



HAL
open science

Mesure de déformation et cristallinité à l'échelle nanométrique par diffraction électronique en mode précession

Mathieu Pierre Vigouroux

► **To cite this version:**

Mathieu Pierre Vigouroux. Mesure de déformation et cristallinité à l'échelle nanométrique par diffraction électronique en mode précession. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université Grenoble Alpes, 2015. Français. NNT : 2015GREAY012 . tel-01213513v2

HAL Id: tel-01213513

<https://theses.hal.science/tel-01213513v2>

Submitted on 16 Jun 2015

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.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Physique / Nanophysique**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Mathieu Pierre VIGOUROUX

Thèse dirigée par **François BERTIN** et **Bernard CHENEVIER**
codirigée par **Vincent DELAYE**

préparée au sein du **Laboratoire CEA - LETI**
dans **l'École Doctorale de physique - GRENOBLE**

Mesure de déformation et cristallinité à l'échelle nanométrique par diffraction électronique en mode précession

Thèse soutenue publiquement le 11 mai 2015,
devant le jury composé de :

Dr. Thierry BARON

Directeur de recherche, Laboratoire de Technologies de la Microélectronique,
CNRS, Président

Pr. Brice GAUTIER

Professeur des universités, INSA, Rapporteur

Pr. Karine MASENELLI-VARLOT

Responsable du groupe de recherche Structure Nano et Micro Structures, MATEIS,
rôle Rapporteur

Dr. Guillaume BRUNETTI

Ingénieur marketing et application, JEOL (Europe) SAS, Examineur

Dr. Vincent DELAYE

Ingénieur au Laboratoire d'électronique et de technologie de l'information, CEA,
Co-Encadrant, Examineur

Dr. François BERTIN

Ingénieur au Laboratoire d'électronique et de technologie de l'information, CEA,
Encadrant, Directeur de thèse



*A ma famille, à mes amis,
à tous ceux qui m'ont aidé ou
soutenu, merci à vous tous.
mat*

" YES "

小¹
野
洋
子

¹ Yoko Ono

SOMMAIRE

INTRODUCTION GENERALE	1
CHAPITRE I : CONTEXTE GENERAL	
I.1 SEMI-CONDUCTEURS	6
I.1.1 Propriétés et applications des semi-conducteurs	6
I.1.2 Quelques enjeux propres à la microélectronique	7
I.1.3 Ingénierie des contraintes	8
I.2 MESURE DE DEFORMATION ET/OU DE CRISTALLINITE À L'ECHELLE NANOMETRIQUE	10
I.2.1 Techniques hors microscopie électronique	11
a) Diffraction des rayons X (XRD)	11
b) Spectroscopie Raman	13
I.2.2 Techniques par microscopie électronique	14
a) Origine de la microscopie électronique	14
b) Imagerie haute résolution en transmission	16
d) Méthode des moirés.	18
e) Holographie électronique.	19
g) Diffraction d'électrons rétrodiffusés (EBSD & t-EBSD)	21
f) Diffraction en faisceaux convergents (CBED)	22
h) Diffraction en faisceaux parallèles (NBED)	23
i) Diffraction électronique en précession (PED)	24
I.3 CONCLUSION	26
a) Mesure de déformation à l'échelle nanométrique.	26
b) Mesure de cristallinité à l'échelle nanométrique	26
CHAPITRE II : NANO DIFFRACTION EN MODE PRECESSION	
II.1 PRECESSION ET ESPACE REEL.	34
II.1.1 Présentation des microscopes	34
II.1.2 Canons à électrons	34
II.1.3 Optiques et guidage des faisceaux dans un microscope électronique.	35
II.1.3.1 Les diaphragmes	35
II.1.3.2 Les lentilles	35
II.1.3.3 Aberrations des lentilles.	36
II.1.3.5 Focus de Schertzer et limite de résolution.	39
II.1.3.6 Les correcteurs d'aberrations.	40
II.1.4 Systèmes de mesure et d'acquisition.	41
II.1.5 Systèmes à deux et trois lentilles condenseurs.	41
II.1.6 Conditions d'illumination en précession et taille de sonde	43
II.2 PRECESSION ET ESPACE RECIPROQUE.	45

II.2.1 Rappels de diffraction.	45
II.2.1.1 Interaction électron-matière et facteur de diffusion électronique.	45
II.2.1.2 Diffraction des électrons par un cristal de dimension finie	47
II.2.1 Intégration de l'intensité dans l'espace réciproque en mode précession.	52
II.3 MISE EN ŒUVRE EXPERIMENTALE.	56
II.3.1 Préparation des échantillons.	56
II.3.2 Procédure d'alignement en mode précession.	60
II.4 CONCLUSION	62

CHAPITRE III : METHODES D'ANALYSE ET RESULTATS EXPERIMENTAUX

PARTIE A : Algorithme Delaunay pour la mesure des déformations

III.A.1 MESURE DE DEFORMATIONS EN MODE.	66
III.A.2 MESURE ET PRETRAITEMENTS EN MODE PRECESSION	68
III.2.1 Prétraitements : corrections des effets de perspectives	68
III.2.2 Algorithme Delaunay et mesure de déformation	71
III.2.3 Influence des paramètres expérimentaux sur la mesure	73
III.A.3 EXEMPLES D'APPLICATIONS.	82
III.3.1 Multicouches Si/SiGe	82
III.3.2 Puits quantiques d'InGaAs	86
III.3.3 Nanofil SiGe pour transistor "Ω-gate"	88
III.A.4 CONCLUSION	89

PARTIE B : Algorithme d'évaluation de cristallinité

III.B.0 INTRODUCTION	90
III.B.1 METHODE EXISTANTE EN PRECESSION	91
III.B.2 ALGORITHME D'EVALUATION DE CRISTALLINITE.	91
III.B.3 EXEMPLES D'APPLICATIONS	93
III.B.3.1 Contrôle de la cristallinité d'un échantillon et de l'alignement PED	93
III.B.3.3 Mémoires à changements de phases PRAM	93
III.B.3.4 Puits quantiques InGaAs	94
III.B.3.2 Batteries LiFePo ₄ FePo ₄	95
III.B.4 CONCLUSION	95

CONCLUSION GENERALE	99
--------------------------------------	-----------

Notations, abréviations et conventions

\mathbf{a}	Vecteurs de base d'une maille cristalline dans l'espace direct
\mathbf{a}^*	Vecteurs de base d'une maille cristalline dans l'espace réciproque
α_c	Angle de convergence d'un faisceau de particules (radiants)
μ	Mobilité des porteurs (électrons, trous) ($\text{m}^2\text{s}^{-1}\text{V}^{-1}$) ou potentiel chimique (eV)
ε_{ij}	Tenseur de déformation
σ_{ij}	Tenseur de contrainte
C_{ijkl}	Tenseur d'élasticité associé à un matériau
$\vec{u}(\vec{r})$	Vecteur de déplacement
θ_B	Angle de Bragg (radiants)
Ω	Angle solide (stéradians)
ν	Fréquence (Hz)
λ	Longueur d'onde (m)
\mathbf{k}	Vecteur d'onde de l'électron dans le vide de longueur d'onde $\lambda = 1/ \mathbf{k} $
V_{maille}	Volume d'une maille cristalline ($V_{\text{maille}} = (\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2) \cdot \mathbf{a}_3$)
n	Indice optique ou entier naturel
$m, n, u, v, w,$	Entiers naturels
h, k, l	Indices de Miller
$TF(f)$	Transformée de Fourier d'une fonction f
$TF^{-1}(f)$	Transformée de Fourier inverse d'une fonction f
U	Tension d'accélération des électrons (V)
m_e	Masse de l'électron en régime relativistes (kg)
$\delta(x)$	Distribution de Dirac
$III_\tau(x)$	Peigne de Dirac de périodicité τ

MET	(ou MET) Microscope Electronique en Transmission
XRD	Méthode de mesure par diffraction de rayons X
RX	Rayons ou rayonnement X
EBSD	Mesure par diffraction d'électrons rétrodiffusés
t-EBSD / TKD	EBSD en transmission
STEM	Imagerie haute par balayage dans un MET
HRTEM	Imagerie d'interférence haute résolution dans un MET
CBED	Mesure par diffraction d'un faisceau d'électrons convergents
NBED / NBD	Mesure par diffraction d'un faisceau d'électrons faiblement convergents
PED	Mesure par diffraction d'un faisceau NBED en précession
FDSOI	Architecture silicium sur isolant
FEG	Canon à effet de champ
SIMS	Spectrométrie de masse des ions secondaires
EELS	Spectroscopie de perte d'énergie des électrons
SOI	Silicium sur isolant (Silicon On Insulator).
RPCVD	déposition chimique en phase vapeur sous pression réduite
MOCVD	Epitaxie en phase vapeur aux organométalliques
HOLZ	zone de Laue d'ordre supérieur ou égal à 1 (High Order Laue Zone).

Notations Mathématiques

\otimes	Produit de convolution
\mathbf{M}^t	Transposée de la matrice \mathbf{M}

Constantes physiques

h	Constante de Planck : $6.626\ 069\ 572 \times 10^{-34}$ J.s
c	Vitesse de la lumière : $299\ 792\ 458$ m.s ⁻¹
k_B	Constante de Boltzmann : $1.380\ 648\ 813 \times 10^{-23}$ J.K ⁻¹
$-e$	Charge de l'électron $-1.602\ 176\ 565 \times 10^{-19}$ C
m_0	Masse de l'électron $9.109\ 382\ 914 \times 10^{-31}$ kg

INTRODUCTION GENERALE

Aujourd'hui, avec le développement des nanosciences et des nanotechnologies, la mise en œuvre de méthodes de caractérisation dotée d'une résolution spatiale sub-nanométrique est nécessaire. Dans ce contexte plusieurs techniques sont en plein essor : les microscopies à sonde locale, la sonde atomique tomographique mais aussi la microscopie électronique à transmission (TEM). Cette dernière est en effet un outil versatile permettant entre autres : l'analyse morphologique (bi ou tridimensionnelle), l'analyse chimique (par mesure de pertes d'énergie ou par l'analyse des rayons-X), l'analyse de dopants (par holographie)... Dans ce contexte, la microscopie électronique à transmission est sujette à des améliorations instrumentales (correcteurs d'aberrations, sources brillantes,...) mais aussi à des innovations méthodologiques (séries focales, in line holographie, tomographie chimique). La caractérisation des contraintes et de la structure cristalline intéresse de nombreux acteurs travaillant dans des domaines aussi différents que la microélectronique, l'optoélectronique, le stockage de l'énergie, la catalyse et la métallurgie. Parmi les solutions proposées pour effectuer des cartographies spatialement résolues de la déformation et de la structure cristalline, une nouvelle technique émerge. Cette technique est nommée diffraction de faisceaux d'électrons faiblement convergents en mode précession (PED). Elle repose sur une innovation technique, la précession du faisceau sonde, et demande la mise en œuvre d'algorithmes de traitements spécifiques. Inventée en 1994 par R. Vincent et P. Midgley¹, elle a donné lieu en 2003 à la commercialisation du module DigiSTAR par la société Nanomégas. Ce module peut être installé sur tous types de MET. Plus spécifiquement, à la différence de la méthode NBED, le nano-faisceau d'électrons est animé d'un mouvement de précession autour de l'axe optique. L'objectif de cette thèse est d'améliorer la méthodologie d'acquisition et de traitement des données acquises par PED pour essentiellement caractériser les champs de déformation. Ce sujet intéresse tout particulièrement l'industrie de la microélectronique où l'ingénierie de la contrainte est un domaine actif de recherche qui permet, notamment, d'augmenter la mobilité des porteurs dans le canal des transistors MOSFET.

Ce travail de thèse entre dans la thématique de recherche sur les nanomatériaux portée par le laboratoire d'excellence MINOS (MINatec NOvel devices Scaling laboratory). Il fait suite, au SCMC (Service de Caractérisation des Matériaux et Composants), dans le département DTSI (Département des Technologies Silicium) du CEA-LETI (Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives, Laboratoire d'Électronique et de Technologies de l'Information) aux travaux menés par G. Brunetti à qui l'on doit notamment l'arrivée du module de précession DigiSTAR au laboratoire. Il s'inscrit dans la continuité des recherches menées sur la Plateforme de Nanocaractérisation (PFNC) qui accueille et allie les compétences et recherches des équipes du LETI, de l'INAC (Institut Nanosciences et Cryogénie) et du LITEN (Laboratoire d'Innovation pour les Technologies des Énergies Nouvelles et les Nanomatériaux) autour d'équipements de pointe dédiés à la caractérisation des nanomatériaux.

¹ R. Vincent and P. A. Midgley, *Ultramicroscopy* 53, 271 (1994).

Organisation du manuscrit

Ce manuscrit est structuré en trois chapitres distincts qui séparent les notions nécessaires à la compréhension de la méthode PED des développements méthodologiques et des résultats expérimentaux obtenus durant le travail de thèse.

I Contexte général

Ce chapitre effectue une synthèse des différentes techniques de caractérisation à l'échelle nanométrique qui permettent de mesurer des déformations, ou d'étudier la cristallinité dans des échantillons. Les performances et limitations de chacune des méthodes présentées sont discutées pour pouvoir mesurer l'intérêt de la méthode de mesure en mode précession.

II Nano diffraction en mode précession

Le chapitre 2 expose les concepts instrumentaux et théoriques nécessaires à la compréhension du mode PED au sein d'un MET. Le principe de fonctionnement de la précession dans l'espace direct et dans l'espace réciproque y est détaillé puis le chapitre s'achève sur la présentation du protocole développé et mis en pratique lors de ce travail.

III Méthode d'analyse et résultats expérimentaux

Le chapitre 3 présente en détail les recherches, les développements et les résultats qui ont été obtenus, à l'issue de cette étude. Celui-ci est scindé en deux sous parties. La première sous partie présente deux méthodes algorithmiques qui, ensemble, sont utilisées pour mesurer des déformations. La seconde partie expose une méthode algorithmique qui permet d'évaluer la cristallinité dans des échantillons à l'échelle nanométrique en mode PED.

CHAPITRE I : CONTEXTE GENERAL

I.1 SEMI-CONDUCTEURS	6
I.1.1 Propriétés et applications des semi-conducteurs	6
I.1.2 Quelques enjeux propres à la microélectronique	7
I.1.3 Ingénierie des contraintes	8
I.2 MESURE DE DEFORMATION ET/OU DE CRISTALLINITE À L'ECHELLE NANOMETRIQUE	10
I.2.1 Techniques hors microscopie électronique	11
a) Diffraction des rayons X (XRD)	11
b) Spectroscopie Raman	13
I.2.2 Techniques par microscopie électronique	14
a) Origine de la microscopie électronique	14
b) Imagerie haute résolution en transmission	16
d) Méthode des moirés.	18
e) Holographie électronique.	19
g) Diffraction d'électrons rétrodiffusés (EBSD & t-EBSD)	21
f) Diffraction en faisceaux convergents (CBED).	22
h) Diffraction en faisceaux parallèles (NBED)	23
i) Diffraction électronique en précession (PED)	24
I.3 CONCLUSION	26
a) Mesure de déformation à l'échelle nanométrique.	26
b) Mesure de cristallinité à l'échelle nanométrique	26

I.1 SEMI-CONDUCTEURS

La notion de semi-conducteur est associée à une classification des matériaux en fonction des propriétés qu'ils communiquent aux électrons. En ces termes, on décompte trois grandes catégories de matériaux : les matériaux isolants, les matériaux conducteurs et les semi-conducteurs. Les semi-conducteurs ont des propriétés électroniques intermédiaires à celles que l'on connaît propres aux matériaux conducteurs ou isolants.

I.1.1 Propriétés et applications des semi-conducteurs

Au sein d'un atome isolé, un électron peut exister pour des énergies discrètes. Lorsque qu'un électron est parfaitement libre, celui-ci peut adopter n'importe quelle énergie. Dans un matériau la situation est intermédiaire. Les électrons peuvent exister dans des intervalles d'énergies autorisés. Ces intervalles, ou bandes d'énergies permises, sont séparés par des bandes d'énergies interdites. La représentation des bandes, autorisées et interdites, est caractéristique d'un matériau et est appelée structure de bande.

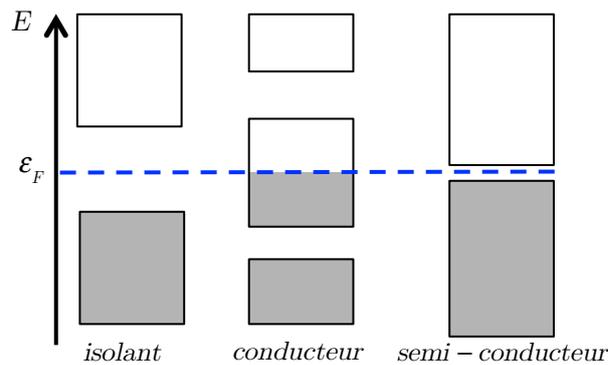


Figure 1 : Schématisation des bandes autorisées caractéristiques des matériaux isolants conducteurs et semi-conducteurs. (portion grisée : portion occupée par les électrons ; portion blanche: portion inoccupée par les électrons) [1]

Les électrons sont des fermions (particules de spin demi-entier) qui se répartissent dans un matériau en fonction de leurs énergies E en suivant la loi de distribution statistique de Fermi-Dirac¹. A une température T nulle, les électrons occupent les états des bandes d'énergies autorisées d'un matériau avec des énergies E inférieures à ϵ_F (l'énergie de Fermi). Les bandes, d'énergies inférieures à ϵ_F sont appelées bandes de valence. Les électrons qui occupent ces états sont localisés et contribuent à la cohésion des atomes dans le matériau. Les bandes, d'énergies supérieures à ϵ_F sont appelées bandes de conduction. Les électrons qui occupent ces états sont

¹ $f(E) = \left[1 + \exp\left(\frac{E - \mu}{k_B T}\right) \right]^{-1}$ Avec k_B la constante de Boltzmann, μ le potentiel chimique de l'électron dans le matériau ($\forall T = 0 K; \mu = \epsilon_F$)

délocalisés et contribuent à la conduction électronique du matériau.

L'arrangement des bandes interdites à proximité de la jonction entre bande de valence et bandes de conduction, permet de distinguer les matériaux isolants, conducteurs et semi-conducteurs :

Isolants : Les électrons peuvent difficilement aller occuper les états délocalisés de conduction d'énergies E supérieures à ε_F . Une bande interdite étendue empêche ce processus.

Conducteurs : Les électrons peuvent aller occuper massivement des énergies E supérieures à ε_F sans qu'une bande interdite ne limite leur migration.

Semi-conducteurs : Les électrons peuvent aller occuper des énergies E supérieures à ε_F en passant une bande d'énergie interdite de faible étendue. Cette bande interdite est communément désignée par l'anglicisme "gap".

Les matériaux semi-conducteurs se présentent sous une forme cristalline ou quasi-amorphe. Leur structure de bande dépend de leur arrangement cristallin. Ils sont utilisés, mélangés et/ou associés pour pouvoir constituer des composants en optoélectronique et en microélectronique.

En optoélectronique, la bande interdite (ou gap) d'un semi-conducteur constitue, entre autre, un moyen efficace de générer des transitions électroniques (radiatives) dont l'énergie est connue et égale à la largeur de la bande interdite. En microélectronique, les semi-conducteurs sont notamment "mélangés" avec des éléments provenant des colonnes III, IV et V du tableau périodique pour obtenir un matériau avec un excès ou un déficit en électrons (dopage N ; dopage P). Ces matériaux ont une conductivité qui varie en fonction de leur dopage. Accolés les uns aux autres, ils servent à élaborer des composants élémentaires en microélectronique, tels que les diodes et les transistors.

I.1.2 Quelques enjeux propres à la microélectronique

La microélectronique s'attache aujourd'hui à l'étude, la conception et la fabrication de composants sub-micrométriques en vue de les inclure dans des circuits électroniques appelés "puces". Ces composants sont élaborés sur la base du silicium au moyen de diverses techniques d'élaboration (photolithographie, gravure, dépôt, polissage mécano chimique, lithographie électronique e-beam...) à partir des éléments semi-conducteurs des colonnes III, IV et V du tableau périodique de Mendeleïev.

Le transistor MOS ("Metal Oxide Semiconductor") utilisé dans la technologie CMOS ("Complementary Metal Oxide Semiconductor") est le composant de base de l'électronique moderne. Un des objectifs poursuivis en microélectronique est de réduire les dimensions de ces transistors pour pouvoir les intégrer, en nombre toujours croissant, dans les puces silicium. Conformément aux prédictions de la loi de Moore, le nombre des transistors intégrés dans une puce tend à doubler tous les dix-huit mois. Pourtant, ce processus de miniaturisation ne se fait pas sans difficulté. Chaque avancée révèle de nouveaux défis technologiques, et chacun d'eux exige d'importantes innovations pour être relevé.

Les études menées actuellement dans le domaine de la microélectronique portent sur l'amélioration des procédés de fabrication qui sont indispensables, coûteux et déterminants dans la course à la miniaturisation. Pour pouvoir réaliser des motifs sous la limite des 22 nm, les recherches s'orientent vers l'élaboration de méthodes de lithographie qui utilisent des rayonnements de longueurs d'ondes réduites (jusqu'à 13,5 nm dans l'extrême ultra-violet).

L'élaboration de puces en trois dimensions (intégration 3D) constitue également une piste privilégiée dans le processus engagé pour augmenter la densité des structures actives (transistors). Ce nouveau champ d'investigation oriente la recherche vers l'optimisation de la conduction dans les interconnexions. Ces propriétés de conduction dépendent notamment de la cristallinité, régulière ou irrégulière (polycristallinité), des conducteurs employés. Ces matériaux conducteurs sont utilisés pour connecter verticalement plusieurs puces 2D dans des interconnexions appelées "via".

Ces investissements de recherche et de développement sont assumés par l'industrie des semi-conducteurs qui désire concevoir des circuits intégrés toujours plus complexes et performants tout en réduisant les coûts de fabrication des puces. Chaque année l'ITRS [2] ("International Technology Roadmap for Semiconductor") réunit les acteurs de cette industrie pour définir les défis à venir et coordonner les efforts d'innovation dans le domaine.

En 2013 le rapport de l'ITRS prévoyait l'intégration de nœuds sous la limite des 10 nm pour l'horizon 2020. L'introduction de contraintes dans le silicium est évoquée dans ce même rapport comme une pratique industrielle courante. La maîtrise de cette pratique y apparaît comme un enjeu majeur qui doit être appliqué aux dernières technologies de transistors de type "FDSOI" et à grilles multiples. En effet, une contrainte appliquée au sein de matériaux III-V permet d'accroître la mobilité des porteurs (électrons et/ou trous). L'utilisation de ces matériaux contraints dans les transistors de type MOS permet d'augmenter la vitesse d'opération des circuits intégrés.

I.1.3 Ingénierie des contraintes

Des contraintes peuvent être introduites dans les dispositifs de façon non maîtrisée tout au long de leur élaboration. Lorsque ces contraintes sont trop importantes, les matériaux présentent des dislocations, ou défauts incontrôlés (voir figure I.2). Ces défauts sont susceptibles de piéger des charges, susciter des recombinaisons entre électrons et trous, ou encore, altérer les propriétés de conduction d'un matériau.

En microélectronique, lorsque ces défauts sont localisés dans les parties actives d'un composant, ses performances électriques risquent d'être fortement dégradées. Un contrôle des contraintes permet non seulement, de prémunir les dispositifs

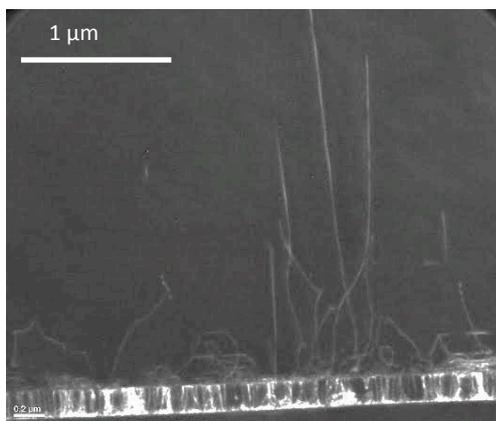


Figure I.2 : Imagerie électronique de dislocations dans un dispositif fortement sujet à l'apparition de défauts. (empilement Si/AlAs/GaAs (weak beam MET observation)).

de ces défauts irréversibles, mais aussi, de modifier l'arrangement cristallin d'un matériau. Ceci permet de modifier la structure de bande [2] d'un matériau pour améliorer ses propriétés électroniques afin de concevoir des composants plus performants. Dans le cas du silicium, par exemple, l'introduction de contraintes contrôlées permet de susciter une dissociation de certains états (levées de dégénérescences) dans la structure de bande du semi-conducteur. Ce type de modification de la structure de bande permet d'accroître la mobilité μ ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{V}^{-1}$) des trous ou des électrons dans le matériau. Ces modifications peuvent donc être utilisées pour améliorer les performances électriques des transistors soit nMOS (à électrons majoritaires) soit pMOS (à trous majoritaires) sachant que, dans l'état passant, l'intensité I_{MOS} du courant dans le canal de ces composants est proportionnelle à la mobilité μ .

$$I_{\text{MOS}} \propto \frac{W_{\text{grille}}}{l_{\text{grille}}} C_{\text{Ox}} \mu \quad (\text{I.1.1})$$

Avec W_{grille} et l_{grille} la longueur et la largeur de grille dans un transistor et C_{ox} la capacité de l'oxyde de grille utilisé dans le transistor.

A ce jour, l'ingénierie des contraintes emploie massivement deux méthodes pour générer des contraintes dans les matériaux qui constituent notamment les canaux des transistors nMOS et pMOS.

