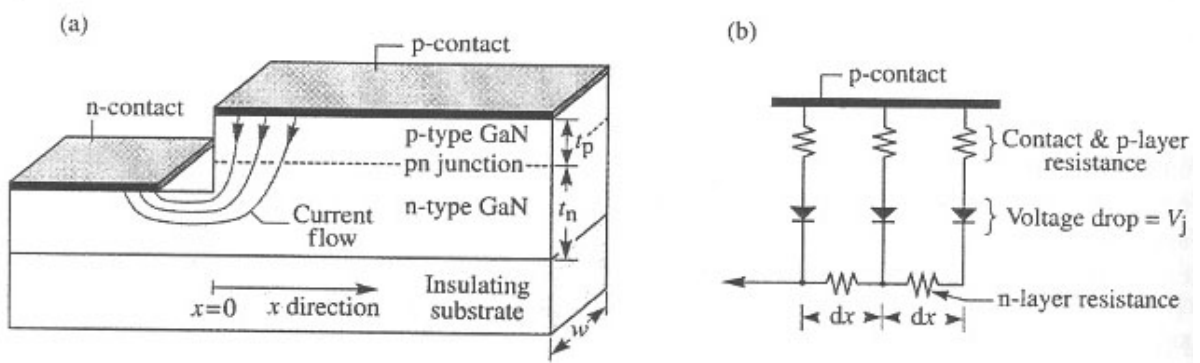


Figure 4-9 : (a) illustration de l'étalement des flux de courant électrique dans une diode électroluminescente ; (b) schéma électrique équivalent, d'après [1]

Pour obtenir l'émission lumineuse la plus homogène possible sur la surface de la diode, la longueur d'étalement du courant L_s doit être maximisée. Cela passe par exemple par une épaisseur importante et une résistivité faible du film dopé n. Or du fait de la structure à cavité résonante, l'épaisseur du GaN de type n est approximativement dix fois plus faible que dans une diode classique. Dans la géométrie présentée sur la Figure 4-8b, il est donc

prévisible que la luminescence ne se fasse que près du contact n. Pour éviter que le courant soit confiné près du bord de la méssa, il est alors intéressant que le miroir de Bragg soit conducteur.

4.2. Croissance des miroirs de Bragg

Les conditions de la croissance des miroirs de Bragg sont les mêmes que celles utilisées pour la croissance de l'(Al,Ga)N. La température est de 1100°C et la pression dans le réacteur est de 300mbar. Le débit de triméthylgallium (TMGa) a été maintenu constant. Il en est de même pour l'ammoniac. Les alternances GaN/(Al,Ga)N sont alors contrôlées par le passage ou non d'un flux de triméthyl-aluminium (TMAI), le précurseur de l'Aluminium. Selon qu'il s'agit de GaN ou d'(Al,Ga)N, le rapport V/III et la vitesse de croissance varient donc légèrement lors de l'épitaxie des alternances des miroirs de Bragg.

L'épaisseur des films constituant les miroirs est contrôlée par réflectivité in-situ [14]. La Figure 4-10 illustre la réflectivité mesurée lors de la croissance d'un miroir de Bragg. La réflectivité finale de la structure peut donc être estimée lors de sa croissance. Dans le cas présenté, elle est de 45% à température de croissance pour la longueur d'onde du laser (ici $\lambda=543\text{nm}$).

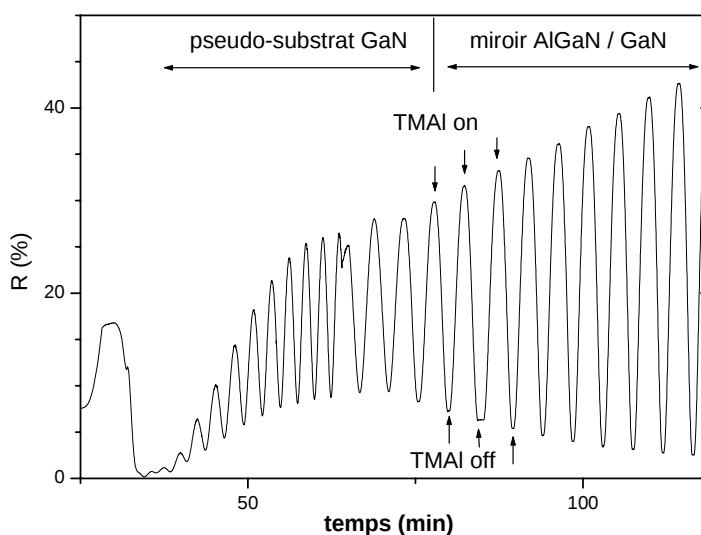


Figure 4-10 : courbe de réflectivité mesurée lors de la croissance d'un miroir de Bragg $\text{Al}_{0,10}\text{Ga}_{0,90}\text{N} / \text{GaN}$ épitaxié sur pseudo-substrat de GaN.

Lors du refroidissement, l'indice optique des films épitaxiés évolue. Nous avons mesuré une diminution de 5% de l'épaisseur optique du GaN (4,7% pour l' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$)

lorsque la température passe de 1100°C à la température ambiante. La contraction thermique des films est de l'ordre de 0,6 %ⁱ. La diminution de l'épaisseur optique est donc essentiellement due à une diminution de l'indice avec la température. La valeur du maximum de réflectivité dépend en premier lieu du rapport des indices du GaN et de l'(Al,Ga)N. Les indices optiques de ces matériaux ayant à peu près la même variation avec la température pour les faibles compositions en Aluminium, la réflectivité du miroir varie peu lors du refroidissement. Par contre le refroidissement induit un décalage de la longueur d'onde centrale du miroir (de l'ordre de 23 nm pour une longueur d'onde de 543 nm).

Il en est de même lorsque les alternances de Bragg présentent un écart par rapport à leur épaisseur nominale. La Figure 4-11 illustre les courbes de réflectivité calculées pour des miroirs de Bragg 50×(Al_{0,40}Ga_{0,60}N / GaN) selon que l'épaisseur des alternances d'(Al,Ga)N a été respectée ($\lambda_{\text{visée}} = 510$ nm), ou varie de $\pm 10\%$ par rapport à l'épaisseur nominale ($\lambda/4n$). On peut remarquer que le maximum de réflectivité n'est pas affecté par les variations d'épaisseur. En fait, le principal effet consiste en un décalage de la longueur d'onde centrale du miroir, celle-ci variant avec l'épaisseur optique d'une bicouche (Al,Ga)N/GaN. Ainsi, la longueur d'onde centrale du miroir peut être estimée par $\lambda_{\text{DBR}} \approx \frac{n_A \cdot h_A + n_B \cdot h_B}{2}$.

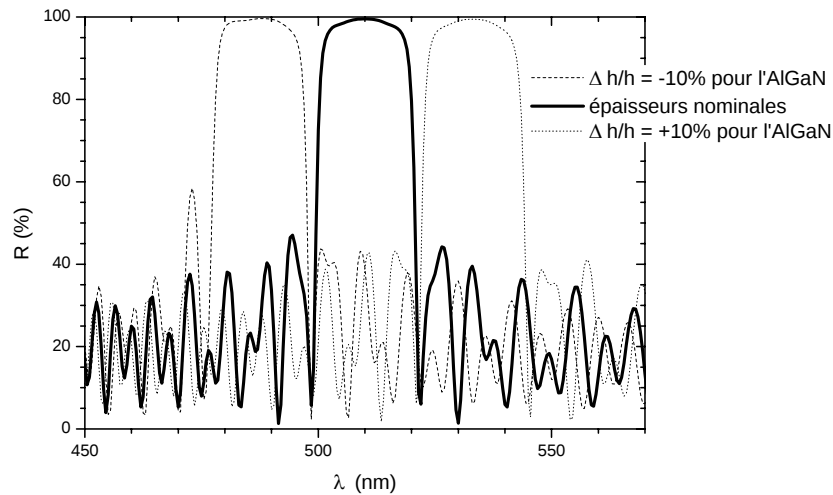


Figure 4-11 : courbes de réflectivité calculées pour un miroir 50x Al_{0,40}Ga_{0,60}N/GaN dont les alternances d'(Al,Ga)N présentent +/- 10% d'écart par rapport à la valeur nominale : on peut noter un décalage de la longueur d'onde du maximum de réflectivité.

ⁱ $\alpha \cdot \Delta T$ avec α_C le coefficient d'expansion thermique des nitrures (cf. section 2.2.3) et ΔT la différence de température entre la température de croissance et la température ambiante.

L'épitaxie des miroirs de Bragg ne présente donc pas de difficulté particulière. La mesure de la réflectivité in-situ s'est avérée un outil de choix pour le contrôle de leur croissance. Elle permet d'apprécier correctement les propriétés optiques des miroirs lors de leur croissance. Les spécifications optiques ne sont d'ailleurs pas trop contraignantes pour la réalisation de diodes à cavité résonante. L'ingénierie des contraintes lors de la croissance des miroirs est par contre indispensable.

4.3. Caractérisations

4.3.1. Réflectivité

Comme nous l'avons déjà mentionné, les courbes de réflectivité obtenues sur les miroirs de Bragg (Al,Ga)N/GaN correspondent à celles qui peuvent être calculées par la méthode des matrices de transfert. A titre d'illustration, nous présentons ci-dessous la courbe de réflectivité mesurée sur un miroir $\text{Al}_{0,30}\text{Ga}_{0,70}\text{N}$ / GaN dont la première alternance est constituée d'un super-réseau AlN/GaN. La réflectivité de ce miroir est d'environ 52%.

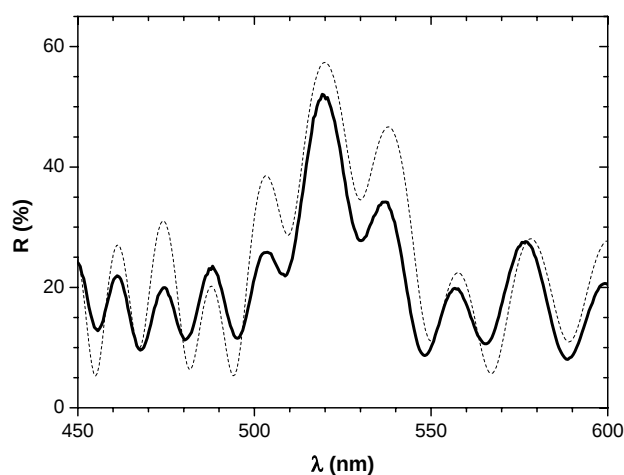


Figure 4-12 : réflectivité d'un miroir 10x ($\text{Al}_{0,30}\text{Ga}_{0,70}\text{N}$ /GaN) dont la première alternance est constitué d'un super-réseau AlN/GaN (courbe en trait plein : réflectivité mesurée ; en pointillés : réflectivité calculée par la méthode des matrices de transfert).

4.3.2. Caractérisations structurales

L'épitaxie de miroirs (Al,Ga)N / GaN sur un pseudo-substrat de GaN aboutit à la fissuration du film pour un faible nombre d'alternances de Bragg. Entre les fissures, la qualité structurale des miroirs est comparable à celle du pseudo-substrat de GaN. La densité de

dislocations traversantes est généralement inférieure à $5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$. Des caractérisations par microscopie électronique en transmission ont permis de vérifier que les interfaces (Al,Ga)N / GaN étaient abruptes [4]. Cependant, étant donné que les fissures sont incompatibles avec la réalisation de diodes électroluminescentes à cavité résonante, nous ne détaillerons pas plus les caractérisations structurales de ces miroirs.

L'insertion d'un film d'AlN épitaxié à basse température ou d'un super-réseau AlN/GaN a permis d'éviter la fissuration des miroirs de Bragg (cf. §2.5). Cependant, la relaxation des contraintes s'accompagne, dans ce cas, d'une augmentation importante de la densité de dislocations traversantes (cf. Figure 2-13). Ces dislocations sont majoritairement de type a. Leur densité s'élève à plus de $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$. L'efficacité quantique interne des diodes électroluminescentes est fortement réduite lorsqu'elles sont épitaxiées sur un film dont la densité de dislocations traversantes est si élevée. Par conséquent, nous avons privilégié la croissance des miroirs de Bragg sur un pseudo-substrat d'(Al,Ga)N.

L'utilisation d'un pseudo-substrat d'(Al,Ga)N permet de réaliser la croissance d'un miroir en accord de maille sur le pseudo-substrat. Aucun phénomène de relaxation plastique des contraintes ne devrait donc altérer la qualité structurale des matériaux constitutifs du miroir. L'état de contraintes des miroirs ainsi épitaxiés peut être analysé par diffraction des rayons X. La Figure 4-13 représente la cartographie du réseau réciproque obtenue autour des pics $(10\bar{1}5)$ et $(\bar{1}015)$ sur une structure de diode électroluminescente à cavité résonante comprenant un miroir de Bragg $10 \times$ (Al,Ga)N / GaN et un pseudo-substrat d'(Al,Ga)N épitaxié sur GaN sur saphirⁱ. Les pics du GaN et de l'(Al,Ga)N des alternances du miroir de Bragg sont alignés verticalement avec le pic correspondant au pseudo-substrat d'(Al,Ga)N. Ces différents matériaux ont donc le même paramètre de maille dans le plan de base. La croissance du miroir a été cohérente sur le pseudo-substrat d'(Al,Ga)N. En ce qui concerne le GaN, il se trouve dans deux états de contraintes différents suivant qu'il constitue le pseudo-substrat ou qu'il est inséré dans le miroir de Bragg : celui présent dans le miroir de Bragg subit une compression plus importante. L'alignement des différents pics du GaN permet d'ailleurs de vérifier que la contrainte est biaxiale avec un coefficient de Poisson biaxial $\nu_{biax} = -\varepsilon_c / \varepsilon_a$ proche de 0,5.

ⁱ La composition en Aluminium des différents films de cette structure est détaillée dans le Tableau 4-1 à la page 122.

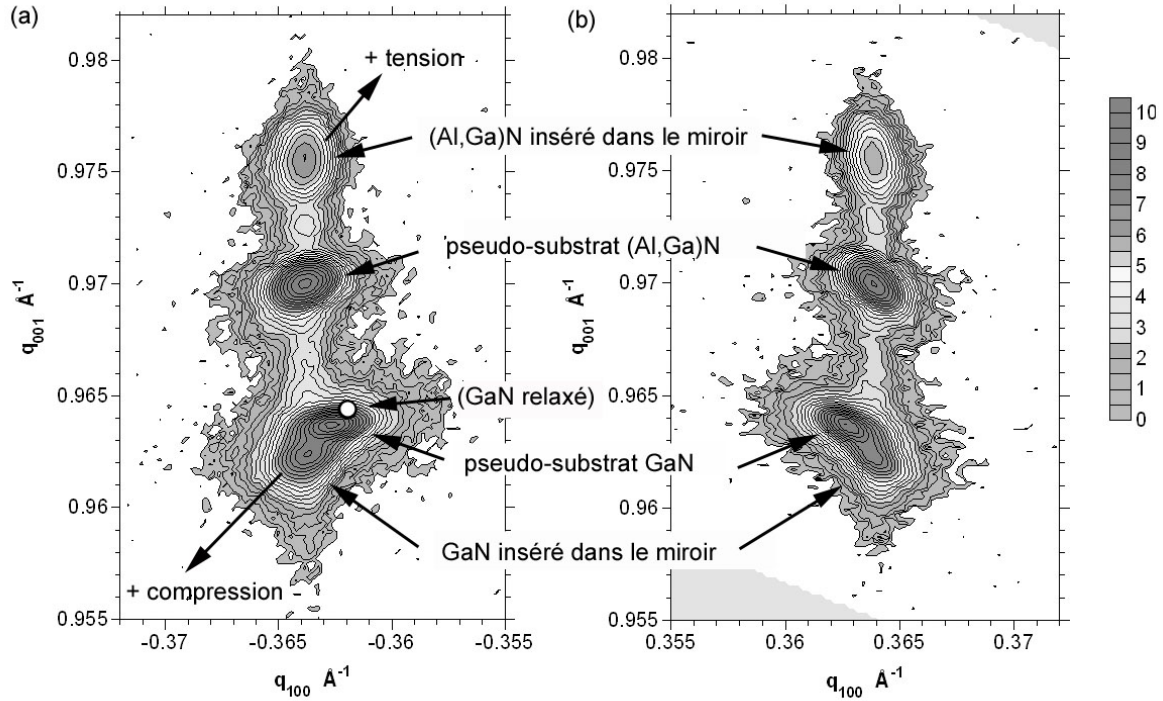


Figure 4-13 : cartographie par DRX du pic $(\bar{1}0\bar{1}5)$ (a) et $(10\bar{1}5)$ (b) pour la structure de diode électroluminescente à cavité résonante comprenant un miroir de Bragg $10\times$ ($\text{Al}_{0,27}\text{Ga}_{0,73}\text{N} / \text{GaN}$) et un pseudo-substrat d' $\text{Al}_{0,16}\text{Ga}_{0,82}\text{N}$ épitaxié sur GaN sur saphir.

Une étude des différents pics asymétriques accessibles avec le diffractomètre utilisé a permis d'affiner la détermination de la composition et de la contrainte des différents films de cette structure. Les résultats sont détaillés dans le Tableau 4-1. Les matériaux constituant les pseudo-substrats sont en compression du fait de la contrainte thermo-élastique. La compression du film d' $\text{Al}_{0,16}\text{Ga}_{0,84}\text{N}$ est plus faible que celle du GaN. Il semble donc que l' $\text{Al}_{0,16}\text{Ga}_{0,84}\text{N}$ n'ait pas été entièrement relaxé à température de croissance. Son taux de relaxation estimé à température de croissance, est toutefois d'environ 84 %. Les films d' $(\text{Al,Ga})\text{N}$ insérés dans le miroir subissent une contrainte en tension, la contrainte thermo-élastique ne compensant pas la contrainte d'épitaxie. Leur déformation dans le plan de base, estimée à température de croissance, vaut approximativement $3,8 \times 10^{-3}$. Le pic dû au pseudo-substrat de GaN étant très intense, la déformation du GaN des alternances du miroir n'a pu être déterminée directement. A partir de la carte du réseau réciproque, on peut toutefois l'estimer approximativement à $-3,2 \times 10^{-3}$ à température ambiante, soit environ $-1,2 \times 10^{-3}$ lors de la croissance du miroir (à 1100°C).

film	matériau	x (%)	$10^4 \times \varepsilon_{xx}$
miroir de Bragg	(Al,Ga)N	$26,6 \pm 0,5$	$16,9 \pm 5$
	GaN	0	-
pseudosubstrat	(Al,Ga)N	$16,0 \pm 0,4$	$-12,6 \pm 3$
pseudosubstrat	GaN	0	$-18,1 \pm 3$

Tableau 4-1 : composition en Aluminium (x) et déformation dans le plan de croissance (ε_{xx}) des alternances de Bragg d'un miroir de Bragg (Al,Ga)N/GaN et des pseudo-substrats (Al,Ga)N et GaN sur lesquels ils ont été épitaxiés.

Les mesures de déformation que nous venons de détailler, mettent en évidence qu'aussi bien le pseudo-substrat d'(Al,Ga)N et le miroir de Bragg sont en tension à température de croissance. Cela montre que la croissance d'un miroir (Al,Ga)N / GaN, relaxé et en accord de maille sur un pseudo-substrat d'(Al,Ga)N, n'est pas triviale. Elle suppose un contrôle précis à la fois de la composition des alliages mais aussi des mécanismes de relaxation et de la vitesse de croissance latérale de l'(Al,Ga)N.

Néanmoins, les valeurs des déformations sont suffisamment faibles pour que la structure ne soit pas fissurée. L'accord de maille révélé par la diffraction aux rayons X entre les films du miroir et le pseudo-substrat d'(Al,Ga)N indique qu'aucune relaxation plastique des contraintes n'est intervenue lors de la croissance du miroir.

En effet, la densité de dislocations traversantes n'augmente pas dans les miroirs de Bragg comme l'atteste l'image en champ clair par microscopie électronique en transmission (Figure 4-14). Cette image montre en outre la présence d'interfaces planes dans les miroirs à la verticale des fissures enterrées. L'utilisation d'un pseudo-substrat d'(Al,Ga)N s'est donc révélée particulièrement adaptée à la croissance de miroirs de Bragg de bonne qualité structurale.

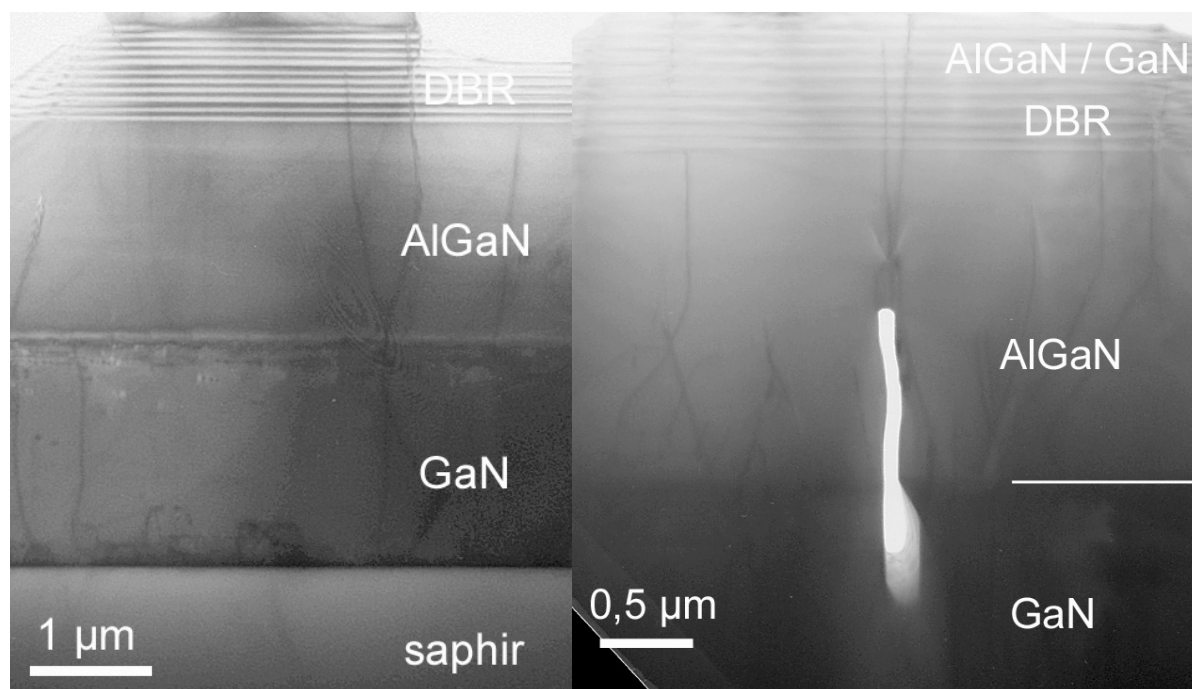


Figure 4-14 : images MET en section transverse d'une structure de diode à cavité résonante épitaxiée sur un pseudo-substrat d'(Al,Ga)N.