- La première de ces méthodes consiste à induire une contrainte dans un matériau par le biais du substrat sur lequel il est déposé. Elle a donné naissance à la technologie de transistors contraints sur silicium SSOI "Strained Silicon On Insulator". Cette méthode, appelée SRB pour "Strained Relaxed Buffer", utilise un substrat relaxé dont le paramètre de maille est sensiblement différent de celui du matériau épitaxié. La contrainte est ici induite par accommodation des mailles cristallines mises en jeux.
- La seconde méthode existante est utilisée pour induire des contraintes dans un matériau, après que celui-ci a été déposé sur un substrat. Dans ce cas, un matériau en tension ou en compression appelé "liner" est utilisé pour transférer une contrainte dans le matériau sur lequel il est déposé. Cette méthode trouve de fortes similitudes avec un procédé destiné à l'élaboration exclusive des transistors pMOS. Ce procédé spécifique consiste à déposer un alliage de silicium germanium au niveau (et non au-dessus) des zones actives d'un composant pour les contraindre ("stressor SiGe").

Nous avons vu ici comment la maîtrise des contraintes peut influencer positivement sur les propriétés électriques d'un matériau pour améliorer les performances d'un composant tel qu'un transistor MOS. Le contrôle de ces contraintes peut s'effectuer de différentes manières mais il devient de plus en plus délicat au fur et mesure que la miniaturisation progresse. L'ITRS, toujours dans son rapport de l'année 2013, préconisait l'utilisation de matériaux alternatifs au silicium contraint pour améliorer les dernières technologies de transistors MOS à grilles multiples, tout en prévoyant un avenir prometteur pour l'ingénierie des contraintes.

I.2 MESURE DE DEFORMATION ET/OU DE CRISTALLINITE A L'ECHELLE NANOMETRIQUE

Le plus souvent le choix d'une technique de caractérisation est déterminé par le type d'échantillon à disposition et par la sensibilité de mesure qui est attendue. Dans le cas de notre étude la résolution spatiale visée est la résolution nanométrique et la sensibilité attendue en termes de déformation est de l'ordre de 10^{-4} . Avant de décrire les différentes techniques qui peuvent prétendre à de telles performances, quelques précisions s'imposent quant à la notion de déformation, pour rendre la lecture de cette partie plus facile.

Il est courant de parler de mesure de déformation lorsque l'on parle de métrologie des matériaux et des dispositifs contraints. En effet, la **déformation** décrite par le tenseur de déformation ϵ_{ij} , est liée au champ de **déplacement**. Celui-ci traduit le déplacement d'un point, d'une position (x_1, x_2, x_3) vers une autre position, suite à une déformation. Un tenseur de distorsion F_{ij} est le plus souvent accessible de manière directe en métrologie. Dans le cadre de l'élasticité linéaire (petites déformations), la partie antisymétrique de ce tenseur constitue le tenseur ω_{ij} de rotation et la partie symétrique, le tenseur de déformation ϵ_{ij} recherché ici :

$$F = \bar{\nabla} = \epsilon + \omega \quad \begin{cases} \omega_{ij} = \frac{1}{2}(F_{ji} - F_{ij}) = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} - \frac{\partial u_j}{\partial x_i}\right) \\ \epsilon_{ij} = \frac{1}{2}(F_{ji} + F_{ij}) = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i}\right) \end{cases} \quad (\text{I.2.1})$$

La **contrainte** symbolisée par le tenseur de contrainte σ_{ij} est en revanche liée à une **pression** et n'est mesurable que par le biais de capteurs d'efforts. Contraintes σ_{ij} et déformations ϵ_{ij} sont liées en régime élastique par la loi de Hooke, par le biais du tenseur d'élasticité d'ordre quatre C_{ijkl} par la relation linéaire :

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl} \epsilon_{ij}. \quad (\text{I.2.2})$$

Bien entendu toutes les déformations ne se cantonnent pas au régime **élastique** et **réversible**. La déformation peut aussi relever d'un régime **plastique** auquel cas elle est **irréversible** et occasionne des réarrangements dans les matériaux cristallins. Dans le cadre de cette étude nous n'avons pas eu à tenir compte des défauts induits par les phénomènes de plasticité. Bien qu'ils puissent être caractérisés, il est difficile de s'appuyer sur une mesure du champ de déformation qu'ils génèrent pour remonter à la grandeur physique qu'est la contrainte. Ainsi, et tout au long de ce document le terme de déformation ne concernera que les déformations élastiques.

La sensibilité des mesures de déformation est exprimée sans unité et retranscrit la capacité d'une mesure à évaluer une variation Δl d'une longueur l comme suit :

$$\Delta l / l. \quad (\text{I.2.3})$$

Après ces quelques précisions, nous allons présenter différentes techniques de mesure de déformation et de cristallinité à l'échelle nanométrique.

I.2.1 Techniques hors microscopie électronique

a) Diffraction des rayons X (XRD)

Dans le cas des rayons X (RX) un échantillon est irradié par une source de rayons X. La longueur d'onde des photons λ est de l'ordre de grandeur des distances interréticulaires des matériaux cristallins (i.e. autour de 1 Å). Pour un échantillon donné, le faisceau est diffracté par l'échantillon suivant plusieurs angles de Bragg θ_B , chacun caractéristique d'une distance interréticulaire d_{hkl} , associée aux indices de Miller (h,k,l), conformément à la loi de Bragg :

$$2d_{hkl} \sin(\theta_B) = n\lambda . \quad (\text{I.2.4})$$

L'analyse de contraintes par diffraction des rayons X a été utilisée dès les années 1930. Comme pour la plupart des méthodes d'analyse de contrainte, la mesure de la déformation par rayons X est une méthode extensométrique. On mesure une variation angulaire associée à une distance interréticulaire dans une direction sujette à une déformation. Sous l'action d'un champ de contraintes, les distances interréticulaires sont modifiées. Une variation d'une distance interréticulaire est associée à une déformation unidirectionnelle :

$$\varepsilon = \frac{d - d_0}{d_0} \quad (\text{I.2.5})$$

où d_0 et d sont les distances interréticulaires d'une famille de plans respectivement libre de contrainte et sous contrainte.

En pratique, afin de déterminer tout le tenseur des déformations, la position d'une tache de diffraction (hkl) (cas du polycristal) ou de plusieurs taches de diffraction (hkl) (cas du monocristal) est mesurée selon une direction \mathbf{n}_ψ normale à un plan diffractant et définie par les deux angles d'Euler Φ et ψ . Ceci permet d'exprimer la déformation ε_{ij} dans le repère du cristal $(O, \vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3)$ comme suit :

$$\varepsilon_{\varphi\psi} = (\varepsilon_{11} \cos^2 \varphi + \varepsilon_{12} \sin 2\varphi + \varepsilon_{22} \sin^2 \varphi) \sin^2 \psi + \varepsilon_{33} \cos^2 \psi + (\varepsilon_{13} \cos \varphi + \varepsilon_{23} \sin \varphi) \sin 2\psi . \quad (\text{I.2.6})$$

Lorsque le tenseur de déformation ne présente pas de terme de cisaillement, comme c'est généralement le cas dans les couches minces (pleine plaque), et que la déformation est biaxiale isotrope dans le plan de l'échantillon, la formule précédente peut être exprimée sous une forme plus usuelle, pour une direction de mesure \mathbf{n}_ψ :

$$\varepsilon_{0\psi} = (\varepsilon_{11} - \varepsilon_{33}) \sin^2 \psi + \varepsilon_{33} . \quad (\text{I.2.7})$$

Les méthodes de mesure par diffraction RX sont utilisées pour évaluer une déformation avec une grande sensibilité qui peut atteindre 5×10^{-6} dans les meilleurs cas (cristaux de grande qualité). Elles restent tributaires de l'accès à un synchrotron [4-6] et ne permettent pas d'obtenir une mesure avec une forte résolution spatiale dans un unique dispositif contraint. En effet la résolution spatiale pour ce type de mesures est limitée par la taille du faisceau de Rayons-X qui avoisine les 100 nm² au mieux sur des grands instruments. Toutefois, une méthode de caractérisation par rayons-X appelée diffraction haute résolution permet de mesurer une

déformation dans un groupe de dispositifs identiques avec une résolution spatiale qui avoisine 10 nm.

La diffraction RX est une technique qui a évolué avec l'apparition de méthodes permettant la collimation [7–9] et la production [10] des rayons X. A ce jour, elle est employée communément de trois manières différentes :

La micro diffraction : Cette technique de diffraction X consiste à focaliser un faisceau de photons X monochromatique sur une surface pouvant atteindre $5 \mu\text{m}^2$ sur l'échantillon. Cette méthode permet d'atteindre une sensibilité à la déformation de l'ordre de 10^{-5} . La résolution spatiale de cette technique peut être améliorée au moyen d'un guide d'onde. De cette façon, il est possible de focaliser une sonde sur une zone de 100 nm de côté [5] au détriment cependant de la sensibilité de la mesure de déformation [11] qui chute à 1×10^{-4} .

Diffraction en faisceau blanc : Cette méthode s'apparente à la micro diffraction. La différence ici est que le faisceau, appelé faisceau blanc, est polychromatique. Cette particularité permet d'obtenir une mesure résolue en énergie et en angle. Cette technique est difficile à mettre en œuvre car il est plus complexe de résoudre la loi de Bragg sans connaître précisément la longueur d'onde λ du signal mesuré. Ce problème est résolu le plus souvent en indexant un minimum de trois taches de diffraction pour pouvoir se référer à des structures cristallines connues. La méthode de diffraction RX en faisceau blanc permet de mesurer l'orientation d'un cristal étudié [12]. La résolution spatiale et la sensibilité à la déformation atteinte ici sont identiques à celle atteinte en micro diffraction [8–13].

Diffraction haute résolution (HR-XRD) : La diffraction haute résolution est capable d'étudier des dispositifs dont les dimensions avoisinent les 10 nm avec un faisceau RX sur une surface de $50 \times 50 \text{ nm}^2$. Pour réaliser cette mesure, un échantillon qui normalement fournit un signal trop faible pour être mesuré, est dupliqué périodiquement sur un substrat. La diffraction des rayons RX sur ce nouvel échantillon exhibe une variation d'intensité mesurable et doublement périodique. D'une part la périodicité du signal mesuré renseigne sur l'arrangement périodique des échantillons sur le substrat. D'autre part, cette périodicité renseigne sur les propriétés cristallines et sur l'état de déformation des échantillons étudiés. La déformation mesurée avec cette technique est moyennée sur l'ensemble des échantillons irradiés par le faisceau RX et la sensibilité de cette mesure atteint la valeur de 10^{-5} [3,4,13].

D'un point de vue général, les méthodes de mesure de déformation par diffraction X présentent le plus souvent l'avantage de ne nécessiter aucune préparation d'échantillon. Autrement dit le champ de contrainte des matériaux étudiés peut être préservé tout au long du processus expérimental de mesure.

b) Spectroscopie Raman

Lors d'une interaction rayonnement matière, il se produit en même temps que des phénomènes de réflexion et de transmission, des diffusions. Une partie de ce phénomène de diffusion est due à des interactions élastiques qui donnent lieu à une raie de diffusion de Rayleigh. Dans le cas d'une interaction entre un rayonnement photonique et un matériau, le champ électrique \mathbf{E} de l'onde électromagnétique peut induire un moment dipolaire $\mathbf{p} = [\alpha] \mathbf{E}$ dans un matériau, où $[\alpha]$ désigne le tenseur d'ordre 3 dit de polarisabilité. La polarisabilité d'un milieu dépend des degrés de liberté (modes propres de vibration et de rotation) de l'ensemble des atomes qui le composent. Le phénomène de polarisation décrit ici, induit un décalage en fréquence des faisceaux diffusés autour de raies de diffusion de Rayleigh et qui est nommé décalage Raman.

L'effet Raman a été mis en évidence pour la première fois en 1928 par C.V. Raman [15]. Il peut être observé soit vers les énergies positives (décalage de Stokes) soit vers les énergies négatives (décalage anti-Stokes). Si la mesure ne suscite pas d'échauffements locaux [16], la valeur d'un décalage Raman nous informe sur les propriétés d'une liaison chimique. En observant un effet Raman sur un cristal, il est possible de caractériser des modes propres de vibration phonon (majoritairement optiques). Dans ce cas, les décalages Stokes sont dus à l'absorption d'un phonon et le décalage anti-Stokes à la création d'un phonon. Les modes propres phonon sont régis par l'arrangement cristallin de la matière et sont modifiés lorsqu'une déformation s'opère dans un cristal [3].

En pratique il est difficile d'établir une relation entre le décalage Raman mesuré, et la déformation d'un cristal. Cette relation existe principalement pour des champs de déformation qui comprennent plusieurs symétries, c'est pourquoi la spectroscopie Raman est fréquemment utilisée pour mesurer les déformations dans des matériaux contraints uni-axialement ou bi-axialement [17,18].

La méthode de spectroscopie Raman, permet à partir de sources lasers, d'observer des déformations dans les matériaux avec une sensibilité de 1×10^{-4} [17]. On la retrouve notamment dans le cadre d'études portant sur des empilements Si/SiGe [19–22] similaires à l'un des échantillons étudié dans ce travail. Dans ce cas, la déformation ε (ici bi-axiale) et le décalage en fréquence Raman ω sont liés par les relations suivantes [23]:

$$\begin{aligned} \omega^{Si-Si} &= \omega_0^{Si-Si} - 62x - 850\varepsilon & x \leq 0.6 \\ \omega^{Si-Ge} &= \omega_{0,x \rightarrow 0}^{Si-Ge} + 24,3x - 551\varepsilon & 0.3 \leq x \leq 0.5 \\ \omega^{Ge-Ge} &= \omega_0^{Ge-Ge} + 6,9x - 403\varepsilon & 0.3 \leq x \leq 0.55 \end{aligned} \quad (\text{I.2.8})$$

avec x la composition du substrat $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$, ε la déformation bi-axiale dans le plan et ω^{X-Y} la position en fréquence des pics Ramans pour une liaison d'espèces chimiques X-Y et ω_0^{X-Y} la fréquence de référence pour chaque liaison.

La résolution spatiale en spectroscopie Raman atteint la centaine de nanomètres avec un objectif à immersion [24] et varie en fonction de la longueur d'onde de la source laser utilisée. Par

exemple, l'emploi de lasers UV a permis dès 2006 d'atteindre une résolution latérale de 100 nm [25]. L'utilisation de ces lasers limite la profondeur d'analyse dans le silicium à une dizaine de nanomètres si bien que la mesure est applicable à la microélectronique [26].

D'un point de vue général, la spectroscopie Raman s'avère être une méthode simple à mettre en œuvre et non-destructive.

I.2.2 Techniques par microscopie électronique

a) Origine de la microscopie électronique

Quel que soit le type de rayonnement employé en métrologie, la résolution spatiale ultime d'une technique décroît conjointement à la longueur d'onde du faisceau de particules utilisé.

En effet, le phénomène de diffraction de Fraunhofer est à l'origine de la limite basse de résolution d'une mesure optique. Considérée dans le cas d'un système optique idéal à symétrie cylindrique et d'ouverture finie, la diffraction de Fraunhofer engendre une figure de diffraction nommée tache d'Airy. Le profil d'intensité de cette tache dans le vide (voir figure I.3) permet d'exprimer le pouvoir séparateur d d'un instrument de la façon suivante, conformément au critère de Rayleigh [27]:

$$d = 0.61\lambda / n \sin(\alpha_c), \tag{I.2.9}$$

Avec α_c le demi-angle d'ouverture du faisceau, λ la longueur d'onde et n l'indice optique.

Cette formule, montre que la résolution spatiale ultime d'un instrument peut être améliorée en jouant sur deux paramètres du faisceau. Soit on peut en augmenter la convergence α_c du faisceau, soit on peut réduire sa longueur d'onde λ . De nombreux efforts ont permis de diminuer λ dans le cas de rayonnements électromagnétiques (EM) notamment en utilisant le rayonnement ultra-violet. Malheureusement il est difficile de réduire indéfiniment la longueur d'onde d'un rayonnement EM car la mise en œuvre d'optiques dans le domaine des rayons UV profonds et X est difficile. La révélation de la dualité onde-corpuscule énoncée par **Louis De Broglie** se présente ici comme une solution à ce problème. En effet, la réduction de la longueur d'onde peut être obtenue aussi bien, en jouant sur l'énergie de la source utilisée, qu'en faisant le choix d'utiliser une particule autre que le photon. En pratique, à chaque gamme d'énergie est associé de préférence un type de particule :

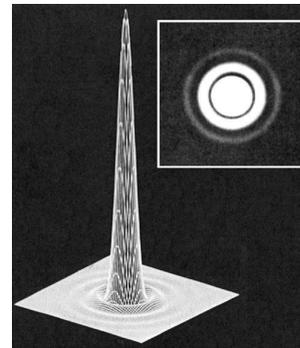


Figure I.3 Figure de diffraction de Fraunhofer (Tache d'Airy) [25]

Energie E (eV)	10^8	10^6	10^4	10^2	1	10^{-2}
Rayonnement EM	γ	RX	UV	visible	Infra Rouge	
Rayonnement corpusculaire	ions	protons	électrons	neutrons thermiques et photons		

Tableau 1 : Lien entre l'énergie d'un faisceau et le type de particule d'un point de vue expérimental

L'énonciation de la dualité onde-corpuscule permet de comprendre comment une technique de métrologie tire parti d'une particule par rapport à une autre. Elle fait le rapprochement entre l'énergie E et la longueur d'onde λ d'un rayonnement. Le Tableau I.2 qui suit fait état de ce rapprochement, en régime relativiste², pour les photons et pour des particules de masse m_0 , de charge $-e$, accélérées avec une différence de potentiel U .

Dans ce tableau, il apparaît que la masse de la particule se montre être un moyen efficace pour améliorer le pouvoir de résolution des instruments. En 1986, le prix Nobel fut accordé au physicien Allemand **Ernst Ruska** qui, en partant de ce même constat, a présenté un premier microscope à électrons (microscope électronique) capable d'atteindre une résolution supérieure à celle d'un microscope optique.

	Rayonnement corpusculaire	Rayonnement EM
Energie	$E^2 = p^2c^2 + m_0^2c^4$ (c vitesse de la lumière ; p impulsion de la particule)	$E = h\nu$ (h la constante de Planck ; ν la fréquence)
Longueur d'onde λ (particules chargées)	Pour une accélération coulombienne de la particule de charge e par une tension U : $E = E_{\text{accélération}} + m_0c^2 = eU + m_0c^2$ $\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{\sqrt{2m_0eU \left(1 + \frac{eU}{2m_0c^2}\right)}}$	$\lambda = \frac{hc}{E}$
Vélocité v (particules chargées)	$v = c \left[1 - \left(\frac{m_0c^2}{eU + m_0c^2} \right)^2 \right]$	$v = c$
Solution(s) pour diminuer λ	1 – Choisir une particule plus massique. 2 – Accélérer d'avantage la particule.	Accroître l'énergie d'émission du faisceau

Tableau I.2 : Rapprochement entre énergie E et longueur d'onde λ pour les photons et pour des particules de masse m_0 , de charge e , accélérées avec une différence de potentiel U .

L'électron est un bon candidat pour être substitué au photon. Il est aisé de le produire en utilisant l'effet thermoïonique, l'effet Schottky et l'effet de champ (sources tungstène, FEG, LaB₆...). Contrairement aux particules neutres, telles que le neutron, la trajectoire de l'électron peut être contrôlée par le biais de deux forces distinctes (la force de Lorentz). Cette particule peut sonder efficacement la matière puisqu'elle est fortement affecté par les potentiels interatomique qui la régissent (voir chapitre II).

² Négliger ces effets donne lieu à une erreur de 4.8% sur l'estimation de la longueur d'onde d'un faisceau d'électrons produit avec une tension d'accélération $U = 100$ kV et 9.3% pour un faisceau d'électrons produit avec une tension d'accélération double [3].

Lors des chocs élastiques entre les électrons et les noyaux, une énergie de recul peut être transmise à ces derniers. Cette énergie est exprimée en MeV et est égale, pour un choc frontal, à $eU(eU + 1.02)$. Pour une tension d'accélération supérieure à 200 kV, cette énergie est suffisante pour déplacer un atome de silicium de sa position vers un site de substitution (13 eV). Ce dernier point justifie qu'une attention toute particulière doit être accordée à la préparation des échantillons en microscopie électronique (voir chapitre II).

A ce jour, les électrons utilisés ont les propriétés suivantes :

Tension d'accélération (KV)	Longueur d'onde relativiste (nm)	Vélocité / c	Vélocité / Vitesse de Bohr
80	0.00423	0.502	68.8
200	0.00251	0.695	95.3
300	0.00197	0.776	106

Tableau I.3 : Propriétés des électrons communément mis en jeu en microscopie électronique.

Il convient de noter que l'instrument présenté par E. Ruska, dont le pouvoir de résolution a été aujourd'hui dépassé, souffrait d'imperfections dans le système de production et de collimation du faisceau d'électrons. De nombreux progrès ont été réalisés en la matière. Pourtant certaines de ces imperfections subsistent et ne nous permettent pas encore d'atteindre le pouvoir de résolution théorique de la microscopie électronique établi par l'équation (I.2.9).

b) Imagerie haute résolution en transmission (HRTEM ; HRSTEM)

En pratique la résolution atteinte en microscopie électronique est encore très loin de l'ordre de la longueur d'onde des électrons mis en jeu (2.5 pm pour une tension d'accélération de 200 kV). Pourtant, malgré les nombreux phénomènes qui, s'ajoutant à la diffraction, limitent le pouvoir séparateur des instruments, les Microscopes Electroniques en Transmission (MET) permettent d'atteindre une résolution spatiale inférieure à 50 pm. Ces instruments offrent donc un accès à la résolution atomique et sont utilisés pour imager des déformations dans les matériaux.

Pour obtenir une image haute résolution en transmission, un échantillon est placé, au sein d'un MET, dans un faisceau quasi-parallèle d'électrons. En alignant un axe cristallin avec l'axe du faisceau (position d'axe de zone), l'utilisateur maximise le nombre de faisceaux diffractés par le réseau de plans cristallins de l'échantillon. Suivant la position de l'échantillon, son épaisseur, et en fonction des conditions d'illumination, ces faisceaux diffractés interfèrent dans le plan image du microscope. Ces interférences retranscrivent, en contraste clair ou sombre, les positions des colonnes atomiques. L'image obtenue est une image dite d'interférence. Le mode de formation de ce type d'image est nommé imagerie haute résolution HRTEM.

La théorie physique de l'élasticité [28] explique que les contraintes qui astreignent un matériau n'ont aucune incidence à l'échelle de l'atome. Elles s'appliquent à des régions plus étendues de l'espace. Par conséquent, les variations de contraste qui limitent la distinction entre les colonnes

atomiques et les vides dans les images HRTEM, ne représentent pas une gêne pour mesurer des déformations. En revanche, le fait d'observer une inversion de contraste sur une zone d'observation permet d'avoir la certitude que l'image HRTEM retranscrit fidèlement les positions des interfaces cristallines dans l'échantillon, en vu de leur étude.

En microscopie électronique, il est également possible de focaliser un faisceau d'électrons convergent et de taille sub-nanométrique à la surface d'un échantillon. Lorsque la surface d'un échantillon est balayée avec un tel faisceau, une image "chimique" peut être reconstruite en tenant compte de l'intensité diffusée en chacun des points ainsi sondés. En effet, lorsqu'elle est mesurée avec un détecteur HAADF (pour de grands angles de diffusion) cette intensité diffusée fluctue approximativement comme le carré du numéro atomique de l'objet sondé. Ce mode d'imagerie est appelé HRSTEM et permet d'imager avec certitude la position de colonnes atomiques.

A l'heure actuelle, deux algorithmes permettent de mesurer un champ de déplacement à partir des images haute résolution HRTEM et HRSTEM : la technique de "peak finding" qui est une méthode de recherche de maximas [29–32] et la méthode de phase géométrique (GPA : Geometric phase analysis) qui repose sur une étude des images obtenues dans l'espace de Fourier [33,34].

Méthode de phase géométrique (GPA) : La méthode GPA est basée sur un algorithme qui exploite la transformée de Fourier d'une portion des images haute résolution. En ne conservant dans chaque image qu'une unique composante choisie de l'espace de Fourier, il devient possible d'identifier le champ de déplacement dans le matériau. En effet la distribution d'intensité I obtenue peut être identifiée comme équivalente, à une phase près, à la distribution d'intensité exacte liée à la fréquence spatiale :

$$I = A \cos(2\pi r \Phi_{GPA} + \Phi), \quad (I.2.10)$$

avec A le contraste dans l'image, Φ un terme de phase constant et $\Phi_{GPA} = -2\pi r$ le terme de phase géométrique.

La phase Φ_{GPA} renseigne sur les champs de déplacement, de rotation et de déformation d'un réseau cristallin [35] dans la direction choisie [34]. Il est possible de reproduire la mesure de la phase géométrique suivant, sur une zone non contrainte d'un l'échantillon pour soustraire les aberrations issues de la caméra ou du système de projection du microscope. Ceci permet d'obtenir une mesure plus précise de la déformation. La résolution spatiale de la méthode GPA est directement liée à la taille du masque de sélection utilisé dans l'espace de Fourier pour choisir une direction. Par exemple un masque de $0,5 \text{ nm}^{-1}$ permet d'atteindre une résolution spatiale de 2 nm. La sensibilité de la mesure de déformation alors atteinte est de l'ordre de 1×10^{-3} [36].