4.3.3. Conductivité électrique

L'énergie de bande interdite de l'(Al,Ga)N varie de 3,4 à 6,2 eV en fonction de la composition en Aluminium. La croissance de miroirs de Bragg (Al,Ga)N / GaN fait donc apparaître au niveau des hétérojonctions, des sauts de potentiel qui peuvent être importants. Leur présence rend difficile le passage du courant électrique le long de l'axe de croissance. Pourtant, le report de l'électrode de type n au dessous du miroir de Bragg peut s'avérer intéressant afin d'obtenir une émission de lumière homogène sur toute la surface de la diode à cavité résonante. Ainsi, pour optimiser la conception des diodes, il est important de pouvoir prévoir la distribution du courant électrique à l'intérieur des miroirs. Pour ce faire, la résistivité de miroirs de Bragg doit être mesurée.

Du fait de leur structure, la résistivité des miroirs sera différente selon que le courant circule le long de l'axe de croissance ou parallèlement au plan de base. La résistivité verticale sera a priori relativement élevée du fait des discontinuités de la bande de conduction induites par les hétérojonctions GaN / (Al,Ga)N, alors que la résistivité dans le plan de croissance devrait être plutôt faible, les hétérojonctions pouvant induire un gaz d'électrons bidimensionnel dans le GaN. De plus, l'utilisation d'un substrat isolant rend la mesure de leur résistivité encore plus délicate. Une méthode a toutefois été développée pour mesurer la résistivité des miroirs de Bragg le long de l'axe de croissance et dans le plan de base [15].

Cette méthode consiste à effectuer des mesures I-V par la méthode de la ligne de transmission (TLM) sur des structures où le miroir de Bragg a été localement gravé entre deux contacts pour que le courant électrique soit contraint de passer verticalement au travers de ces miroirs. Les valeurs extraites du tracé de la résistance mesurée en fonction de la distance entre électrodes de contact permettent alors de déterminer la résistivité du miroir le long de l'axe de croissance. Ces valeurs sont ensuite comparées à celles obtenues sur une structure où le miroir n'est pas gravé. Des simulations de mesures TLM permettent ensuite de remonter à la résistivité du miroir de Bragg dans le plan de croissance.

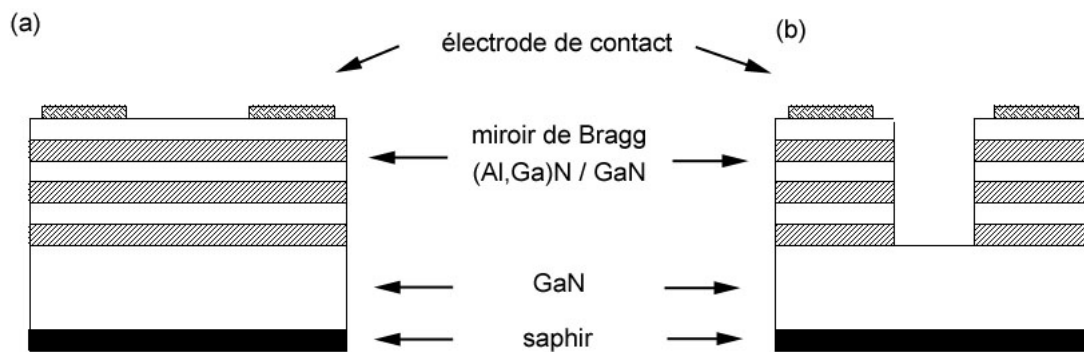


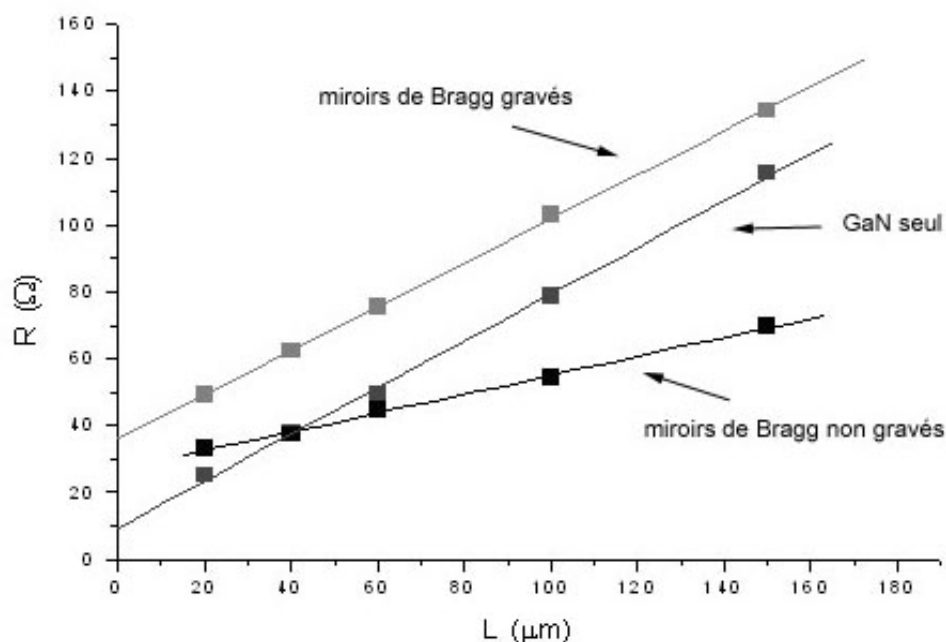
Figure 4-15 : illustration de la mesure de résistivité de miroirs de Bragg : (a) structure non gravée (#1), (b) structure où les miroirs de Bragg ont été gravés (#2).

Afin de valider cette méthode, des mesures TLM ont été effectuées sur un miroir $10\times$ ($\text{Al}_{0,10}\text{Ga}_{0,90}\text{N} / \text{GaN}$) dopé n. Ce miroir a été épitaxié sur un film de GaN de $2\text{ }\mu\text{m}$ mais dont le dopage a été réalisé uniquement sur une épaisseur de $0,9\text{ }\mu\text{m}$ en dessous du miroir. La densité de donneurs recherchée est de l'ordre de $3\times 10^{18}\text{ cm}^{-3}$.

Le Tableau 4-2 résume les résultats obtenus sur trois différentes structures. Les mesures TLM ont été réalisées avant et après la gravure du miroir de Bragg. Avant la gravure (structure #1), la conduction électrique peut s'opérer à la fois perpendiculairement et dans le plan de croissance. Après la gravure, le miroir de Bragg est intégré aux plots de contact (structure #2). La conduction ne peut donc se faire que le long de l'axe de croissance. Enfin la troisième structure est obtenue en réalisant la gravure sur toute la surface de l'échantillon. Il ne reste alors que le film de GaN qui était au dessous du miroir de Bragg. La mesure effectuée sur cette structure permet alors de déterminer la résistivité du film de GaN et la résistivité spécifique de contact.

structure	#1 miroirs non gravés	#2 miroirs gravés	#3 sans miroir
$2.R_C (\Omega)$	26 ± 3.5	$34,4 \pm 12$	$12,3 \pm 3$
$R_{\square} (\Omega)$	63 ± 9	156 ± 26	126 ± 9
$L_X (\mu m)$	83 ± 14	47 ± 21	19 ± 7

Tableau 4-2 : mesures TLM obtenues sur un miroir de Bragg (Al,Ga)N/GaN

Figure 4-16 : illustration des mesures TLM sur un miroir de Bragg $10 \times (Al_{0,10}Ga_{0,90}N / GaN)$ épitaxié sur GaN.

La résistivité de la couche de GaN sous-jacente obtenue sur la structure #3, est de $1,1 \times 10^{-2} \Omega.cm$. La résistance de contact permet d'estimer une résistivité spécifique de contact de $1,3 \times 10^{-4} \Omega.cm^2$ lorsqu'on reporte sur un abaque la formule théorique de R_C en fonction de la résistance spécifique de contact et de la résistance carré (cf Annexe A5).

La résistance de contact extraite par la méthode TLM sur l'échantillon où les miroirs de Bragg sont incorporés aux plots de contact (#2), ne permet a priori pas de déterminer la résistance verticale due au miroir de Bragg qui est confondue avec celle propre au contact. Cependant, si l'on considère que toute la surface du contact est utilisée pour l'injection électrique et que les lignes de flux de courant demeurent verticales dans tout le plot de

contact, la résistance de contact extraite vaut : $R_C(\#2)_{\text{extraction}} = \frac{\rho_{spC} + \rho_{spDBR}}{W.d}$, où ρ_{spDBR} représente la résistance perpendiculaire au plan du miroir de Bragg ramenée à la surface de contact, ρ_{spC} la résistance spécifique de contact et $W.d$ la surface des plots de contact. Si l'on suppose, en plus, que la résistance spécifique de contact est la même pour la couche sous-jacente et pour le miroir de Bragg, on obtient une résistance de 15,9 Ω pour les dix alternances du miroir de Bragg, soit une résistance spécifique de $1,6 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}^2$ par alternance.

La résistance carré mesurée sur la structure où le miroir de Bragg a été gravé, devrait être la même que sur la structure comprenant seulement le film de GaN (#3). La différence observée peut provenir d'une inhomogénéité d'épaisseur ou d'une légère sur-gravure près des contacts comme le montre la Figure 4-17.

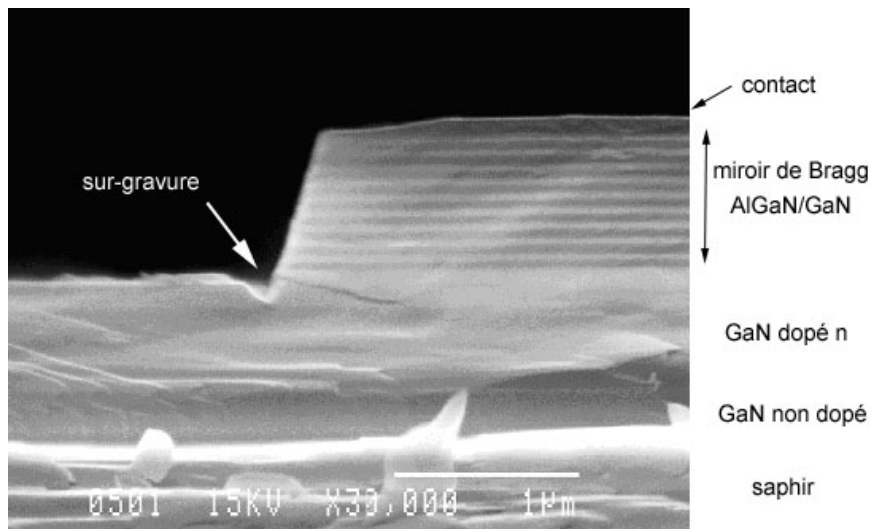


Figure 4-17 : microscopie électronique à balayage d'une structure comprenant un miroir de Bragg $10x \text{ Al}_{0,10}\text{Ga}_{0,90}\text{N} / \text{GaN}$ inséré dans un plot de contact (structure #2).

Les mesures obtenues sans graver le miroir de Bragg (#1), ne sont pas directement exploitables. En effet, la « résistivité apparente » que l'on peut calculer ($1,2 \times 10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}$), traduit l'empilement des différents films. La résistance de contact extraite par la méthode TLM sur cette structure représente avant tout la courbure des flux de courant au-dessous du contact sous l'effet des barrières de potentiel dues aux hétérojonctions $(\text{Al,Ga})\text{N} / \text{GaN}$. La complexité de la structure oblige donc à effectuer des simulations afin de déterminer la conductivité du miroir de Bragg parallèlement au plan de croissance.

Etant donné que seulement quatre mesures ont été extraites par les régressions linéaires TLM, à savoir la pente ($R_{\square}$) et l'abscisse ($2.R_C$) pour les structures où le miroir de

Bragg a été gravé ou non, il n'est possible d'introduire seulement quatre paramètres ajustables pour les simulations. La résistance propre au contact (ρ_{spC}) et la résistivité de la couche de GaN au dessous du miroir de Bragg sont incontournables pour rendre compte de la distribution du courant électrique dans la structure. Pour le miroir de Bragg, il ne reste donc plus que deux paramètres à choisir pour exprimer à la fois la conduction dans le plan de croissance et celle le long de l'axe de croissance. Pour une alternance (Al,Ga)N / GaN, nous avons donc assimilé les barrières de potentiel dues à la discontinuité de la bande de conduction à une résistance spécifique ρ_{spDBR} (en $\Omega.cm^2$). La conduction dans le plan de croissance est traduite par un terme de résistivité supposé identique pour l'(Al,Ga)N et le GaN constitutifs des miroirs : ρ_{DBR} ($\Omega.cm$). La Figure 4-18 illustre la modélisation du miroir de Bragg que nous avons adoptée. Une justification de la modélisation résistive est reportée dans les Annexes A6 et A7. D'autre part l'Annexe A8 détaille la démarche que nous avons suivi pour simuler les mesures TLM sur les miroirs de Bragg (Al,Ga)N / GaN.

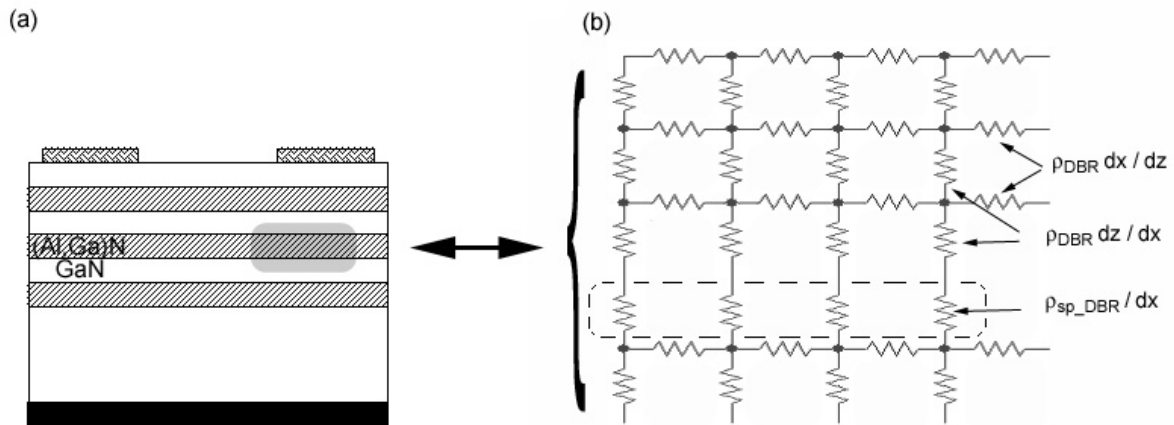


Figure 4-18 : (a) schéma représentant la structure d'un miroir de Bragg entre deux contacts électriques, la zone ombragée représente un élément de volume du miroir de Bragg (Al,Ga)N / GaN ; cette zone est modélisée par le circuit électrique en (b) ; (b) modélisation électrique d'une alternance (Al,Ga)N/GaN d'un miroir de Bragg : ρ_{spDBR} représente la résistance spécifique due aux discontinuités de la bande de conduction le long de l'axe de croissance; le terme ρ_{DBR} , homogène à une résistivité, permet de traduire la conduction des miroirs dans le plan de croissance ; dx et dz désignent les longueurs élémentaires du maillage opéré respectivement dans le plan de croissance et le long de l'axe de croissance.

Le courant circulant dans le réseau de résistances correspondant aux structures #1 et #2 est alors calculé en fonction de la distance entre les deux contacts. Les paramètres sont

alors ajustés afin que la régression linéaire de la résistance de la structure simulée en fonction de la longueur entre contacts corresponde à celle obtenue à partir des mesures expérimentales.

Pour le miroir de Bragg $10\times (\text{Al}_{0,10}\text{Ga}_{0,90}\text{N} / \text{GaN})$ considéré, les résistivités suivantes ont été obtenues :

- pour les barrières de potentiel : $\rho_{\text{sp DBR}} = 5 \times 10^{-5} \text{ } \Omega.\text{cm}^2$ par alternance,
- pour la résistance spécifique de contact : $\rho_{\text{sp C}} = 6 \times 10^{-4} \text{ } \Omega.\text{cm}^2$
- et pour la conduction dans le plan des miroirs : $\rho_{\text{DBR}} = 1,5 \times 10^{-2} \text{ } \Omega.\text{cm}$

La valeur de la résistivité parallèlement au plan de croissance est du même ordre de grandeur que celle du GaN. Il est probable que le niveau de dopage relativement élevé fasse chuter la mobilité des électrons et empêche d'obtenir une conduction par gaz d'électrons. D'autre part, le champ piézoélectrique induit un champ électrique qui a tendance à forcer le passage des électrons de l'(Al,Ga)N vers le GaN. La conduction dans le plan de croissance au niveau des barrières d'(Al,Ga)N est donc a priori faible. Cela peut expliquer qu'en moyennant sur une alternance (Al,Ga)N / GaN, la résistivité dans le plan de croissance du miroir de Bragg soit comparable à celle du pseudo-substrat de GaN.

Pour apprécier la valeur de la résistance spécifique des miroirs le long de l'axe de croissance, des simulations unidimensionnelles d'hétérostructures (Al,Ga)N / GaN ont été effectuées pour différentes compositions d'alliage et différents niveaux de dopage. Les paramètres de ces simulations sont détaillés dans l'Annexe A7. Ceux-ci n'étant pas précisément connus pour les nitrures et plus particulièrement pour les alliages (Al,Ga)N, les résultats de ces simulations reflètent avant tout l'ordre de grandeur de la résistivité des hétérojonctions. Nous avons d'ailleurs négligé les effets dus à l'approfondissement du niveau donneur lors de l'augmentation de la composition en Aluminium. Lors de ces simulations, la structure de bande de la structure a d'abord été calculée sans polarisation. Puis la densité de courant électrique a été estimée pour différentes polarisations appliquées. La régression linéaire de la densité de courant en fonction de la tension appliquée a finalement permis d'estimer la résistance spécifique de la structure. Les résultats de ces simulations sont présentés sur la Figure 4-19. Pour une composition en Aluminium de 10% et un niveau de dopage de $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, la résistivité obtenue est inférieure environ d'un facteur 10 par rapport à la valeur expérimentale, ce qui est réaliste compte tenu des incertitudes sur les paramètres spécifiques aux matériaux.

On peut donc penser que la Figure 4-19 rend compte correctement de l'évolution de la résistivité des miroirs de Bragg en fonction du dopage et de la composition en Aluminium. On

peut remarquer que la résistivité des hétérojonctions (Al,Ga)N / GaN augmente très rapidement avec la composition en Aluminium. Pour la réalisation de diodes à cavité résonante où le courant électrique serait amené à passer au travers d'hétérojonctions (Al,Ga)N / GaN, des compositions d'alliage supérieures à 10% sont donc à éviter.

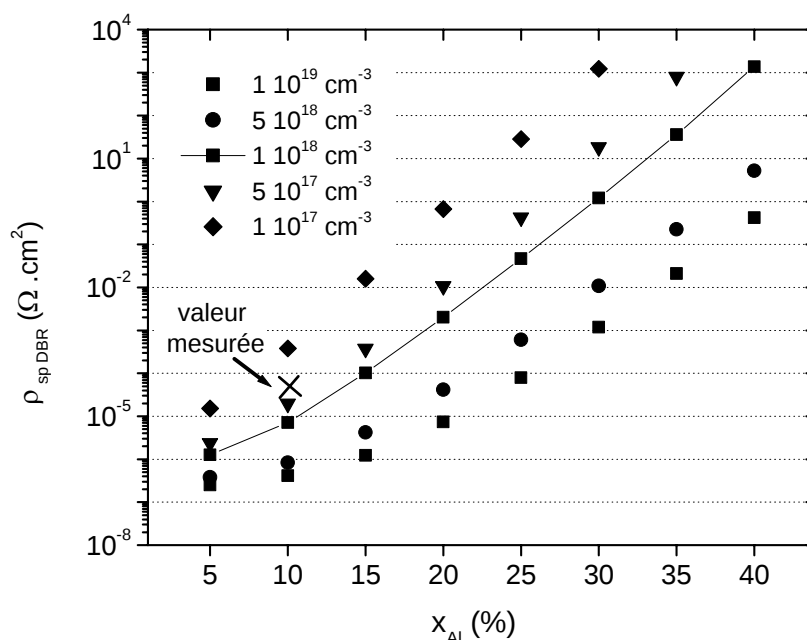


Figure 4-19 : résistance spécifique par alternance (Al,Ga)N / GaN en fonction de la composition en Aluminium et du dopage ; l'axe des ordonnées s'étend sur 12 décades.

La résistivité des miroirs de Bragg dopés n provient essentiellement des discontinuités de la bande de conduction. En première approximation, la résistivité des miroirs résulte donc de la différence d'énergie de bande interdite entre les deux matériaux constitutifs du miroir. La différence d'énergie de bande interdite entre (Al,Ga)N et GaN peut atteindre 2,8 eV. A titre de comparaison, les valeurs correspondantes sont 1,8 eV pour les arséniures et 1,18 eV pour les phosphuresⁱ. Cette différence permet d'apprécier la difficulté d'obtenir des miroirs de Bragg conducteurs à base d'(Al,Ga)N. L'utilisation d'alliages graduels pourrait toutefois permettre d'atténuer les barrières de potentiels dues aux hétérojonctions.

Il reste que l'utilisation d'un substrat isolant (le saphir) implique la réalisation des composants en technologie planaire. Or, si le contact n est déposé sur le film de GaN inclus

ⁱ Energies de bande interdite, d'après H. Matthieu, Physique des semi-conducteurs et composants électroniques, 5^{ème} édition, Dunod, Paris (2001) :

matériau	AlAs	GaAs	InAs	AlP	GaP	InP
E_g (eV) à 300K	2,16	1,43	0,36	2,45	2,25	1,27

dans la cavité, le courant se propagera préférentiellement près de la méso du fait de la faible épaisseur de la couche conductrice. La luminescence ne se fera donc que sur une surface peu étendue, localisée près du contact n. Si le contact n est déposé au niveau du miroir ou en dessous, les hétérojonctions (Al,Ga)N / GaN permettront d'homogénéiser le courant électrique sur toute la surface de la diode. Mais dans le même temps, les barrières de potentiel induiront une forte résistance série, ce qui se traduira par une tension d'alimentation élevée, des chutes ohmiques et un temps de commutation élevé, ce qui est à éviter.

4.4. Conclusion

Ce chapitre a permis d'illustrer les problèmes liés aux miroirs de Bragg à base de nitrures. L'adéquation entre les spécifications optiques, structurales et électriques s'est avérée délicate.

La faible différence d'indice optique entre AlN et GaN aboutit à des largeurs de bande d'arrêt des miroirs à base de nitrures relativement faibles : elle est inférieure à 50 nm pour des miroirs centrés à 510 nm. Or une large bande d'arrêt est souhaitable afin de faciliter l'accord en longueur d'onde entre les miroirs et la zone active des diodes à cavité résonante. De plus, les spectres d'électroluminescence des diodes à base d'(In,Ga)N ont des largeurs à mi-hauteur supérieures à 20 nm. Une composition en Aluminium relativement élevée doit donc être utilisée pour la croissance des miroirs de Bragg.

La relaxation plastique des miroirs de Bragg (Al,Ga)N / GaN épitaxiés sur un film de GaN conduit alors à la fissuration du film ou à une augmentation importante de la densité de dislocations traversantes. Or, ces deux mécanismes sont incompatibles avec la réalisation de diodes électroluminescentes performantes.

La croissance de pseudo-substrats d'(Al,Ga)N relaxés et de bonne qualité, a permis d'obtenir des miroirs de Bragg (Al,Ga)N / GaN en accord de maille sur le pseudo-substrat. Les miroirs de Bragg ainsi épitaxiés présentent une très bonne qualité structurale : pas de fissure, interfaces planes et abruptes, densité de dislocations traversantes autour de $5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$. La composition en Aluminium de ces miroirs peut être comprise entre 25 et 40%, en fonction de celle du pseudo-substrat. Afin de réaliser une diode électroluminescente à cavité résonante, un miroir $10 \times (\text{Al}_{0,27}\text{Ga}_{0,73}\text{N} / \text{GaN})$ a ainsi été épitaxié sur un pseudo-substrat d' $\text{Al}_{0,16}\text{Ga}_{0,84}\text{N}$ sans qu'il ne fissure. La réflectivité attendue de ce miroir est de l'ordre de 50%. Elle n'a pas été mesurée car la structure de diode à cavité résonante a été épitaxiée directement à la suite du miroir. Il faut noter que la croissance des miroirs

(Al,Ga)N/GaN étant cohérente sur le pseudo-substrat d'(Al,Ga)N, une réflectivité de 100% est envisageable sans craindre de phénomène de relaxation plastique des contraintes.

La mesure de la résistivité d'un miroir de Bragg $\text{Al}_{0,10}\text{Ga}_{0,90}\text{N}$ / GaN a permis d'estimer la résistance spécifique le long de l'axe de croissance à $5 \times 10^{-5} \Omega \cdot \text{cm}^2$ par alternance du miroir. Des simulations du diagramme de bandes sous polarisation électrique ont révélé que la conduction au travers des miroirs de Bragg devient difficile pour des compositions en Aluminium supérieures à 10%. L'utilisation d'un substrat isolant qui impose le recours à une technologie planaire, aboutit alors à une dualité entre propriétés optiques et conduction électrique. L'utilisation de substrats de GaN autosupporté pourrait lever ce dilemme en permettant d'adopter une structure verticale. Une ingénierie de bandes électroniques serait toutefois indispensable afin de minimiser les discontinuités de la bande de conduction et réduire ainsi la résistivité des miroirs de Bragg.

Références du chapitre :

- 1 E.F. Schubert, *Light emitting diodes*, Cambridge University Press, Cambridge (2003).
- 2 A. Krost et A. Dadgar, *Mat. Sc. Eng. B***93**, 77-84 (2002).
- 3 E. Feltin, Hétéro-épitaxie de nitrure de gallium sur substrat de silicium (111) et applications, thèse de doctorat, Université de Nice Sophia-Antipolis (2002).
- 4 H.P.D. Schenk, Elaboration de diodes électroluminescentes et de miroirs sélectifs à base de nitrures d'éléments III pour diodes à cavité résonantes, thèse de doctorat, Université de Nice Sophia-Antipolis (2001).
- 5 F. Natali, Elaboration, étude et application d'hétérostructures (Al,Ga)N/GaN épitaxiées par jets moléculaires sur Si(111), thèse de doctorat, Université de Nice Sophia-Antipolis (2003).
- 6 U. Özgür, G. Webb-Wood, H.O. Everitt et al., *Appl. Phys. Lett.* **79**, 4103-4105 (2001).
- 7 N.A. Sanford, L.H. Robins, A.V. Davydov et al., *J. Appl. Phys.* **94**, 2980-2991 (2003).
- 8 S. Fernandez, F.B. Naranjo, F. Calle et al., *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2136-2138 (2001).
- 9 H.M. Ng, T.D. Moustakas et S.N.G. Chu, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 2818-2820 (2000).
- 10 N. Nakada, H. Ishikawa, T. Egawa et T. Jimbo, *Jpn J. Appl. Phys.* **42**, L144-L146 (2003).
- 11 H. Benisty, H. De Neve et C. Weisbuch, *IEEE J. Quant. Electron.* **34**, 1612-1643 (1998).
- 12 A. Shaw, T. McCormack, A.L. Bradley et al., *Phys. Stat. Sol. (a)* **192**, 103-109 (2002).
- 13 X. Guo et E.F. Schubert, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3337-3339 (2001).
- 14 H.P. Schenk, P. De Mierry, P. Vennéguès et al., *Appl. Phys. Lett.* **80**, 174-176 (2002).
- 15 J.M. Bethoux, Etude de la résistivité de miroirs de Bragg (Al,Ga)N/GaN, rapport de stage, INSA-Lyon (2001).

5. Diodes électroluminescentes à cavité résonante

5.1. Intérêt

Il a été montré depuis plusieurs années que la réalisation de cavités optiques du type Fabry-Perot permettait d'obtenir une émission stimulée : c'est le principe des lasers. Cette utilisation d'interférences constructives dans une cavité optique a été adaptée aux diodes électroluminescentes à cavité résonante (DEL-CR) [1]. Dans ce cas, l'objectif n'est pas l'obtention d'une émission stimulée mais un gain de l'émission spontanée. Pour ce faire, un des miroirs délimitant la cavité doit présenter une réflectivité peu élevée afin que la transmission de la lumière au travers de ce miroir soit plus importante que l'absorption optique ayant lieu dans la cavité le long de l'axe de croissance.

Les principaux avantages d'une diode électroluminescente à cavité résonante sont :

- une émission le long de l'axe de croissance amplifiée d'un facteur 2 à 10 par rapport à une diode classique à la longueur d'onde de la résonance,
- un spectre d'émission plus fin : la largeur du spectre d'émission dépend essentiellement de la finesse de la cavité,
- une émission plus directive que dans une diode classique.

La directivité de l'émission et le gain sur l'intensité lumineuse émise le long de l'axe de croissance permettent d'améliorer le couplage avec les fibres optiques et de transmettre sur de plus longues distances. La finesse spectrale de l'émission permet en outre de diminuer la dispersion chromatique dans les fibres et d'augmenter le débit des communications.

5.1.1. Propriétés optiques des diodes électroluminescentes à base de nitrures

L'extraction de la lumière émise est délicate pour les diodes électroluminescentes réalisées avec des matériaux d'indices optiques élevés. C'est le cas pour les nitrures d'éléments III qui présentent des indices optiques supérieurs à 2 dans le visible. L'angle critique qui définit la frontière entre la réflexion totale et la transmission dans l'air de l'émission lumineuse est alors faible. Il vérifie $n_s \cdot \sin(\phi_c) = n_{air} \cdot \sin(90^\circ)$ avec ϕ_c l'angle critique de l'émission à l'intérieur du matériau semi-conducteur par rapport à l'axe de croissance (cf Figure 5-1), n_s l'indice optique du semi-conducteur et $n_{air} = 1$ celui de l'air ;

soit $\phi_c = \arcsin(n_{air}/n_s)$. En considérant un indice optique de 2,41ⁱ pour le GaN à 510 nm, l'angle critique est de 24,5°. Seuls les photons émis dans un cône de 24,5° par rapport à l'axe de croissance à l'intérieur du matériau seront donc émis dans l'air. Le rapport entre la puissance lumineuse émise dans l'air par une diode électroluminescente classique ($P_{émise}$) et celle générée au niveau de la zone active de la diode (P_{source}) s'exprime par

$$\frac{P_{émise}}{P_{source}} = \frac{1}{2}(1 - \cos \phi_c) \approx \frac{1}{4}\phi_c^2 \quad [1], \text{ soit } 4,6\% \text{ dans le cas du GaN, } 3,8\% \text{ si l'on considère la}$$

réflexion de la lumière à l'interface air / GaNⁱⁱ. L'intensité émise suit un profil du type

$$\text{Lambertien : } I_{air}(\Phi) = \frac{P_{source}}{4\pi \cdot r^2} \frac{n_{air}^2}{n_s^2} \cos \Phi \text{ avec } r \text{ la distance par rapport à la source de lumière}$$

et Φ l'angle de réfraction (cf. Figure 5-1).

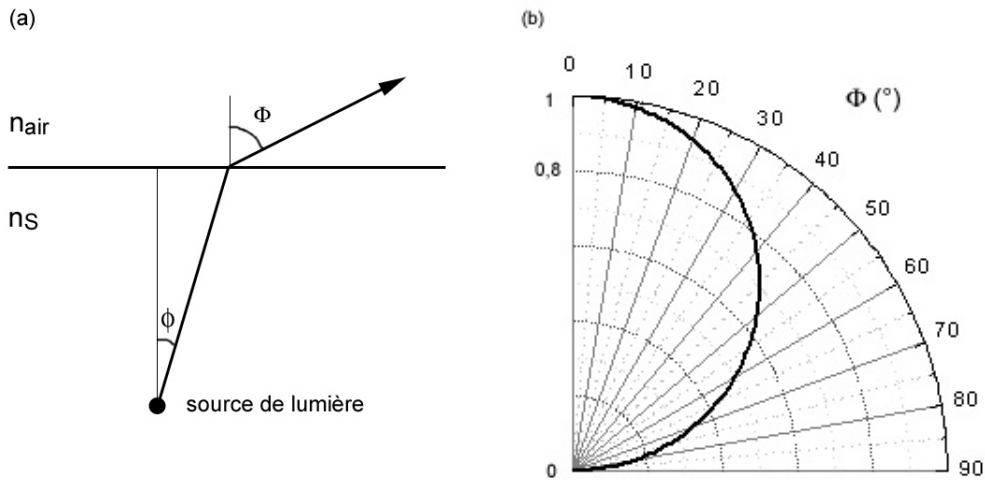


Figure 5-1 : (a) représentation de la réfraction des faisceaux lumineux à l'interface air / semi-conducteur ; (b) profil de l'intensité lumineuse émise dans l'air en fonction de l'angle de réfraction (profil du type Lambertien).

Par ailleurs, le couplage de la lumière entre une diode électroluminescente et une fibre optique ne se fait que sur une petite partie du rayonnement émis. L'angle limite qui peut être émis dans une fibre optique peut s'exprimer en fonction de son ouverture numérique (O.N.) par $\Phi_{lim} = \arcsin(O.N./n_{air})$. Pour une ouverture numérique de 0,5, cet angle vaut 30°. La

ⁱ Dans les nitrures, du fait de la structure wurtzite, l'indice optique dépend de la direction. Les indices optiques ordinaire et extraordinaire du GaN à 510nm sont respectivement 2,41 et 2,46 (communication interne de S. Pezzagna, CRHEA). Etant donné que l'angle critique est faible et que l'écart entre indice ordinaire et extraordinaire n'est pas très élevé, nous assimilerons dans notre discussion l'indice optique à celui purement ordinaire.

ⁱⁱ Pour une longueur d'onde de 510nm en incidence normale, la réflexion à l'interface air/GaN est d'environ 17%, celle à l'interface GaN/saphir est d'environ 1,4 % et celle à l'interface saphir/air 9,6%.

puissance lumineuse transmise dans la fibre est alors

$$P_{transmis} = \int_{\Phi=0^{\circ}}^{\Phi_{lim}} I_{air} \cdot 2\pi \cdot r^2 \sin \Phi \cdot d\Phi = \frac{P_{source}}{8} \frac{n_{air}^2}{n_s^2} (1 - \cos(2\Phi_{lim})), \text{ soit la moitié de la puissance}$$

lumineuse émise dans l'air (P_{emise}). Il résulte que moins de 3% des photons générés au niveau la diode électroluminescente sont transmis dans la fibre.

Les diodes électroluminescentes à base de puits quantiques d'(In,Ga)N/GaN présentent des spectres d'électroluminescence larges. Leur largeur à mi-hauteur, mesurée sur des structures DEL que nous avons épitaxiées, est supérieure à la valeur théorique $\Delta E = 1,8kT$ [1] (correspondant à $\Delta\lambda = 9,4$ nm pour une émission à 500 nm à température ambiante). De plus, elle augmente avec la longueur d'onde d'émission (cf Figure 5-2). Pour une émission à 500 nm, la largeur à mi-hauteur de l'émission est de l'ordre de 40 nm.

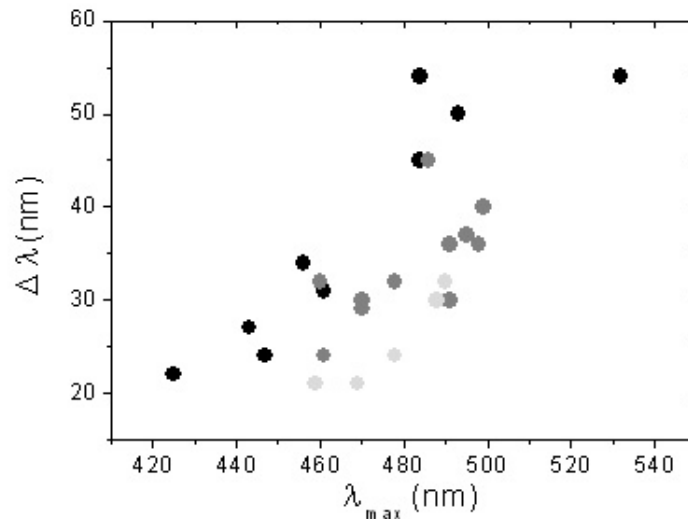


Figure 5-2 : largeur à mi-hauteur des spectres d'électroluminescentes en fonction de la longueur d'onde du maximum d'électroluminescence (courant d'injection $I=20$ mA).

Plus l'émission est large, plus la dispersion chromatique dans les fibres optiques est importante. Autrement dit, la durée entre le début et la fin d'une impulsion optique augmente lorsque le signal se propage dans la fibre optique. Il s'ensuit que pour augmenter le débit des communications optiques, il faut que le spectre d'émission soit le plus fin possible.

5.1.2. Principe des DEL-CR

Contrairement aux lasers où l'on cherche à obtenir le maximum de trajets optiques à l'intérieur de la cavité afin de stimuler l'émission, dans les diodes électroluminescentes à cavité résonante, l'objectif est d'extraire le maximum d'émission lumineuse spontanée. Pour obtenir une transmission conséquente de la lumière émise au travers d'un miroir, il faut que ce

miroir présente une réflectivité bien inférieure par rapport au deuxième miroir. On désignera par R_1 et R_2 respectivement les réflectivités du miroir peu réfléchissant et du miroir très réfléchissant : $R_1 < R_2$ (cf Figure 5-3). D'autre part, il faut que la probabilité d'absorption dans la cavité (en particulier au niveau de la zone active) d'un photon soit inférieure à la probabilité de son émission au travers du miroir de faible réflectivité. Un facteur de transmission élevé pour le miroir R_1 , c'est-à-dire une réflectivité faible, est donc a priori souhaitable. Cependant, afin d'avoir un gain sur l'intensité émise le long de l'axe de croissance, une directivité de l'émission et une sélectivité en longueur d'onde, il faut que la structure présente une finesse de cavité élevée. Cela passe par une réflectivité R_1 importante.

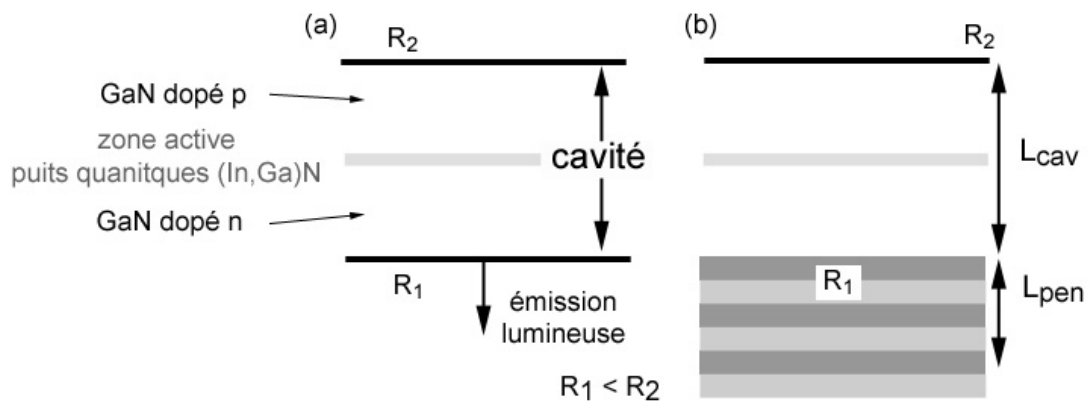


Figure 5-3 : schémas représentant une diode à cavité résonante : (a) la cavité est insérée entre deux miroirs de réflectivité R_1 et R_2 ; (b) lorsque le miroir bas (R_1) est un miroir de Bragg, la largeur effective de la cavité comprend en plus de la largeur physique de la cavité (L_{cav}) un terme appelé « longueur de pénétration » traduisant la pénétration du champ électrique dans le miroir (L_{pen}) ; d'autre part, le miroir de Bragg doit se terminer par le matériau dont l'indice optique est le plus faible, dans notre cas c'est l'(Al,Ga)N.

La structure optimale est donc un compromis entre l'effet de cavité et l'extraction de la lumière. En plus de la réflectivité des miroirs, la largeur de la cavité et la largeur du spectre d'émission des puits quantiques doivent être considérées [2]. D'une manière générale, il faut que :

- la largeur de la cavité permette d'obtenir une résonance à la longueur d'onde visée. La largeur d'une cavité formée entre deux miroirs diélectriques doit être un multiple de la demi-longueur d'onde de la résonance, soit $L_{cav} = m \lambda / 2n$ avec L_{cav} la largeur de la cavité, m un multiple entier, λ la longueur d'onde visée dans le vide, n l'indice optique du matériau inséré dans la cavité. Lorsqu'un miroir métallique est utilisé, il faut tenir compte du déphasage qu'il introduit, ce qui aboutit à un décalage d'environ $\lambda / 4n$ sur la largeur de la cavité.

- la zone active (i.e. les puits quantiques) doit être positionnée sur un maximum d'intensité du champ électrique pour obtenir un gain de l'émission.
- la zone active doit être placée le plus près possible du miroir de forte réflectivité,
- la cavité doit être la plus fine possible. Pour ce faire, il faut que non seulement l'épaisseur physique de la cavité soit petite mais aussi que la longueur de pénétration du champ électrique dans le miroir de Bragg soit limitée. Ceci implique que les matériaux constituant le miroir de Bragg doivent présenter un écart important d'indice optique.
- et enfin, il faut que la longueur d'onde de l'émission de la zone active corresponde à la longueur d'onde amplifiée par l'effet de cavité.

La structure adoptée pour une diode électroluminescente à cavité résonante dépend des caractéristiques que l'on désire privilégier : puissance lumineuse extraite, finesse spectrale ou directivité. Par exemple, si la puissance lumineuse extraite importe plus que la directivité de l'émission, il faut que la résonance dans l'axe de la cavité soit légèrement décalée par rapport à la longueur d'onde d'émission des puits quantiques [2].

Pour le couplage avec des fibres optiques dont l'ouverture numérique est petite, il faut concentrer l'émission dans un cône angulaire limité. Dans le cadre du projet Agheta, Shaw et al [3] ont modélisé l'extraction d'une diode électroluminescente à cavité résonante à base de nitrures dont le miroir à forte réflectivité est un film métallique. L'émission lumineuse sur cette structure s'opère au travers d'un miroir de Bragg (Al,Ga)N/GaN, d'un film de GaN et du substrat de saphir. Pour le nombre optimal de paires du miroir (qui varie de 3 à 10 paires en fonction de la composition de Aluminium et de la largeur du spectre d'émission des puits quantiques), l'efficacité d'extraction dans une fibre optique d'ouverture numérique 0,5 varie entre 3,4 et 5,7 fois celle d'une diode classique (sans cavité) suivant la composition en Aluminium du miroir de Bragg. Même pour des faibles compositions en Aluminium, la structure à cavité résonante présente donc un intérêt notoire.