Peak finding : Cette méthode s'appuie sur l'identification de maxima dans les images haute résolution. La distribution périodique de ces maxima retranscrit l'arrangement périodique des colonnes atomiques dans un cristal étudié. L'identification de ces maxima peut être faite avec l'aide de différents algorithmes comme ceux proposés par Bierolf [29], Rosenauer [37] ou encore la méthode de Peak Pairs [32]. En pratique ces algorithmes sont sensibles à la qualité des images. Un filtrage de Wiener [38] coûteux en temps de calcul, permet à ces algorithmes de converger dans des situations délicates avec des images de qualité réduite. Cependant ce moyen numérique ne permet pas de se dispenser de l'assistance systématique d'un opérateur. La méthode de Peak Finding permet en définitive de mesurer les positions des colonnes atomiques. En comparant une mesure avec une autre effectuée sur un échantillon de référence, cette méthode permet de mesurer une déformation dans un échantillon avec une sensibilité équivalente à celle propre à la méthode GPA.

c) Méthode des moirés

Le facteur le plus limitant dans l'analyse des déformations par imagerie haute résolution est le microscope lui-même ou autrement dit, son pouvoir de résolution. Ce caractère limitant peut être contourné lorsque le travail de comparaison d'un paramètre cristallin avec un autre se fait, non pas numériquement, mais physiquement au sein même du microscope. Ceci se produit lorsque deux éléments cristallins distincts sont superposés sur le passage du faisceau d'électrons. Dans ce cas, des faisceaux diffractés par ces cristaux peuvent interférer les uns avec les autres. Par le biais d'un diaphragme placé dans le plan de Fourier du microscope, on ne conserve qu'un unique ordre diffracté par le premier et le second cristal traversé par le faisceau : $\mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_0 + \mathbf{g}_2$ (avec \mathbf{k}_0 le faisceau incident). Le réseau de franges issu de l'interférence de ces faisceaux est nommé moiré. Il est caractérisé par le vecteur de moiré : $\mathbf{g}_M = \mathbf{g}_1 - \mathbf{g}_2$ (voir figure I.4 ci-contre).

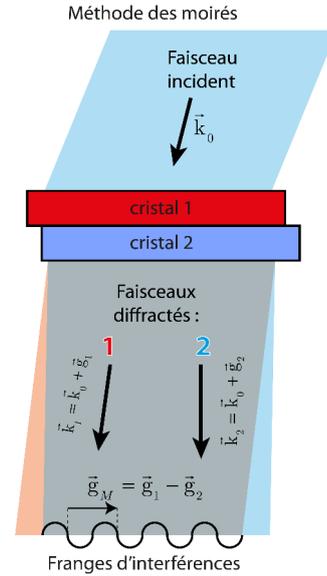


Figure I.4 : Méthode des moirés.

Un tel moiré peut être vu comme un « agrandissement » de la différence entre les paramètres cristallins des deux cristaux mis en jeu suivant la direction \vec{g}_M . La distribution d'intensité $I(\vec{r})$ de ce moiré s'exprime de la façon suivante :

$$I(\vec{r}) = A_1 + 2A_2 \cos\left(2\pi(\vec{g}_M)\vec{r} + \Phi_2(\vec{r}) - \Phi_1(\vec{r})\right), \tag{I.2.11}$$

avec $\Phi_i(\vec{r})$ la contribution électrostatique, magnétique et géométrique du cristal i dans l'expression de l'intensité $I(\vec{r})$ [39].

Plusieurs types de moirés peuvent être observés en fonction de l'orientation des cristaux traversés par le faisceau d'électrons : des moirés de translation (lorsque les cristaux ont la même orientation) ou des moirés rotationnels (si les cristaux sont désorientés) [40]. Les moirés

de translation peuvent servir à mettre en évidence des dislocations ou une déformation colinéaire au vecteur de moiré seulement si les trois conditions suivantes sont réunies :

- Le faisceau d'électrons incident doit être suffisamment cohérent pour que des faisceaux diffractés dans la zone d'intérêt interfèrent entre eux.
- Les contributions à l'expression de l'intensité I des phases électrostatique, magnétique et géométrique des cristaux doivent être négligeables.
- Le paramètre de maille de l'un des deux cristaux et son alignement avec le second doivent être connus.

Lorsque le second cristal sert de référence, et si toutes ces conditions sont réunies, la composante ε_1 du tenseur de déformation, pour le cristal 1, dans la direction cristallographique $\mathbf{g}_1 = \mathbf{g}_1/a$ (a une constante) est égale à :

$$\varepsilon_1 = -\mathbf{g}_1 / (\mathbf{g}_1 + \mathbf{g}_1). \quad (\text{I.2.12})$$

La dernière des trois conditions exposées ci-dessus est, dans le cas le plus courant, la plus difficile à satisfaire. Ceci permet de comprendre pourquoi cette technique de mesure de déformation suscite peu d'engouement. Néanmoins la méthode des moirés trouve des applications dans des études de couches minces et d'ilots cristallins. On la retrouve notamment dans l'étude d'ilots InGaAs/GaAs [41]. Dans le meilleur des cas, la méthode des moirés atteint une résolution spatiale de 20 nm et une sensibilité à la déformation de 5×10^{-4} [42].

d) Holographie électronique

L'holographie est une technique qui a été inventée par Gabor en 1948 [43]. Lorsqu'elle est appliquée avec un faisceau d'électrons, elle permet de faire l'étude soit de déformations soit de propriétés magnétiques et électrostatiques dans les cristaux. Aujourd'hui l'holographie électronique existe sous deux formes [44] : L'holographie en champ sombre et l'holographie dite directe (ou en anglais in-line). La première de ces deux techniques s'apparente de près à la méthode des moirés.

Holographie en champ sombre : Dans le cas de l'holographie en champ sombre [36], le phénomène d'interférence qui dans la méthode des moirés permet de « comparer » une maille cristalline à une autre s'opère à partir de faisceaux diffractés par deux zones cristallines disjointes ou accolées physiquement. Les faisceaux qui émergent de ces deux zones cristallines distinctes se recourent en étant déviés d'une quantité de mouvement \mathbf{g}_1 . Cette déviation des faisceaux diffractés est induite par un champ électrostatique dans le microscope. Ce dernier est appliqué en aval de l'échantillon par un fil conducteur nommé biprisme [45] (voir figure I.5).

En somme, l'holographie en champ sombre permet, tout comme la méthode des moirés, de réaliser des interférogrammes mais avec une zone de référence qui peut être caractérisée et dont l'alignement avec la zone cristalline d'intérêt peut être contrôlée.

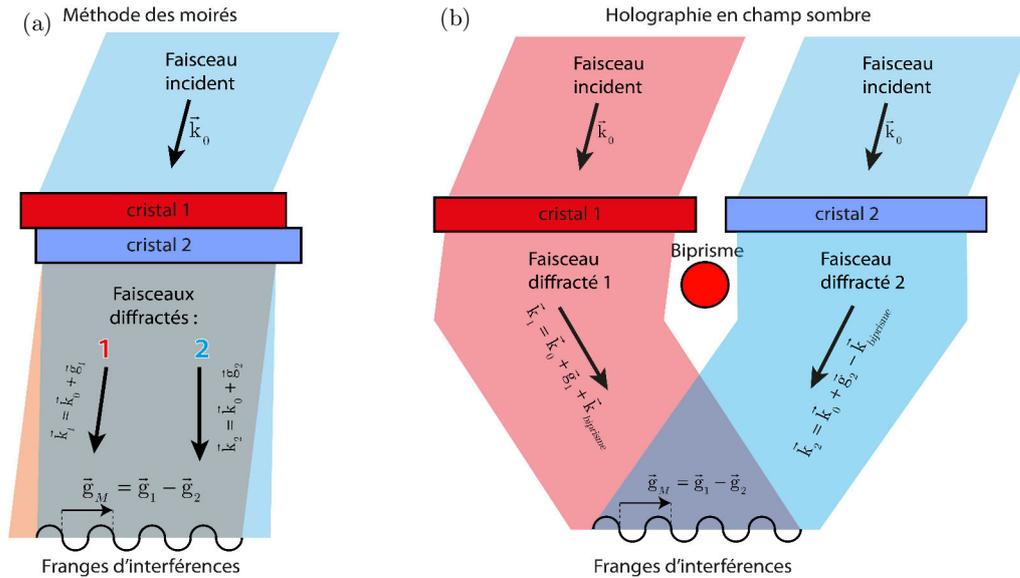


Figure I.5 : Illustrations pour comparaison des deux méthodes (a) des moirés (b) de l'holographie en champ sombre. (illustration inspirée des travaux de Martin Hÿtch [46])

Holographie directe, ou in-line, en champ sombre : L'holographie directe s'intéresse également au déphasage que subit le faisceau cohérent d'électrons au passage de l'échantillon. Cette technique est bien plus proche du concept originel édicté par Gabor que ne l'est l'holographie en champ sombre. Il est en théorie plus facile de mettre en pratique cette méthode car elle ne nécessite pas d'avoir un échantillon de référence idéal et pas de biprisme.

Dans son principe, l'holographie directe tend à évaluer la phase de l'onde transmise par l'échantillon. L'évaluation de cette phase est effectuée en mesurant les variations d'intensité de l'onde transmise par le matériau au cours de sa propagation. Dans un microscope électronique en transmission, l'image d'un échantillon est donc enregistrée en différentes positions, ou défocus, de part et d'autre du plan focal image de l'instrument. Une série focale adéquate permet, par le biais de méthodes algorithmiques itératives [47–49], de reconstruire la phase de l'onde diffractée par un échantillon. Le déphasage relatif ainsi mesuré informe sur les propriétés électrostatiques, magnétiques, géométriques et cristallographiques du matériau traversé par les électrons.

Dans le cas d'un échantillon supposé n'apporter qu'une contribution cristalline au déphasage de l'onde diffractée, l'holographie directe permet de remonter au champ local de déformation dans plusieurs directions du réseau cristallin [39,50].

D'un point de vue général, l'holographie électronique ne permet pas d'obtenir simultanément plusieurs composantes du tenseur de déformation dans un échantillon. Pour mesurer une composante du tenseur de déformation, l'onde diffractée par un échantillon doit être mesurée pour une unique direction de l'espace réciproque. Dans ce cas, le cristal diffractant ou le faisceau d'électrons est incliné dans le MET et un ordre diffracté peut être conservé dans le plan de Fourier avec un diaphragme (condition d'imagerie en champ sombre ou "dark-field" en anglais).

On ne peut donc mesurer un champ de déplacement bidimensionnel en holographie électronique qu'en associant deux mesures où sont isolées deux directions non colinéaires et caractéristiques d'un échantillon cristallin. Ces deux mesures renseignent sur une déformation si les termes de déphasage magnétiques, géométriques et électrostatiques, induits par le matériau étudié sur l'onde diffractée, sont négligeables.

L'holographie électronique pratiquée soit en champ sombre [46,51,52] soit en mode direct [53], est une méthode de mesure de déformations qui nécessite l'emploi de sources d'électrons fortement cohérents et qui trouve un vaste champ d'applications dans l'étude d'échantillons massifs. Elle atteint une sensibilité à la déformation de l'ordre de 2×10^{-4} et une résolution spatiale allant de 1 à 6 nm [51,54].

Il est bon de noter que, de par leur mode de mise en œuvre, ces techniques de mesures sont incapables d'appréhender l'étude des propriétés physiques aux abords des interfaces cristallines dans les composants de la microélectronique. En effet, il est fréquemment nécessaire d'incliner une interface cristalline par rapport à l'axe optique d'un MET. Ce faisant, le faisceau d'électrons traverse simultanément les deux attendants de cette interface. Dans ce cas, un phénomène de projection s'opère et la mesure du champ de déformation est faussée.

e) Diffraction d'électrons rétrodiffusés (EBSD & t-EBSD)

Lors de la mesure de déformation par EBSD un faisceau convergent d'électrons accélérés avec une tension de 10 à 30 kV est focalisé à la surface d'un échantillon au sein d'un Microscope Electronique à Balayage (MEB). Ces électrons sont en partie diffusés, quasi-élastiquement, par les atomes proches de la surface de l'échantillon. Chacun de ces électrons diffusés peut être vu comme provenant d'une source électronique ponctuelle. Ainsi, leur somme se manifeste comme un faisceau secondaire d'électrons, très fortement divergent, situé sous la surface du matériau. Ce nouveau faisceau d'électrons diffracte sur les plans cristallins et émerge de la face de l'échantillon exposée au faisceau incident. Via ce procédé, on recueille expérimentalement sur un écran fluorescent couplé à une caméra CCD, une figure de diffraction marquée par des lignes de Kikuchi où les électrons sont soit en excès soit en défaut [54–57]. Ces lignes d'excès et de défaut forment des bandes de Kikuchi qui se manifestent après qu'une partie du flux d'électrons rétrodiffusé a été réfléchi à angle de Bragg θ_B par une famille de plans cristallins. L'analyse de la position relative de ces bandes

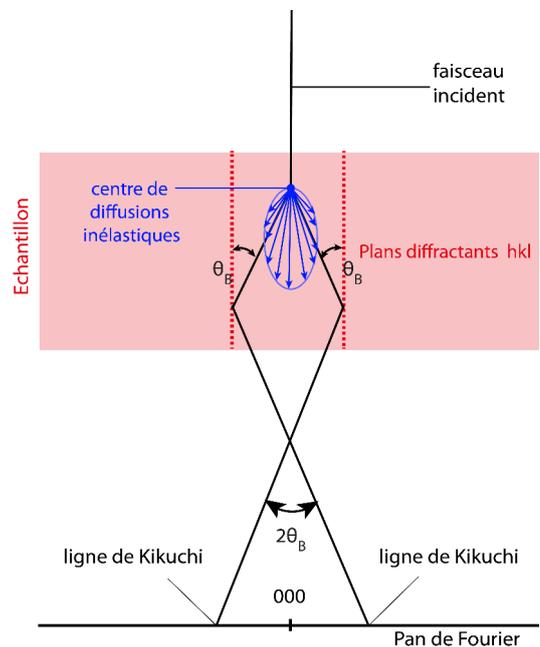


Figure I.6 : Formation des lignes de Kikuchi par diffraction d'électrons rétrodiffusés. (EBSD & t-EBSD)

permet d'accéder à des propriétés structurales propre à l'échantillon étudié telles que la phase et l'orientation des cristaux.

L'EBSD est une technique répandue dans les domaines de la métallurgie et des céramiques pour effectuer des cartographies d'orientation avec une résolution angulaire de $0,5^\circ$ [51] de façon automatisée [55]. L'aspect diffus des lignes de Kikuchi rapporte une information sur les déformations plastiques et leurs positions relatives par rapport à une référence fourni une mesure de la déformation élastique [56,57]. Pour mesurer une déformation cette technique atteint une sensibilité à 2×10^{-4} [58].

En terme de résolution spatiale [59–61], l'EBSD peine à répondre aux exigences de la microélectronique moderne. Elle n'est employée couramment que dans l'étude de films minces ou lorsque de gros grains cristallins sont disposés à la surface d'un échantillon. Une nouvelle technique appelée transmission EBSD (t-EBSD [62]) ou Transmission Kikuchi Diffraction (TKD [63]) permet d'atteindre une résolution spatiale de l'ordre de 10 nm. Cette technique ne diffère de l'EBSD que dans le positionnement de l'échantillon. Expérimentalement, cette nouvelle technique, requière que l'échantillon mince soit moins incliné par rapport au faisceau incident d'électrons (≈ 10 degrés). Ceci permet de recueillir les faisceaux diffractés qui émergent de la face arrière de l'échantillon (en aval du faisceau incident) [66].

f) Diffraction électronique en faisceaux convergent (CBED)

L'approche des propriétés par le biais des lignes de Kikuchi est semblable à une technique employée et rependue en microscopie électronique en transmission. Introduite en 1939 par Kossel et Möllenstedt [64] et développée dès 1961 par Howie et Whelan [65], la technique CBED (Convergent Beam Electron Diffraction) emploie un faisceau d'électrons convergent. Ce faisceau, dont le demi-angle de convergence α_c est typiquement compris entre 5 et 20 mrad, permet d'observer la part élastique des lignes de Kikuchi (produites avec un faisceau de longueur d'onde λ strictement connue, voir figure I.7). La résolution spatiale de la technique avoisine le nanomètre et varie selon le MET employé et suivant la convergence du faisceau d'électrons. Le point fort de la méthode CBED est qu'elle donne accès à une information tridimensionnelle sur la cristallinité d'un échantillon, dès lors que ce dernier a une épaisseur comprise entre 150 et 300 nm [66,67]. Avec un échantillon tel, l'ouverture importante imposée au flux d'électrons augmente la probabilité d'avoir des faisceaux réfléchis en condition de Bragg par les plans du cristal. Ainsi, l'information contenue dans les clichés CBED tire parti de la

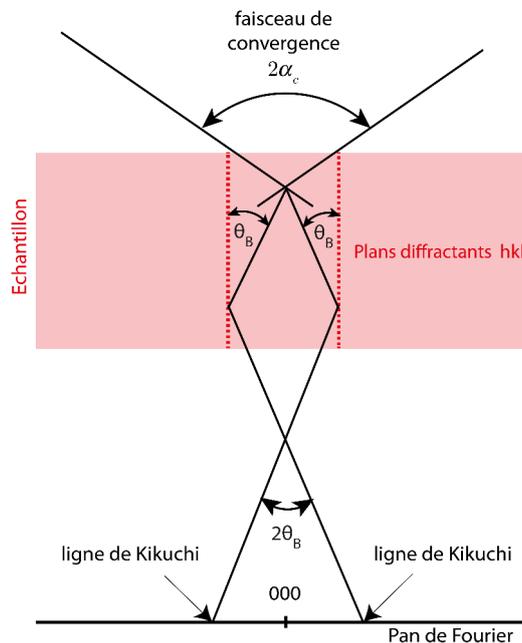


Figure I.7 : Formation des lignes de Kikuchi par diffraction d'électrons en faisceau convergent (CBED) avec l'angle de Bragg noté θ_B .

contribution de plans à hauts indices de Miller fortement affectés par les déformations et qui diffractent en produisant des lignes de HOLZ (High Order Laue Zone). Les clichés CBED sont observés dans le plan de Fourier du microscope et leur netteté peut être améliorée, soit en ne gardant que la partie élastique du signal diffracté [68], soit en portant l'échantillon à basse température.

La méthode CBED peut être pratiquée selon deux incidences avec un échantillon cristallin :

- En axe de zone, la méthode CBED permet d'observer les ordres diffractés par un réseau cristallin sous forme de disques. Les positions de ces disques retracent les positions des nœuds dans le réseau réciproque du cristal. Elles permettent de déterminer un groupe de symétrie et/ou un paramètre de maille [69]. La distribution d'intensité dans ces disques renseigne quant à elle sur des propriétés physico-chimiques tel que la polarisation [70].
- Hors axe de zone, le nombre de plans en condition de Bragg est moindre. Les phénomènes de diffraction dynamiques se raréfient et il devient possible de mesurer les positions des lignes de HOLZ avec précision. Ces lignes sont fortement sensibles à des changements structuraux dans le réseau cristallin. Elles constituent un critère idéal pour évaluer une déformation. Ainsi donc, la mesure de leur déplacement, par rapport à une situation de référence, permet d'évaluer une déformation avec une sensibilité de l'ordre de 2×10^{-4} [71–73]. Cette mesure est facilitée par l'usage de la transformée de Hough [74]. Aussi, le profil d'intensité des lignes de Kossel et Möllensted [64] produites par les plans d'indices faibles permet d'effectuer des mesures d'épaisseur d'échantillons cristallins avec une grande précision [75].

La méthode CBED, bien que très polyvalente, présente encore quelques inconvénients qui limitent sa généralisation. D'une part, les lignes de HOLZ peuvent subir des décalages et des élargissements (splitting) conséquents. Ces phénomènes sont respectivement dus soit à des fluctuations de la tension d'accélération du faisceau d'électrons soit à la courbure de l'échantillon [76–78]. Ceci justifie que de gros investissements en termes de simulation soient nécessaires pour pouvoir interpréter convenablement les clichés de diffraction CBED [82,83]. Pour mesurer le champ de déformation au niveau des interfaces d'un dispositif, la méthode CBED est inappropriée, tout comme l'holographie électronique. En effet l'échantillon doit être incliné par rapport au faisceau d'électrons pour effectuer cette mesure.

g) Diffraction en faisceaux parallèles (NBED)

La méthode de mesure NBED (Nano Beam Electron Diffraction) est une technique de caractérisation qui donne accès au champ de déplacement bidimensionnel à partir d'une unique mesure faite sur un cristal en axe de zone. Apparue au début des années 2000, cette méthode a grandement bénéficié des améliorations techniques faites en matière de production et de collimation des faisceaux d'électrons. En principe, la technique de caractérisation NBED consiste à focaliser un faisceau d'électrons faiblement convergent (< 2 mrad) sur une zone nanométrique de l'échantillon. Ce faisceau peut être incliné, ou non, vis à vis de l'axe optique du microscope (voir figure I.8). Il traverse la surface de l'échantillon en formant une sonde dont la largeur à mi-hauteur est inférieure à 10 nm [79]. Les électrons diffractés dans cette zone de mesure

nanométrique sont observés dans le plan de Fourier du microscope sous la forme d'un cliché de diffraction. Ce cliché de diffraction NBED est représentatif du réseau réciproque de la zone cristalline observée et sa netteté peut être accrue en ne gardant que la part élastique du signal diffracté (à l'aide d'un filtre en énergie) [80].

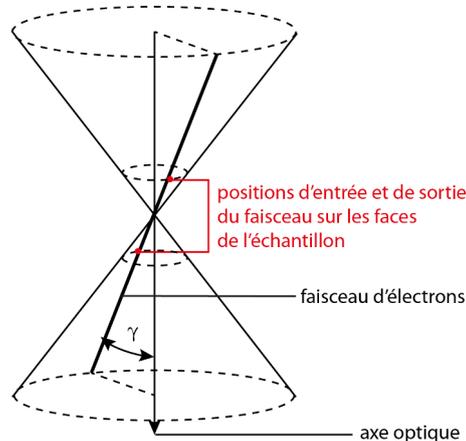


Figure I.8 : Nano faisceau d'électrons incliné d'un angle γ par rapport à l'axe optique.

La technique NBED est appliquée sur des matériaux et des dispositifs de la microélectronique [81–84]. D'une part, l'étude des clichés de diffraction dans leur ensemble permet d'identifier une phase et une orientation cristalline [85,86]. D'autre part, les changements de position des spots de diffraction dans ces clichés par rapport à une référence permettent d'évaluer une déformation. En condition d'axe de zone, une déformation bi-axiale peut être évaluée directement avec une sensibilité de 6×10^{-4} [87]. Cette sensibilité a été atteinte sur un microscope de dernière génération (FEI Titan 1) avec une résolution spatiale de 2,7 nm pour un angle de convergence 0,5 mrad [88]. Bien évidemment, comme en CBED, les échantillons peuvent être observés en NBED hors axe de zone. Ceci permet d'utiliser des taches de diffraction de hauts indices pour mesurer plus sensiblement des déformations [84].

Le principal inconvénient de la méthode NBED est que les clichés de diffraction qu'elle permet d'obtenir, contiennent peu de spots de diffraction et sont affectés par des effets dynamiques qui compliquent leur interprétation. Les phénomènes dynamiques qui altèrent la distribution d'intensité de la diffraction sont d'autant plus présents que l'observation est faite en axe de zone pour mesurer une déformation bi-axiale. Enfin, comme en CBED, la relaxation des contraintes dans les échantillons se fait sentir en mode NBED et suscite des élargissements de spots de diffraction [42].

h) Diffraction électronique en précession (PED)

La technique de caractérisation PED (Precession Electron diffraction), familièrement appelée « précession », est une technique apparentée à la NBED. Cette méthode requiert également un mode d'illumination MET en faisceau faiblement convergent. La différence entre PED et NBED

réside dans le fait que le nano faisceau d'électrons ne conserve pas en mode PED une direction de propagation fixe (voir figure I.9). L'acquisition de clichés de diffraction en mode précession, se fait pendant un bref laps de temps (>10 ms) au cours duquel le faisceau d'électrons décrit une trajectoire conique dont le point de symétrie coïncide avec le centre de l'échantillon. Le demi-angle d'ouverture de ce cône Y° est appelé angle de précession [89].

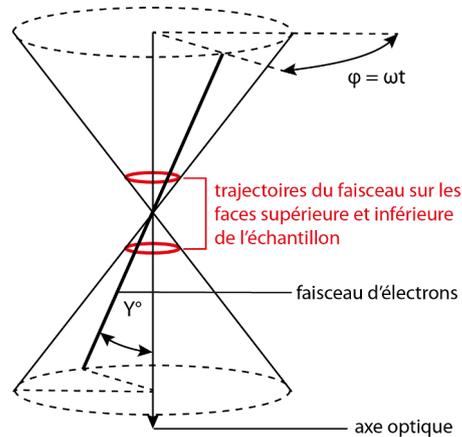


Figure I.9 : Précession du faisceau d'électrons avec un demi angle Y° autour de l'axe optique avec une pulsation ω .

Plus l'angle de précession Y° est important en PED et plus les phénomènes de diffraction dynamiques sont "atténués" dans la formation des figures de diffraction. Les clichés de diffraction observables dans l'espace de Fourier du microscope avec cette méthode arborent d'avantage d'ordres diffractés qu'en mode NBED. Aussi, les intensités des spots diffractés sont très proches de celles attendues en théorie cinématique de la diffraction [90]. Cet aspect « quasi-cinématique » [91] des clichés PED (voir chapitre II) a permis à la technique de trouver un large champ d'applications dans la microélectronique en tant que méthode de caractérisation d'orientations et de phases cristallines [92]. En alignant un axe de symétrie cristallin avec l'axe de révolution du cône de précession, cette méthode permet de caractériser immédiatement une déformation bi-axiale comme cela peut être fait en mode NBED. La première mesure du champ de déformation cristallin en précession a atteint une sensibilité de $1,5 \times 10^{-4}$ pour une résolution spatiale de 2,5 nm et un demi-angle de précession de $0,5^\circ$ [93]. Ce résultat a été obtenu sur un MET de dernière génération (FEI-Titan Ultimate) en utilisant une méthode d'analyse identique à celle préconisée en mode NBED.

Le point fort de la méthode PED est qu'il est possible de l'installer simplement sur pratiquement tous les microscopes électroniques en transmission depuis la commercialisation du module DigiSTAR qui équipe le microscope JEOL qui a été utilisé lors de ce travail. Le principe de fonctionnement de cette méthode de caractérisation est plus amplement détaillé dans le chapitre II.

I.4 Conclusion

a) Mesure des déformations à l'échelle nanométrique

Parmi les techniques décrites dans ce chapitre pour caractériser des déformations, chacune présente des avantages et des inconvénients. Le tableau récapitulatif qui suit (Tableau I.4) illustre le fait que faire le choix d'une technique, par rapport à une autre, est induit par le type d'échantillons dont on souhaite faire l'étude. Dans le cadre strict de l'étude de dispositifs nanométriques 2D tels que les films minces, les techniques de mesure étrangères à la microscopie électronique sont bien adaptées. En revanche pour étudier des objets nanométrique 1D voir 0D le MET devient le plus souvent un instrument incontournable.

Techniques	Résolution spatiale	Sensibilité à la déformation	Épaisseur d'échantillon	Champ de vue
Rayon X (synchrotron)	50 à 10 nm	1.10^{-5}	non décisive	mesure ponctuelle
Raman	>250 nm	5.10^{-4}	non décisive	illimité
t-EBSD	10 nm	2.10^{-4}	de 100 nm à 400 nm	illimité
Imagerie haute résolution	<2 nm	1.10^{-3}	< 200 nm	HRTEM 100x100 nm ² ; HRSTEM >400x400 nm ²
moirés	<6 nm	2.10^{-4}	< 200 nm	HRTEM 100x100 nm ² ; HRSTEM >400x400 nm ²
Holographie électronique	<6 nm	2.10^{-4}	< 50 nm	de 100x100 nm ² à 1x1 μ ²
CBED	<2 nm	2.10^{-4}	> 200 nm	illimité
NBED	3 nm	6.10^{-4}	< 300 nm	illimité
PED	3 nm	2.10^{-4}	< 300 nm	illimité

Tableau I.4 : Techniques de métrologie employées pour caractériser des déformations à une échelle nanométrique.

Il convient de noter que faire usage d'un MET est presque toujours nécessaire pour étudier des déformations dans les dispositifs avancés de la microélectronique.

b) Evaluation de la polycristallinité à l'échelle nanométrique

Parmi les techniques de métrologie présentées ci-avant, quelques-unes sont employées pour effectuer une mesure de la polycristallinité à une échelle nanométrique. Les quatre techniques actuellement utilisées et listées dans le tableau qui suit reposent sur une méthode commune dite de "bibliothèque". Pour appliquer cette méthode, les mesures obtenues sur un échantillon sont comparées une à une à une base de données qui contient des simulations des mesures

envisageables. Cette base de données est remplie par l'utilisateur qui fait l'hypothèse des composés cristallins en présence dans l'échantillon. La constitution de cette bibliothèque est une étape cruciale car l'évaluation de la cristallinité dans une zone est obtenue en ne conservant que la meilleure correspondance mesure / bibliothèque. En théorie, cette méthode permet d'identifier les phases et orientations cristallines qui sont présentes dans un échantillon pour apprécier son caractère poly-cristallin.

Techniques	Résolution spatiale	Informations sur La polycristallinité	Épaisseur d'échantillon	Champ de vue
Rayon X (synchrotron)	50 a 10 nm	Phases Orientations	non décisive	mesures ponctuelles
t-EBSD	10 nm	Phases Orientations	de 100 nm à 400 nm	illimité
CBED	<2 nm	Phases Orientations	> 200 nm	illimité
PED	<5 nm	Phases Orientations	< 300 nm	illimité

Tableau I - 5 : Techniques de métrologie employées pour effectuer une mesure de la polycristallinité à une échelle nanométrique.

Les méthodes d'imagerie électronique HRTEM et HRSTEM peuvent également être utilisées pour distinguer des contrastes d'image qui traduisent la polycristallinité d'un matériau à l'échelle nanométrique. Ces techniques ne sont en revanche utilisées que de façon qualitative, car deux cristaux distincts peuvent apparaître avec les mêmes variations de contraste dans une même image.

Bibliographie

- [1] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, 8 edition (Wiley, Hoboken, NJ, 2004).
- [1] ITRS HOME <http://www.itrs.net/>.
- [3] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics*, 1 edition (Cengage Learning, New York, 1976).
- [4] M. Eberlein, S. Escoubas, M. Gailhanou, O. Thomas, J.-S. Micha, P. Rohr, and R. Coppard, *Physica Status Solidi (a)* **204**, 2542 (2007).
- [5] M. Gailhanou, A. Loubens, J.-S. Micha, B. Charlet, A. A. Minkevich, R. Fortunier, and O. Thomas, *Applied Physics Letters* **90**, 111914 (2007).
- [6] A. A. Minkevich, M. Gailhanou, J.-S. Micha, B. Charlet, V. Chamard, and O. Thomas, *Physical Review B* **76**, 104106 (2007).
- [7] H. H. Solak, Y. Vladimirovsky, F. Cerrina, B. Lai, W. Yun, Z. Cai, P. Ilinski, D. Legnini, and W. Rodrigues, *Journal of Applied Physics* **86**, 884 (1999).
- [8] W. Liu, G. E. Ice, J. Z. Tischler, A. Khounsary, C. Liu, L. Assoufid, and A. T. MacRander, *Review of Scientific Instruments* **76**, 1 (2005).
- [9] A. Cedola, S. Lagomarsino, F. Scarinci, M. Servidori, and V. Stanic, *Journal of Applied Physics* **95**, 1662 (2004).

- [10] I. Robinson and R. Harder, *Nature Materials* **8**, 291 (2009).
- [11] J. Matsui, Y. Tsusaka, K. Yokoyama, S. Takeda, M. Urakawa, Y. Kagoshima, and S. Kimura, *Journal of Crystal Growth* **237-239**, 317 (2002).
- [12] A. R. Gerson, *Current Applied Physics* **8**, 463 (2008).
- [13] B. C. Larson, W. Yang, G. E. Ice, J. D. Budai, and J. Z. Tischler, *Nature* **415**, 887 (2002).
- [14] Q. Shen and S. Kycia, *Phys. Rev. B* **55**, 15791 (1997).
- [15] C. V. Raman and K. S. Krishnan, *Nature* **121**, 501 (1928).
- [16] X. Wu, J. Yu, T. Ren, and L. Liu, *Microelectronics Journal* **38**, 87 (2007).
- [17] D. Rouchon, *Mesures de Déformations Sur Dispositifs À Contraintes Intentionnelles Par Spectroscopie Raman* (Grenoble, INPG, 2009).
- [18] V. S. I De Wolf, *Microelectronic Engineering* **70**, 425 (2003).
- [19] J. C. Tsang, P. M. Mooney, F. Dacol, and J. O. Chu, *Journal of Applied Physics* **75**, 8098 (1994).
- [20] P. Hashemi, L. Gomez, J. L. Hoyt, M. D. Robertson, and M. Canonico, *Applied Physics Letters* **91**, (2007).
- [21] S. Nakashima, T. Yamamoto, A. Ogura, K. Uejima, and T. Yamamoto, *Applied Physics Letters* **84**, 2533 (2004).
- [22] X. H. Zheng, H. Chen, Y. K. Li, Q. Huang, and J. M. Zhou, *Journal of Crystal Growth* **264**, 104 (2004).
- [23] D. Rouchon, M. Mermoux, F. Bertin, and J. M. Hartmann, *Journal of Crystal Growth* **392**, 66 (2014).
- [24] C. D. Poweleit, A. Gunther, S. Goodnick, and J. Menéndez, *Applied Physics Letters* **73**, 2275 (1998).
- [25] E. Romain-Latu, *Mesures de Contraintes Par Spectroscopie et Imagerie Raman Dans Des Dispositifs Micro-Électroniques*, Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2006.
- [26] K. F. Dombrowski, B. Dietrich, I. De Wolf, R. Rooyackers, and G. Badenes, *Microelectronics and Reliability* **41**, 511 (2001).
- [27] M. Born, E. Wolf, and A. B. Bhatia, in *Principles of Optics: Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light* (Cambridge University Press, 1999), pp. 375–397.
- [28] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Mechanics, Third Edition: Volume 1*, 3rd ed. (Butterworth-Heinemann, 1976).
- [29] R. Bierwolf, M. Hohenstein, F. Phillipp, O. Brandt, G. E. Crook, and K. Ploog, *Ultramicroscopy* **49**, 273 (1993).
- [30] P. Bayle, T. Deutsch, B. Gilles, F. Lançon, A. Marty, and J. Thibault, *Ultramicroscopy* **56**, 94 (1994).
- [31] P. H. Jouneau, A. Tardot, G. Feuillet, H. Mariette, and J. Cibert, *Journal of Applied Physics* **75**, 7310 (1994).
- [32] P. L. Galindo, S. Kret, A. M. Sanchez, J.-Y. Laval, A. Yáñez, J. Pizarro, E. Guerrero, T. Ben, and S. I. Molina, *Ultramicroscopy* **107**, 1186 (2007).
- [33] M. J. Hÿtch, E. Snoeck, and R. Kilaas, *Ultramicroscopy* **74**, 131 (1998).
- [34] J. L. Rouvière and E. Sarigiannidou, *Ultramicroscopy* **106**, 1 (2005).
- [35] J.-L. Rouvière, in *Microscopy of Semiconducting Materials 2007*, edited by A. G. Cullis and P. A. Midgley (Springer Netherlands, 2008), pp. 199–202.
- [36] F. Hüe, *Mesure de Déformation Dans Les Dispositifs de La Microélectronique Par Microscopie Électronique En Transmission En Haute Résolution et Holographie En Champ Sombre*, Université de Toulouse III - Paul Sabatier, 2008.
- [37] A. Rosenauer, S. Kaiser, T. Reisinger, J. Zweck, W. Gebhardt, and D. Gerthsen, *Optik* **102**, 63 (n.d.).

- [38] N. Wiener, *Extrapolation, Interpolation, and Smoothing of Stationary Time Series: With Engineering Applications* (The MIT Press, Cambridge, Mass., 1964).
- [39] M. J. Hytch, F. Houdellier, F. Huee, and E. Snoeck, *Ultramicroscopy* **111**, 1328 (2011).
- [40] D. B. Williams and C. B. Carter, *Transmission Electron Microscopy* 389 (2009).
- [41] Y. Androussi, T. Benabbas, and A. Lefebvre, *Ultramicroscopy* **93**, 161 (2002).
- [42] A. Béché, *Mesure de Déformation À L'échelle Nanométrique Par Microscopie Électronique En Transmission*, Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2009.
- [43] D. Gabor, . « A New Microscopic Principle ». *Nature* 161, n° 4098 (15 mai 1948): 777-78.
- [44] T. Latychevskaia, P. Formanek, C. T. Koch, and A. Lubk, *Ultramicroscopy* **110**, 472 (2010).
- [45] G. Möllenstedt and H. Düker, *Z. Physik* **145**, 377 (1956).
- [46] M. Hytch, F. Houdellier, F. Hue, and E. Snoeck, *Nature* **453**, 1086 (2008).
- [47] W. Coene, G. Janssen, M. Op de Beeck, and D. Van Dyck, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3743 (1992).
- [48] L. J. Allen, W. McBride, N. L. O'Leary, and M. P. Oxley, *Ultramicroscopy* **100**, 91 (2004).
- [49] L.-Y. Chang and A. I. Kirkland, *Microsc. Microanal.* **12**, 469 (2006).
- [50] C. T. Koch, V. B. Oezdoel, and P. A. van Aken, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 091901 (2010).
- [51] D. Cooper, T. Denneulin, J.-P. Barnes, J.-M. Hartmann, L. Hutin, C. L. Royer, A. Béché, and J.-L. Rouvière, *Journal of Applied Physics* **112**, 124505 (2012).
- [52] A. Béché, J. L. Rouvière, J. P. Barnes, and D. Cooper, *Ultramicroscopy* **131C**, 10 (2013).
- [53] K. Song, G.-Y. Shin, K. Jong Kyu, and O. Sang Ho, *Ultramicroscopy (Netherlands)* **127**, 119 (2013).
- [54] A. Beche, J. L. Rouviere, J. P. Barnes, and D. Cooper, *Ultramicroscopy* **131**, 10 (2013).
- [55] F. J. Humphreys, *Journal of Materials Science* **36**, 3833 (2001).
- [56] K. Z. Troost, P. van der Sluis, and D. J. Gravesteijn, *Applied Physics Letters* **62**, 1110 (1993).
- [57] D. B. Williams and C. B. Carter, *Transmission Electron Microscopy* 311 (2009).
- [58] A. J. Wilkinson, G. Meaden, and D. J. Dingley, *Superlattices and Microstructures* **45**, 285 (2009).
- [59] S. Zaeferrer, *Ultramicroscopy* **107**, 254 (2007).
- [60] C. J. Harland, P. Akhter, and J. A. Venables, *J. Phys. E: Sci. Instrum.* **14**, 175 (1981).
- [61] A. Bhattacharyya and J. A. Eades, *Scanning* **31**, 114 (2009).
- [62] R. R. Keller and R. H. Geiss, *J. Microsc.* **245**, 245 (2012).
- [63] P. W. Trimby, *Ultramicroscopy* **120**, 16 (2012).
- [64] W. Kossel and G. Möllenstedt, *Annalen Der Physik* **428**, 113 (1939).
- [65] A. Howie and M. J. Whelan, *Proc. R. Soc. Lond. A* **263**, 217 (1961).
- [66] A. Chuvilin and U. Kaiser, *Ultramicroscopy* **104**, 73 (2005).
- [67] Y. Martin, *Development of Electron Microscopy Diffraction Techniques for the Study of Two and Three Dimension Materials*, 2014.
- [68] A. Armigliato, R. Balboni, S. Frabboni, A. Benedetti, A. G. Cullis, G. P. Carnevale, P. Colpani, and G. Pavia, *Mater. Sci. Semicond. Process* **4**, 97 (2001).
- [69] A. Morawiec, *Ultramicroscopy* **107**, 390 (2007).
- [70] F. Vigue, P. Vennegues, S. Vezian, M. Laugt, and J.-P. Faurie, *Applied Physics Letters* **79**, 194 (2001).
- [71] A. Toda, N. Ikarashi, and H. Ono, *Journal of Crystal Growth* **210**, 341 (2000).
- [72] A. Armigliato, R. Balboni, G. P. Carnevale, G. Pavia, D. Piccolo, S. Frabboni, A. Benedetti, and A. G. Cullis, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 2172 (2003).
- [73] A. Benedetti, A. G. Cullis, A. Armigliato, R. Balboni, S. Frabboni, G. F. Mastracchio,

- and G. Pavia, *Applied Surface Science* **188**, 214 (2002).
- [74] P. V. C. Hough, US3069654 A (18 December 1962).
- [75] V. Senez, A. Armigliato, I. D. Wolf, G. Carnevale, R. Balboni, S. Frabboni, and A. Benedetti, *Journal of Applied Physics* **94**, 5574 (2003).
- [76] L. Clément, R. Pantel, L. F. T. Kwakman, and J. L. Rouvière, *Applied Physics Letters* **85**, 651 (2004).
- [77] F. Houdellier, C. Roucau, L. Clement, J. L. Rouviere, and M. J. Casanove, *Ultramicroscopy* **106**, 951 (2006).
- [78] A. Benedetti, H. Bender, A. Lauwers, C. Torregiani, and K. Maex, *J. Microsc.-Oxf.* **223**, 249 (2006).
- [79] K. Usuda, T. Mizuno, T. Tezuka, N. Sugiyama, Y. Moriyama, S. Nakaharai, and S. Takagi, *Appl. Surf. Sci.* **224**, 113 (2004).
- [80] F. Uesugi, A. Hokazono, and S. Takeno, *Ultramicroscopy* **111**, 995 (2011).
- [81] P. Favia, M. B. Gonzales, E. Simoen, P. Verheyen, D. Klenov, and H. Bender, *J. Electrochem. Soc.* **158**, H438 (2011).
- [82] K. Usuda, T. Numata, T. Irisawa, N. Hirashita, and S. Takagi, *Mater. Sci. Eng. B-Solid State Mater. Adv. Technol.* **124**, 143 (2005).
- [83] K. Usuda, T. Numata, and S. Takagi, *Mater. Sci. Semicond. Process* **8**, 155 (2005).
- [84] A. Toda, H. Nakamura, T. Fukail, and N. Ikarashi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **47**, 2496 (2008).
- [85] D. Alloyeau, C. Ricolleau, T. Oikawa, C. Langlois, Y. Le Bouar, and A. Loiseau, *Ultramicroscopy* **108**, 656 (2008).
- [86] Z. Liu, Q. Zhang, and L.-C. Qin, *Phys. Rev. B* **71**, 245413 (2005).
- [87] A. Beche, *Mesure de Déformation À L'échelle Nanométrique Par Microscopie Électronique En Transmission*, 2009.
- [88] A. Béché, L. Clément, and J.-L. Rouvière, *Journal of Physics: Conference Series* **209**, 012063 (2010).
- [89] R. Vincent and P. A. Midgley, *Ultramicroscopy* **53**, 271 (1994).
- [90] A. S. Eggeman, T. A. White, and P. A. Midgley, *Ultramicroscopy* **110**, 771 (2010).
- [91] W. Sinkler and L. D. Marks, *Zeitschrift Fur Kristallographie* **225**, 47 (2010).
- [92] E. F. Rauch, J. Portillo, S. Nicolopoulos, D. Bultreys, S. Rouvimov, and P. Moeck, *Zeitschrift Für Kristallographie* **225**, 103 (2010).
- [93] J.-L. Rouviere, A. Béché, Y. Martin, T. Denneulin, and D. Cooper, *Applied Physics Letters* **103**, 241913 (2013).

CHAPITRE II : NANO DIFFRACTION EN MODE PRECESSION

II.1 PRECESSION ET ESPACE REEL.	34
II.1.1 Présentation des microscopes	34
II.1.2 Canons à électrons	34
II.1.3 Optiques et guidage des faisceaux dans un microscope électronique.	35
II.1.3.1 Les diaphragmes	35
II.1.3.2 Les lentilles	35
II.1.3.3 Aberrations des lentilles.	36
II.1.3.5 Focus de Schertzer et limite de résolution.	39
II.1.3.6 Les correcteurs d'aberrations.	40
II.1.4 Systèmes de mesure et d'acquisition.	41
II.1.5 Systèmes à deux et trois lentilles condenseurs.	41
II.1.6 Conditions d'illumination en précession et taille de sonde	43
II.2 PRECESSION ET ESPACE RECIPROQUE.	45
II.2.1 Rappels de diffraction.	45
II.2.1.1 Interaction électron-matière et facteur de diffusion électronique.	45
II.2.1.2 Diffraction des électrons par un cristal de dimension finie	47
II.2.1 Intégration de l'intensité dans l'espace réciproque en mode précession.	52
II.3 MISE EN ŒUVRE EXPERIMENTALE.	56
II.3.1 Préparation des échantillons.	56
II.3.2 Procédure d'alignement en mode précession.	60
II.4 CONCLUSION	62

II.1 PRECESSION ET ESPACE REEL

II.1.1 Présentation des microscopes

Les observations ont été réalisées sur deux microscopes, à savoir un Titan Ultimate de FEI et un microscope JEOL 2010A. Ces deux microscopes ont été utilisés à une tension d'accélération de 200 KV. Une grande partie des mesures faites en précession a été obtenue sur le microscope JEOL du laboratoire dont les éléments sont illustrés ci contre. Ce microscope est équipé, depuis l'année 2010, d'un module de précession commercialisé par la société Nanomegas.

Ce module offre l'opportunité de mettre en pratique la méthode de mesure par nano diffraction en mode précession (PED) avec une grande souplesse. Sur le MET JEOL comme sur le second MET Titan Ultimate qui a été utilisé dans ce travail, les expériences ont été menées avec un faisceau d'électrons faiblement convergent (<1 mrad).

Le microscope FEI Titan Ultimate a été équipé d'un module de précession plus tardivement que le microscope JEOL (courant 2013). Ce microscope a l'avantage d'être équipé de trois lentilles condenseurs et d'un correcteur d'aberrations de sonde.

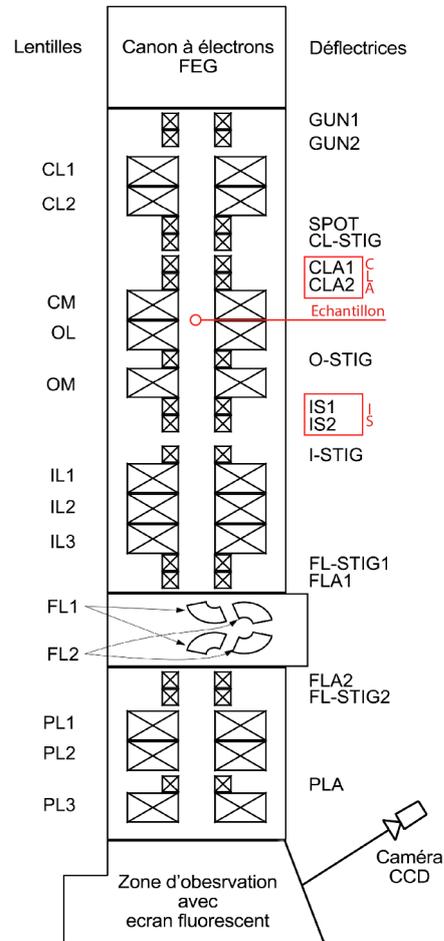


Figure II.1 : Plan du microscope électronique en transmission JEOL 2010A et de la caméra dédiée au mode d'observation en précession qui emploie les déflectrices CLA et IS.

II.1.2 Canons à électrons

Dans le cas des deux microscopes JEOL 2010A et FEI-Titan Ultimate, la source d'électrons utilisée est un canon à émission de champ Schottky (FEG). Les électrons sont arrachés à une pointe (un cristal de tungstène recouvert d'une couche de ZrO qui possède un faible travail de sortie) grâce à une tension d'extraction de l'ordre de 4000 V. Les électrons émis par cette pointe proviennent d'une zone réduite située à son extrémité (à faible rayon de courbure $\approx 0.1-1 \mu\text{m}$).

Les canons à émission de champ produisent un faisceau d'électrons d'une grande brillance avec une excellente cohérence spatiale. Ceci représente un avantage capital lorsqu'on souhaite focaliser le faisceau d'électrons sur une petite zone [1]. Ce type de source est également utile pour observer des franges d'interférences en holographie ce qui est réalisable avec deux des microscopes FEI du CEA de Grenoble, tous deux équipés de bi-prismes.

II.1.3 Optiques et guidage des faisceaux dans un microscope électronique.

II.1.3.1 Les diaphragmes

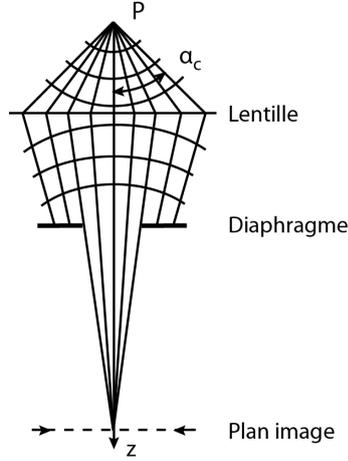


Figure II.1 : Diaphragme en aval d'une lentille qui image un objet ponctuel P

Un microscope électronique, comprend de nombreux diaphragmes à différents niveaux de la colonne. Ces éléments permettent d'obtenir une partie du faisceau d'électrons. L'incidence des diaphragmes sur le fonctionnement du microscope est multiple si bien que leur utilisation diffère d'une expérience à l'autre. En imagerie par exemple, ils permettent de s'affranchir partiellement d'aberrations et/ou de centrer une observation sur l'étude d'une zone d'intérêt précise.

L'usage des diaphragmes est détaillé par la suite pour une observation en mode précession.

II.1.3.2 Les lentilles

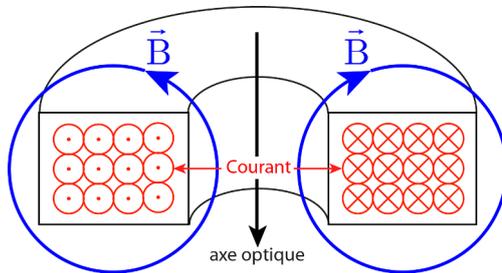


Figure II.2 : Lentille magnétique [1]

Au sein d'un MET, un faisceau d'électrons est généré puis dévié et focalisé à l'aide de lentilles électromagnétiques par le biais de la force de Lorentz. Ces lentilles partagent un axe de symétrie commun. En définitive, la présence de ces éléments de collimation permet de régler le mode d'éclairage de l'échantillon (taille de sonde électronique, convergence du faisceau).

La focalisation du faisceau d'électrons se fait sur l'échantillon avec les lentilles condenseur (CL) et avec la lentille objectif (OL). La lentille objectif permet entre autre de collecter les électrons en aval de l'échantillon. Elle est associée à un couple de lentilles intermédiaires (IL) pour permettre d'imager soit le plan image soit le plan de Fourier du microscope. Le faisceau d'électrons est recueilli puis projeté en aval des lentilles intermédiaires grâce à la lentille de projection (PL). Toutes ces lentilles électromagnétiques contribuent à la mise au point du microscope électronique. Cependant, aucune d'elles n'est dénuée de défauts. Ces défauts, ou aberrations, sont plus ou moins prononcés et limitent le pouvoir de résolution du microscope. Des correcteurs d'aberrations [1 chapitre 2.3 ,2] permettent, dans une certaine mesure, de s'affranchir des ces aberrations et d'accroître la résolution d'un MET.

II.1.3.3 Aberrations des lentilles

Tout comme pour les lentilles utilisées en optique photonique, les aberrations introduites par les lentilles électromagnétiques [1 chapitre 2.3 ,3,4] se distinguent en deux catégories : les aberrations géométriques et les aberrations chromatiques.