5.2. Démonstration de l'effet de cavité

Afin de réaliser une diode électroluminescente à cavité résonante (DEL-CR) à base de nitrures pour les communications optiques via des fibres optiques plastiques, un miroir de Bragg composé d'un film d'AlN d'environ 60 nm d'épaisseur (correspondant à $\lambda/4n$ à 1100°C pour une longueur d'onde dans le vide de 543nm) puis de 17 paires (Al_{0,20}Ga_{0,80}N/GaN) a été épitaxié sur un pseudo-substrat de GaN sur saphir. La croissance

s'est poursuivie par une structure de diode électroluminescente, c'est à dire un film de GaN dopé n, une série de trois puits quantiques (In,Ga)N/GaN et un film de GaN dopé p. La réflectométrie in-situ avec un laser HeNe a été utilisée de sorte que la réflectivité du miroir soit centrée à 543 nm à température de croissance. L'épaisseur optique de la cavité sans tenir compte de la longueur de pénétration de l'onde dans le miroir de Bragg est de 3λ , les épaisseurs des films de GaN dopés étant d'environ 290 nm.

La Figure 5-4 illustre les spectres de réflectivité et de photoluminescence à incidence normale obtenus du côté de la couche épitaxiale sur la structure brute de croissance (avant le dépôt d'un miroir métallique). Le miroir de haute réflectivité est alors le miroir de Bragg ($R_{\max} \sim 63\%$), l'autre miroir étant constitué par l'interface GaN/air dont la réflectivité est d'environ 16 % à 510 nm. Le minimum de réflectivité à 504 nm correspond à la résonance de la cavité. Il coïncide avec un pic de photoluminescence. L'écart entre la longueur d'onde de la résonance et la longueur d'onde du laser utilisé lors de la croissance s'explique d'une part par la diminution de l'indice optique des nitrures lors du refroidissement et d'autre part par un gradient d'épaisseur du film épitaxié. La large bande observée sur le spectre de photoluminescence autour de 440 nm correspond à la luminescence associée à des domaines d'inversion liés au dopage magnésium [4].

La structure a ensuite été traitée afin de réaliser les contacts électriques. Afin d'obtenir une réflectivité élevée, l'Aluminium a été choisi pour le contact de type p. Pour que le contact soit ohmique et que l'Aluminium puisse adhérer sur le film, un dépôt de nickel puis d'or (d'épaisseur 50 Å chacun) a été réalisé : cette bicouche métallique est généralement utilisée comme électrode semi-transparente dans les diodes nitrures. La gravure de la structure et le dépôt du contact sur le GaN de type n ont été identiques à ceux effectués sur des diodes classiques.

Le spectre d'électroluminescence présenté sur la Figure 5-4 a été obtenu en recueillant la lumière émise à travers le substrat. Comme pour la photoluminescence, un pic fin est mesuré à 504 nm. On peut toutefois remarquer que le spectre d'électroluminescence présente une large bande d'émission pour des longueurs d'onde comprises entre 530 et 560 nm, et dont l'intensité est comparable à celle du pic obtenu à 504 nm. Il est probable que l'émission des puits quantiques soit centrée autour de 530 nm. La largeur du spectre d'émission des puits quantiques (de l'ordre de 50 nm à cette longueur d'onde) a dû permettre d'obtenir une intensité encore relativement élevée à la longueur d'onde de la résonance (504 nm) : on peut l'estimer à environ la moitié de l'intensité maximale de l'émission. Par ailleurs, la faible largeur de la bande d'arrêt du miroir (moins de 20 nm) résulte dans la transmission de

l'électroluminescence pour les valeurs de longueurs d'onde supérieures à 530 nm, bien qu'elles ne correspondent pas à la résonance de la cavité.

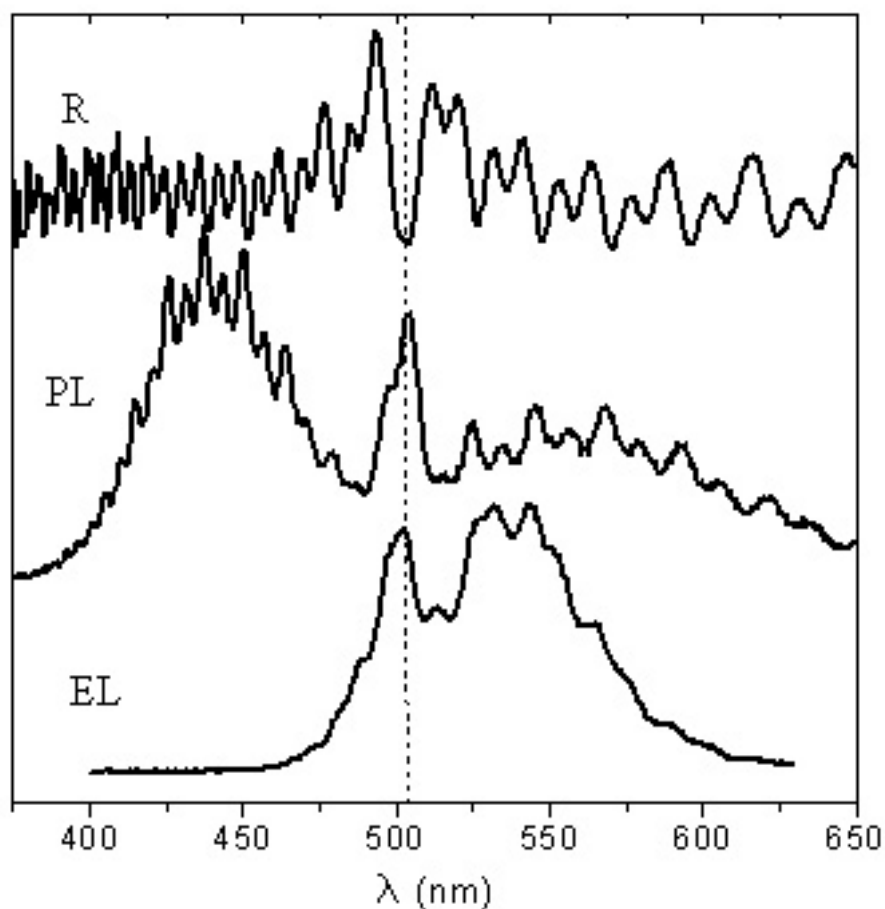


Figure 5-4 : spectres de réflectivité (R), de photoluminescence (PL) et d'électroluminescence (EL) d'une diode à cavité résonante : pour la longueur d'onde de 505 nm, il y a concordance entre un minimum de réflectivité, un pic de photoluminescence et un pic d'électroluminescence ; cette longueur d'onde correspond à la résonance de la cavité.

Pour mettre plus en évidence l'effet de cavité, des spectres d'électroluminescences ont été acquis pour différents angles. La Figure 5-5 présente les spectres obtenus pour des angles variant entre 0 et 40°. Un décalage en longueur d'onde du pic correspondant à la cavité y est observable. Il est souligné sur la figure par un trait en pointillé. De plus, l'intensité relative du pic lié à la résonance par rapport à celle de la bande d'émission autour de 540 nm diminue rapidement lorsque l'angle de réfraction dépasse 10°. La diminution de l'intensité lumineuse avec l'angle est caractéristique d'une émission directive, ce qui est attendu pour une diode électroluminescente à cavité résonante.

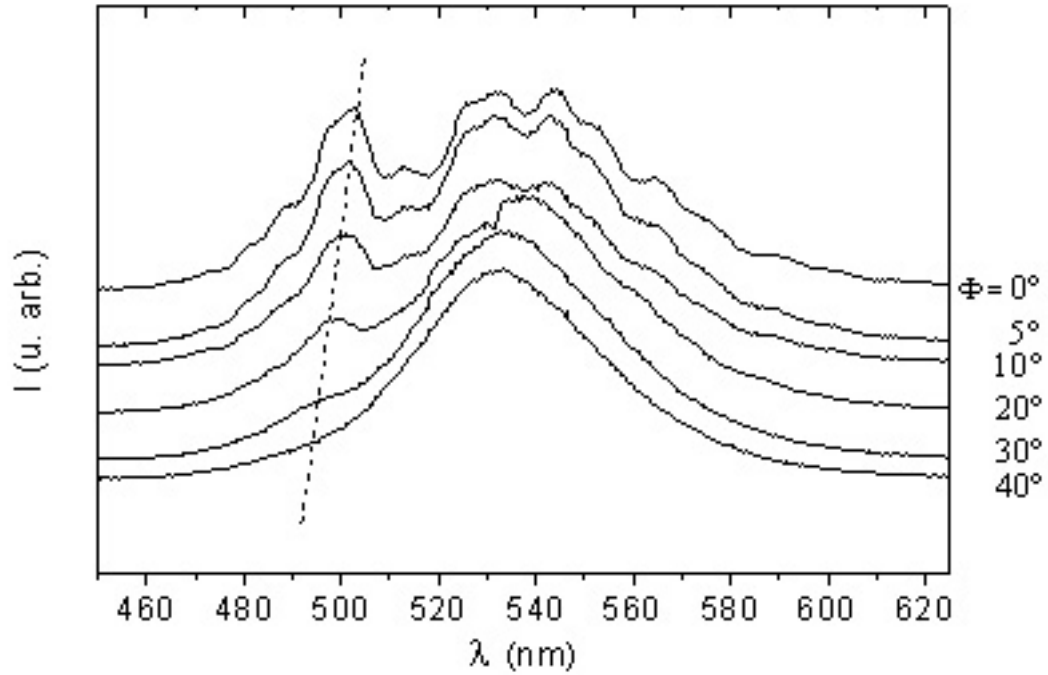


Figure 5-5 : spectres d'électroluminescence en fonction de l'angle de réfraction (Φ) d'une diode à cavité résonante : on note un décalage en longueur d'onde du pic correspondant à la cavité et la diminution de l'intensité de ce pic avec Φ .

La résonance est obtenue pour une longueur d'onde et un angle interne donnés lorsqu'il existe un entier m tel que $2nL_{cav} \cos \phi = m\lambda$ [2] où n est l'indice optique de la cavité, L_{cav} la longueur de la cavité, ϕ l'angle interne, λ la longueur d'onde dans le vide et m représente l'ordre de la cavité. D'autre part, l'angle de réfraction dans l'air et l'angle interne sont liés par la relation : $n_{air} \sin \Phi = n_{cav} \sin \phi$. Il s'ensuit que l'évolution de la longueur d'onde dû à l'effet de cavité avec l'angle de réfraction Φ s'exprime pour un mode

de résonance fixé (m constant) par $\frac{\lambda(\Phi)}{\lambda(\Phi = 0^\circ)} = \sqrt{1 - \left(\frac{n_{air}}{n_{cav}} \sin \Phi \right)^2}$ (equ. 5-1). Le décalage du

pic d'électroluminescence vers les basses longueurs d'onde lorsque l'angle de réfraction est augmenté constitue donc la signature de l'effet de cavité. La Figure 5-6 présente la longueur d'onde des pics d'électroluminescence correspondant à la résonance, ramenée à la valeur à incidence normale. Les courbes en pointillés correspondent à l'équation 5-1 avec des indices optiques de 2,39 et 2,8. Les points expérimentaux sont compris entre ces deux courbes. L'indice optique de la cavité serait donc a priori de l'ordre de 2,6. Or l'indice optique ordinaire du GaN à 500 nm est d'environ 2,41 et l'indice extraordinaire de l'ordre de 2,46. La mesure de la longueur d'onde de résonance en fonction de l'angle de réfraction sur d'autres

structures de DEL-CR a déjà abouti à extraire un indice optique pour la cavité supérieur à celui du GaN [5]. Cette surestimation de l'indice du GaN dans la cavité peut venir du fait que dans cette approche il ait été négligé la dépendance en fonction de l'angle interne du déphasage du champ électrique induit par le miroir métallique. Quoiqu'il en soit, le décalage observé de la longueur d'onde en fonction de l'angle réfracté met clairement en évidence l'effet de cavité de la structure.

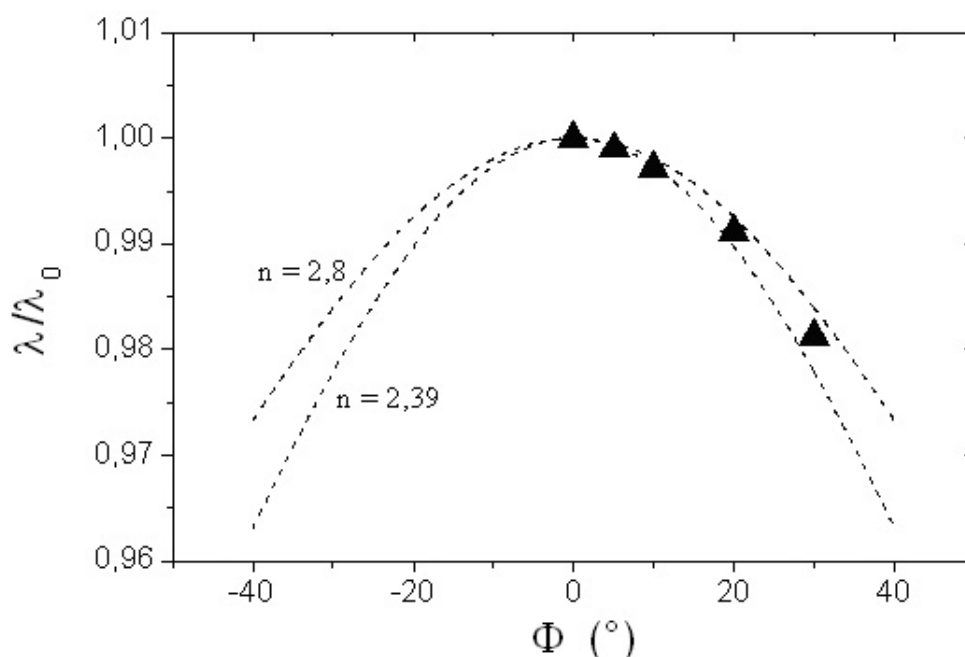


Figure 5-6 : rapport de la longueur d'onde du pic d'électroluminescence correspondant à la résonance sur la longueur d'onde du pic à incidence normale (λ_0) en fonction de l'angle de réfraction (Φ).

La puissance optique mesurée sur cette diode électroluminescente à cavité résonante est de l'ordre de 5 μW pour un courant d'injection de 20 mA, ce qui est faible en comparaison de la puissance des diodes classiques que nous avons réalisées (200 μW). Cette faible valeur de la puissance optique sur cette structure de DEL-CR provient d'une part du fait que le maximum de l'émission des puits quantiques ne coïncide pas avec la résonance, et d'autre part d'une densité de dislocations traversantes élevée (supérieure à $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$) induite par la couche d'adaptation d'AlN insérée sous le miroir de Bragg.

L'effet de cavité a toutefois été démontré. Nous avons pu vérifier que la résonance s'accompagne d'un accroissement de la directivité de l'émission. De plus, le pic d'électroluminescence lié à la résonance est fin. Néanmoins, la largeur spectrale de l'émission des puits quantiques (In,Ga)N et la faible largeur de la bande d'arrêt du miroir (Al,Ga)N /

GaN font également apparaître des pics d'électroluminescence qui ne correspondent pas à la résonance de la cavité.

5.3. Réalisation d'une diode à cavité résonante sur pseudo-substrat (Al,Ga)N

La croissance d'un film d'(Al,Ga)N épais, relaxé et de bonne qualité cristalline s'est révélée particulièrement intéressante pour réaliser des miroirs de Bragg (Al,Ga)N / GaN en accord de maille sur le pseudo-substrat d'(Al,Ga)N. Cela permet d'éviter la relaxation plastique des contraintes lors de la croissance des miroirs de Bragg. Nous avons donc réalisé la croissance d'une diode électroluminescente à cavité résonante sur un pseudo-substrat d'(Al,Ga)N. La structure comprend, en partant du substrat, :

- un film de GaN de 2 μm d'épaisseur épitaxié sur le substrat de saphir,
- un film d' $\text{Al}_{0,16}\text{Ga}_{0,84}\text{N}$ de 2 μm d'épaisseur,
- un miroir de Bragg composé de 10 paires $\text{Al}_{0,27}\text{Ga}_{0,73}\text{N}$ / GaN et dont la réflectivité est centrée à 458 nm à température de croissance. Cette longueur d'onde a été choisie car la puissance des diodes à base d'(In,Ga)N est supérieure lorsque leur émission se produit dans le bleu plutôt que dans le vert. Par ailleurs, un laser Ar monté sur le bâti de croissance permet de suivre la réflectivité in-situ à cette longueur d'onde.

- un film de GaN dopé Si,
- un puits quantique (In,Ga)N,
- et un film de GaN dopé Mg.

L'épaisseur des couches de confinement optique qui sont des films de GaN dopés, insérés dans la cavité de part et d'autre du puits quantique, est d'environ 180 nm, ce qui correspond à une cavité optique de 2λ pour une longueur d'onde de 458nm dans le vide.

La Figure 5-7 est une microscopie électronique en balayage en section transverse qui illustre la structure de la DEL-CR une fois processée. On peut y voir une fissure enterrée qui s'étend dans le film de GaN. Les interfaces nettes montrent que le pseudo-substrat d' $\text{Al}_{0,16}\text{Ga}_{0,84}\text{N}$ et le miroir de Bragg $10\times(\text{Al}_{0,27}\text{Ga}_{0,73}\text{N} / \text{GaN})$ sont lisses. La gravure ionique réactive a permis de définir des ouvertures dans lesquelles les électrodes de type n ont été déposées. Sa profondeur a été contrôlée par réflectométrie laser. Le contact de type n a ainsi pu être déposé juste en dessous du puits quantique.

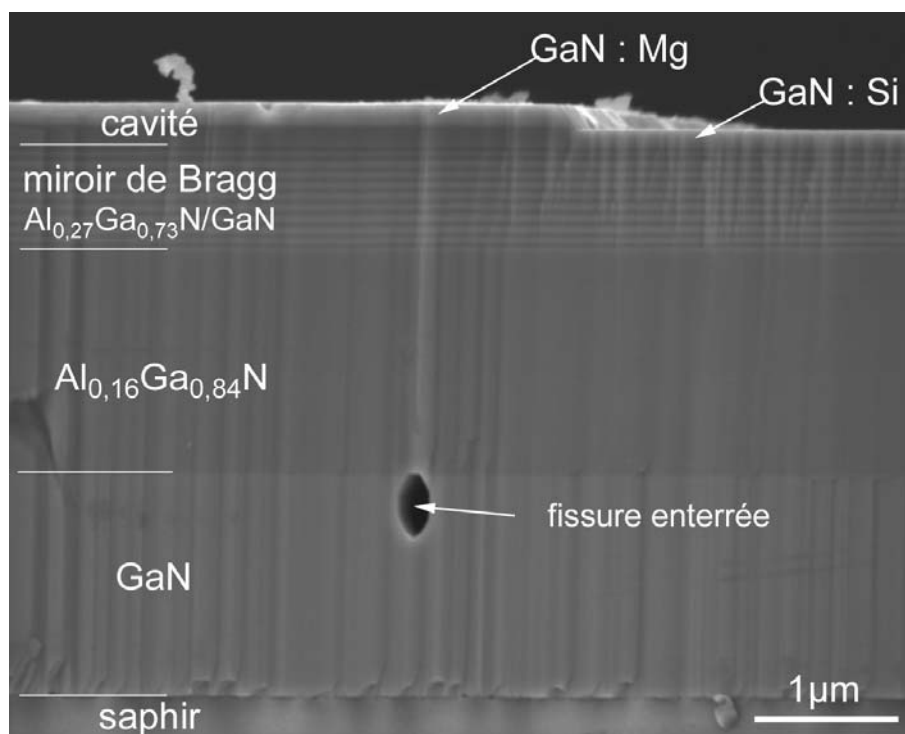


Figure 5-7 : image MEB en section transverse d'une diode électroluminescente à cavité résonante épitaxiée sur un pseudo-substrat d'(Al,Ga)N : une fissure enterrée s'étend dans le film de GaN ; la gravure sèche a permis de définir des ouvertures aboutissant au film de GaN dopé Si (type n) et de déposer l'électrode de type n juste en dessous du puits quantique.

La caractérisation structurale du miroir de Bragg a été présentée au chapitre précédent (cf Figure 4-13 et Figure 4-14). La diffraction des rayons X et la microscopie électronique en transmission ont permis de vérifier qu'aucun mécanisme de relaxation plastique n'est intervenu lors de la croissance du miroir de Bragg. Il en a été de même lors de la croissance du film de GaN dopé Si et du puits quantique d'(In,Ga)N. Néanmoins après la couche d'(In,Ga)N, des défauts en V se sont formés à la surface de l'échantillon comme le montre la Figure 5-8. Ils se propagent sur presque toute l'épaisseur du film de GaN dopé Mg. La déformation du GaN épitaxié au dessus du miroir pour former la cavité optique a été estimée à environ $-1,2 \times 10^{-3}$ à température de croissance. Cette contrainte compressive a probablement contribué à la formation de ces défauts. De tels défauts ont en effet déjà été reportés sur des films épais d'(In,Ga)N en compression biaxiale [6].