Les aberrations chromatiques induisent une variation de la distance focale des lentilles en fonction de la longueur d'onde du faisceau utilisé. On observe ces aberrations lorsque deux électrons d'énergies différentes ne sont pas déviés de la même manière par une lentille. Ce défaut de guidage est d'autant plus pénalisant que le faisceau de particules est polychromatique (dispersion en énergie de la source).

Les aberrations géométriques traduisent différents phénomènes :

- la défocalisation
- l'aberration de sphéricité
- l'astigmatisme
- l'aberration de coma
- les distorsions (ou aberration de champ)

Ces aberrations affectent la résolution du microscope en introduisant un retard de phase dans l'onde transmise par les lentilles.

a) Aberration Chromatique

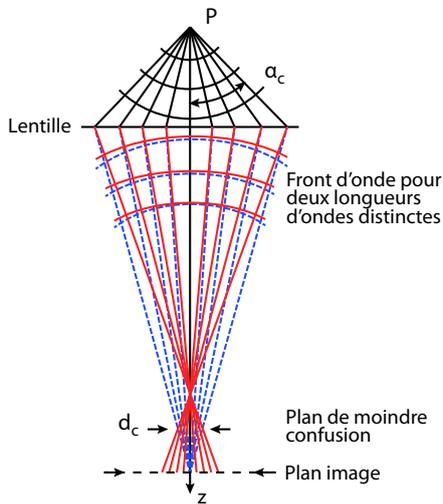


Figure II.3 : Aberrations chromatiques dans une lentille convergente.

Quelque soit son mode de fonctionnement, la source d'électrons utilisée dans un microscope électronique présente un élargissement spectral en énergie ΔE . Aussi, quand bien même un système optique disposera d'une source capable de produire un faisceau d'électrons monocinétique d'énergie E , ce système souffrira des effets des aberrations chromatiques du fait des interactions inélastiques des électrons avec la matière.

Les aberrations chromatiques provoquent un étalement des images produites par un système optique et limitent le pouvoir de résolution d'un instrument. Suivant l'élargissement spectral en énergie ΔE du faisceau et en fonction de la valeur de la constante C_c qui traduit l'ampleur de ce phénomène, l'image d'un objet ponctuel est rapportée à un disque diffus (disque de confusion) de diamètre :

$$d_c = C_c \alpha_c (\Delta E/E). \quad (\text{II.1.1})$$

Les effets des aberrations chromatiques peuvent être diminués en ne sélectionnant qu'une gamme réduite d'énergie ([0,10] eV) du faisceau, en aval de la zone d'observation, avec un filtre en énergie.

b) Aberration sphérique

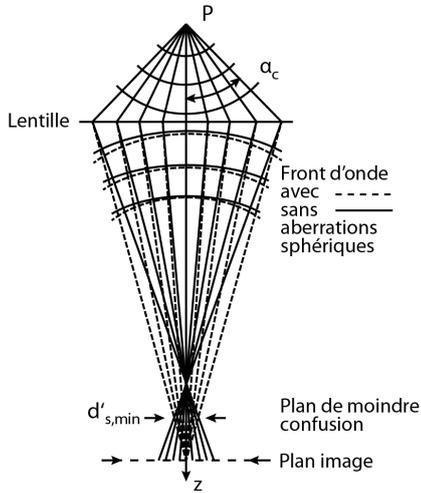


Figure II.4 : Aberration sphérique dans une lentille convergente. A un objet ponctuel correspond un point image différent suivant si les rayons qui produisent cette image sont marginaux ou paraxiaux.

L'aberration sphérique est une aberration d'ouverture qui peut être expliquée par le fait qu'une lentille électromagnétique génère un champ magnétique plus intense en ses bords qu'en son centre. En conséquence, la déviation du faisceau est plus importante pour les rayons marginaux que pour les rayons paraxiaux. Les rayons marginaux suivent un chemin optique différent des rayons paraxiaux et chacun converge vers deux foyers distincts.

Cette aberration provoque l'élargissement d'un point P image à un disque dont la taille minimale dans un plan de moindre confusion distinct du plan image. L'ampleur de ce phénomène d'élargissement, est exprimée via le coefficient C_s ¹ la constante d'aberration sphérique (positive dans le cas des lentilles EM) et avec α_c le demi-angle de convergence du faisceau. Le diamètre du disque de moindre confusion obtenu pour un coefficient C_s donnée, est exprimé comme suit :

$$d'_{s,min} = 0,5C_s\alpha_c^3. \tag{II.1.2}$$

Les effets des aberrations sphériques peuvent être compensés dans les microscopes électroniques modernes en faisant usage d'un correcteur d'aberrations.

c) Astigmatisme

Les pièces d'une lentille EM se doivent d'être alignées de la façon la plus stricte qui soit pour franchir toutes les observations d'un phénomène indésirable qui est l'astigmatisme. Afin d'obtenir par exemple une résolution de 5 Angströms, il est nécessaire de produire une lentille dont les pièces sont alignées au vingtième de micron, abstraction faite de tout effet d'hétérogénéité dans leur élaboration.

L'astigmatisme est un phénomène dû, dans le cas de l'optique photonique, à une asymétrie des lentilles. Elle se manifeste dans ce cas comme dans le cas de l'optique électronique, par une incapacité d'un système optique à produire une image ponctuelle à partir d'un point objet situé hors de l'axe optique.

¹ Valeurs du coefficient d'aberration sphérique : sur le MET JEOL 2010 A $C_s = 0.5 \text{ mm}$ et sur le MET FEI Titan Ultimate la valeur de C_s avoisine les 10 μm .

Pour une lentille astigmatique qui image un objet ponctuel P situé hors de l'axe optique, deux plans peuvent être définis. Le plan tangentiel est le plan colinéaire à l'axe optique qui contient l'objet P. Le plan sagittal est orthogonal au plan tangentiel. Les rayons issus de l'objet P qui passent par le plan sagittal convergent vers un foyer P''. Les rayons contenus dans le plan tangentiel convergent vers un foyer P'. L'image de l'objet P est une ligne contenue dans le plan tangentiel au niveau du foyer sagittal et une ligne contenue dans le plan sagittal au foyer tangentiel (voir Figure II.6). A mi-distance entre ces deux foyers se trouve une position de moindre confusion où l'objet ponctuel P est observé sous la forme d'une image circulaire diffuse. Ailleurs que dans ce plan de moindre confusion, l'image du point arbore la forme d'une ellipse.

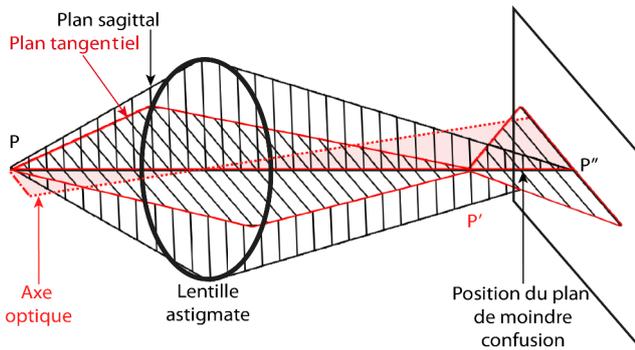


Figure II.2 : Astigmatisme. L'image d'un point est une ellipse étendue suivant un axe dans le plan image. Le foyer dans le plan tangentiel P' est distinct du foyer dans le plan sagittal P''. A mi distance entre ces deux foyers se situe le plan de moindre confusion où l'objet ponctuel P est observé sous la forme d'une image circulaire.

L'utilisation de quadripôles (lentilles EM de symétrie 4) permet d'ajuster la trajectoire des faisceaux dans le plan sagittal et dans le plan tangentiel. Leur utilisation permet d'éliminer l'astigmatisme de premier ordre (A1).

d) Aberration de coma

L'aberration de coma provoque, tout comme l'astigmatisme, l'étalement d'une source ponctuelle. Dans une lentille sujette à cet effet, le point de focalisation d'un faisceau est changeant. Il varie lorsque la trajectoire d'un faisceau l'amène à passer plus ou moins proche du centre de la lentille et également suivant son angle d'incidence avec cette dernière (voir figure II.3). L'aberration de coma n'engendre aucun défocus ci-bien que le plan image reste inchangé. Avec cette aberration, un point objet est imagé sous la forme d'une "comète".

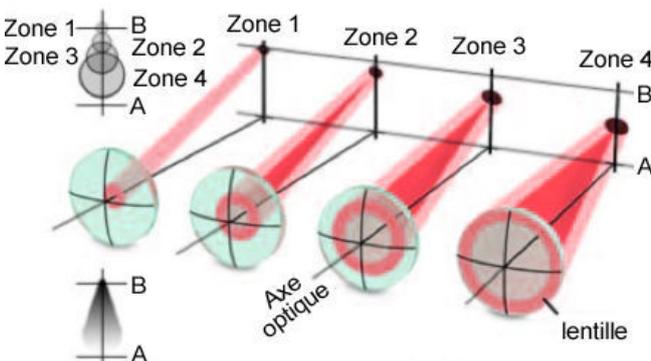


Figure II.3 : Aberration de coma. Les rayons provenant d'un objet hors axe optique, traversent la lentille en quatre zones disjointes qui s'écartent progressivement du centre optique. La somme des images, produites par chaque zone, construit une forme de « comète » de longueur AB dans le plan image de la lentille.

Le coma est une aberration difficile à discerner de l'astigmatisme. Elle peut être évaluée et corrigée au moyen de correcteurs d'aberrations de sonde.

e) Les distorsions

Les distorsions peuvent provenir des éléments qui grossissent et acquièrent l'image : les lentilles de projection [8], l'écran fluorescent et les caméras. Ces aberrations peuvent être isotropes ou anisotropes et affectent l'image d'un MET dans son ensemble [7]. Dans le cas d'une distorsion isotrope le déplacement radial d'un point de l'image repérée en coordonnées cylindriques par (r, φ) est exprimé comme $\Delta r = C_d r^3$. Suivant le signe du coefficient de distorsion isotrope C_d , une même image paraîtra bombée ($C_d < 0$) ou alors creusée ($C_d > 0$). Ces deux effets sont appelés respectivement distorsion isotrope en barillet et distorsion isotrope en coussinet :

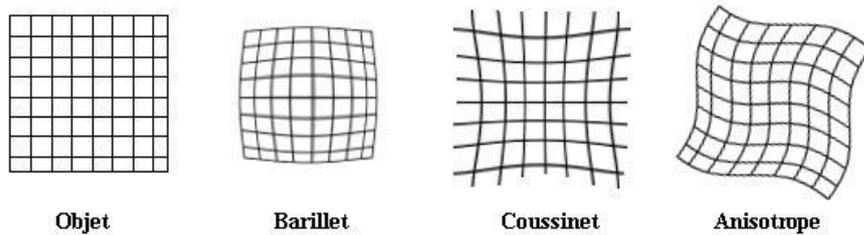


Figure II.4 : Distorsions d'un objet par des lentilles et/ou par des systèmes d'acquisition.

Il existe également pour les lentilles électromagnétiques des distorsions anisotropes. La Figure II.8 montre que pour ce type de distorsions il apparaît une déformation en rotation. Dans ce cas $\Delta\varphi = C_d r^2$ permet d'apprécier le déplacement angulaire d'un point de l'image repéré en coordonnées cylindriques par (r, φ) en fonction de C_d le coefficient de distorsion anisotrope.

II.1.3.5 Focus de Scherzer et limite de résolution

Les différentes aberrations géométriques qui affectent la lentille objectif d'un microscope induisent un déphasage de l'onde qu'elle transmet. L'expression de ce déphasage noté χ est exprimée en fonction de Φ ², la "fréquence spatiale" du signal Φ est transmise par la lentille objectif dans le plan image. Il est notamment utilisé pour connaître le pouvoir de résolution d'un microscope et pour effectuer l'alignement de cet appareil. Le déphasage de la lentille objectif peut être exprimé en fonction de deux paramètres expérimentaux :

- la position hors focus de l'objet, dit "défocus" : Δf
- l'aberration sphérique (de coefficient C_s).

² $k_t \lambda = \alpha$ avec α l'angle formé entre un rayon qui émerge de la lentille objectif et l'axe optique.

Dans ce cas $\chi(k_t)$ est invariant par rotation autour de l'axe de symétrie de la lentille objectif. Il est donc exprimé en fonction du module $|k_t| = k_t$ et s'exprime comme suit [1 Chapitre 3.3]:

$$\chi(k_t) = \pi \Delta f \lambda k_t^2 + \frac{\pi}{2} C_s \lambda^3 k_t^4 . \quad (\text{II.1.3})$$

L'intensité transmise par la lentille objectif dans son plan image, s'exprime en fonction de la transformée de Fourier du signal $\Phi(k)$ qui peut être observé avec une lentille parfaite dans ce même plan. L'amplitude du signal idéal $\Phi(k)$ est pondérée par un phaseur pur $T_0(k_t)$. Ce dernier est appelé fonction de transfert de la lentille objectif et fait intervenir le terme de déphasage $\chi(k_t)$ (II.1.3) comme suit :

$$I(k_t) = |\Phi(k_t) T_0(k_t)|^2 \propto |\Phi(k_t) \sin(\chi(k_t))|^2 . \quad (\text{II.1.4})$$

La fonction de transfert de la lentille objectif présente une bande passante optimale (large et proche de -1 ainsi que monotone) pour un défocus dit de Scherzer : $\Delta f_s = -1.2\sqrt{C_s \lambda}$. Au focus de Scherzer, toutes les fréquences spatiales $|k_t| < k_s = 0.6\lambda^{3/4} C_s^{1/4}$ du signal transmis par la lentille objectif du microscope sont observées dans son plan image (voir figure II.5). Le concept de focus de Scherzer est utilisé pendant l'alignement des éléments du MET en mode précession (voir paragraphe II.3.2).

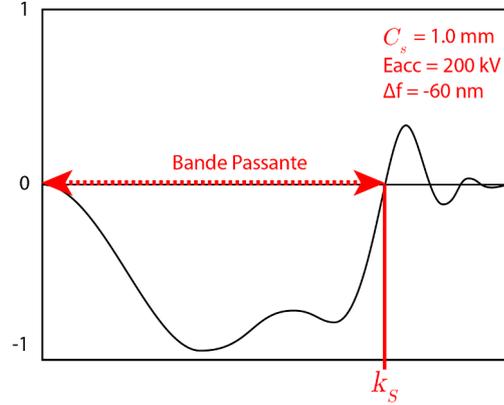


Figure II.5 : Forme de $\sin(\chi(k_t))$ pour une configuration donnée.

II.1.3.6 Les correcteurs d'aberrations

Des systèmes d'alimentation stabilisés et des lentilles réglées en température et finement usinées sont produites aujourd'hui pour minimiser les aberrations. Aussi, des modules complexes composés par plusieurs lentilles équipent aujourd'hui les microscopes électroniques. Leur rôle est de compenser les aberrations des lentilles.

Historiquement, le correcteur d'aberrations était une idée de Scherzer qui déjà en 1947 espérait introduire un C_s négatif pour contrebalancer le C_s positif des lentilles rondes [1 chapitre 2.4,2]. L'architecture des correcteurs d'aberrations a évolué depuis les années 80 grâce aux contributions de Crew, Beck et Rose. Les correcteurs d'aberrations sont aujourd'hui constitués d'une séquence de lentilles de symétries variables, d'ordres 2, 4, 6, 8 ou plus.

A ce jour, les correcteurs d'aberrations peuvent intervenir de deux manières différentes au sein d'un MET. Soit un correcteur se trouve en amont de l'objet dans la colonne du microscope soit il peut se trouver en aval. Dans le premier cas, ce correcteur dit « de sonde » se montre utile

pour l'application de techniques où l'échantillon est irradié très localement par le faisceau d'électrons. C'est le cas de la technique de caractérisation dont ce travail fait l'objet. Dans le second cas le correcteur dit « d'image » permet à l'utilisateur de maximiser la richesse spectrale des images MET (voir paragraphe II.1.3.5 ci avant).

II.1.4 Systèmes de mesure et d'acquisition

Une dernière catégorie de dispositifs vient équiper un microscope électronique en transmission et permet d'observer le résultat des interactions subies par le faisceau d'électrons. Le plus courant de ces dispositifs est l'écran fluorescent. Il se compose d'un plan recouvert d'une poudre de ZnS ou Zn/CsS qui émet localement, par fluorescence, un rayonnement lumineux là où il est excité par le passage d'un électron qui dépose de l'énergie. L'intensité lumineuse observée sur ces écrans est proportionnelle au courant d'électrons et, dans une moindre mesure, à l'énergie de ces électrons [1 chapitre 4.7.1]. Le principal inconvénient de cet élément de mesure est qu'il possède une rémanence propre qui peut être pénalisante lors d'acquisitions rapides. La décroissance de l'intensité s'opère ici en deux phases : une première décroissance avec un temps caractéristique court de 10^{-5} à 10^{-3} seconde suivie d'une deuxième décroissance de l'ordre de quelques secondes.

D'autres dispositifs d'imagerie (caméras à capteurs CMOS ou CCD, détecteurs annulaires de type HAADF) existent aussi sur les microscopes les plus polyvalents. A l'exception de certaines caméras, qui observent l'écran fluorescent du microscope, ces instruments interceptent directement le faisceau d'électrons. Selon la condition expérimentale choisie, ces systèmes de mesure peuvent être employés conjointement pour se compléter.

II.1.5 Systèmes à deux et trois lentilles condenseurs

Le mode d'illumination en mode précession repose sur le même mode d'illumination que pour la méthode NBED. Le principe de base est ici de produire un faisceau d'électrons le plus faiblement étendu possible avec un faible demi angle de convergence. Ce faisceau est généré principalement par les lentilles condenseurs avant que la lentille objectif n'intervienne pour focaliser le flux d'électrons sur l'échantillon. Il existe aujourd'hui des systèmes à deux et trois lentilles condenseurs.

Système à deux condenseurs : Le plus grand nombre des microscopes électroniques en transmission est équipé de deux lentilles condenseurs. La première de ces deux lentilles condenseurs (C1) permet d'ajuster la densité de courant du faisceau d'électrons et la taille minimale de sonde. La gamme d'ajustement de cette première lentille est le plus souvent réduite et imposée par le constructeur. La seconde lentille condenseur (C2 dans le MET JEOL 2010A) permet de condenser le faisceau dans le plan de l'échantillon. Cette lentille est immédiatement suivie d'un diaphragme appelé diaphragme condenseur qui permet de choisir la taille du faisceau qui entre dans la lentille objectif. Ce diaphragme peut avoir plusieurs tailles et permet notamment de minimiser l'incidence

des aberrations sur la formation de la sonde électronique.

Dans un système à deux condenseurs, il n'existe qu'une situation qui permette à la seconde lentille condenseur de conjuguer, avec la lentille objectif, l'image de la lentille C1 avec le plan échantillon pour créer une sonde de taille réduite. Un moyen permet d'acquérir plus de souplesse pour remplir cette condition avec une plus large gamme de modes d'illumination. Malheureusement cette solution implique de changer le courant d'excitation de la lentille objectif pour modifier sa distance focale. Cet ajustement n'est envisageable que dans une gamme très réduite et a pour défaut d'exacerber les aberrations de la lentille objectif c'est pourquoi il est peu recommandé. Le moyen le plus indiqué pour obtenir un faisceau faiblement convergent avec une sonde de taille réduite est, dans ce cas, de limiter la taille du faisceau d'électrons en utilisant un diaphragme condenseur de faible dimension (10 μm). Le principal inconvénient de cette méthode est qu'elle implique de faire fortement décroître le courant du faisceau focalisé en même temps que l'on réduit la taille de sonde si bien qu'il peut devenir difficile, voir impossible, d'obtenir un signal suffisamment intense pour être enregistré en aval de la colonne du MET.

Systèmes à trois condenseurs : De plus en plus fréquemment, les microscopes électroniques en transmission récents, tels que les microscopes FEI TITAN, disposent de trois lentilles condenseur C1,C2 et C3. L'existence de ces trois lentilles donne accès à une grande plage de configurations pour lesquelles l'image de la première lentille condenseur C1 est conjuguée avec le plan échantillon à travers la lentille objectif. Cela permet de maintenir la lentille objectif dans une condition d'excitation optimale tout en ajustant la taille et la convergence du faisceau sonde. Ce réglage peut être réalisé sans faire de concessions sur l'intensité du signal recueilli en aval de la colonne du MET.

Le MET JEOL 2010A, qui a été privilégié pour élaborer une méthode de mesure de déformation en précession, est un microscope à deux lentilles condenseurs équipé d'un filtre en énergie. Ce MET dit "classique" ou "d'ancienne génération" a été le premier instrument équipé avec un module de précession au CEA de Grenoble. Il appartient à une génération d'équipements encore très répandue et est souvent supplanté en termes de performances et de polyvalence par ses homologues au laboratoire. L'utilisation de ce matériel a permis de conduire ce travail de recherche avec une grande souplesse logistique et une grande liberté d'investigation tout en offrant la perspective d'étendre la portée du travail réalisé à une plus vaste communauté scientifique.

En 2013, un partenariat industriel avec l'équipementier FEI a permis de mettre à disposition un premier microscope de dernière génération, entièrement corrigé, et équipé de la précession au laboratoire : le FEI Titan Ultimate. Ce microscope a permis, avec la collaboration de N. Bernier et de J.L. Rouvière, de transposer la méthodologie de mesure des déformations, élaborée sur le microscope JEOL 2010A, sur un microscope de dernière génération. Par là même, ce travail a donné l'opportunité d'illustrer les performances de cette méthode dans le cadre de l'étude de deux dispositifs dédiés à la microélectronique avancée. Ces dispositifs nécessitent de réaliser des mesures avec une importante sensibilité à la déformation et une forte résolution spatiale.

II.1.6 Conditions d'illumination en précession et taille de sonde

La diffraction électronique en précession (ou PED) est une méthode qui a été développée en 1994 par Vincent et Midgley [5]. Elle découle de travaux dédiés notamment aux méthodes de diffraction en faisceau fortement convergent et d'imagerie électronique par balayage STEM [6–9]. Le principe de fonctionnement de cette méthode est analogue au mode de diffraction des rayons X en précession proposé par M.J. Buerger [10].

La méthode de diffraction en précession repose sur un mode d'illumination où l'échantillon est irradié avec un faisceau faiblement convergent d'électrons. Pendant l'acquisition d'un cliché de diffraction, le faisceau d'électrons effectue au moins une révolution avec un angle constant Y° par rapport à l'axe optique du microscope (voir figure II.6). Cet angle, nommé demi-angle de précession, génère un cône de précession dont le centre de symétrie est positionné au centre dans l'épaisseur de l'échantillon.

En aval de l'échantillon, les faisceaux diffractés et inclinés d'un angle $\theta + Y^\circ$ sont déviés à nouveau de sorte que chacun soit observé avec un angle θ . De cette manière, le cliché de diffraction est observé avec un faisceau transmis à nouveau colinéaire à l'axe optique du microscope comme si l'échantillon, et non le faisceau d'électrons, était incliné d'un angle Y° . Suite à ce procédé de "redressement", appelé "désca", les clichés de diffraction produits à différents angles pendant le mouvement de précession partagent donc ce même faisceau transmis et apparaissent sommés.

Au sein du microscope les mouvements du faisceau en précession sont appliqués, en amont et en aval de l'échantillon, par quatre lentilles défectrices. Sur le microscope JEOL 2010A ces lentilles sont CLA1 et CLA2 en amont de l'échantillon et IS1 et IS2 en aval de celui-ci (voir Figure II.1).

Pour permettre au faisceau d'électron d'assurer un mouvement de précession, les lentilles défectrices sont asservies avec des courants sinusoïdaux (voir figure II.7). L'asservissement de ces lentilles est assuré, dans le cas du MET JEOL 2010A, par un module nommé DigiSTAR et commercialisé par la société Nanomegas. Pour procéder aux alignements nécessaires en mode précession, le logiciel ASTAR associé à ce module offre la possibilité de paramétrer les courants d'excitation des quatre défectrices qu'il asservit. Il est possible d'ajuster les amplitudes de chacun des courants sinusoïdaux et de faire le réglage des déphasages relatifs entre chacune des paires de défectrices x, y [11]. Ces réglages sont répartis en plusieurs groupes pour faciliter la tâche de l'expérimentateur. Un premier groupe de réglage est dédié aux défectrices en amont de l'échantillon et un second est associé aux défectrices en aval de l'échantillon.

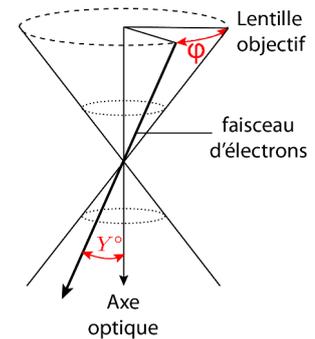


Figure II.6 : Trajectoires du nano faisceau d'électrons en mode précession.

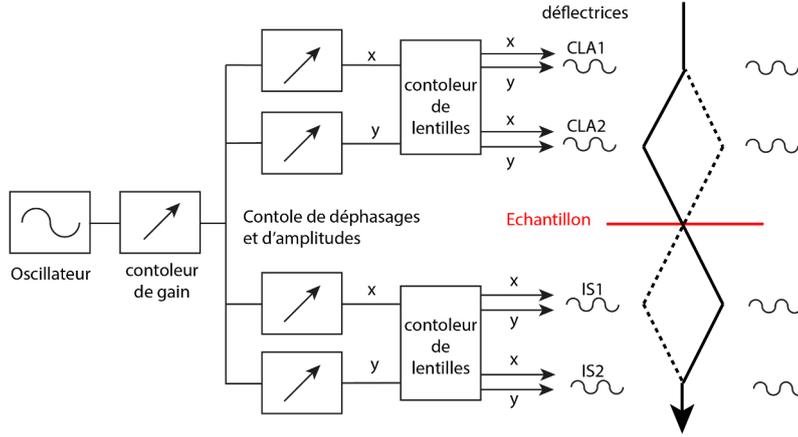


Figure II.7 : Schéma du système de contrôle des déflectrices pour générer une trajectoire du faisceau d'électrons en précession (déflectrices mises en jeu sur le MET JEOL 2010A : CLA1, CLA2, IS1 et IS2).