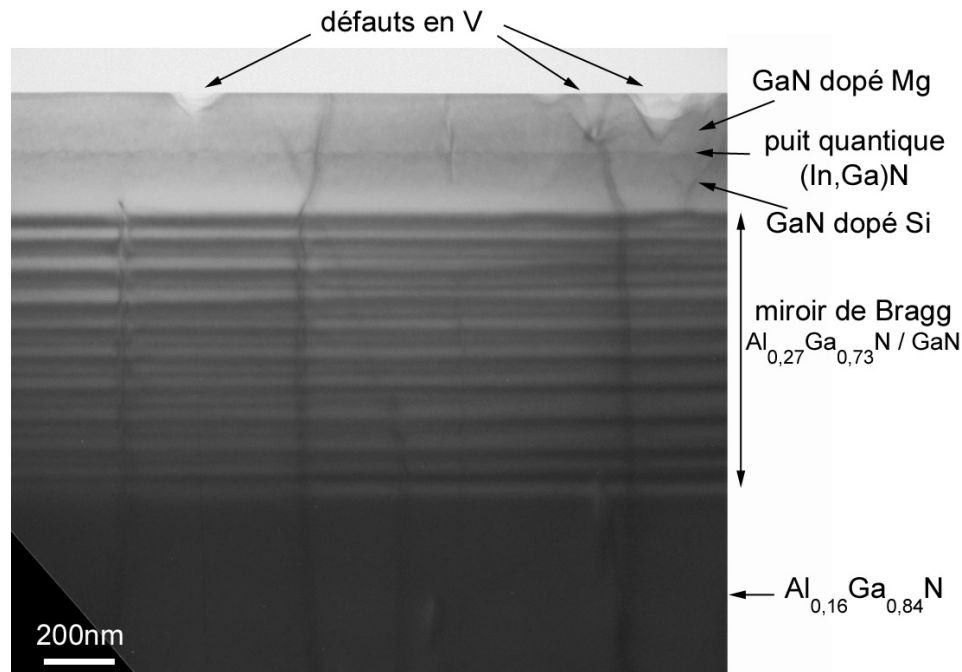


Figure 5-8 : image MET en section transverse d'une diode électroluminescente à cavité résonante épitaxiée sur un pseudo-substrat d'(Al,Ga)N. La densité de dislocations traversantes est la même dans le film épais d'(Al,Ga)N, le miroir de Bragg et la cavité optique. Par contre, des défauts en V se sont formés dans la couche de GaN superficielle.

La Figure 5-9 présente un spectre de réflectivité obtenu en incidence normale du côté du film épitaxié. Un minimum de réflectivité autour de 465 nm est clairement observable. Le léger décalage entre la longueur d'onde de ce minimum de réflectivité et celle du laser utilisé lors de la croissance est dû au gradient d'épaisseur de l'échantillon. La réflectivité n'a pas été mesurée de façon quantitative. Cependant, le spectre de réflectivité obtenu est tout à fait comparable à celui que l'on peut calculer par la méthode des matrices de transfert pour une telle structure. La réflectivité du miroir doit donc être proche de la valeur théorique qui est d'environ 50%.

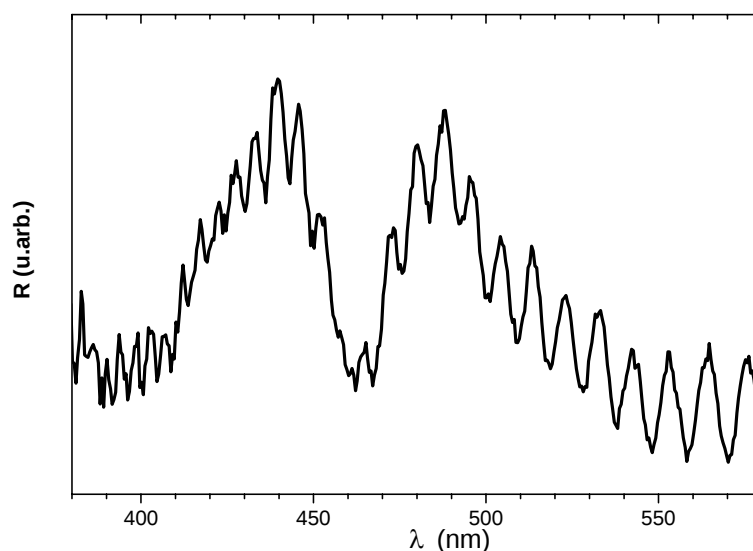


Figure 5-9 : spectre de réflectivité d'une diode électroluminescente à cavité résonante épitaxiée sur un pseudo-substrat d'(Al,Ga)N : le minimum de réflectivité à 465 nm correspond à l'effet de cavité.

Testée sous pointe, l'électroluminescence de la structure était peu intense. Nous avons donc opté pour une réalisation technologique identique à celle des diodes classiques. En particulier, une électrode semi-transparente en Ni/Au a été déposée sur le film de GaN dopé p, sans être recouverte d'un miroir métallique. Le contact n a été déposé après gravure sur le film de GaN inséré dans la cavité. La Figure 5-10 montre le motif d'une diode électroluminescente ainsi réalisée dont la dimension est $500\mu\text{m} \times 500\mu\text{m}$. La luminescence est faible. Elle n'est visible que lorsque la diode est soumise à un fort courant électrique, de l'ordre de 100 mA. La luminescence n'a lieu que près du contact n. Ceci est attribué au fait que la composition en Aluminium relativement élevée des alternances du miroir de Bragg (27%) induit des barrières de potentiel importantes. La conduction des électrons ne peut se faire que dans le film de GaN dopé n dont l'épaisseur est fine. Il était donc prévisible que l'électroluminescence se produise essentiellement près du bord de la mésa au voisinage du contact n (cf. §4.1.3).

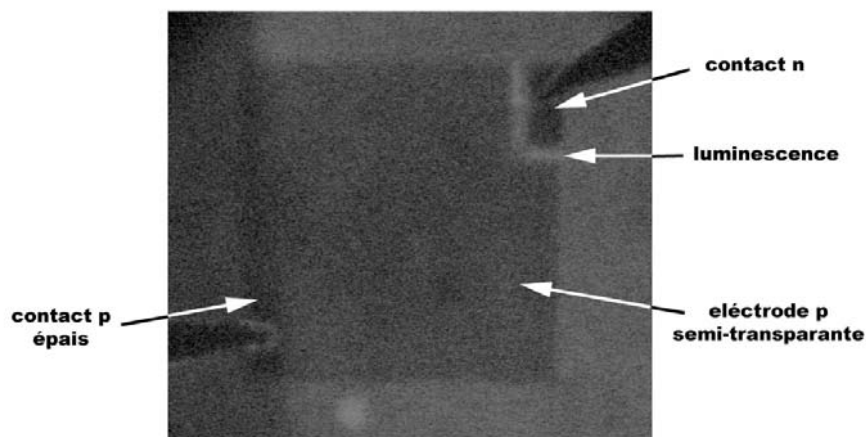


Figure 5-10 : photographie d'une DEL-CR épitaxiée sur un pseudo-substrat d'(Al,Ga)N sous injection électrique de 100 mA : la luminescence n'est observée que près du contact n.

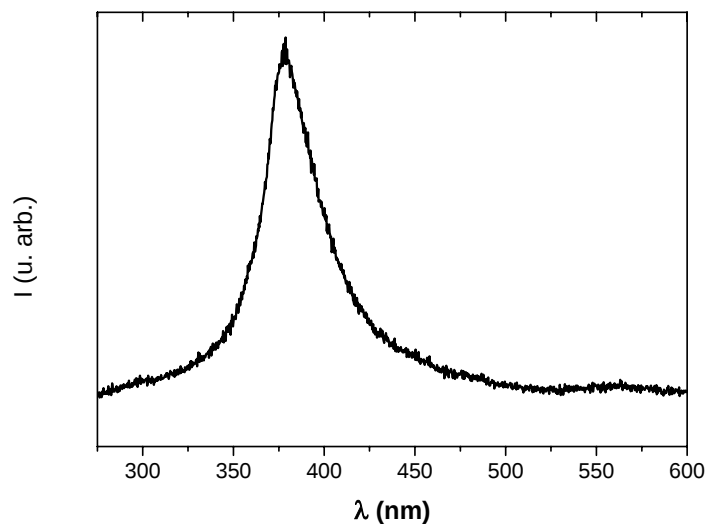


Figure 5-11 : spectre d'électroluminescence obtenu sur une diode électroluminescente à cavité résonante épitaxiée sur un pseudo-substrat d'(Al,Ga)N (injection $I=100$ mA).

Les spectres d'électroluminescence montrent un pic autour de 380 nm (cf Figure 5-11). Ce pic ne correspond pas du tout à longueur d'onde visée pour la résonance de la cavité. Il est d'ailleurs très proche du maximum d'électroluminescence obtenu sur une homojonction n-p de GaN (372 nm).

Les conditions de croissance adoptées pour la réalisation du puits quantique avaient pourtant abouti à une émission à environ 460 nm pour des diodes classiques. Il est possible

que lors de la croissance de la structure à cavité résonante, la contrainte en compression du GaN ait réduit l'incorporation d'indium lors de la croissance du puits quantique. En effet, l'atome d'indium est relativement gros par rapport au gallium : rayon atomique de 1,666 Å à comparer à 1,351 Å pour le Gallium. Lorsque la maille du GaN est en compression biaxiale, il est prévisible que les adatoms d'indium soient plus difficilement incorporables, ce qui conduit à un puits quantique plus fin et dont la composition en indium est plus faible que celle visée. Or, si la composition en indium du puits quantique diminue, l'énergie de l'émission augmente (décalage de l'émission vers le bleu). D'autre part, le décalage vers le rouge dû à l'effet Stark confiné quantique est d'autant moins marqué que le puits d'(In,Ga)N est fin.

Par manque de temps, nous n'avons pu réaliser d'autres structures de diodes électroluminescentes à cavité résonante sur pseudo-substrat d'(Al,Ga)N.

Bien que la croissance de films épais et relaxés d'(Al,Ga)N ait permis d'obtenir des miroirs de Bragg (Al,Ga)N / GaN non fissurés et de bonne qualité structurale, la réalisation d'une diode électroluminescente à cavité résonante monolithique s'est avérée délicate dès lors que la composition en Aluminium du miroir de Bragg dépasse 10%. Des interrogations demeurent sur l'incorporation d'indium dans du GaN contraint, et sur la formation de défauts en V lors de la croissance du film de GaN dopé Mg.

5.4. Conclusion

Nous avons réalisé plusieurs structures de diodes électroluminescentes à cavité résonante (DEL-CR). Dans ce chapitre, des résultats sur deux structures particulières ont été présentés.

L'effet de cavité a été démontré sur une DEL-CR de cavité 3λ et dont le miroir de Bragg est constitué de 17 paires (Al_{0,20}Ga_{0,80}N/GaN). La directivité de l'émission lumineuse relative à la résonance a été mise en évidence, ainsi que son affinement spectral. Néanmoins, le spectre d'électroluminescence de cette DEL-CR fait apparaître une bande d'émission lumineuse qui ne correspond pas à la résonance. L'extraction de lumière à des longueurs d'onde différentes du mode de cavité provient de la largeur spectrale de l'émission des puits quantiques d'(In,Ga)N ainsi que de la finesse de la bande d'arrêt du miroir de Bragg. Pour obtenir un bon couplage entre la diode électroluminescente et une fibre optique, un spectre d'émission aussi fin que possible est recherché. Pour cela, il faudrait augmenter la composition en Aluminium des films d'(Al,Ga)N du miroir de Bragg.

Par ailleurs, une couche d'adaptation d'AlN épitaxiée à basse température a été utilisée dans cette structure afin de prévenir la fissuration du miroir de Bragg. Une densité élevée de

dislocations traversantes en a résulté (supérieure à $2 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$). Par conséquent, la puissance optique délivrée par cette diode électroluminescente à cavité résonante est faible.

Pour diminuer la densité de dislocations traversantes tout en augmentant la largeur de la bande d'arrêt du miroir, un pseudo-substrat d' $\text{Al}_{0,16}\text{Ga}_{0,84}\text{N}$ a été épitaxié conformément à la méthode décrite au chapitre 3 de ce mémoire. La croissance pseudomorphe d'un miroir de Bragg $10\times (\text{Al}_{0,27}\text{Ga}_{0,73}\text{N} / \text{GaN})$ suivie par la réalisation d'une cavité 2λ a permis d'obtenir une structure de DEL-CR dont la qualité cristalline est comparable à celle des films classiques de GaN (densité de dislocations traversantes d'environ $5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$). On peut noter cependant la formation de défauts en V près de la surface du dispositif. Des problèmes technologiques liés à la croissance du puits quantique d' $(\text{In,Ga})\text{N}$ et à la géométrie des contacts électriques n'ont pas permis d'obtenir des propriétés électriques convenables. Le travail de cette thèse n'étant pas centré sur l'optimisation de cette structure, le temps nous a manqué pour réaliser d'autres DEL-CR de ce type. Nous pouvons néanmoins signaler quelques voies qui devraient apporter des améliorations à ce dispositif en terme de conductivité électrique. L'utilisation d'un alliage graduel pour la réalisation du miroir de Bragg pourrait permettre de réduire les barrières de potentiel liées aux discontinuités de la bande de conduction. Le dépôt de contacts électriques interdigités en favorisant la distribution des lignes de courant, augmenterait l'homogénéité de l'émission lumineuse et diminuerait la résistance série de la diode. Enfin le recours à des substrats auto-supportés de GaN rendrait possible la réalisation d'un contact en face arrière. Ainsi la résistivité élevée des miroirs de Bragg $(\text{Al,Ga})\text{N} / \text{GaN}$ que nous avons mesurée, n'est pas en soi rédhibitoire pour la réalisation de diodes électroluminescentes à cavité résonante. Il ne s'agit pas là de barrières technologiques ardues et des solutions devraient être apportées rapidement pour qu'une telle structure puisse conduire à des caractéristiques satisfaisantes.

Une troisième approche plus classique pour réaliser une diode électroluminescente à cavité résonante consiste à épitaxier le miroir de Bragg directement sur le film de GaN sans recourir à une couche d'adaptation. Pour que la structure ne soit pas fissurée, la composition en Aluminium des alternances d' $(\text{Al,Ga})\text{N}$ du miroir de Bragg doit être faible. Une DEL-CR comprenant un miroir $17\times (\text{Al}_{0,10}\text{Ga}_{0,90}\text{N} / \text{GaN})$ a ainsi été réalisée. Ses caractéristiques électriques sont détaillées dans le Tableau 5-1, et comparées à celles d'une diode commerciale. On peut notamment noter un affinement de la largeur spectrale d'émission, un taux de couplage dans une fibre optique (ouverture numérique de 0,5) de 25%. Les grandes améliorations par rapport à la diode classique sont la faible dépendance de la longueur d'onde

d'émission avec la température ($0,05 \text{ nm.K}^{-1}$) et un temps de commutation très court (5 ns). Ces caractéristiques permettent d'apprécier le gain que l'on peut attendre de l'effet de cavité.

La croissance d'un pseudo-substrat d'(Al,Ga)N, en combinant la relaxation plastique des contraintes et la croissance latérale des nitrures, apparaît donc très prometteuse pour la réalisation de diodes électroluminescentes à cavité résonante. En effet, elle permet d'augmenter la composition en Aluminium du miroir de Bragg tout en garantissant une bonne qualité cristalline. L'effet de cavité devrait alors s'amplifier sans que la puissance optique des puits quantiques d'(In,Ga)N ne soit altérée.

	diode commerciale	structure LED-CR épitaxiée
tension en direct (en V) pour un courant d'injection $I=50\text{mA}$	3,9	4,2
longueur d'onde (nm) du maximum d'émission	512	480
largeur à mi-hauteur (en nm) du spectre d'électroluminescence	34	22
temps de commutation (ns)	30	5
bande passante à -3dB (MHz) pour un courant d'injection $I=20\text{mA}$	25	90
rendement d'extraction couplée à une fibre optique plastique (%)		25
puissance optique (μW) transmise dans une fibre optique plastique pour $I=10\text{mA}$	120	122
variation relative de la puissance optique émise en fonction de la température (.K^{-1})	-0,9	-0,6
variation de la tension avec la température (mV.K^{-1})		-4
variation de la longueur d'onde avec la température (nm.K^{-1})	0,26	0,05

Tableau 5-1 : comparaison entre les performances d'une diode commerciale et celles d'une structure DEL-RC que nous avons épitaxiée ; la DEL-CR présente une cavité 3λ , 17 paires ($\text{Al}_{0,10}\text{Ga}_{0,90}\text{N}$ / GaN) épitaxiées sur GaN sur saphir.

Références du chapitre :

- 1 E.F. Schubert, *Light emitting diodes*, Cambridge University Press, Cambridge (2003).
- 2 H. Benisty, H. De Neve et C. Weisbuch, IEEE J. Quant. Electron. **34**, 1612-1643 (1998).
- 3 A. Shaw, T. McCormack, A.L. Bradley et al., Phys. Stat. Sol. (a) **192**, 103-109 (2002).
- 4 M. Leroux, N. Grandjean, B. Beamont et al., J. Appl. Phys. **86**, 3721-3728 (1999).
- 5 B. Roycroft, M. Akhter, P. Maaskant et al., Phys. Stat. Sol. (a) **192**, 97-102 (2002).
- 6 B. Jähnen, M. Albrecht, W. Dorsch et al., Internet J. Nitride Semicond. Res. **3**, 39 (1998).

6. Conclusion générale

L'objectif de cette thèse était d'explorer les potentialités des nitrures d'éléments III pour la réalisation de diodes électroluminescentes à cavité résonante (DEL-CR).

Les nitrures d'éléments III présentent un important désaccord de paramètres de maille entre eux, ce qui engendre des contraintes importantes lors de l'épitaxie d'hétérostructures telles que les miroirs de Bragg.

Dans cette thèse, la relaxation plastique des contraintes dans des hétérostructures (Al,Ga)N / GaN a donc été étudiée. L'impossibilité de relaxer la contrainte d'épitaxie par le glissement de dislocations traversantes a notamment été expliquée. La fissuration du film intervient pour des épaisseurs et des compositions en Aluminium relativement faibles. Les alternatives à la fissuration proposées dans la littérature aboutissent à une augmentation de la densité de dislocations traversantes. Lors de la croissance de miroirs de Bragg (Al,Ga)N / GaN, un dilemme se pose alors entre dislocations et fissures, ces deux manifestations de la relaxation des contraintes étant dommageables pour la réalisation de DEL-CR.

En combinant la fissuration du film, la relaxation des contraintes par l'introduction de dislocations d'interface et la croissance latérale des nitrures, nous avons réalisé la croissance de films épais d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ (avec une composition en Aluminium $x \approx 20\%$) relaxés, lisses et de bonne qualité structurale. La densité de dislocations traversantes de ces films est de l'ordre de $5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$, alors que les valeurs reportées dans la littérature pour des films d'(Al,Ga)N non fissurés de même composition sont supérieures d'une décade par rapport à ce résultat.

Le recours à différents outils de caractérisation structurale tels que la microscopie électronique en transmission et la diffraction des rayons X, a permis d'expliquer comment s'opère la relaxation plastique dans les hétérostructures (Al,Ga)N / GaN fissurées. Il a été notamment mis en évidence une coopération entre la fissuration et la relaxation ductile. L'introduction de dislocations d'interface n'intervient qu'après la fissuration du film. Cependant, la relaxation ductile est progressive : elle dépend fortement de l'épaisseur du film. Du fait de la contrainte résiduelle, des phases de fissuration successives peuvent se produire lors de l'épaississement du film. L'évolution du taux de relaxation avec l'épaisseur du film d'(Al,Ga)N a été corrélée à l'introduction de dislocations d'interface et à la densité de fissures.

L'utilisation des films épais d'(Al,Ga)N, que nous avons appelés « pseudo-substrats », a ensuite permis de faire croître en accord de maille des miroirs de Bragg (Al,Ga)N / GaN. Il

faut noter que lorsqu'un miroir de Bragg est épitaxié directement sur un film de GaN, sa composition en Aluminium et le nombre de paires qu'il comporte doivent être limités afin d'éviter sa fissuration. Par conséquent sa réflectivité est faible et sa bande d'arrêt étroite. Pour contourner ce problème, la croissance de pseudo-substrats d'(Al,Ga)N s'est donc révélée être un atout majeur pour réaliser des DEL-CR. La caractérisation de telles structures a confirmé qu'il était possible d'obtenir des miroirs de Bragg monolithiques non fissurés et comportant une densité de dislocations traversantes relativement faible (comparable à celle obtenue sur des films de bonne qualité de GaN épitaxiés par EPVOM sur saphir).

Pour compléter les caractérisations structurales et optiques, la mesure de la résistivité des miroirs de Bragg est apparue incontournable pour prévoir la distribution du courant électrique dans une structure de DEL-CR. Le saphir étant isolant, la réalisation de DEL-CR ne peut s'effectuer qu'en ayant recours à une technologie planaire. Il en est de même pour mesurer la résistivité d'un miroir de Bragg. Nous avons appliqué la méthode de la ligne de transmission (TLM) qui permet de mesurer la résistance entre différents contacts électriques puis de déduire du tracé de la résistance en fonction de la distance entre contacts la résistivité d'un film. La gravure du miroir entre les contacts a permis de contraindre le courant électrique à passer au travers des hétérojonctions (Al,Ga)N / GaN du miroir de Bragg. Nous avons ainsi pu déterminer la résistance spécifique liée aux discontinuités de la bande de conduction sur un miroir $\text{Al}_{0,10}\text{Ga}_{0,90}\text{N}$ / GaN. Une modélisation purement résistive pour le miroir de Bragg a ensuite permis de déterminer sa résistivité dans le plan de croissance. Finalement, une simulation de la structure de bande d'un miroir de Bragg (Al,Ga)N / GaN et du courant électrique circulant le long de son axe a mis en évidence que la résistivité verticale augmentait dramatiquement avec la composition en Aluminium du miroir.

A titre de démonstrateurs, nous avons réalisé des diodes électroluminescentes à cavité résonante en insérant la zone active entre un miroir monolithique (Al,Ga)N / GaN et un miroir métallique très réfléchissant. La géométrie du dispositif est la même que pour les diodes électroluminescentes classiques à base de nitrures, à l'exception que l'émission lumineuse dans les DEL-CR que nous avons réalisées, s'opère au travers du saphir. Par l'acquisition de spectres d'électroluminescence à différents angles de réfraction, nous avons pu mettre en évidence un effet de cavité. L'affinement spectral de l'électroluminescence et une augmentation de la directivité de l'émission lumineuse ont pu être observés. Par manque de temps, ces structures n'ont pu être optimisées, néanmoins, les résultats préliminaires sont encourageants. Par exemple, un rendement d'extraction de 25% d'une DEL-CR couplée à une

fibre optique plastique a été obtenu. Une bande passante à -3dB de 90 MHz a été mesurée. Il est raisonnable d'espérer améliorer ces performances sur une structure optimisée.

En conclusion, la technique de cicatrisation des fissures ayant conduit à l'obtention de films d'(Al,Ga)N de bien meilleure qualité que ce qui est reporté dans la littérature, elle ouvre la voie à la réalisation d'autres dispositifs pour lesquels la qualité structurale est essentielle. Parmi ceux-ci, nous pouvons citer les diodes électroluminescentes UV, les détecteurs UV, les transistors à double hétérojonction, etc...

ANNEXES

A1. Energie de bande interdite et indice optique de l'(Al,Ga)N

L'énergie de bande interdite de l'alliage (Al,Ga)N a été exprimée par : $E_g(Al_xGa_{1-x}N) = x.E_g(AlN) + (1-x).E_g(GaN) - bx(1-x)$ où b est un paramètre de gauchissement. Nous avons utilisé $b=0,9$ eV [1]. Les énergies de bande interdite du GaN et de l'AlN sont respectivement $E_g(GaN)=3,43$ eV et $E_g(AlN)=6,2$ eV à température ambiante.

L'indice optique ordinaire de l'(Al,Ga)N a été exprimé par le formalisme de Sellmeier : $n(x, \lambda)^2 = 1 + \frac{A_0 \cdot \lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_0^2}$ avec $A_0 = B_1 + B_2.E_g(x) + B_3.E_g^2(x)$ et $\lambda_0 = C_1 + C_2.E_g(x) + C_3.E_g^2(x)$. Les paramètres A_0 et λ_0 dépendent de la composition de l'Aluminium via l'énergie de bande interdite.

Les valeurs reportées dans le tableau A-1 permettent d'estimer correctement dans le domaine visible les valeurs d'indices optiques ordinaires que nous avons pu mesuré sur nos échantillons.

Il faut noter que dans la littérature, les valeurs de l'indice optique varient suivant les échantillons étudiés [2,3,4]. Il semblerait d'ailleurs que la densité de dislocations traversantes ait un effet sur la mesure de l'indice optique [5].

Enfin il faut souligner que l'indice optique évolue avec la température. Des données ont été reportées pour les basses températures [6], ou lors de chauffage jusqu'à 600K [7]. A température de croissance (1100°C), aucune donnée n'est disponible dans la littérature. Pour déterminer les indices optiques à température de croissance, nous avons comparé les indices optiques aux différentes longueurs d'onde accessibles grâce aux lasers installés sur le bâti de croissance (633, 545 ou 468 nm) lors de la croissance à vitesse constante d'un film d'(Al,Ga)N. Puis nous avons estimé la diminution de l'épaisseur optique du film lors du refroidissement en suivant la réflectivité in-situ. Nous en avons déduit que l'augmentation de l'indice optique est de 5% à 543nm pour le GaN et 4,7% pour l'Al_{0,20}Ga_{0,80}N lorsque la température passe de l'ambiante à 1100°C. Pour 633nm, la variation relative de l'indice avec le refroidissement est la même.

B ₁	B ₂ (eV ⁻¹)	B ₃ (eV ⁻²)	C ₁ (nm)	C ₂ (nm.eV ⁻¹)	C ₃ (nm.eV ⁻²)
6,626	-0,934	0,0598	396,8	-84,12	6,758

Tableau A-1 : paramètres permettant de calculer l'indice optique ordinaire de l'(Al,Ga)N à partir du formalisme de Sellmeier; l'indice optique ainsi calculé n'est valable que pour des longueurs d'onde supérieure à 360nm (au-dessus de l'énergie de bande interdite).

1 M. Leroux, Al_xGa_{1-x}N, rapport interne au CRHEA (2002).

2 U. Ozgur et al., Appl. Phys. Lett. **79**, 4103-4105 (2001).

3 N.A. Sanford et al., J. Appl. Phys. **94**, 2980-2991 (2003).

4 D. Brunner et al., J. Appl. Phys. **82**, 5090-5096 (1997).

5 F. Natali, Elaboration, étude et application d'hétérostructures (Al,Ga)N/GaN épitaxiées par jets moléculaires sur Si(111), thèse de doctorat, Université de Nice Sophia-Antipolis (2003).

6 L. Siozade et al., Jpn. J. Appl. Phys. **39**, 20-25 (2000).

7 U. Tisch et al., J. Appl. Phys. **89**, 2676-2685 (2001).

A2. Microscopie électronique en transmission

Le microscope électronique en transmission est l'outil le mieux adapté à la caractérisation des défauts cristallins dans les films minces. La particularité du MET est qu'il permet par un jeu de lentilles électromagnétiques d'obtenir une image du réseau direct (plan image) ou du réseau réciproque du cristal (plan focal).

L'utilisation de diaphragmes pour sélectionner certaines taches de diffraction permet d'observer les distorsions du réseau cristallin dans la famille de plans diffractants (hkil) correspondants. Il est alors possible de déterminer les défauts responsables de ces distorsions, notamment les dislocations. C'est le principe des images en champ sombre et en champ clair. L'échantillon est orienté de telle sorte que le diagramme de diffraction fasse apparaître deux taches intenses : le faisceau transmis et un faisceau diffracté pour un plan (hkil) choisi, communément notée $\mathbf{g}$. Lorsque le diaphragme (au niveau du plan focal) est centré sur le faisceau transmis, l'image obtenue est un champ clair (cf Figure A-1a). Une image en champ sombre (hkil) est obtenue en centrant le diaphragme (au niveau du plan focal) sur une tache de diffraction (cf Figure A-1b). Seul le faisceau diffracté par les plans (hkil) participe alors à la formation de l'image.

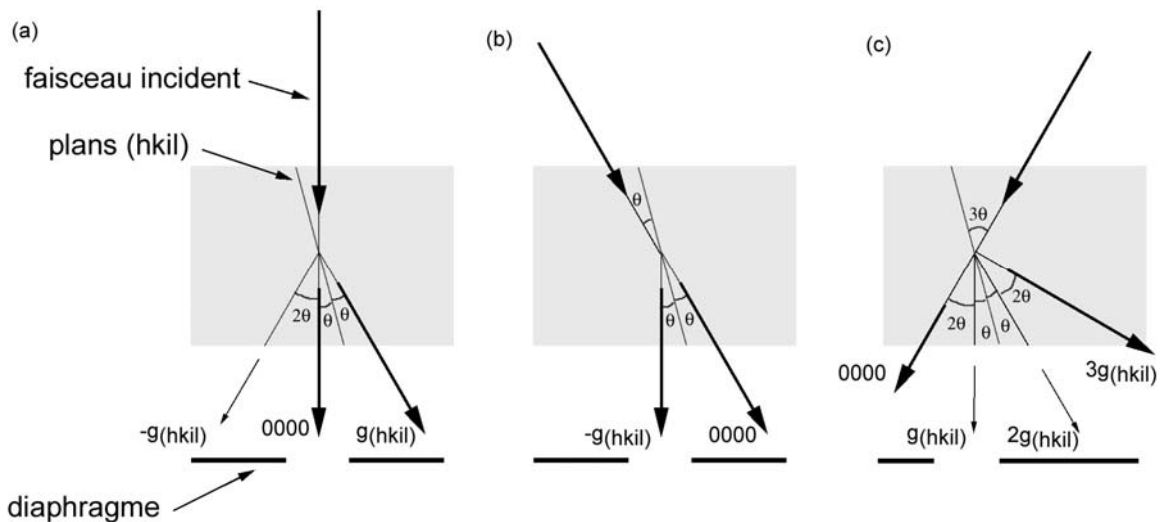


Figure A-1 : schéma présentant la sélection des faisceaux permettant d'obtenir un champ clair (a) ou un champ sombre (b) en condition 2 ondes ainsi qu'un champ sombre en condition faisceau faible (c) : dans un champ clair, seul le faisceau transmis participe à la formation de l'image alors que dans un champ sombre seul les faisceaux diffractés par une famille de plans (hkil) sont récupérés dans le plan image.

Les images en champs clairs et sombres permettent d'identifier les dislocations grâce aux extinctions intervenant pour des champs particuliers. Pour une dislocation de vecteur de Burgers $\mathbf{b}$ et dont la ligne de dislocation a pour direction $\mathbf{u}$, il y aura extinction sur une image pour un champ sombre $\mathbf{g}$ si $\mathbf{b} \cdot \mathbf{g} = 0$ et $(\mathbf{b} \wedge \mathbf{u}) \cdot \mathbf{g} = 0$. Dans le cas contraire, une ligne de dislocation fait apparaître un contraste sur l'image : on détermine ainsi sa direction $\mathbf{u}$. La microscopie électronique en transmission permet donc de caractériser entièrement les dislocations.

A titre d'exemple, le Tableau A-2 illustre les extinctions des dislocations parfaites dans un cristal hexagonal pour les vecteurs de diffraction $\mathbf{g} = \langle 11\bar{2}0 \rangle$ et $\mathbf{g} = \langle 0002 \rangle$.

dislocation	$b = a = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$	$b = c = \langle 0001 \rangle$	$b = a + c = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}3 \rangle$
$g = \langle 11\bar{2}0 \rangle$	allumée	éteinte	allumée
$g = \langle 0002 \rangle$	éteinte	allumée	allumée

Tableau A-2 : extinctions des dislocations parfaites dans les champs sombres $g = \langle 11\bar{2}0 \rangle$ et $g = \langle 0002 \rangle$ accessibles sur les sections transverses lorsque l'axe de zone est $\langle 10\bar{1}0 \rangle$; nous avons considéré ici uniquement le critère $\mathbf{b} \cdot \mathbf{g} = 0$.

Dans les vues planes (axe de zone $\langle 0001 \rangle$), les dislocations comportant une composante suivant l'axe de croissance (i.e. $b=c$ et $b=a+c$) ne peuvent pas être éteintes. Par contre, pour les dislocations de type $b=a$, il est possible de déterminer la direction du vecteur de Burgers (a_1 , a_2 ou a_3 , cf. Tableau A-3) et donc son orientation par rapport à la ligne de la dislocation.

dislocation	$b = \pm a_1 = \pm \frac{1}{3} [11\bar{2}0]$	$b = \pm a_2 = \pm \frac{1}{3} [1\bar{2}10]$	$b = \pm a_3 = \pm \frac{1}{3} [2\bar{1}\bar{1}0]$
$g = \pm [10\bar{1}0]$	allumée	éteinte	allumée
$g = \pm [1\bar{1}00]$	allumée	allumée	éteinte
$g = \pm [01\bar{1}0]$	éteinte	allumée	allumée

Tableau A-3 : extinctions des dislocations parfaites de type $b=a$ dans les trois champs sombres $g = \langle 10\bar{1}0 \rangle$ accessibles sur les vues planes.

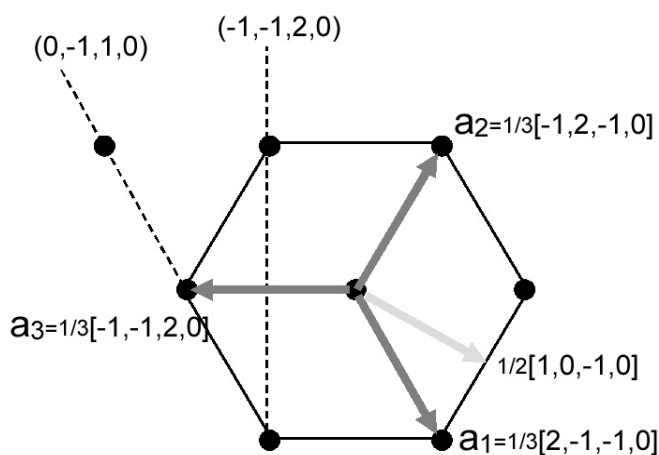


Figure A-2 : schéma présentant la projection de la maille hexagonale dans le plan de croissance (réseau direct) : les trois directions $\frac{1}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$ sont représentées ainsi que la direction $[10\bar{1}0]$.

Dans les conditions classiques permettant d'obtenir des champs sombres, à savoir les conditions 2 ondes, le contraste dû aux dislocations est étalé. Dans les nitrures, du fait de la forte densité de dislocations, on a recours à des champs sombres en faisceau faible (ou « weak-beam »). Dans ce cas, l'échantillon est incliné de telle façon à ce que la tache de diffraction la plus intense corresponde à un multiple de $\mathbf{g}$: $2\mathbf{g}$, $3\mathbf{g}$, ... (cf. Figure A-1c).

La microscopie électronique en transmission permet également d'obtenir des images en haute résolution qui permettent par exemple d'estimer l'épaisseur des puits quantiques. Pour ce faire, l'échantillon est orienté de telle façon à être en axe de zone et plusieurs taches de diffraction sont sélectionnées. La résolution du microscope étant de 1,9 Å, il faut choisir une direction dans laquelle les distances entre plans atomiques sont supérieures à cette limite. C'est le cas de l'axe de zone $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ où les distances inter-réticulaires sont $d_{(0002)} = 2,593$ Å et $d_{(10\bar{1}0)} = 2,761$ Å pour le GaN.

Le microscope électronique en transmission du CRHEA (JEOL 2010) utilise un canon à effet de champ. L'émission des électrons s'opère au niveau d'une pointe de tungstène orientée $\langle 100 \rangle$ chauffée à 1600K, sous un vide de 10^{-9} Torr. Une tension de 200 kV est appliquée entre la pointe et l'anode.

Par ailleurs, le microscope est équipé d'un analyseur EDS Oxford. La spectroscopie EDS (X energy dispersive spectroscopy) consiste à mesurer l'énergie des photons X émis par l'échantillon soumis à un faisceau électronique intense. Cette énergie est caractéristique des atomes du matériau excité (transitions des niveaux atomiques du type K_α). La composition locale d'un film peut ainsi être déterminée (cf Figure 3-10).

A3. Diffraction de rayons X

La diffraction de rayons X donne des informations sur la structure cristalline des films épitaxiés. La longueur d'onde des rayons X ayant le même ordre de grandeur que les distances interatomiques du cristal, il y a des phénomènes d'interférences dus aux réflexions multiples sur les plans réticulaires d'une même famille (hkl). La diffraction des rayons X vérifie la loi de Bragg. On peut donc déduire les distances inter-réticulaires en mesurant les angles de diffraction des rayons X, puis déterminer les paramètres de maille du cristal.

En condition de diffraction, l'angle entre le faisceau incident et le celui diffracté vaut 2θ . L'angle entre le faisceau incident et la surface de l'échantillon est noté ω . Deux types de balayages sont utilisés : les balayages en $\omega/2\theta$ et en ω .

Lors des balayages en $\omega/2\theta$, le déplacement angulaire du détecteur est le double de la rotation de l'échantillon. Pour les plans parallèles à la surface de l'échantillon (c'est-à-dire les plans (000l) dans notre cas), l'angle d'incidence et l'angle de sortie sont identiques (cf Figure A-3a) : on parle alors de raies symétriques et de balayage $\theta/2\theta$.

Pour les balayages en ω (ou « rocking curve »), le détecteur est placé en condition de diffraction à l'angle 2θ pour une famille de plans (hkl) choisie. On fait ensuite varier l'angle entre le faisceau incident et la surface de l'échantillon (ω). La largeur de ces spectres est caractéristique de la qualité du matériau : si le film présente une mosaïcité, les plans diffractants des grains désorientés du cristal passent successivement en condition de diffraction aboutissant à un spectre large.

Sur les films orientés [0001], les raies symétriques sont du type (000l). Par des balayages $\theta/2\theta$, on peut donc déterminer le paramètre de maille le long de l'axe de croissance. Pour les plans inclinés (hkl) et ($\bar{h}\bar{k}l$), si l'angle entre la surface (0001) et les plans considérés vaut α , l'angle d'incidence permettant d'être en condition de diffraction sera $\omega^+ = \theta + \alpha$ et $\omega^- = \theta - \alpha$ (cf Figure A-3b et c). Les angles d'incidence et de diffraction étant différents, on parle de raies asymétriques. Les spectres obtenus sur les raies asymétriques (hkl), permettent de calculer les coordonnées des plans correspondants dans l'espace réciproque puis de déterminer les deux paramètres de maille du cristal :

$$Q_{10.0} = \frac{2\sqrt{h^2 + h.k + k^2}}{a\sqrt{3}} = \frac{2}{\lambda_{\text{CuK}\alpha}} \sin \theta \cdot \sin(\omega - \theta) \text{ et } Q_{00.1} = \frac{1}{c} = \frac{2}{\lambda_{\text{CuK}\alpha}} \sin \theta \cos(\omega - \theta)$$

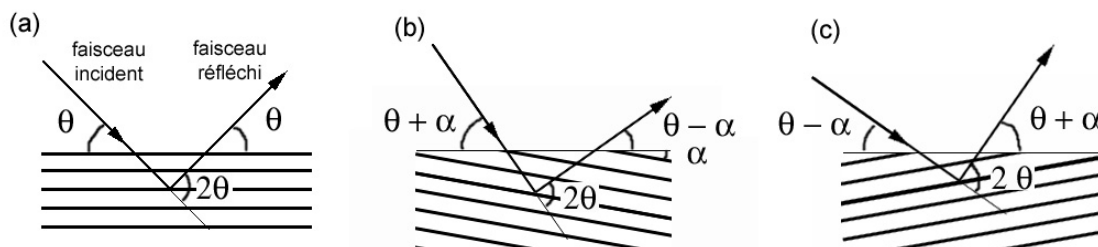


Figure A-3 : schémas représentant la diffraction des rayons X pour les raies symétriques (a) et asymétriques (b et c) ; pour les raies asymétriques, b correspond à une sortie rasante et c à une incidence rasante.

Il est possible de combiner des séries de balayages en ω et $\omega/2\theta$ autour d'une tâche du réseau réciproque pour obtenir une cartographie du réseau réciproque (cf Figure 4-13). La position et la forme des tâches permettent d'estimer la contrainte et la qualité des films. Ce type de mesure est très dispendieux en temps. Il est toutefois essentiel pour étudier l'état de contrainte dans des structures complexes (positions relatives des taches de chaque film de la structure) : la cartographie du réseau réciproque des raies asymétriques permet en particulier de discriminer les gradients de contraintes ou de composition.

Le diffractomètre utilisé est de marque Bede Scientific. Il est composé :

- d'un tube à rayons X à anode de cuivre.
- d'un monochromateur avant de type Bartels constitué d'un cristal de Si(220) qui permet de sélectionner uniquement la longueur d'onde correspondant à la transition $K_{\alpha 1}$ du cuivre. La divergence du faisceau est de 12 arcsec.
- d'un ensemble goniométrique permettant le déplacement de l'échantillon suivant 3 axes et sa rotation autour de 3 axes.
- et d'un détecteur à scintillation Bede EDR,

Avant le détecteur, il est possible d'utiliser des fentes amovibles pour sélectionner les faisceaux réfractés selon leur angle de réfraction (sélection en 2θ). Un analyseur de type « tripe axe » en silicium peut également être placé devant le détecteur de telle façon que 4 réflexions s'opèrent sur ses facettes de type (220). La largeur de l'angle 2θ analysé est alors réduit à 5 arcsec.

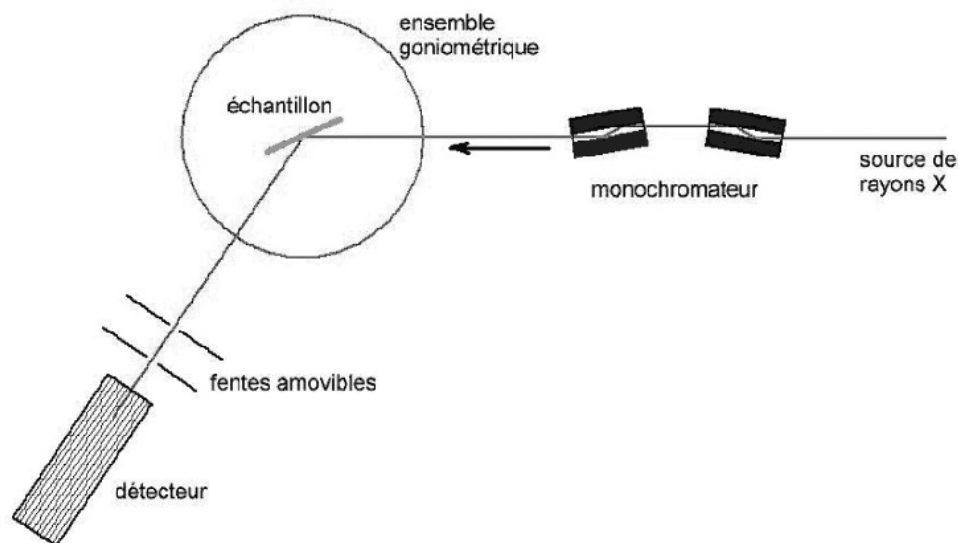


Figure A-4 : schéma représentant le diffractomètre utilisé pour la diffraction aux rayons X.

A4. Réalisation technologique de diodes électroluminescentes

La réalisation des diodes électroluminescentes en technologie planaire passe par un certain nombre d'étapes indispensables (cf Figure A-5) qui sont :

- une étape de lithographie permettant de définir des ouvertures correspondant aux contacts de type p (résine AZ5214 de Hoechst, épaisseur $\approx 1\mu\text{m}$),
- le dépôt des électrodes de type p après la désoxydation de la surface de l'échantillon à l'aide d'une solution tamponnée de HF,
- une étape de lithographie permettant de protéger les électrodes de type p de la gravure qui va suivre,
- la gravure du film de GaN de type p permettant de définir des ouvertures aboutissant au film de GaN de type n sur lequel des contacts électriques pourront être déposés.
- une étape de lithographie permettant de définir les ouvertures correspondant aux contacts de type n,
- le dépôt de l'électrode de contact de type n après désoxydation de la surface.

Pour les diodes électroluminescentes dont l'émission est recueillie par la face avant, une électrode semi-transparente est utilisée au niveau du contact p. Une autre étape de lithographie et un dépôt métallique additionnel sont alors nécessaires afin de réaliser un contact p épais.

Les étapes de lithographie que nous avons évoquées précédemment, comprennent l'épandage de la résine, l'insolation sous UV et le développement de la résine. Après le dépôt métallique ou la gravure, la résine doit être enlevée de l'échantillon. La figure A-6 illustre les procédures nécessaires au dépôt d'un film métallique.