Le faisceau d'électrons en précession est amené à traverser plusieurs lentilles, et notamment la lentille objectif du MET, avec de forts angles d'incidence et/ou en une position éloignée de l'axe optique. Dans ce cas, les aberrations de lentilles sont fortement prononcées et conditionnent la taille et la forme de la sonde électronique dans l'échantillon.

Le diamètre (orthogonal à l'axe optique) de la sonde focalisée en mode précession est un paramètre très fortement corrélé à la valeur du coefficient d'aberration sphérique C_s de la lentille objectif. L'expression $d_{probe} \propto 4C_s Y^\circ \alpha_c$ [5] donne, pour un microscope non corrigé (C_s de l'ordre du millimètre), une bonne approximation de l'évolution du diamètre de la sonde d_{probe} en fonction de C_s et des demi-angles expérimentaux Y° et α_c . Une expression rigoureuse du retard de phase dû aux aberrations et appropriée au cas de la précession existe. Elle est exprimée au quatrième ordre pour un faisceau incliné d'un angle Y° hors de l'axe optique d'un microscope corrigé et en fonction de l'angle azimutal φ du faisceau [12]:

$$\begin{aligned}
 \chi(Y^\circ, \varphi) = & Y^\circ (C_{01a} \cos(\varphi) + C_{01b} \sin(\varphi)) + \frac{Y^{\circ 2}}{2} (\Delta f + C_{12a} \cos(2\varphi) + C_{12b} \sin(2\varphi)) \\
 & + \frac{Y^{\circ 3}}{3} (C_{23a} \cos(3\varphi) + C_{23b} \sin(3\varphi)) + (C_{21a} \cos(\varphi) + C_{21b} \sin(\varphi)) \\
 & + \frac{Y^{\circ 4}}{4} (C_s + C_{34a} \cos(4\varphi) + C_{34b} \sin(4\varphi)) + (C_{32a} \cos(2\varphi) + C_{32b} \sin(2\varphi)) \\
 & + \frac{Y^{\circ 3}}{3} (C_{45a} \cos(5\varphi) + C_{45b} \sin(5\varphi) + C_{43a} \cos(3\varphi)) \\
 & + C_{43b} \sin(3\varphi) + (C_{41a} \cos(\varphi) + C_{41b} \sin(\varphi)).
 \end{aligned} \tag{II.1.5}$$

On retrouve dans cette expression les aberrations à symétrie cylindrique tel que le défocus Δf et non cylindrique, dénotées par les indices a et b, tel que le décalage de faisceau C_{01x} (ou en anglais beam shift). On remarque également dans cette expression les coefficients C_{12} , C_{23} , C_{21} , C_{32} , C_{34} , C_s qui traduisent respectivement l'incidence des astigmatismes simple et triangulaire, de l'aberration de coma, de l'astigmatisme de deuxième ordre et de l'aberration sphérique [13].

En pratique l'aberration sphérique est toujours l'aberration la plus pénalisante en précession. Viennent ensuite les termes relatifs à l'astigmatisme.

Concrètement, l'aberration sphérique induit un défocus aisément compensé pour un faisceau d'électrons faiblement convergent et pour un angle de précession constant. Pour corriger ce défocus, il est recommandé de déplacer l'échantillon en amont de la colonne du microscope [14] pour faire coïncider le point de symétrie du cône de précession avec le centre dans l'épaisseur de l'échantillon, là où la taille de la sonde électronique est minimale. L'astigmatisme peut ensuite être compensé dans une certaine mesure par l'utilisateur au niveau de la lentille objectif du MET (via la lentille OL-STIG sur le MET JEOL 2010A). A ce stade de l'ajustement de la sonde, l'apport d'un correcteur d'aberrations de sonde devient appréciable [15].

II.2 PRECESSION ET ESPACE RECIPROQUE

II.2.1 Rappels de diffraction

II.2.1.1 Interaction électron-matière et facteur de diffusion électronique

Dans un microscope électronique, les électrons relativistes sont accélérés avec une tension de 200 kV pour un courant qui n'excède pas 1×10^{12} électrons par seconde. Un tel courant implique que la distance moyenne qui sépare deux électrons consécutifs est supérieure à 0,2 mm. On peut donc traiter le comportement de ces électrons consécutifs en négligeant toute interaction entre ceux-ci bien que le phénomène de diffusion qui les affecte peut être décrit par un problème à deux corps.

Les électrons sont des fermions chargés de masse m_0 relativement faible (511 keV). En tant que tels ils peuvent être déviés par l'interaction magnétique et coulombienne lorsqu'ils viennent à passer proche du noyau ou du nuage électronique d'un atome cible. Cependant, bien que ces particules disposent d'un spin non nul, plusieurs travaux dont ceux de Fujiwara [16] montrent que la contribution du spin peut être négligée pour décrire la trajectoire d'un électron dans un échantillon en microscopie électronique en transmission.

Le phénomène de diffusion est scindé en deux catégories : La diffusion inélastique qui implique une variation de l'énergie cinétique de la particule diffusée et, la diffusion élastique pour laquelle les propriétés internes des objets mis en jeu sont conservées durant le processus de diffusion. Dans ce dernier cas de figure, l'onde transmise et l'onde diffusée conservent la même longueur d'onde. L'équation de Schrödinger, utilisée pour décrire un électron de charge $-e$ diffusé avec un vecteur d'onde $\vec{k} = 1/\lambda$ (ou λ est la longueur d'onde corrigée des effets relativistes), en interaction avec le potentiel électrostatique V d'un atome diffuseur, s'écrit comme suit:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla^2 - eV \right] \psi = \frac{\hbar^2 k_0^2}{2m_e} \psi, \quad (\text{II.2.1})$$

(avec $m_e = \gamma m_0$ ³ la masse de l'électron corrigée des effets relativistes). Cette dernière expression est équivalente à la suivante :

$$[\nabla^2 + 4\pi^2 k_0'^2] \psi(\vec{r}) = -4\pi^2 \frac{2em_e}{h^2} V(\vec{r}) \psi(\vec{r}). \quad (\text{II.2.2})$$

La fonction d'onde, solution de cette équation peut s'écrire comme suit [17]:

$$\psi(\vec{r}) = \psi_0(\vec{r}) + \frac{2\pi em_e}{h^2} \int \frac{\exp(2i\pi(\vec{k}' - \vec{k}_0) \cdot \vec{r})}{|\vec{k}' - \vec{k}_0|} V(\vec{r}') \psi(\vec{r}') d\vec{r}'. \quad (\text{II.2.3})$$

D'une part on peut faire l'approximation que l'observation du phénomène de diffusion se fait loin du centre diffuseur ($\vec{r} \gg \vec{r}'$). En prenant en compte de cette approximation, la solution de l'équation (II.2.1) se présente comme la somme d'une onde transmise plane et d'une onde sphérique diffusée. Ainsi l'équation II.2.3 prend la forme :

$$\psi(\vec{r}) = \psi_0(\vec{r}) + \frac{2\pi em_e}{h^2} \frac{\exp(2i\pi \vec{k}_0' \cdot \vec{r})}{r} \int \exp(2i\pi(\vec{k}' - \vec{k}_0) \cdot \vec{r}') V(\vec{r}') \psi(\vec{r}') d\vec{r}'. \quad (\text{II.2.4})$$

D'autre part, dans le cadre de l'approximation de Born, on peut traiter le potentiel $V(\vec{r})$ en tant que perturbation⁴. De cette manière, l'onde diffusée peut être exprimée en fonction de l'onde incidente : $\psi(\vec{r}) \approx \psi_0(\vec{r}) = \exp(2i\pi \vec{k}_0 \cdot \vec{r})$. En prenant en compte cette deuxième approximation, la solution de l'équation (II.2.1) s'exprime en fonction du transfert de moment subi par l'électron lors de la diffusion, aussi nommé vecteur de diffusion, $\vec{k} - \vec{k}_0 = \vec{q}$:

$$\psi(\vec{r}) = \exp(2i\pi \vec{k}_0 \cdot \vec{r}) + \frac{\exp(2i\pi \vec{k}_0' \cdot \vec{r})}{r} \left\{ \frac{2\pi em_e}{h^2} \int \exp(-2i\pi(\vec{k} - \vec{k}_0) \cdot \vec{r}') V(\vec{r}') \psi(\vec{r}') d\vec{r}' \right\}, \quad (\text{II.2.5})$$

$$\text{ou bien : } \psi(\vec{r}) = \exp(2i\pi \vec{k}_0 \cdot \vec{r}) + \frac{\exp(2i\pi \vec{k}_0' \cdot \vec{r})}{r} \underbrace{\left\{ \frac{2\pi m_e e}{h^2} TF[V(\vec{r}')] \right\}}_{f(\vec{q})}, \quad (\text{II.2.6})$$

avec la transformée de Fourier du potentiel électrostatique $V(\vec{r})$ notée $TF[V(\vec{r}')] = f(\vec{q})$.

Cette relation montre qu'un atome isolé a un pouvoir de diffusion électronique élastique $f(\vec{q})$, appelé facteur de diffusion, proportionnel à la transformée de Fourier de son potentiel

³ Facteur de Lorentz $\gamma = [1 - (v/c)^2]^{-1/2}$ (v la vitesse de l'électron [voir tableau I.3]) ; m_0 la masse de l'électron au repos

⁴ L'approximation de Born est valable lorsque $|eV(\vec{r})| \ll \hbar^2 / m_e a^2$ et pour $k_0 a \leq 1$ ou $k_0 a \approx 1$ (avec a l'ordre de grandeur sur lequel le potentiel est non nul) [17 paragraphe 45]. Cette approche est qualitative. Une approche plus exacte a été développée par Moliere en 1947 [18].

électrostatique. Ce facteur est relié à la section efficace différentielle de diffusion de l'atome (probabilité d'observer une diffusion par unité d'angle solide $d\Omega$ (barns/stéradians)) par la formule suivante : $|f(\mathbf{Q})|^2 = d\sigma/d\Omega$. En définitive le facteur de diffusion $f(\mathbf{Q})$ s'écrit comme suit :

$$f(\mathbf{Q}) = \frac{2\pi m_e e}{h^2} TF[V(\mathbf{Q})] \quad (\text{Unité : } \text{\AA}^{-1}) \quad (\text{II.2.7})$$

En pratique, l'évaluation du facteur de diffusion d'un atome est fréquemment faite par le biais de la formulation de Mott [19]. Cette méthode de calcul, basée sur des mesures tabulées des facteurs de diffusion des rayons X [19], est inexacte pour les faibles valeurs de $|\mathbf{Q}|$ [20]. La formule de Mott est cependant utilisée car il est difficile de mesurer précisément le facteur de diffusion élastique pour les électrons. En effet, contrairement aux rayons X, les électrons sont diffusés inélastiquement de manière non négligeable si bien que le facteur de diffusion élastique n'est pas directement mesurable. Plusieurs autres formulations du facteur de diffusion électronique existent. Chacune est valable dans un domaine de diffusion délimité [1 chapitre 5.1]. Doyle et Turner [20] en font une formulation analytique qui repose sur l'utilisation de potentiels atomiques calculés ab-initio via les équations de Hartree-Fock et Dirac-Slater. Cette formulation est valable pour un vecteur de diffusion $|\mathbf{Q}| < 2 \text{\AA}^{-1}$. Weickenmeier et Kohl [21], proposent une expression du facteur de diffusion électronique pour une gamme plus large de vecteurs de diffusion.

D'une manière générale, la probabilité de diffusion élastique des électrons décroît rapidement lorsque la norme du vecteur de diffusion augmente. Usuellement, seuls de petits angles de diffusion sont sollicités en microscopie électronique en transmission si bien que le facteur de diffusion est souvent rapporté à une constante. Les simulations de diffraction qui ont été menées lors de ce travail ont reposé sur l'expression du facteur de diffusion électronique proposée par Doyle et Turner.

II.2.1.2 Diffraction des électrons par un cristal de dimension finie

a) Diffraction en condition cinématique

Un cristal est par définition le résultat de la duplication triplement périodique d'une maille élémentaire. Cette maille contient N atomes et chacun est un diffuseur électronique à part entière. Les positions des atomes dans la maille, de volume V_{maille} , sont définies dans l'espace réel dit direct. Leurs positions $\mathbf{r}_i = A_i \mathbf{a}_i$ sont des combinaisons linéaires de trois vecteurs primitifs \mathbf{a}_i linéairement indépendants qui définissent un cristal. Pour former un cristal parfait et infini, la maille est dupliquée périodiquement sur les position $\mathbf{r}_{uvw} = u.\vec{a}_1 + v.\vec{a}_2 + w.\vec{a}_3$ des nœuds du réseau de Bravais (avec u, v et w des entiers). Le potentiel d'un cristal infini peut être

exprimé avec $\text{III}_{\mathbf{r}^w}$ un peigne de Dirac⁵ qui est non nul à la position de chaque nœud du réseau de Bravais :

$$V(\mathbf{r}) = \text{III}_{\mathbf{r}^w} \otimes \sum_{\text{maille}} V_M(\mathbf{r}). \quad (\text{II.2.8})$$

L'expression de l'amplitude diffractée par ce cristal infini et parfait s'écrit, conformément à l'approximation de Born, comme la transformée de Fourier de son potentiel $V(\mathbf{r})$. Sachant $TF[\text{III}_{\mathbf{r}^w}](\mathbf{g}_{kl}) = V_{\text{maille}}^{-1}(\mathbf{g}_{kl})$ et compte tenu de l'expression $f_M(\mathbf{g}_{kl})$ du facteur de diffusion pour un atome M de la maille (équation II.2.7), l'amplitude diffractée par ce cristal parfait est :

$$A(\mathbf{g}_{kl}) = TF[\text{III}_{\mathbf{r}^w} \otimes \sum_{\text{maille}} \exp(-2i\pi \mathbf{g}_{kl} \cdot \mathbf{r}) \underbrace{\int \frac{2\pi e m_e}{h^2} V_M(\mathbf{r}) \exp(-2i\pi \mathbf{g}_{kl} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r}}_{f_M(\mathbf{g}_{kl})}], \text{ soit : } (\text{II.2.9})$$

$$A(\mathbf{g}_{kl}) = \frac{\text{III}_{\mathbf{g}_{kl}}}{V_{\text{maille}}} \underbrace{\sum_{\text{maille}} f_M(\mathbf{g}_{kl}) \exp(-2i\pi \mathbf{g}_{kl} \cdot \mathbf{r})}_{F(\mathbf{g}_{kl})}. \quad (\text{II.2.10})$$

Cette expression est dépendante du vecteur de diffusion \mathbf{g}_{kl} qui peut être exprimé dans l'espace réciproque du cristal : la transformée de Fourier de l'espace direct. Cet espace est défini par trois nouveaux vecteurs exprimés en fonction des vecteurs de base de l'espace directe comme suit :

$$\mathbf{g}_{kl} = \frac{1}{d_{hkl}} (\mathbf{a}_i + \mathbf{a}_j + \mathbf{a}_k), \quad (\text{II.2.11})$$

avec i, j, k les permutations circulaires et la propriété particulière : $\mathbf{a}_i \cdot \mathbf{a}_j = \delta_{ij}$.

Dans l'espace réciproque, les positions des nœuds du réseau cristallin $\mathbf{g}_{kl} = (\mathbf{a}_i + \mathbf{a}_j + \mathbf{a}_k)$ sont exprimées via les indices entiers de Miller (hkl). La norme de ce vecteur $\bar{\mathbf{g}}_{hkl}$ est égale à l'inverse de la distance inter-réticulaire d_{hkl} : $|\mathbf{g}_{kl}| = 1/d_{hkl}$. Le premier terme de l'expression II.2.10 implique que l'amplitude $A(\mathbf{g}_{kl})$ diffractée par un cristal parfait est non nulle pour un vecteur de diffusion qui lie deux nœuds du réseau réciproque: $\mathbf{g}_{kl} = \mathbf{g}_{kl}$. Cette égalité est nommée condition de Laue. Le membre à la droite de l'expression II.2.10 est nommé facteur de structure. Il est noté $F(\mathbf{g}_{kl})$ et peut être exprimé compte tenu de la condition de Laue dans le cas, par exemple, du silicium (réseau de bravais cubique à faces centrées avec deux atomes de silicium par maille aux positions (000) et $(\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4})$) :

⁵ Peigne de Dirac : $\text{III}_{\mathbf{r}^w} = \sum_{\mathbf{r}^w} \delta(\mathbf{r}^w)$.

$$F(\mathbf{hkl}) = F_{hkl}(\mathbf{hkl}) = f_{Si}(\mathbf{hkl}) \left(1 + \exp\left(-i\frac{\pi}{2}(h+k+l)\right) \right), \text{ soit :} \quad (\text{II.2.12})$$

$$F_{hkl}(\mathbf{hkl}) = \left\{ \begin{array}{ll} 2f_{Si}(\mathbf{hkl}), & (h+k+l) = \text{deux fois un nombre pair} \\ (1 \pm i)f_{Si}(\mathbf{hkl}), & (h+k+l) = \text{un nombre impair} \\ 0, & (h+k+l) = \text{deux fois un nombre impair} \end{array} \right\}.$$

Le cas d'un cristal réel, de dimension finie, doit être traité d'une façon sensiblement différente. En effet celui-ci a une étendue limitée dans l'espace qui peut être décrite par une fonction de forme $S(\mathbf{hkl})$ égale à 1 dans le cristal et 0 partout ailleurs. Le facteur de forme du cristal $S(\mathbf{hkl})$ est la transformée de Fourier de cette fonction de forme. Si l'on admet que le potentiel cristallin reste inchangé lorsque celui-ci est borné, alors la fonction de forme permet de borner le potentiel électrostatique d'un cristal infini pour décrire le cas d'un cristal réel :

$$V(\mathbf{hkl}) = \left\{ \text{III}_{\text{cristal}}(\mathbf{hkl}) \otimes \sum_{\text{maille}} V_M(\mathbf{hkl}) \right\} S(\mathbf{hkl}) \quad (\text{II.2.13})$$

L'amplitude diffractée par un tel cristal est à nouveau décrite comme la transformée de Fourier de son potentiel. Compte tenu de l'expression du facteur de structure $F(\mathbf{hkl})$ celle-ci peut s'écrire :

$$A(\mathbf{hkl}) = \frac{\text{III}_{\text{cristal}}(\mathbf{hkl})}{V_{\text{maille}}} F(\mathbf{hkl}) \otimes S(\mathbf{hkl}) \quad (\text{II.2.14})$$

L'aspect fini du cristal induit donc une expression de l'amplitude diffractée qui est le produit de convolution du facteur de structure $F(\mathbf{hkl})$ et du facteur de forme $S(\mathbf{hkl})$. Ceci se manifeste comme une relaxation de la loi de Bragg et l'amplitude diffractée est non nulle pour tous vecteurs de diffusion $\mathbf{hkl} = \mathbf{hkl} + \mathbf{s}$, avec $\mathbf{s} = \mathbf{s}$ une grandeur vectorielle.

Plusieurs expressions analytiques de facteurs de formes ont été développées dans la littérature [1 chapitre 7.2.2]. L'une de ces expressions permet de rendre compte de l'intensité diffractée par une lame mince d'épaisseur L_1 selon la direction \mathbf{hkl} . L'intensité diffractée pour une position $\vec{\mathbf{g}}_{hkl}$ du réseau réciproque s'écrit [1] (avec $L_2, L_3 \gg L_1$ les deux autres dimensions de la lame MET et $\vec{\mathbf{s}}_1, \vec{\mathbf{s}}_2$ les vecteurs de l'espace réciproque associés à ces deux directions⁶):

$$I(\mathbf{hkl}) = \frac{|F(\mathbf{hkl})|^2}{(rV_{\text{maille}})^2} \frac{\sin^2(\pi L_1 s_1)}{(\pi s_1)^2} L_2 \delta(s_2) L_3 \delta(s_3) \quad (\text{II.2.15})$$

La dépendance en $1/r^2$ permet de prendre en compte le fait que l'onde diffusée est une onde sphérique [22]. L'intensité totale diffractée par un nœud du réseau réciproque d'un cristal

⁶ Nous avons utilisé la relation $(\sin(\pi Ls) / \pi s)^2 \xrightarrow{L \rightarrow \infty} L \delta(s)$

résulte de l'intégration de l'intensité $I(\mathbf{k}_{kl})$ sur la surface S d'une sphère de rayon r . Le calcul de cette intensité est réalisé par l'intermédiaire de l'angle solide noté Ω sachant $d\Omega = ds_1 ds_2 \cos\theta / k_0^2$ [22] (avec l'angle de diffusion $2\theta = \angle(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_{kl})$).

$$\int_{\text{sphère}} I(\mathbf{k}_{kl}) dS = \int_{\Omega} I(\mathbf{k}_{kl}) r^2 d\Omega = \frac{L_2 L_3 |F(\mathbf{k}_{kl})|^2 \sin^2(\pi L_1 s_1)}{k_0^2 \cos^2(\theta) V_{\text{maille}}^2 (\pi s_1)^2} \iint \delta(s_2) \delta(s_3) ds_2 ds_3 . \quad (\text{II.2.16})$$

En reportant cette intensité à l'unité d'aire projetée et en utilisant la longueur d'extinction $\xi_g = \pi k_0 V_{\text{maille}} \cos\theta / |F(\mathbf{k}_{kl})|$ (voir tableau II.1) nous obtenons la relation définitive :

$$\frac{1}{L_2 L_3 \cos\theta} \int_{\text{sphère}} I(\mathbf{k}_{kl}) dS = \frac{\pi^2 \sin^2(\pi L_1 s_1)}{\xi_g^2 (\pi s_1)^2} . \quad (\text{II.2.17})$$

hkl	111	220	400
Si	60,2	75,7	126,8
Ge	43,0	45,2	65,9
Diamant	47,6	66,5	121,5

Tableau II.1 : Exemples de distances d'extinction ξ_g (nm) à 100 kV

En définitive, la diffraction produite par une cristal préparé sous la forme lame mince d'épaisseur finie peut être représentée à l'aide de la construction d'Ewald [23] comme suit :

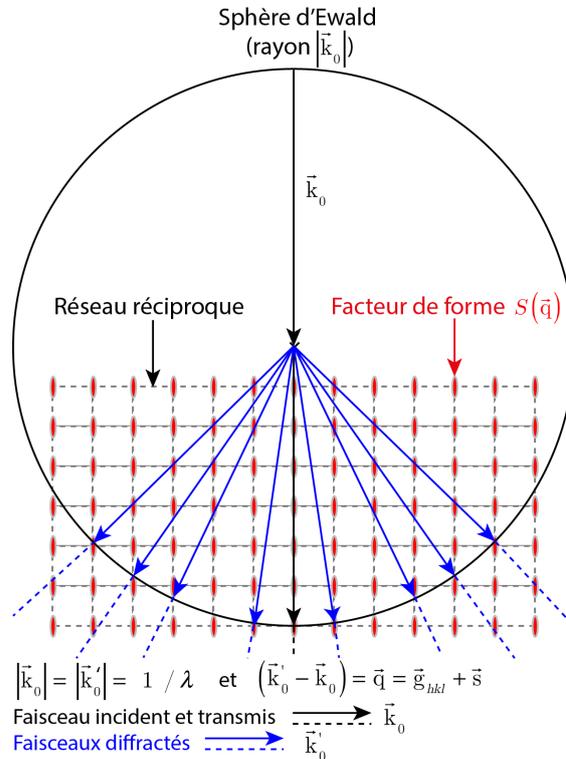


Figure II.8 : Construction géométrique d'Ewald.

Ce cas de figure illustre le cas d'une préparation MET classique et donc amincie dans une direction de l'espace. Il est valable dans toute autre direction de l'espace. En résumé, ceci signifie que l'intensité diffractée en condition stricte de Bragg est étendue à une direction de l'espace de Fourier colinéaire à \vec{s} pour chacun des points du réseau réciproque. Dans un échantillon MET, cette même intensité présente un maximum pour un vecteur de diffusion $\vec{k} = \vec{k}_i + 0\vec{s}$.

b) Diffraction en conditions dynamiques

Expérimentalement, la diffraction des électrons par un cristal, peut générer une intensité non nulle là où la théorie cinématique l'interdit. Ce phénomène est visible, par exemple, avec un cristal de silicium aligné de sorte que l'axe [110] coïncide avec l'axe du faisceau (situation d'axe de zone). Dans cette configuration, la diffraction produit une tache de diffraction d'indices de Miller (002). Cette tache de diffraction est dite interdite car le facteur de structure qui lui est associé est nul. Elle résulte principalement de la double diffraction suivante :

$$\vec{g}(002) = \vec{g}(1-11) + \vec{g}(-111). \quad (\text{II.2.18})$$

L'existence de ce type de tache de diffraction peut être expliquée par une théorie dynamique via une "approche par ondes de Bloch" plus exacte pour calculer l'intensité diffractée. Cette méthode consiste à rechercher, dans le cristal, des solutions à l'équation de Schrödinger (II.2.1) sous la forme d'une somme d'ondes de Bloch [24,25] :

$$\Psi(\vec{r}) = \sum_j \varepsilon_j \sum_g C_g^j \exp(2i\pi(\vec{r} \cdot \vec{g} + \vec{g} \cdot \vec{r})), \quad (\text{II.2.19})$$

où les coefficients ε_j sont calculés pour assurer la continuité de la fonction d'onde à l'interface supérieure du cristal. Le potentiel cristallin peut également être écrit sous la forme d'une série de Fourier :

$$V(\vec{r}) = V_0 + \sum_{g \neq 0} V_g \exp(2i\pi(\vec{r} \cdot \vec{g})). \quad (\text{II.2.20})$$

L'équation de Schrödinger peut être écrite à l'aide des deux expressions qui précèdent, comme :

$$\left[K^2 - (\vec{k}^{(j)})^2 \right] C_g^{(j)} + \sum_{h \neq g} \frac{2m_e}{h^2} V_{g-h} C_h^{(j)} = 0, \quad (\text{II.2.21})$$

avec $K^2 = \frac{2m_e}{h^2}(U + V_0)$ le module carré du vecteur d'onde de l'électron dans le matériau.