Au CRHEA, nous disposons d'une salle banche de classe 10000 à 100 (pour la lithographie) équipée

- d'un bâti de gravure ionique réactive par résonance cyclotron et radiofréquence (Oxford System 100 avec ECR 180). La gravure des films en nitrures s'effectue dans un plasma haute densité $\text{Cl}_2/\text{CH}_4/\text{Ar}$ à 3 mTorr. Elle est contrôlée par réflectométrie laser.
- d'aligneurs / insolateurs UV qui permettent d'atteindre la résolution micrométrique.
- d'un évaporateur par effet Joule, et depuis peu, d'un évaporateur par canon d'électrons.

Le choix des métaux de contact répond à plusieurs exigences. D'une part, le métal doit adhérer sur le film. D'autre part, le contact doit être ohmique et la résistance de contact doit être la plus faible possible, pour ce faire il faut que le travail de sortie du métal soit proche de l'affinité électronique du GaN pour les films de type n ou il doit être comparable à la somme de l'affinité électronique et de la largeur de la bande interdite pour les films de type p. Une revue des différents contacts ohmiques utilisés sur les films de GaN peut être trouvée dans la Référence 1.

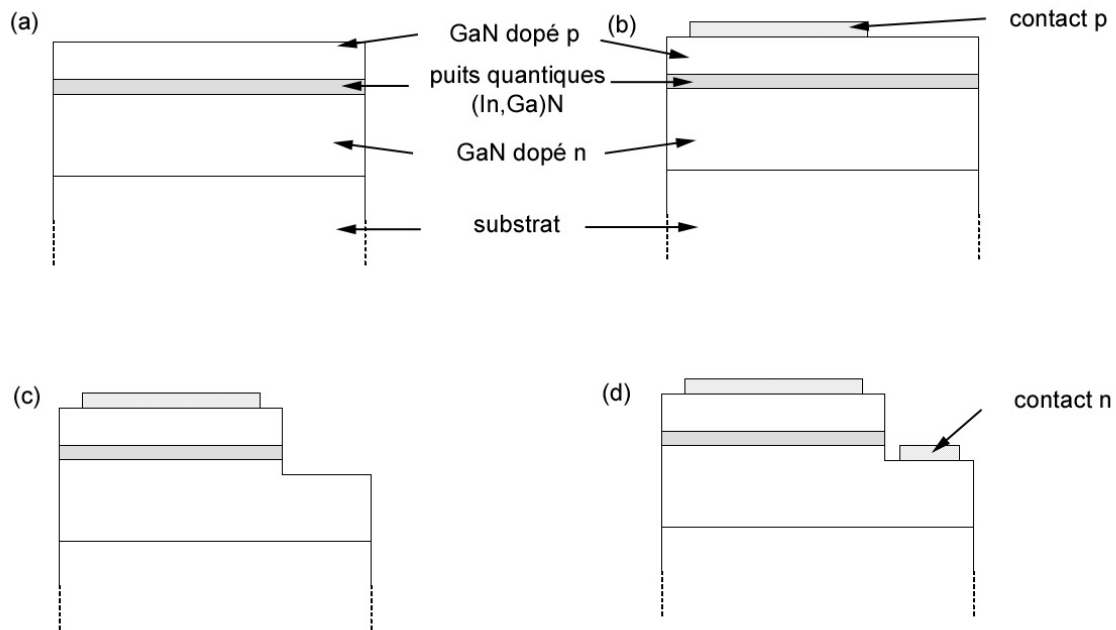


Figure A-5 : schéma illustrant la réalisation d'une diode électroluminescente en technologie planaire : dépôt de l'électrode de type p (de (a) à (b)), gravure (de (b) à (c)) et dépôt de l'électrode de type n (de (c) à (d)).

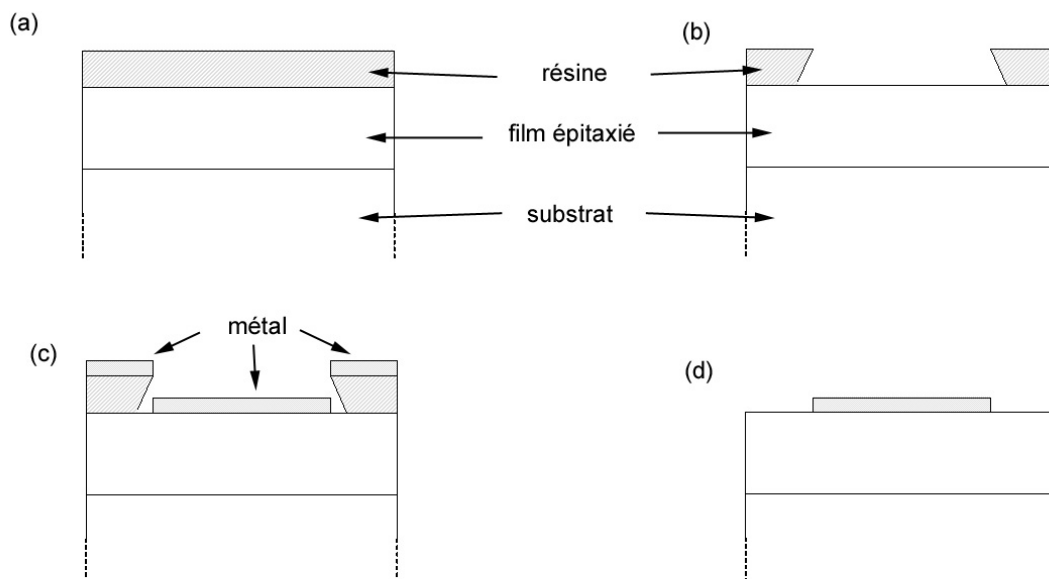


Figure A-6 : schéma illustrant la réalisation d'un contact électrique : épandage de la résine (a) ; insolation UV et développement, ce qui permet de définir des ouvertures dans le film de résine (b) ; dépôt du métal de contact par évaporation (c) ; retrait de la résine ; le film métallique ne reste alors qu'au niveau des ouvertures définies par le masque d'insolation (d).

1 P.J. Hartlieb, R.F. Davis et R.J. Nemanich, Ohmic contacts to GaN, dans Nitride Semiconductors Handbook on Materials and Devices (Wiley-VCH, Weinheim, 2003).

A5. Méthode de la ligne de transmission (TLM)

La méthode TLM ou Transmission Line Model [1] correspond à l'exploitation de mesures « 2 points » effectuées pour différentes longueurs entre contacts.

Sur une couche homogène, la résistance mesurée entre deux contacts est proportionnelle à la distance qui les sépare : $R(L) = R_{\square} \frac{L}{W} + 2.R_C + R_p$ où L représente la distance entre les contacts et W la largeur de ceux-ci. Les différentes résistances sont la résistance carré de la couche semi-conductrice ($R_{\square}$), la résistance de contact (R_C) et la résistance due à l'appareillage notamment aux câbles de connexion (R_p). Cette dernière est déterminée grâce à une connexion sur le même contact. Nous avons vérifiée qu'elle est très faible devant les autres termes et nous l'avons donc négligé par la suite.

Le tracé de la résistance en fonction de la distance entre contacts et son extrapolation linéaire permettent donc de déterminer la résistance carré (par la pente) et la résistance de contact (ordonnée à l'origine).

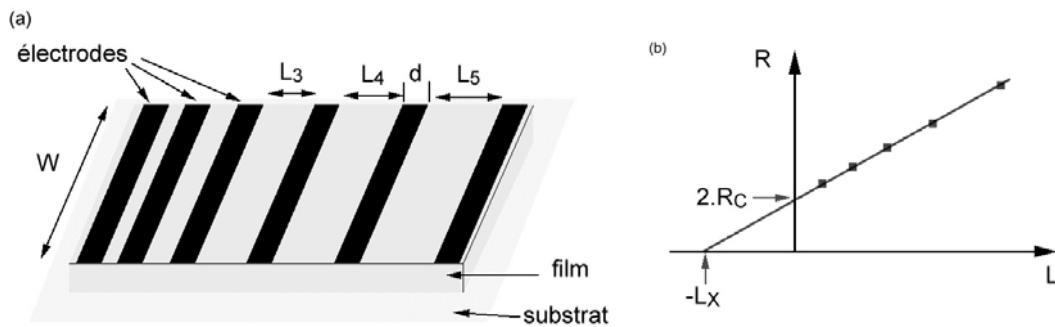


Figure A-7 : schémas représentant les motifs TLM (a) et le tracé de la résistance en fonction de la distance entre contacts (b) : W représente la largeur des motifs, d la longueur des électrodes, L la distance entre contacts consécutifs, R la résistance mesurée entre deux contacts, $2.R_C$ et $-L_X$ sont les intersections de l'extrapolation linéaire de la résistance en fonction de la distance entre contacts avec les axes portant respectivement la résistance et la longueur.

Dans notre cas, les longueurs entre contacts (L) varient entre 20 et 200 μm alors que les contacts ont une longueur (d) de 50 μm et une largeur (W) de 200 μm .

La résistance carré et la résistance de contact qui sont mesurées par la méthode TLM dépendent des dimensions du film et des contacts. Afin d'obtenir des caractéristiques intrinsèques aux matériaux, il est plus commode d'introduire la résistivité du film et la résistance spécifique de contact.

La résistivité du film s'obtient simplement en multipliant la valeur de résistance carré par l'épaisseur du film : $\rho = R_{\square} \cdot h$ avec h l'épaisseur du film.

Par contre, la résistance de contact mesurée dépend à la fois de la résistance spécifique de

contact mais aussi de la résistance carré du film : $R_C = \frac{\sqrt{R_{\square} \cdot \rho_{sp-C}}}{W} \coth \left(\sqrt{\frac{R_{\square}}{\rho_{sp}}} \cdot d \right)$ [2]. Pour

déterminer la résistance spécifique de contact, il faut donc avoir recours à des abaques ou se

servir de tableurs. Toutefois, lorsque la longueur électrique de contact $L_T = \sqrt{\frac{\rho_{sp-C}}{R_{\square}}}$ [3] est

plus importante que la longueur physique des contacts ($L_T > 2d$), la résistance spécifique de contact (ρ_{sp_C}) peut alors être approximée par $\rho_{sp_C} = R_C \cdot W \cdot d$ où $W \cdot d$ représente la surface des contacts. A l'inverse, si la longueur effective (ou électrique) du contact est très faible par rapport à la longueur physique ($L_T < \frac{2}{3}d$), la résistance spécifique de contact peut être

approchée par :
$$\rho_{sp_C} = \frac{(R_C \cdot W)^2}{R_{[\]}}$$

La méthode TLM classique repose sur des hypothèses simplificatrices. Il faut notamment considérer que la couche sous le contact a la même résistivité que celle entre les contacts, malgré la diffusion des atomes métalliques du contact lors du recuit. De plus, il est supposé que la résistance de contact est due à la résistance du barreau sous le contact et non à la courbure des flux de courants ou à la résistance spécifique du contact métal/semi-conducteur. De ce fait, il s'est avéré que la méthode TLM ne pouvait pas s'appliquer à tous les cas. Certains auteurs ont proposé des extensions ou évalué les domaines de validité des théories présentées. Nous en présentons un florilège dans la suite de ce chapitre. Ainsi, l'extrapolation de la longueur correspondant à une résistance nulle $L_X = L(R)_{R \rightarrow 0}$ permet d'évaluer l'écart entre la résistivité de la couche alliée sous le contact (R_{SK}) et celle de la

couche entre contacts ($R_{[\]}$). Dans le cas du modèle « classique », lorsque $L_T = \frac{(R_C \cdot W)^2}{R_{[\]}} \ll$

$2d$ (avec d la longueur physique du contact), la résistance spécifique de contact peut être déterminée par $\rho_C = R_{[\]} \cdot L_T^2$, sous l'hypothèse de non modification de la résistivité de la couche semi-conductrice sous le contact i.e. $L_X = 2L_T$. Lorsque $L_X \neq 2L_T$, une mesure supplémentaire, la résistance de fin de contact ou « contact end resistance » [4], a été proposée pour déterminer la résistance carré sous le contact. Une mesure de tension se fait à l'aide d'un troisième contact : R_C correspond alors au rapport entre la chute de potentiel à l'extrémité du contact et le courant passant à travers le contact, et R_E entre la chute de potentiel à l'autre extrémité du contact et du courant. La détermination de R_E permet alors de calculer L_T puis

$$\rho_{sp_C} : R_E = \frac{\sqrt{R_{SK} \cdot \rho_{sp_C}}}{W} \cdot \left[\sinh \left(\sqrt{\frac{R_{SK}}{\rho_{sp_C}}} \cdot d \right) \right]^{-1}.$$
 Une autre façon de voir le problème a été

étudiée par Overmeyer [5] qui calcule la variation du potentiel le long du contact pour des contacts longs ($d \gg h$ où h représente l'épaisseur du film) avec $\rho_C = 0$ et obtient :

$$V(x) = \frac{I \cdot \rho_{sp_C}}{h} \left[\exp \left(\frac{\pi \cdot x}{h} \right) - 1 \right]^{-1/2}.$$

Dans la même problématique, Schuldt [6], calcula l'étalement du courant sous le contact à partir de l'équation de Laplace [7]. Une expérience [8] a permis de visualiser les équipotentiels dans un barreau uniforme suivant le rapport longueur de contact sur épaisseur de la couche : d/h . Elle confirme que sous le contact, il n'y a pas de surface équipotentielle (en accord avec [5] et [9]), que la détermination de la résistance carré peut en être affectée. Pour des contacts courts, la mesure du potentiel à l'extrémité opposée du contact (contact end resistance) est également affectée par cette variation de potentiel sous le contact. Deux critères sont proposés pour établir la validité du modèle : (1) le rapport entre résistance spécifique de contact et le produit de la résistance carré et de l'épaisseur de la couche

épitaxiée: $\eta = \frac{\rho_{sp_C}}{R_{[\]} \cdot h^2}$. Si $\eta > 2$, la mesure TLM est valable ; pour $\eta < 1$, elle devient critique ;

(2) le rapport de la longueur du contact et de l'épaisseur de la couche : $\tau = \frac{d}{h}$ qui doit être élevée ($\eta > 10$).

Pour étendre le domaine de validité du modèle TLM, Berger [10] proposa une modification de la résistance de contact pour $\eta > 0.2$ connu sous le nom d' « extended TLM » (ETLM) :

$$R_c = \frac{\rho \sqrt{\eta + 0.2}}{W} \cdot \coth \left(\frac{\tau}{\sqrt{\eta + 0.2}} \right).$$

Dans une autre optique, des études ont porté sur l'extension de la méthode TLM à deux couches afin de l'appliquer aux transistors à modulation de canal MODFET [11, 12]. Une extension supplémentaire pour déterminer la résistance de la couche sous le contact a été présentée sous l'appellation magneto-TLM (MTLM) [13, 14]. Un champ magnétique est alors appliqué permettant d'en déduire la mobilité des porteurs dans les différentes zones.

Néanmoins, il s'est avéré qu'aucune ne pouvait s'appliquer pour mesurer la résistivité des miroirs de Bragg, les modélisations multicouches étant, par exemple, limitées à seulement deux couches. C'est pourquoi nous avons eu recours d'une part, à un protocole expérimental assez lourd avec plusieurs gravures, et d'autre part, nous avons développé un programme permettant de simuler une mesure TLM sur une structure multicouche.

-
- 1 W. Shockley, Research and investigation of inverse epitaxial UHF power transistors, report no AI-TOR-64-207, Air Force Atomic Laboratory, Wright-Patterson Air Force Base, Ohio (1964).
 - 2 H.B. Harrison, Characterizing metal semiconductor ohmic contacts, Proc. IREE Aust. **41**, 95-100 (1980).
 - 3 D. Schroder, Semiconductor material and device characterization, Wiley & sons (1998).
 - 4 G.K. Reeves, H.B. Harrison, IEEE Electron. Dev. Lett. **3**, 111-113 (1982).
 - 5 J. Overmeyer, IBM J. Res. Develop. **14**, 66-69 (1970).
 - 6 S.B. Schuldt, Solid State Electron., **21**, 715-719 (1978).
 - 7 A. Zozime et C. Vermeulin, Rev. Phys. Appl., **23**, 1825-1835 (1988).
 - 8 E. G. Woelk, H. Krautle et H. Beneking, IEEE Trans. on Electron Dev., **33**, 19-22 (1986).
 - 9 D. P. Kennedy et P.C. Murley, IBM J. Res. Develop., **15**, 252 (1968).
 - 10 H.H. Berger, Solid State Electron., **15**, 145-158 (1972).
 - 11 M.D. Feuer, IEEE Trans. on Electron Dev., **32**, 7-11 (1985).
 - 12 K. Ikossi-Anastasiou, A. Ezis et A.K. Rai, IEEE Trans. on Electron Dev., **35**, 1786-1792 (1988).
 - 13 D.C. Look, IEEE Trans. on Electron Dev., **35**, 133-138 (1988).
 - 14 D.C. Look, J. Electrochem. Soc., **135**, 2054-2058 (1988).

A6. Mesures (I-V) sur un miroir de Bragg (Al,Ga)N/GaN

Dans le quatrième chapitre de ce mémoire, nous avons décrit une méthode de mesure de la résistivité de miroirs de Bragg (Al,Ga)N/GaN dopé Si. Pour ce faire, nous avons assimilé les barrières de potentiel dues aux discontinuités de la bande de conduction, à des barrières purement résistives. Deux éléments nous permettent d'appuyer cette supposition :

- d'une part, la simulation de la densité de courant passant au travers de ces structures le long de l'axe de croissance, ce que nous présenterons dans la partie suivante des Annexes.
- d'autre part, le caractère quasiment ohmique des mesures I-V effectuées sur des motifs TLM d'un miroir de Bragg $10x(\text{Al}_{0,10}\text{Ga}_{0,90}\text{N}/\text{GaN})$.

La Figure A-8 présente, à titre d'exemple, la caractéristique I-V obtenue sur un motif TLM où le miroir de Bragg a été gravé entre les plots de contact. Dans toute la gamme de distances entre contacts (L allant de $20\mu\text{m}$ à $150\mu\text{m}$), la caractéristique I-V est quasiment linéaire. Il en est de même lorsque le miroir de Bragg n'est pas gravé.

La pente des courbes I-V permet donc de déterminer la résistance de ces structures pour chaque distance entre contacts. Le tracé de la résistance en fonction de la distance entre contacts rend alors possible l'extraction de la résistance carré et de la résistance de contact apparente (cf. méthode TLM).

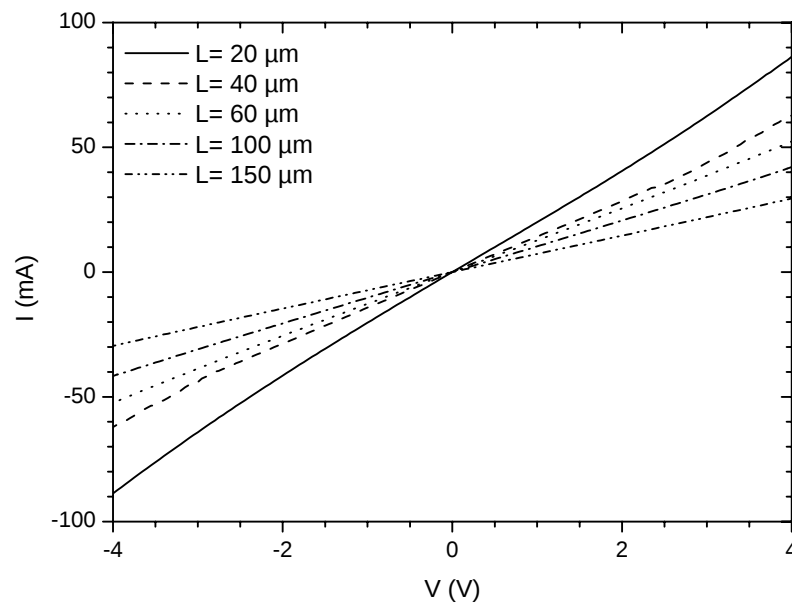


Figure A-8 : caractéristique I-V obtenue sur une structure TLM où un miroir de Bragg $10x(\text{Al}_{0,10}\text{Ga}_{0,90}\text{N} / \text{GaN})$ a été inséré par gravure RIE aux plots de contacts ; L est la distance entre contacts.

A7. Modélisation de l'injection électrique le long de l'axe des miroirs de Bragg (Al,Ga)N/GaN

Pour la structure TLM #2 présentée dans le quatrième chapitre de ce mémoire, où le miroir de Bragg a été gravé sauf sous les contacts, le courant électrique est contraint de passer verticalement et rencontre donc une série d'hétérojonctions (Al,Ga)N / GaN. Pour vérifier si l'on peut assimiler les hétérojonctions à une succession de barrières résistives, nous avons utilisé le logiciel SimWindows développé à l'Université du Colorado [1] qui permet de modéliser le comportement optique et électrique de dispositifs semiconducteurs unidirectionnels comprenant des hétérojonctions. Les données sur le GaN et les alliages (Al,Ga)N ne sont pas parfaitement connues. De plus, nous n'avons pas pu faire intervenir le champ piezo-électrique. Ces simulations sont donc une approche assez rudimentaire dont l'objectif est seulement de vérifier si l'on peut modéliser les hétérojonctions GaN / (Al,Ga)N par des barrières résistives et estimer leur ordre de grandeur.

Pour les électrons (respectivement les trous), nous avons considéré une mobilité de $200 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ($4 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$), une masse effective de $0,2m_e$ (m_h). La profondeur du niveau donneur est de 20meV à la fois pour le GaN et l'(Al,Ga)N. Nous avons tenu compte de la dégénérescence du niveau donneur.

Lorsque la structure est soumise à une polarisation électrique, les densités de courants peuvent être calculées. Pour ce faire, les courants de dérive-diffusion, thermo-ionique et par effet tunnel ont été considérés ainsi que les recombinaisons Shockley-Hall-Read (durée de vie de $1 \times 10^{-9} \text{ s}$), bande à bande (constante de recombinaison radiative $1,5 \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) et Auger (coefficient Auger $2 \times 10^{-31} \text{ cm}^6 \cdot \text{s}^{-1}$). Nous avons supposé que la mobilité des porteurs ne dépendait pas du dopage.

La Figure A-9 représente le schéma de bandes obtenu pour un miroir de Bragg composé de 10 alternances $\text{Al}_{0,10}\text{Ga}_{0,90}\text{N}/\text{GaN}$ lorsque la structure est soumise à une tension électrique de 1V. La concentration de donneurs est de $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. E_{Fn} représente le pseudo-niveau de Fermi pour les électrons.

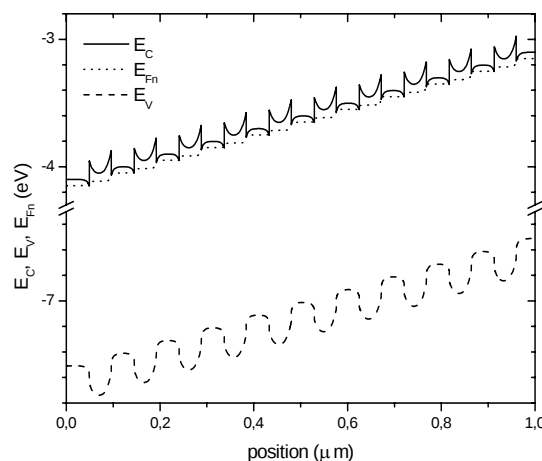


Figure A-9 : diagramme de bandes d'un miroir de Bragg 10x ($\text{Al}_{0,10}\text{Ga}_{0,90}\text{N} / \text{GaN}$) dont la densité de donneurs est de $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ lorsque la structure est soumise à une tension de 1V.

Il est possible d'obtenir la densité de courant en fonction du potentiel appliqué, comme représenté en Figure A-10. Pour ce faire, nous avons supposé que les contacts électriques

étaient parfaitement ohmiques. Nous pouvons remarquer que la densité de courant en fonction du potentiel appliqué est linéaire à basse tension. La modélisation des barrières de potentiels des alternances de miroirs de Bragg par des résistances est donc justifiée. Cette modélisation n'est toutefois valide que si la concentration de donneurs est élevée et que la composition en Aluminium est relativement faible.

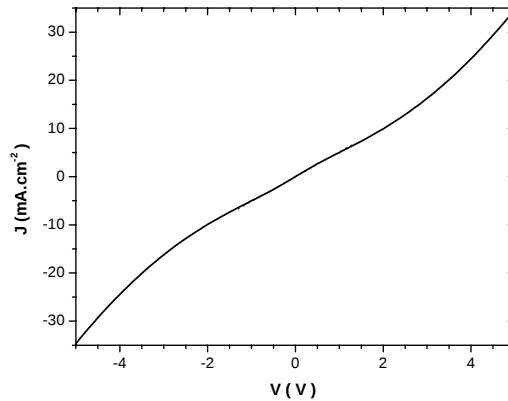


Figure A-10 : densité de courant électrique (J) en fonction de la tension appliquée (V) sur un miroir de Bragg $10x(\text{Al}_{0,10}\text{Ga}_{0,90}\text{N}/\text{GaN})$ dont la densité de donneurs est $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$: lorsque le courant est faible, il est linéaire avec la tension appliquée. La structure a donc un caractère ohmique. L'inverse de la pente de la courbe J - V à faible courant permet de déterminer la résistance spécifique de la structure.

Il faut signaler que la résistance extraite est essentiellement due aux hétérojonctions $\text{GaN} / (\text{Al,Ga})\text{N}$ lorsque celles-ci sont polarisées en inverse, c'est-à-dire quand les porteurs vont du matériau ayant une énergie de bande interdite plus faible (dans notre cas le GaN) à celui de plus grande largeur de bande interdite (i.e. l' $(\text{Al,Ga})\text{N}$).

1 D.W.Winston, Physical Simulation of optoelectronic semiconductor devices, thèse de doctorat, Université du Colorado (1996). Le logiciel SimWindows est disponible sur internet à l'adresse :

<http://www-ocs.colorado.edu/SimWindows/simwin.html>

A8. Simulation de mesures TLM sur des miroirs de Bragg

Nous avons modélisé le miroir de Bragg par un réseau de résistances, comme l'illustre la Figure A-11. Le courant circulant dans le circuit électrique correspondant a ensuite été calculé en fonction de la tension appliquée grâce au logiciel WinSpice [1]. La résistance équivalente de la structure a ainsi été déduite par le rapport tension sur intensité électrique. Nous avons d'ailleurs pu visualiser les flux de courants dans toute la structure.

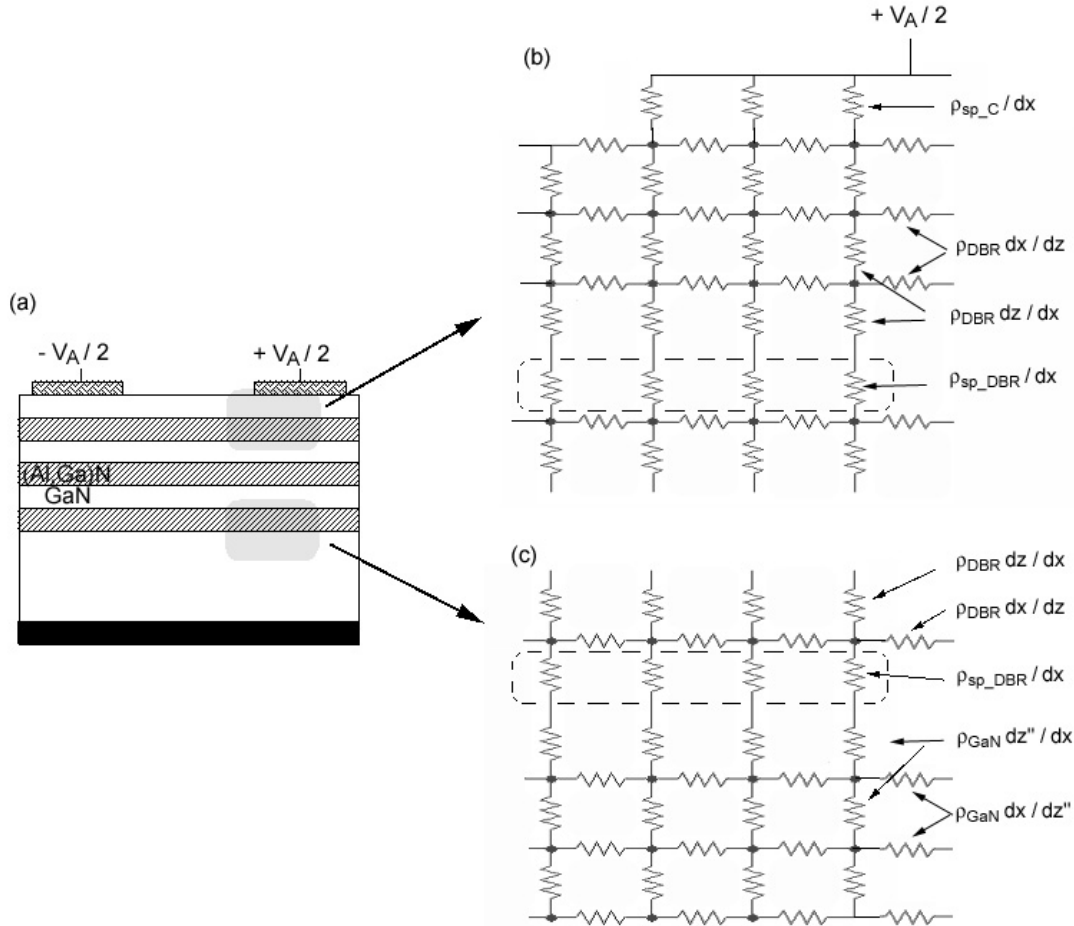


Figure A-11 : (a) schéma représentant un miroir de Bragg entre deux contacts électriques d'un motif TLM; la tension appliquée entre les contacts vaut V_A ; les zones ombragées représentent deux éléments de volume du miroir de Bragg (Al,Ga)N / GaN qui sont modélisés par les circuits électriques en (b) et (c); (b) modélisation électrique de la première alternance (Al,Ga)N/GaN au dessous d'un contact; (c) modélisation électrique de la dernière alternance (Al,Ga)N/GaN juste au dessus du pseudo-substrat de GaN : ρ_{GaN} représente la résistivité du GaN; ρ_{sp_C} représente la résistance spécifique de contact; ρ_{sp_DBR} représente la résistance spécifique par alternance (Al,Ga)N/GaN, celle-ci est due aux discontinuités de la bande de conduction le long de l'axe de croissance; le terme ρ_{DBR} , homogène à une résistivité, permet de traduire la conduction des miroirs dans le plan de croissance; dx , dz et dz'' désignent les longueurs élémentaires du maillage opéré respectivement dans le plan de croissance et le long de l'axe de croissance; pour ne pas alourdir le schéma, nous n'avons pas fait figurer la largeur des contacts W , toutes les résistances faisant intervenir ce terme dans leur dénominateur.

L'objectif de cette modélisation électrique d'un miroir de Bragg est avant tout de déterminer le jeu de valeurs de résistivités caractéristiques (ρ_{sp_DBR} , ρ_{DBR} , ρ_{GaN} , ρ_{sp_C}) qui permet de retrouver les résistances mesurées expérimentalement sur les échantillons gravé (#2) et non gravé (#1). Ces valeurs cibles pour le miroir $10x(Al_{0,10}Ga_{0,90}N/GaN)$ étudié sont indiquées dans le tableau ci-dessous.

structure	R_C (Ω)	$R_{\square}$ ($\Omega.\square$)
non gravée (#1)	13	63
gravée (#2)	17,2	(156)

Tableau A-4 : valeurs de la résistance de contact (R_C) et de la résistance carré ($R_{\square}$) obtenues par la méthode TLM sur un miroir de Bragg $10x(Al_{0,10}Ga_{0,90}N/GaN)$ dopé silicium ; pour la structure #2, le miroir de Bragg a été gravé entre les plots de contacts.

La résistance de la structure a donc été estimée pour différentes distances entre contacts correspondant à celles utilisées pour les mesures TLM. Puis par une extrapolation linéaire de la résistance en fonction de la distance entre contacts, la résistance carré et la résistance de contact ont été extraites pour différents jeux de valeur de résistivités.

Dans un premier temps, nous avons simulé des mesures TLM sur la structure où le miroir de Bragg n'est pas gravé. Les valeurs initiales des résistivités utilisées sont celles déterminées grossièrement à partir des valeurs expérimentales (cf. §4.3.3), puis chacun des paramètres a été modifié afin de voir son effet sur les résistances extraites.

A titre d'exemple, la Figure A-12 illustre l'effet de la résistance spécifique des barrières de potentiel sur les courbes TLM. Nous pouvons noter que pour des barrières relativement peu résistives, l'augmentation de la résistance de barrière se traduit par une translation des courbes soit une augmentation uniquement de la résistance de contact. Pour des résistances spécifiques de barrière plus importante, l'extraction TLM s'avère plus délicate. En effet, on observe une courbure à faible longueur. Ceci est dû au passage préférentiel du courant électrique près de la surface.

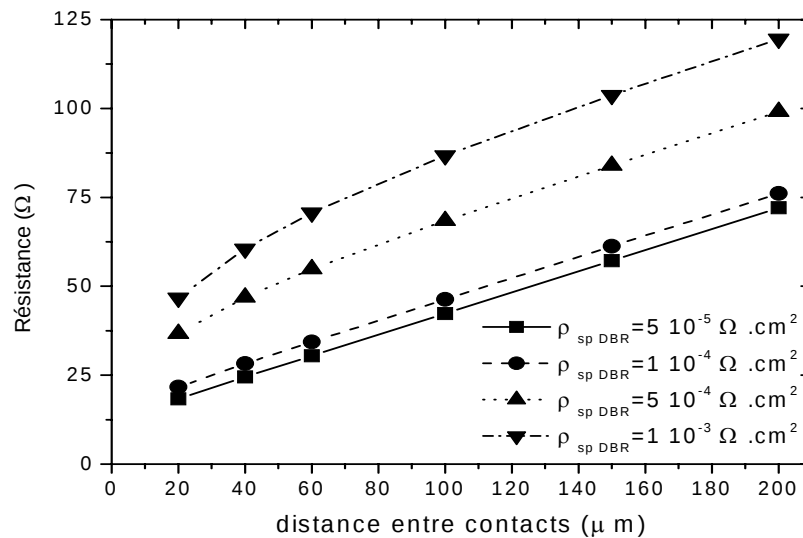


Figure A-12 : tracé de la résistance équivalente calculée pour la structure où le miroir de Bragg n'a pas été gravé, en fonction de la distance entre contacts ($\rho_{DBR}=1,0 \times 10^{-2} \Omega.cm$, $\rho_{GaN}=1,0 \times 10^{-2} \Omega.cm$, $\rho_{sp_C}=1,0 \times 10^{-4} \Omega.cm^2$).

Pour la structure où le miroir de Bragg a été gravé, la résistance carré dépend essentiellement de la résistivité du film de GaN au dessous du miroir. Nous avons donc supposé qu'elle valait $1,1 \times 10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}$. La résistance de contact extraite par la régression TLM, quand à elle, dépend des trois autres paramètres. La Figure A-13 illustre la condition sur ρ_{sp_DBR} et ρ_{sp_C} pour que la résistance de contact soit de $17,2 \Omega$ lorsque la résistivité dans le plan de croissance du miroir de Bragg est fixée à $1,1 \times 10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}$.

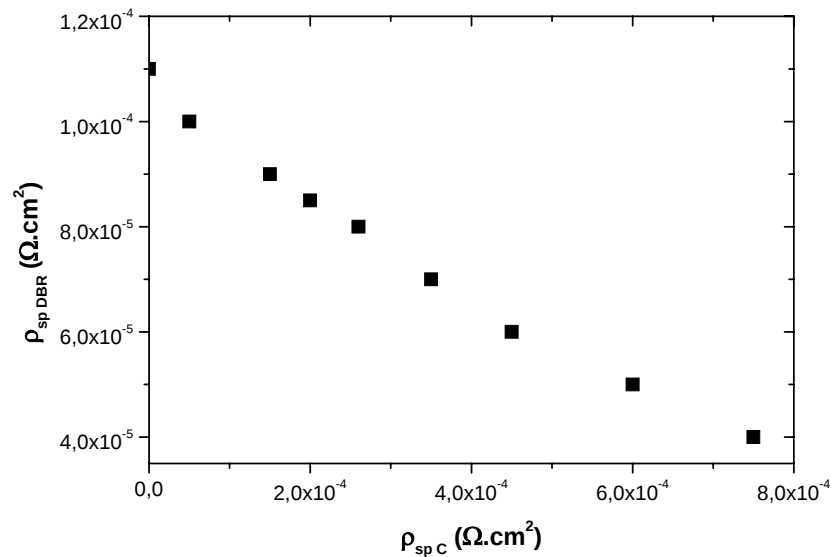


Figure A-13 : tracé des résistances spécifiques de contact et de barrières compatibles avec les mesures TLM de la structure gravée (avec $\rho_{DBR} = 1,1 \times 10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}$ et $\rho_{GaN} = 1,1 \times 10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}$).

En fait, pour pouvoir aboutir aux résultats des mesures TLM sur les deux structures, une approche itérative est indispensable. Pour chaque couple de valeurs (ρ_{sp_DBR} , ρ_{sp_C}) estimées sur la structure gravée, nous avons déterminé la résistivité du miroir de Bragg parallèlement au plan de croissance (ρ_{DBR}) permettant de retomber sur les valeurs de R_C et $R_\square$ de la structure non gravée (cf Figure A-14).

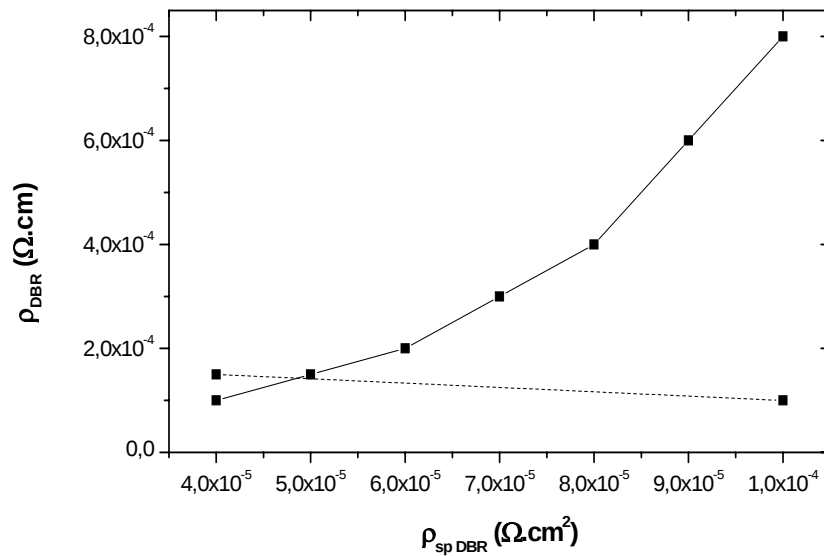


Figure A-14 : tracé des valeurs de ρ_{DBR} et ρ_{sp_DBR} vérifiant une extraction de la résistance de contact de 13Ω (courbe en trait plein) et une résistance carré de $63\Omega.\square$ (courbe en pointillés) pour la structure non-gravée; la résistivité du GaN a été prise à $1,1 \times 10^{-2} \Omega.cm$ et la résistance spécifique de contact est ajustée pour chaque valeur de couple de valeurs (ρ_{sp_DBR} , ρ_{DBR}) de telle façon à obtenir une résistance de contact extraite de 13Ω sur la structure gravée.

Ainsi, pour le miroir de Bragg $10x(Al_{0,10}Ga_{0,90}N/GaN)$ étudié, les résistivités suivantes ont été obtenues :

- pour les barrières de potentiel du miroir : $\rho_{sp_DBR} = 5 \times 10^{-5} \Omega.cm^2$ par alternance,
- pour la résistance spécifique de contact : $\rho_{sp_C} = 6 \times 10^{-4} \Omega.cm^2$
- pour la conduction dans le plan du miroir : $\rho_{DBR} = 1,5 \times 10^{-2} \Omega.cm$,
- et pour la résistivité du GaN sous le miroir de Bragg $\rho_{GaN} = 1,1 \times 10^{-2} \Omega.cm$.

Ces paramètres permettent d'obtenir une résistance carré de 69Ω et une résistance de contact de $13,1 \Omega$, tout en satisfaisant la résistance de contact pour la structure gravée de $17,2\Omega$.

1 logiciel développé par Mike Smith à l'Université de Berkeley, une version gratuite est disponible sur internet : <http://cmosedu.com/cmos1/winSPICE/winSPICE.htm>

Relaxation des contraintes dans les hétérostructures épaisses (Al,Ga)N : une piste originale pour la réalisation de diodes électroluminescentes à cavité résonante

L'étude des différents modes de relaxation des contraintes a montré que dans les nitrures d'éléments III orientés suivant l'axe [0001], celle-ci ne peut pas s'opérer par le glissement de dislocations traversantes. Pour les films soumis à une contrainte extensive, la relaxation des contraintes fait intervenir la fissuration du film puis l'introduction de dislocations d'interface à partir des bords des fissures. La caractérisation d'hétérostructures fissurées (Al,Ga)N / GaN par microscopie électronique en transmission (MET) et diffraction des rayons X (DRX), a mis en évidence un mécanisme coopératif entre la fissuration et la relaxation ductile. Une forte dépendance du taux de relaxation avec l'épaisseur du film d'(Al,Ga)N a été mise en évidence. Les propriétés de croissance latérale de l'épitaxie en phase vapeur à base d'organométalliques (EPVOM), permettent dans certaines conditions de croissance de cicatriser les fissures. Nous avons ainsi obtenu des films d' $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{N}$ épais, relaxés et de bonne qualité cristalline. Ces pseudo-substrats d'(Al,Ga)N ont été utilisés pour effectuer la croissance pseudomorphe de miroirs de Bragg (Al,Ga)N/GaN. La caractérisation de ces structures a été réalisée aussi bien en ce qui concerne l'état de contraintes que les propriétés optiques et électriques. Une méthode de mesure de la résistivité des miroirs de Bragg compatible avec une technologie planaire a notamment été développée. Enfin, des diodes électroluminescentes à cavité résonante (DEL-CR) ont été réalisées afin de valider la méthode proposée pour la croissance de films épais d'(Al,Ga)N.

Stress relaxation in thick (Al,Ga)N heterostructures : an innovative way to grow resonant cavity light emitting diodes

In [0001]-oriented III-nitrides, the glide of threading dislocations is inefficient to relax the misfit stress. When films are grown under tensile stress, the plastic relaxation occurs through the film cracking and the introduction of misfit dislocations from the crack edges. Transmission electron microscopy (TEM) and X-ray diffraction (XRD) have been used in order to characterize cracked (Al,Ga)N/GaN heterostructures. A cooperative mechanism between cracking and ductile relaxation has been outlined. The relaxation rate strongly depends on the (Al,Ga)N film thickness. By combining the lateral growth of (Al,Ga)N and the stress relaxation, cracks have been healed and high quality (Al,Ga)N films have been grown by metal-organic vapor phase epitaxy (MOVPE). Coherent growth of (Al,Ga)N/GaN Bragg mirrors has been carried out on those thick relaxed (Al,Ga)N films. Their optical and electrical properties as well as their stress have been investigated. A resistivity measurement method has been developed to comply with the planar technology. Resonant cavity light emitting diodes (RCLED) have been realized to demonstrate the benefit of this new (Al,Ga)N growth method.

Mots-clés : nitrures d'éléments III, (Al,Ga)N, épitaxie, contraintes, relaxation plastique, dislocations, fissures, diodes électroluminescentes à cavité résonante, miroirs de Bragg, microscopie électronique en transmission, diffraction des rayons X.