L'équation II.2.21 peut se réécrire sous la forme d'une équation aux valeurs propres. Pour ce faire, la conservation de la composante tangentielle du vecteur d'onde à l'interface supérieure du

crystal permet d'écrire le vecteur d'onde $\vec{k}^{(j)}$ des ondes planes en fonction du vecteur d'onde des électrons incidents $\vec{k}^{(i)}$ et de \vec{n} le vecteur unitaire normal à la face d'entrée du cristal:

$$\vec{k}^{(j)} = \vec{k}^{(i)} + \tau \vec{n}. \quad (\text{II.2.22})$$

La solution de l'équation aux valeurs propres obtenue ainsi a été donnée par Bethe en 1982 [24]. Elle permet, d'établir un diagramme de dispersion en énergie qui régit les impulsions des faisceaux en condition de diffraction [1,26], ou de calculer l'amplitude de l'onde diffractée, par exemple, par un cristal de silicium. Cette amplitude peut s'écrire, en situation d'axe de zone (110), comme une solution constituée de deux faisceaux diffractés, l'un \vec{g}_{1-11} et l'autre \vec{g}_{-111} .

L'existence de taches de diffraction interdites n'est pas le seul phénomène qui met en défaut la théorie cinématique de la diffraction. En effet l'intensité diffractée en théorie cinématique excède celle du faisceau incident lorsque l'épaisseur du cristal L_I est supérieure à ξ/π . Ce non sens physique est absent en théorie dynamique. Ceci peut être illustré lorsque, comme dans l'approche de Howie-Whelan, l'équation de Schrödinger (II.2.1) est résolue analytiquement en condition "deux ondes" avec une solution constituée de deux faisceaux : un faisceau transmis $\vec{k}^{(0)}$ et un autre faisceau diffracté $\vec{k}^{(1)}$. Cet exemple permet de calculer l'amplitude diffractée pour des ordres de diffraction autorisés en condition cinématique avec un cristal d'épaisseur quelconque :

$$I(\vec{s}) = \left(\frac{L_z \pi}{\xi} \right)^2 \text{sinc}^2 \left(\pi L \vec{s}_{\text{eff}} \right) \text{ avec } s_{\text{eff}} = \sqrt{s^2 + \xi^{-2}}, \quad (\text{II.2.23})$$

Avec \vec{s}_{eff} une nouvelle grandeur définie à partir de \vec{s} .

La simulation de la diffraction par ondes de Bloch en "deux ondes" permet, dans certaines conditions, de rendre compte de la contribution des phénomènes dynamiques dans la diffraction en mode précession [27]. Les simulations de clichés de diffraction effectuées pour ce travail ont été réalisées avec une approche en ondes de Bloch en utilisant le programme développé par J.Zuo [28,29].

II.2.1 Intégration de l'intensité dans l'espace réciproque en mode précession

Le terme « quasi-cinématique » est utilisé pour qualifier la distribution d'intensité obtenue dans les clichés de diffraction en mode précession. En effet, après compensation du mouvement de précession en aval de l'échantillon, et suite à une révolution complète du faisceau, l'intensité diffractée en mode PED $I_{PED}(\vec{s})$ peut être exprimée proportionnellement à l'intensité attendue en condition cinématique $I_{cin}(\vec{s})$. Plusieurs expressions analytiques permettent aujourd'hui d'exprimer $I_{PED}(\vec{s})$ en fonction de l'intensité cinématique avec $C_x(\vec{s}) I_{PED}(\vec{s}) \approx I_{cin}(\vec{s})$ [5,26,29].

Ces coefficients sont utilisés pour décrire l'intensité diffractée par le premier plan diffractant du réseau réciproque (Zero Order Laue Zone) et pour un vecteur de diffusion $\vec{k} < (2R_0) \approx 2\vec{k}_0 Y^\circ$. Pour ce travail, la mesure des intensités relatives des spots diffractés importe moins que la mesure des positions de ces spots. Les conditions d'utilisation des coefficients de correction C_x sont détaillées dans le travail de thèse de C.S. Own [12]. Ici nous discutons du caractère cinématique des clichés de diffraction et du domaine de validité de cette approximation pour étudier des déformations.

Lorsque le faisceau d'électrons effectue un mouvement de précession de demi-angle Y° par rapport à l'axe optique du microscope, la sphère d'Ewald effectue le même mouvement dans l'espace réciproque. A un instant donné t , la sphère d'Ewald est donc inclinée d'un angle égal au demi-angle de précession du faisceau d'électrons par rapport à l'axe optique du MET. Dans une situation d'axe de zone, un cercle "cinématique" de rayon $R_0 \approx Y^\circ$ (\AA^{-1}) et situé sur la sphère d'Ewald, est occupé par la ZOLZ (voir Figure II.9).

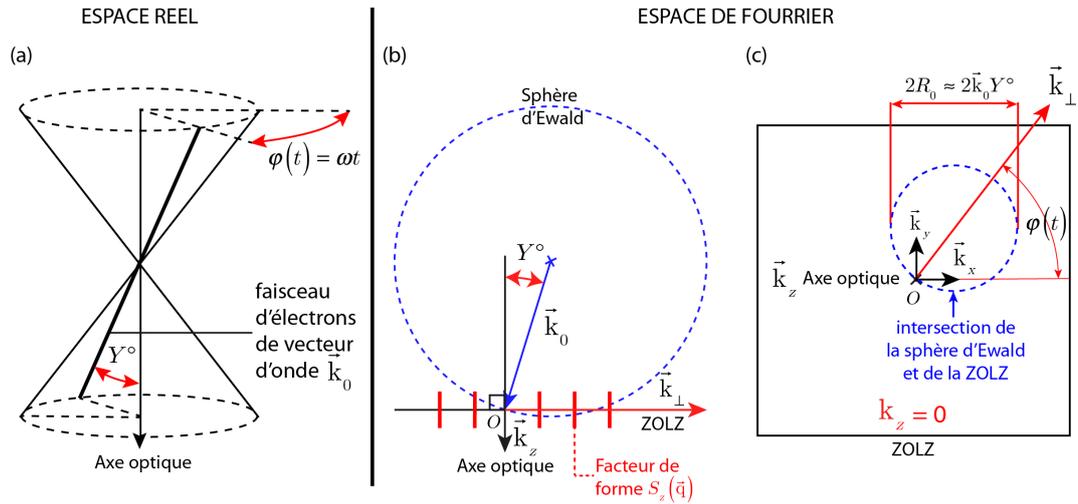


Figure II.9 : Précession du faisceau d'électrons avec un demi-angle Y° et une vitesse angulaire ω (a) trajectoire du faisceau dans l'espace réel (b) inclinaison de la sphère d'Ewald en situation d'axe de zone (plan de vue $(O, \vec{k}_x, \vec{k}_y)$) (c) intersection circulaire de la sphère d'Ewald en rotation et de la ZOLZ (plan de vue $(O, \vec{k}_x, \vec{k}_y)$).

Au bout d'un temps donné ($\varphi(t) = 2\pi$) la sphère d'Ewald exécute, tout comme le faisceau d'électrons, un mouvement de précession complète. Elle balaye un volume de l'espace réciproque qui est d'autant plus étendu que le demi-angle de précession est important. Ainsi, pour une précession complète, l'intersection de la sphère d'Ewald et de la ZOLZ est un disque de rayon $2R_0 \approx 2\vec{k}_0 Y^\circ$. Les nœuds du réseau réciproque présents sur ce disque sont en condition stricte de Bragg à un instant de la révolution de la sphère d'Ewald. D'une manière générale, pendant une révolution complète de la sphère d'Ewald, un continuum de faisceaux en conditions de diffraction sont obtenus sur et à proximité des nœuds du réseau réciproque sur la ZOLZ. Ainsi, les clichés de diffraction obtenus en précession contiennent plus d'ordres de diffraction que pour

ceux acquis avec un faisceau d'électrons statique. L'intensité diffractée pour un vecteur de diffusion $q < (2R_0)$ peut être exprimée à l'aide d'une approche par ondes de Bloch en condition "deux ondes" [12].

En mode précession, un nœud du réseau réciproque est balayé par la sphère d'Ewald, suivant la direction $\mathbf{k} \parallel \mathbf{g}_{11}$. Pour un demi-angle de précession de $1,44^\circ$, ce balayage s'effectue sur une distance comprise entre -0.036 \AA^{-1} et 0.013 \AA^{-1} de part et d'autre du nœud qui produit la réflexion la plus intense (\mathbf{g}_{11}) visible sur un échantillon de silicium en axe de zone (110). L'illustration qui suit présente dans le cas d'une lame MET à faces parallèles, l'intensité intégrée pour ce nœud (\mathbf{g}_{11}), pendant que la sphère d'Ewald exécute ce mouvement de précession :

$$I_T(z') = \int_{-0.036 \text{ \AA}^{-1}}^{z'} I(z') dz'. \quad (\text{II.2.24})$$

L'intensité diffractée hors condition de Bragg est décrite par une approche dynamique en deux ondes (voir expression II.2.23). L'évolution de la position moyenne $\bar{z}(z')$ de la distribution d'intensité recueillie durant le mouvement de la sphère d'Ewald est également tracée.

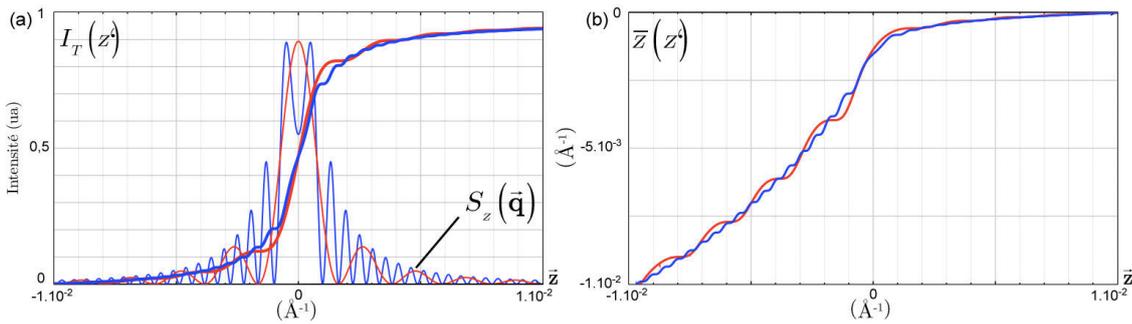


Figure II.10 : (a) Intensité intégrée, en précession avec un demi-angle $Y^\circ = 1.44^\circ$, suivant l'axe $\mathbf{k} \parallel \mathbf{g}_{11}$ en condition d'axe de zone [110] avec deux échantillons minces de silicium de 80 et 200 nm d'épaisseur représentés respectivement en rouge et en bleu. Facteur de formes $S_z(\mathbf{q})$ en condition dynamique deux ondes et intensité $I_T(z)$ intégrée par la sphère d'Ewald sur son parcours $[-0.036, z'] \text{ \AA}^{-1}$ (b) position moyenne $\bar{z}(z')$ de la distribution d'intensité recueillie pendant que la sphère d'Ewald franchit la ZOLZ à proximité de la réflexion la plus intense (\mathbf{g}_{11}) visible sur un échantillon de silicium en axe de zone (110).

La position $\bar{z}(z')$ de la valeur moyenne de l'intensité diffractée suivant $\mathbf{k} \parallel \mathbf{g}_{11}$ converge rapidement vers une position proche de $\bar{z}(z') = 0$ ($|\bar{z}(z')| \leq 4.10^{-2} \text{ \AA}^{-1}$) dès lors que la sphère d'Ewald coupe la ZOLZ ($k_z = 0$). Ainsi, plus le volume balayé par la sphère d'Ewald est important et plus un nœud du réseau réciproque $|\mathbf{g}_{kl}| \leq 2R_0$ produit un spot de diffraction pour un vecteur de diffusion \mathbf{k} proche de sa position $\bar{\mathbf{g}}_{hkl}$ dans la ZOLZ.

Dans les clichés de diffraction, les phénomènes expliqués en théorie dynamique se manifestent sous la forme de contrastes hétérogènes dans les ordres ou disques diffractés. Ces contrastes dynamiques sont d'autant plus visibles que le faisceau utilisé est convergent. Le phénomène d'intégration de l'intensité dans l'espace réciproque, et par conséquent l'aspect "quasi-cinématique" des clichés en précession, peut être observé lorsque l'acquisition d'un cliché PED est faite avec un faisceau exagérément convergent d'électrons (faisceau de demi-angle de convergence inférieur au demi-angle de précession). Dans cette situation les disques de diffraction présentent une distribution d'intensité quasi-uniforme qui résulte d'une sommation des effets dynamiques (voir Figure II.11).

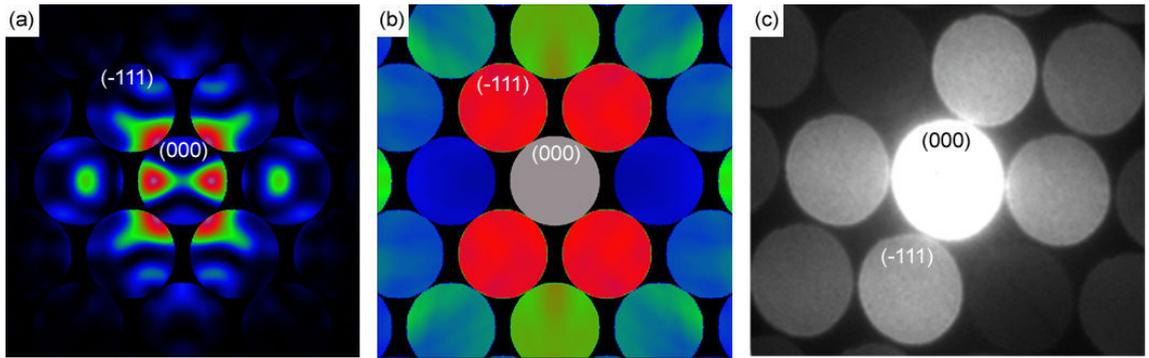


Figure II.11 : Simulation par ondes de Bloch d'un cliché de diffraction, avec un échantillon de silicium en axe de zone (110), pour une épaisseur de lame de 80 nm (a) en condition d'observation NBED convergent ou CBED (faisceau d'électron statique) (b) en précession avec un demi-angle de précession de 1.44° (c) cliché obtenu expérimentalement sur une lame MET de même épaisseur avec un demi-angle de précession de 1.44° (simulations par ondes de Bloch réalisées avec le programme développé par J.Zuo [28,29] couleurs : échelle de température normalisée hors faisceau transmis).

Les spots diffractés présentent une distribution d'intensité intrinsèque d'autant plus uniforme que le faisceau d'électrons en précession est faiblement convergent. Pour un faible angle de convergence (<1 mrad) il est possible d'effectuer précisément la mesure des positions des spots diffractés. L'intensité observée pour un spot de diffraction présente une distribution qui peut être identifiée comme une somme de gaussiennes [30]. Le maximum de cette distribution d'intensité centro-symétrique peut être mesuré soit par un ajustement (fit) gaussien soit en effectuant le calcul du centre de masse de cette distribution d'intensité.

Dans ce paragraphe, nous sommes arrivés à la conclusion que la méthode d'analyse PED permet d'obtenir des clichés de diffraction avec des spots de diffraction situés de part et d'autre d'une frontière circulaire, de rayon $2R_0 \approx \lambda / \theta$, dans l'espace réciproque. Cette frontière délimite deux zones dans lesquelles la validité du caractère cinématique des clichés PED est appréciable ou contestable. Hors d'un disque de rayon $2R_0$ centré sur le faisceau transmis, cette approximation cinématique de la diffraction PED devient discutable. A contrario, la composante colinéaire à l'axe optique du vecteur de diffusion est négligeable pour des faisceaux diffractés avec $|\mathbf{k}_{kl}| \leq 2R_0$ dans la ZOLZ. La position de ces spots de diffraction peut être calculée pour effectuer une mesure fiable de la déformation.

II.3 MISE EN ŒUVRE EXPERIMENTALE

II.3.1 Préparation des échantillons

La préparation d'échantillons en microscopie électronique en transmission est une phase cruciale dans la mesure où la qualité d'un échantillon est toujours déterminante pour obtenir un résultat probant. Plusieurs méthodes peuvent être employées pour préparer des échantillons transparents aux électrons et celles-ci sont plus ou moins appropriées compte tenu des matériaux mis en jeu et du type de mesure que l'on entreprend.

En microélectronique, la préparation des échantillons demande sur le plan technique une grande précision. L'usinage doit être effectué finement sur une zone réduite prédéfinie et requiert l'intervention d'un opérateur minutieux et expérimenté. Deux types de préparations peuvent être privilégiés. Soit un échantillon peut être préparé en vue plane (plan view), auquel cas il est aminci autour d'une zone d'intérêt, suivant deux faces parallèles au substrat ; soit on peut préférer une préparation avec une coupe transverse (cross section). Dans ce cas, l'amincissement des échantillons se fait autour de la zone d'intérêt suivant deux plans d'abrasion parallèles, tous deux orthogonaux au substrat. La première étape de préparation d'une section transverse consiste à coller face à face deux morceaux d'échantillon pour protéger la zone d'intérêt pendant l'usinage. La préparation d'un échantillon à faces non coplanaires peut également être réalisée. Ce type de préparation en biseau permet d'obtenir des zones d'observation d'une extrême finesse (quelques nanomètres). Elle peut en outre se montrer utile pour étudier l'influence de l'épaisseur de la préparation sur une mesure.

Pour effectuer l'étude des déformations, les échantillons doivent subir un minimum d'altérations pour préserver le champ de contrainte intact. En règle générale, une préparation d'échantillon est susceptible de générer des défauts cristallins. La préparation peut également créer par irradiation des zones amorphes là où un matériau était cristallin et implanter une espèce chimique étrangère au sein des matériaux usinés. Les méthodes qui permettent le mieux de préserver la cristallinité des échantillons pour effectuer la mesure des déformations sont : le polissage tripode, le clivage aux petits angles et le faisceau d'ions focalisé. Néanmoins le clivage aux petits angles fait exception. Cette méthode, qui ne s'applique qu'à des matériaux fragiles, produit un échantillon exempt de tout défaut de préparation mais qui a une géométrie complexe. Cette géométrie conditionne les relaxations des contraintes dans l'échantillon et complique, voire rend impossible, l'étude des contraintes. Pour cette raison, la technique de clivage aux petits angles n'est pas exposée dans ce sous chapitre.

a) Polissage tripode

Le polissage tripode est une méthode mécano-chimique de préparation. Elle présente l'avantage de ne générer qu'une quantité négligeable d'amorphes à la surface des échantillons mais produit des lames d'une grande fragilité. Suivant la ductilité des matériaux usinés, ces préparations peuvent se briser plus ou moins vite, parfois avant même d'avoir obtenu une zone transparente aux électrons.

Le polissage tripode consiste à éroder autour d'une zone d'intérêt, un échantillon monté sur l'un des trois pieds (en pyrex) d'un support appelé tripode. Ce tripode comporte deux autres pieds (en laiton) que l'on peut ajuster pour choisir l'angle de l'abrasion produite par un disque abrasif en rotation. Lors de la préparation, des défauts cristallins peuvent apparaître sous forme de dislocations dans les matériaux sensibles à l'érouissage. Pour endiguer la formation de ces défauts, la méthode de polissage tripode suit un protocole strict dans lequel l'amincissement des échantillons est sans cesse contrôlé et où le pouvoir d'abrasion des outils employés est ajusté dégressivement tout au long de la préparation.

Dés lors qu'un échantillon a été conditionné pour produire une vue transverse, la préparation tripode se déroule en quatre étapes qui sont détaillées ci-après. Au cours de ces étapes, la planéité et l'amincissement de l'échantillon sont contrôlés au même titre que l'absence de défaut au moyen d'un microscope optique.

Polissage du pyrex, conditionnement de la lame : Cette étape préliminaire de la préparation consiste, dans un premier temps, à polir de manière homogène la surface du pied en pyrex du support tripode pour y coller l'échantillon. Cette procédure est essentielle dans la mesure où un bon contact entre les faces du pyrex et de l'échantillon maximise les chances de réussite de la préparation. Une succession de disques en rotation recouverts de grains diamantés permet d'assurer ce polissage. La taille caractéristique des grains varie dégressivement pour chaque disque de 15 à 6 μm . Pour obtenir une surface de pyrex raisonnablement plane, quelques rotations de ces disques suffisent. Une fois cette étape achevée, l'échantillon est collé avec de la cire sur le support tripode pour pouvoir travailler sur sa première face.

Première face de l'échantillon : Le polissage de la première face de l'échantillon est la première étape délicate de la préparation tripode. En suivant les recommandations préconisées dans le tableau qui suit, la première face de l'échantillon est rendue plane. Presque toutes les étapes de ce processus se font avec des disques diamantés. Seule la dernière étape de finition est faite à l'aide d'un disque vierge, lubrifié avec une suspension colloïdale de silice qui remplit le rôle d'abrasif.

Taille de grains (μm)	30	15	6	3	1	0,5	Silice colloïdale
Vitesse (tours/min)	30	20	15	10	7-8	5	>70

TABLE II.1 : Vitesse de rotation de la polisseuse étape par étape en fonction du pouvoir abrasif désiré pour la préparation de la première face.

Deuxième face de l'échantillon : Afin de polir la seconde face de l'échantillon, celui-ci est retourné sur le pied en pyrex du support tripode. Lors de cette étape, le support tripode est incliné de sorte que l'échantillon soit abrasé avec un angle compris entre 0,25 et 1°. Cette inclinaison imposée permet d'obtenir un échantillon en biseau au terme d'une série d'abrasions similaires à celle utilisée pour polir la première face de

la lame tripode. Ce second processus d'abrasion est achevé en suivant scrupuleusement les recommandations recensées dans le tableau qui suit.

Taille de grains (μm)	30	15	6	3	1	0,5	Silice colloïdale
Vitesse (tours/min)	30	20	15	10	5	5	>70

TABLE II.1 : Vitesse de rotation de la polisseuse étape par étape en fonction du pouvoir abrasif désiré pour la préparation de la seconde face.

La lame tripode obtenue de la sorte devient progressivement transparente aux électrons et la préparation s'achève lorsque l'épaisseur en bout de lame avoisine le nanomètre.

La transparence aux électrons peut être contrôlée très simplement pour des préparations contenant du silicium. Au microscope optique, ce matériau devient successivement jaune puis transparent lorsque qu'il devient transparent aux électrons. Enfin, des franges d'interférence apparaissent lorsque l'épaisseur de la pointe du biseau est minimale.

Décollage de la lame et report sur la rondelle MET : À ce stade de la préparation, la lame tripode est extrêmement fragile. L'étape terminale qui permet de monter cette lame sur une rondelle MET est donc assez délicate. La cire qui maintient l'échantillon sur le pied en pyrex du tripode est tout d'abord dissoute. L'échantillon, alors baigné dans une solution d'acétone, se décolle et tombe sur un papier filtre. Ce papier filtre est ensuite prélevé et séché en prenant soin de ne pas briser la préparation qui s'y trouve avec des manipulations inutiles. Enfin, la préparation est collée sur une rondelle MET en cuivre.

En conclusion, la méthode tripode est une méthode qui permet d'obtenir, à moindre coût, des lames MET d'une grande finesse (<10 nm) quasiment dénuées de défauts. Cette méthode d'élaboration des échantillons n'est malheureusement réellement appropriée que pour usiner des couches 2D. En effet il est impossible d'amincir une zone d'intérêt précise par polissage tripode.

b) Préparation par faisceau d'ions focalisé (FIB)

Un microscope à faisceau d'ions focalisé (FIB : Focus Ion Beam) est un appareil de pointe qui permet d'observer directement une zone d'intérêt sur un échantillon tout en l'abrasant finement avec un flux d'ions. Cet appareil combine un microscope électronique à balayage (SEM) à un canon ionique. Le canon ionique accélère un flux de galium plutôt que des électrons. Leur focalisation est réalisée à l'aide de lentilles électrostatiques. Un FIB permet aussi de créer des dépôts de métaux lourds. Ces dépôts servent soit à protéger une zone de l'échantillon de l'abrasion du faisceau d'ions, soit à créer des zones de maintien. Ces zones de maintien sont utilisées pour manipuler l'échantillon ou pour éviter qu'il ne se déforme.

La méthode de préparation FIB est à ce jour la technique la plus adaptée pour préparer des échantillons MET avec des dispositifs issus de la microélectronique. Elle permet de travailler avec une grande souplesse la morphologie d'objets de quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres. L'utilisation d'un flux d'ions pour usiner un échantillon ne présente cependant pas que des avantages. Les matériaux travaillés par FIB peuvent voir leur cristallinité altérée lorsqu'ils sont irradiés par le flux d'ions. La manifestation la plus évidente de ce phénomène d'irradiation est l'apparition d'interfaces amorphes à proximité des zones travaillées. Heureusement l'épaisseur d'amorphe peut être minimisée en travaillant avec une accélération moindre du faisceau d'ions. Le second effet susceptible d'induire un biais dans les mesures MET faites avec une préparation FIB, est l'implantation d'ions galium dans les matériaux. Ce problème survient peu fréquemment lorsque le dépôt d'un métal lourd est utilisé pour protéger l'échantillon pendant l'abrasion.

Dés lors qu'un échantillon a été conditionné pour produire une vue plane ou transverse, celui-ci est introduit dans la chambre du FIB où règne un vide poussé. L'usinage par faisceau d'ions focalisé est alors mené en quatre étapes :

Protection de la zone d'intérêt : Une fois la zone d'intérêt localisée, celle-ci est protégée avec un dépôt de métal lourd (Titane ou Platine) en vue de l'usinage FIB. Cette première opération se passe sous le faisceau d'électrons. Un précurseur métallique gazeux est introduit dans la chambre via une buse située à proximité de l'échantillon. Ce précurseur est décomposé sous le faisceau d'électrons et se dépose sur la zone d'intérêt choisie. Le dépôt est stoppé lorsqu'il atteint une épaisseur comprise entre 2 et 5 micromètres.

Dégagement et découpe de l'échantillon : Une fois la zone d'intérêt protégée, l'échantillon est détourné avec le canon ionique pour permettre de l'extraire du matériau massif. A la fin de cette étape la base de la lame MET est logée dans l'échantillon initial entre deux gorges. Ces gorges ont typiquement une largeur de vingt micromètres et sont profilées en escalier pour faciliter l'étape d'extraction qui suit. La lame MET est alors fixée à une aiguille de maintien par un dépôt métallique puis elle est détachée de l'échantillon massif en pratiquant une découpe au fond d'une des deux gorges avec le faisceau d'ions.

Report sur rondelle MET : Cette phase de la préparation par FIB consiste à placer l'échantillon sur une demi rondelle MET en cuivre. Cette rondelle est introduite dans la chambre, accolée puis fixée à la lame, de nouveau avec un dépôt métallique. A ce stade l'échantillon est bien maintenu sur la rondelle en cuivre et une dernière découpe par faisceau d'ions permet de la détacher de l'aiguille qui la maintenait dans le FIB.

Amincissement et finitions : La dernière étape de préparation de la lame MET permet de lui conférer sa géométrie définitive. Le faisceau d'ions est utilisé pour amincir l'échantillon de sorte qu'il soit transparent aux électrons. Au cours de l'amincissement, la tension d'accélération des ions Galium est ajustée dégressivement pour réduire l'apparition d'amorphes. En passant d'une tension d'accélération de 30 à 10 kV, l'abrasion exercée par les ions laisse une couche amorphe à la surface de la lame qui

passer de 25 ± 5 nm à une épaisseur qui avoisine 10 nm. Cette étape achevée, l'échantillon peut être retiré de la chambre du FIB pour être étudié.

La préparation FIB d'échantillons est une méthode sûre quoique complexe. Elle ne s'adresse donc qu'à des utilisateurs expérimentés. Cette technique est capable de produire des lames MET avec des faces parfaitement parallèles, dans une zone d'étude précise, mais qui produit systématiquement une interface amorphe là où une abrasion ionique a eu lieu.

II.3.2 Procédure d'alignement d'un MET en mode précession

L'alignement du microscope électronique en mode précession s'effectue en trois étapes à travers deux modes d'observations conventionnels distincts :

- Alignement du MET en mode image (MET ou HRTEM) (voir Figure II.12)
- Alignement du MET en mode diffraction avec un nano faisceau d'électrons (NBED) (voir Figure II.13)
- Alignement du MET en mode précession à partir du mode NBED (voir Figure II.7)

En mode image, l'opérateur doit s'assurer, tout d'abord, du centrage de la zone d'intérêt de l'échantillon sur l'axe optique du microscope. Ensuite le faisceau d'électrons est aligné suivant l'axe optique de la colonne avec, en premier lieu, une étape de centrage du faisceau dans le plan image du microscope. En second lieu, l'opérateur doit effectuer l'alignement du canon et de la lentille condenseur du microscope [31]. Dès lors que la colonne du MET est alignée, l'échantillon peut être déplacé suivant l'axe de la colonne et placé au focus de Scherzer et l'astigmatisme de la lentille objectif peut être compensé. L'échantillon est alors aligné en axe de zone en obtenant, dans le plan de Fourier du microscope, une figure de diffraction centro-symétrique, caractéristique d'un axe cristallin. Pour la mesure de déformation, cet axe est orthogonal au plan dans lequel la déformation doit être étudiée. Enfin, avant de basculer l'étude vers un mode d'observation NBED, la focalisation de la diffraction doit être réalisée avec un faisceau parallèle d'électrons. Ce dernier alignement est crucial en mode précession.

En mode diffraction avec un nano faisceau d'électrons (NBED), l'opérateur doit tout d'abord affiner les réglages relatifs aux alignements du canon et de la lentille condenseur avant de compenser l'astigmatisme de la lentille condenseur. Vient ensuite le second alignement essentiel en mode précession : l'alignement des "point pivots" du microscope. Un point pivot est un centre de symétrie du cône de précession à une position (x_p, y_p, z_p) dans la colonne du MET. Le réglage des points pivots a pour but de confiner ces points de symétries dans un unique plan fixe et orthogonal à l'axe optique du microscope. Une fois ce dernier réglage effectué, l'opérateur peut configurer le demi-angle de convergence du faisceau et les grossissements qu'il désire (dans l'espace réel et dans le plan de Fourier) avant de basculer l'expérience en mode précession. Le réglage de l'angle de convergence sur un MET à deux lentilles condenseur se fait avec un diaphragme condenseur de petite dimension (10 μm sur le microscope JEOL 2010A utilisé lors de ce travail).

En mode précession, l'opérateur effectue les réglages des déphasages et amplitudes relatives des signaux d'excitation des déflectrices du microscope. Plus le demi-angle de précession est important, plus les aberrations de la lentille objectif du microscope se manifestent et plus la taille de la sonde électronique dans l'espace réel est grande. Le demi-angle de précession est choisi le plus grand possible compte tenu de la résolution spatiale attendue tout en s'assurant d'observer distinctement la ZOLZ dans la figure de diffraction (la ZOLZ doit être observée sans recouvrement avec des ordres diffractés par les plans d'indices supérieurs dans le cristal). Une fois l'angle de précession choisi, les déphasages et amplitudes relatives des courants d'excitation des déflectrices peuvent être réglés au dessus puis au dessous de l'échantillon pour observer :

- 1) une sonde de faible dimension dans le vide dans le plan image du MET.
- 2) un faisceau transmis stable et ponctuel durant la révolution du faisceau en précession.

A ce stade de l'alignement MET, l'échantillon se trouve au focus de Scherzer, à faible distance du plan des points pivots. L'échantillon doit être positionné dans la colonne du MET pour que le centre de son épaisseur coïncide avec le plan des points pivots [14]. Pour ce travail, nous effectuons ce réglage de la hauteur de l'échantillon à l'aide de deux étapes qui sont exécutées dans l'ordre suivant :

- 1) Le faisceau d'électrons en précession est condensé et la hauteur de l'échantillon dans la colonne est ajustée de manière à n'observer aucune figure de diffraction en mode image.
- 2) La largeur de la sonde électronique en précession est observée dans le matériau dans le plan image du microscope. Elle est minimisée en ajustant à nouveau la hauteur de l'échantillon dans la colonne.

A la suite de cet alignement, il est préférable de démarrer une acquisition après un temps pendant lequel l'échantillon, les lentilles et les déflectrices se stabilisent (ce temps atteint 30 mn sur le MET JEOL 2010A). Après un dernier contrôle de l'alignement à l'issue de ce temps d'attente, la mesure peut commencer. Pour démarrer une étude, l'opérateur peut définir la zone de balayage de la sonde en précession et faire le choix d'une fréquence d'échantillonnage suffisamment faible pour enregistrer

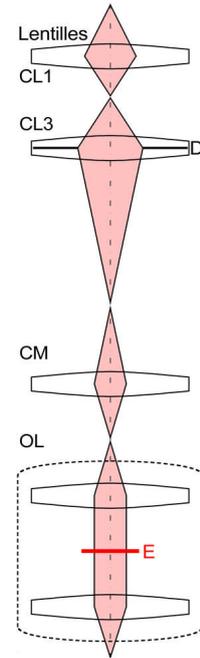


Figure II.12 : Schématisation du trajet du faisceau d'électrons en mode d'observation image MET, HRTEM. (E échantillon ; D diaphragme condensateur)

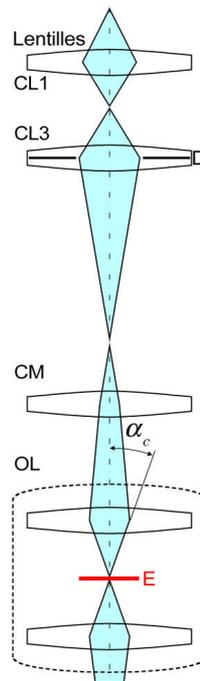


Figure II.13 : Schématisation du trajet du faisceau d'électrons en mode NBED sur le microscope JEOL 2010 A. (E échantillon ; D diaphragme condensateur)

les clichés de diffraction avec une caméra. En pratique, un enregistrement de cliché PED est effectué toutes les 30 ms sur le microscope JEOL 2010A utilisé lors de ce travail.

II.4 CONCLUSION

Dans ce chapitre ont été présentés les principes de base qui permettent d'expliciter le principe de fonctionnement de la diffraction en mode PED et les avantages que cette technique comporte par rapport au mode d'observation classique NBED.

Le chapitre qui suit présente notamment la méthode qui a été développée pour exploiter les clichés de diffraction PED et pour effectuer une mesure des déformations à l'échelle nanométrique.

Bibliographie

- [1] L. Reimer and H. Kohl, *Transmission Electron Microscopy: Physics of Image Formation*, 5th edition (Springer, New York, NY, 2008).
- [2] M. Haider, S. Uhlemann, E. Schwan, H. Rose, B. Kabius, and K. Urban, *Nature* **392**, 768 (1998).
- [3] D. B. Williams and C. B. Carter, *Transmission Electron Microscopy* 91 (2009).
- [4] M. Born, E. Wolf, and A. B. Bhatia, *Principles of Optics: Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light* (Cambridge University Press, 1999).
- [5] R. Vincent and P. A. Midgley, *Ultramicroscopy* **53**, 271 (1994).
- [6] J. A. Eades, *Ultramicroscopy* **5**, 71 (1980).
- [7] A. V. Crewe and J. Wall, *Journal of Molecular Biology* **48**, 375 (1970).
- [8] W. Krakow and L. A. Howland, *Ultramicroscopy* **2**, 53 (1976).
- [9] Eggeman, Alexander and Midgley, Paul, in (Academic Press, 2012).
- [10] M. J. Buerger, *The Precession Method in X-Ray Crystallography* (Wiley, 1964).
- [11] A. A. Sergeevich, K. K. Vladimirovich, and S. Nicolopoulos, EP1665321 B1 (11 November 2009).
- [12] C. S. Own, System Design and Verification of the Precession Electron Diffraction Technique, NORTHWESTERN UNIVERSITY, 2005.
- [13] O. L. Krivanek, N. Dellby, and A. R. Lupini, *Ultramicroscopy* **78**, 1 (1999).
- [14] C. S. Own, L. D. Marks, and W. Sinkler, *Review of Scientific Instruments* **76**, 033703 (2005).
- [15] C. S. Own, W. Sinkler, and L. D. Marks, *Ultramicroscopy* **107**, 534 (2007).
- [16] K. Fujiwara, *Journal of the Physical Society of Japan* **16**, 2226 (1961).
- [17] Landau, Lifchitz, and Gloukhian, *Mécanique Quantique, tome3: Théorie Non Relativiste* (Mir, 1967).
- [18] von G. Moliere, *Zeitschrift Naturforschung Teil A* **2**, 133 (1947).
- [19] N. F. Mott and H. S. W. Massey, *The Theory of Atomic Collisions, by N. F. Mott and H. S. W. Massey. 2nd Edition* (Clarendon Press (printed by C. Batay), 1949).
- [20] P. t Doyle and P. S. Turner, *Acta Crystallographica Section A: Crystal Physics, Diffraction, Theoretical and General Crystallography* **24**, 390 (1968).
- [21] A. Weickenmeier and H. Kohl, *Acta Crystallographica Section A: Foundations of*

- Crystallography **47**, 590 (1991).
- [22] C. J. Humphreys, Reports on Progress in Physics **42**, 1825 (1979).
- [23] P. P. Ewald, Acta Crystallographica Section A: Crystal Physics, Diffraction, Theoretical and General Crystallography **25**, 103 (1969).
- [24] H. Bethe, Annalen Der Physik **392**, 55 (1928).
- [25] Z. Wang, *Elastic and Inelastic Scattering in Electron Diffraction and Imaging*, Softcover reprint of the original 1st ed. 1995 edition (Springer, 2013).
- [26] D. B. Williams and C. B. Carter, Transmission Electron Microscopy 235 (2009).
- [27] M. Blackman, Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences **173**, 68 (1939).
- [28] J. M. Zuo and J. C. H. Spence, *Electron Microdiffraction* (Springer, 1992).
- [29] J. M. Zuo, K. Gjonnes, and J. C. H. Spence, Journal of Electron Microscopy Technique **12**, 29 (1989).
- [30] A. Beche, Mesure de Déformation À L'échelle Nanométrique Par Microscopie Électronique En Transmission, 2009.
- [31] J. M. Rodenburg, Microscopy and Analysis 9 (2004).

CHAPITRE III : METHODES D'ANALYSE ET RESULTATS EXPERIMENTAUX

PARTIE A : Algorithme Delaunay pour la mesure des déformations

III.A.1 MESURE DE DEFORMATIONS EN MODE.	66
III.A.2 MESURE ET PRETRAITEMENTS EN MODE PRECESSION	68
III.2.1 Prétraitements : corrections des effets de perspectives	68
III.2.2 Algorithme Delaunay et mesure de déformations	71
III.2.3 Influence des paramètres expérimentaux sur la mesure	73
III.A.3 EXEMPLES D'APPLICATIONS.	82
III.3.1 Multicouches Si/SiGe	82
III.3.2 Puits quantiques d'InGaAs	86
III.3.3 Nanofil SiGe pour transistor "Ω-gate"	88
III.A.4 CONCLUSION	89

PARTIE B : Algorithme d'évaluation de cristallinité

III.B.0 INTRODUCTION	90
III.B.1 METHODE EXISTANTE EN PRECESSION	91
III.B.2 ALGORITHME D'EVALUATION DE CRISTALLINITE.	91
III.B.3 EXEMPLES D'APPLICATIONS	93
III.B.3.1 Contrôle de la cristallinité d'un échantillon et de l'alignement PED . . .	93
III.B.3.3 Mémoires à changements de phases PRAM	93
III.B.3.4 Puits quantiques InGaAs	94
III.B.3.2 Batteries LiFePo ₄ FePo ₄	95
III.B.4 CONCLUSION	95

PARTIE A : Algorithme Delaunay pour la mesure de déformations

III.A.1 MESURE DE DEFORMATIONS EN MODES NBED

Il existe une méthode qui permet d'extraire des clichés de diffraction et une information bidimensionnelle sur la déformation. Cette méthode a été initialement conçue pour exploiter des clichés de diffraction obtenus avec un faisceau d'électrons faiblement convergent sans précession. L'objectif de celle-ci est d'extraire du cliché de diffraction deux des vecteurs de base du réseau réciproque d'un cristal, à partir de clichés de diffraction. Pour effectuer cette opération, il est nécessaire de mesurer des distances qui lient des maxima dans l'autocorrélation du cliché de diffraction. L'autocorrélation $R_A(\vec{r})$ peut être obtenue analytiquement à partir du signal initial $A(\vec{r})$ ou avec une méthode algorithmique, en faisant la transformée de Fourier inverse du module au carré de la transformée de Fourier de $A(\vec{r})$:

$$R_A(\vec{r}) = \iint A(\vec{r}) A(\vec{r} + \vec{r}') d\vec{r}', \text{ ou } R_A(\vec{r}) = TF^{-1} \left\{ TF[A(\vec{r})] TF[A(\vec{r})]^* \right\}. \quad (\text{III.1})$$

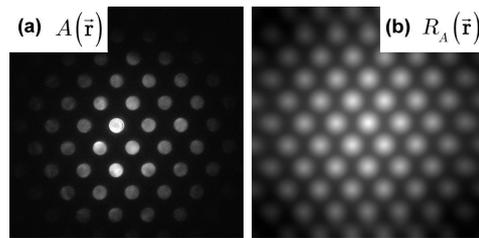


Figure III.1 : (a) cliché de diffraction obtenu en axe de zone $\langle 110 \rangle$ sur du silicium massif avec un demi-angle de précession de 1° et un demi-angle de convergence conséquent (2.4 mrad) (b) Autocorrélation $R_A(\vec{r})$ du cliché de diffraction de signal $A(\vec{r})$.

Cette procédure permet de magnifier les composantes périodiques d'un signal qui est ici une image de diffraction. Elle présente deux avantages:

- Elle permet d'utiliser des clichés de diffraction qui, du fait d'un « fort » angle de convergence, présentent des disques de diffraction au lieu de spots : avec une autocorrélation un réseau périodique de disques apparaît comme un réseau périodique de maxima et leurs positions respectives peuvent être aisément mesurées. (voir figure III.1)
- Elle permet d'avoir une représentation de l'image de diffraction où la position du faisceau transmis occupe systématiquement le centre de l'image. En effet, les clichés de diffraction expérimentaux peuvent être excentrés ce qui complique la mesure des positions des ordres diffractés.

Afin d'améliorer le rapport signal sur bruit dans l'autocorrélation, un filtrage préliminaire des images est fréquemment utilisé. Ce filtrage est effectué au moyen d'un filtre passe bande $m(\vec{k})$ qui est appliqué dans l'espace de Fourier de l'image comme suit :

$$A'(\vec{r}) = TF^{-1} \left\{ m(\vec{k}) TF[A(\vec{r})] (m(\vec{k}) TF[A(\vec{r})])^* \right\} \quad (\text{III.2})$$

L'autocorrélation des clichés de diffraction présente un ensemble de maxima. Les vecteurs qui les relient sont les vecteurs de base du réseau de spots de diffraction (vecteurs de diffusion )

Deux vecteurs de base, \mathbf{g}_1 et \mathbf{g}_2 , sont obtenus en mesurant donc : deux paires de maxima proches voisins dans l'autocorrélation filtrée de clichés de diffraction. Ces deux vecteurs sont choisis non colinéaires pour former les constituants d'une matrice \mathbf{G}_i , représentative du réseau réciproque "moyen" en un point de mesure i situé sur l'échantillon. En comparant une matrice du réseau réciproque \mathbf{G}_i obtenue en un point i à une seconde matrice du réseau réciproque \mathbf{G}_{ref} mesurée dans une zone de référence, on obtient une mesure relative de la déformation de la zone cristalline observée par rapport à la zone cristalline de référence. Ce procédé de comparaison est réalisé en effectuant l'opération mathématique suivante [1]:

$$\left. \begin{array}{l} \mathbf{g}_1 = \begin{pmatrix} g_{1,x} \\ g_{1,y} \end{pmatrix} \\ \mathbf{g}_2 = \begin{pmatrix} g_{2,x} \\ g_{2,y} \end{pmatrix} \end{array} \right\} \mathbf{G}_{mesure} = \begin{bmatrix} g_{1,x} & g_{1,y} \\ g_{2,x} & g_{2,y} \end{bmatrix}, \quad \mathbf{D} = (\mathbf{G}_{mesure})^{-1} \mathbf{G}_{ref} - \mathbf{1} \left\{ \begin{array}{l} \Omega_{ij} = \frac{1}{2}(D_{ij} - D_{ji}) \\ \varepsilon_{ij} = \frac{1}{2}(D_{ij} + D_{ji}) \end{array} \right. \quad (\text{III.3})$$

Il est aussi possible de mesurer des vecteurs \mathbf{g}_1 et \mathbf{g}_2 qui lient des multiples de vecteurs du réseau réciproque dans les autocorrélations des clichés de diffraction. Par exemple  peut être défini comme le vecteur  au lieu de $\bar{\mathbf{g}}_{111}$. Ceci peut être fait dans l'espoir de minimiser l'erreur systémique faite sur la mesure effectuée sur l'autocorrélation. Afin également de minimiser la même erreur de mesure et d'accroître la sensibilité de la mesure de déformation, plusieurs approches ont été étudiées pour obtenir la position des maxima dans l'autocorrélation du cliché de diffraction [2]. La méthode préconisée pour cela permet d'atteindre une résolution sub-pixel. Elle consiste à effectuer un ajustement (fit) gaussien de l'autocorrélation, sur des zones définies par l'utilisateur, là où se trouvent les deux maxima nécessaires à l'étude des déformations.

Quelques hypothèses, nécessaires au bon fonctionnement de cette méthode de mesure, peuvent être mises en défaut en mode NBD comme en mode précession :

- Aucun bruit parasite dans l'image ne doit contenir de composante périodique en situation de recouvrement avec le signal de diffraction dans l'autocorrélation. Si par exemple, des disques observés en faisceau convergent ont un diamètre proche d'une fraction entière du paramètre cristallin observé, ceci risque de diminuer la précision de la mesure de la position de maxima dans l'autocorrélation.
- Si une rotation trop importante du cliché de diffraction s'opère pendant la mesure, alors la position de la zone de mesure d'un maxima, indiquée par l'utilisateur sur le cliché de référence, se retrouve située dans une zone inappropriée de l'autocorrélation. L'ajustement gaussien des maxima est alors imprécis et la mesure des deux vecteurs de base \mathbf{g}_1 et \mathbf{g}_2 l'est aussi.

Pour ces raisons, une méthode alternative a été développée.

La méthode de mesure basée sur l'autocorrélation a été mise en pratique pour exploiter des clichés de diffraction obtenus en précession en 2013 [3]. Elle a permis d'atteindre une sensibilité à la déformation de 2×10^{-4} avec une image enregistrée sur une caméra avec $2k \times 2k$ pixels.

III.A.2 MESURE ET PRETRAITEMENTS EN MODE PRECESSION

III.2.1 Prétraitement : correction des effets de perspectives

Pour effectuer une cartographie complète des déformations en mode précession le faisceau d'électrons est déplacé sur la surface d'un échantillon pendant un laps de temps.

Une caméra Stingray[®] fortement sensible et rapide est utilisée pour enregistrer les clichés de diffraction PED. Cette caméra est capable d'enregistrer un cliché de diffraction sur une matrice CCD de 512×512 pixels, au mieux toutes les 30 ms. Cette caméra est installée sur le MET JEOL 2010A hors de l'axe optique du microscope et acquière les clichés de diffraction projetés sur l'écran fluorescent installé en aval de la colonne (voir Figure III.1). Du fait de sa position excentrée, cette caméra enregistre des images déformées affectées par des effets de perspectives. Cet effet de perspectives n'est que partiellement corrigée par le logiciel fourni par le constructeur du module de précession Nanomegas. En effet la méthode de redressement proposée ne conserve pas les alignements de points si bien qu'une droite peut apparaître courbe après redressement des perspectives.

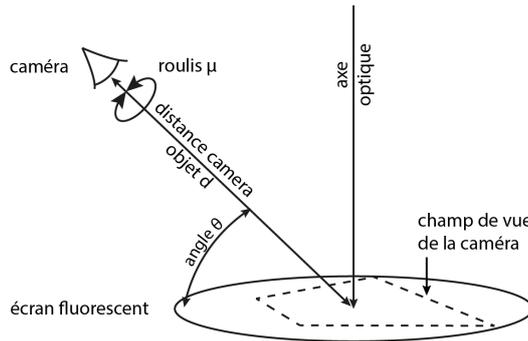


Figure III.2 : Schématisation de la position de la caméra rapide hors axe du MET JEOL 2010A et du champ de vue qu'elle observe sur l'écran fluorescent en aval de la colonne.

Deux rotations successives permettent d'exprimer la position d'un point de l'écran fluorescent (O, x, y) dans le repère (O, X, Y, Z) de la caméra :

$$R_z(\mu)R_x(\theta) \begin{pmatrix} x \\ y \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} X \\ Y \\ Z \end{pmatrix}. \quad (\text{III.4})$$

La caméra située à une distance d du centre de l'écran fluorescent effectue une projection du système de coordonnées 3D obtenu vers le système 2D de coordonnées (x_c, y_c) :

$$\begin{pmatrix} x_c \\ y_c \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} X \\ Y \end{pmatrix} \frac{d}{d+Z}. \quad (\text{III.5})$$

Cette projection permet d'obtenir un système non linéaire à deux inconnues qui peut être

inversé pour obtenir les transformations suivantes :

$$\begin{aligned} x &= \frac{d \cos \theta (x_c \cos \mu + y_c \sin \mu)}{y_c \sin \theta \cos \mu - x_c \sin \mu \sin \theta - d \cos \theta} \\ y &= \frac{d (x_c \cos \mu - x_c \cos \mu)}{y_c \sin \theta \cos \mu - x_c \sin \mu \sin \theta - d \cos \theta} \end{aligned}, \quad (\text{III.6})$$

avec (θ, μ, d) (voir Figure III.1) les deux angles caractéristiques (exprimés en radians) et d la distance (exprimée en mètres) entre la caméra et l'origine du plan orthogonale à l'axe optique.

Ce type de transformation est le résultat d'une projection qui, dans le cas présent, a pour effet de détériorer l'aspect périodique des clichés de diffractions dès lors que l'angle axial θ est non nul. C'est cette même faculté à détériorer la périodicité d'une image périodique que nous avons choisi d'utiliser comme critère pour corriger les effets de perspective dans les images acquises.

En effet, le module carré de la transformée de Fourier des images, ou "spectre de puissance" (power spectrum [4]), présente un contraste moindre lorsque la périodicité de l'image est altérée (voir Figure III.3). Ce contraste est évalué en calculant l'écart type du spectre de puissance de l'image redressée avec un triplet de paramètres (θ, μ, d) . L'écart type et le contraste du "spectre de puissance" sont maximum lorsque une image est correctement rétro-projetée en utilisant l'expression III.6.

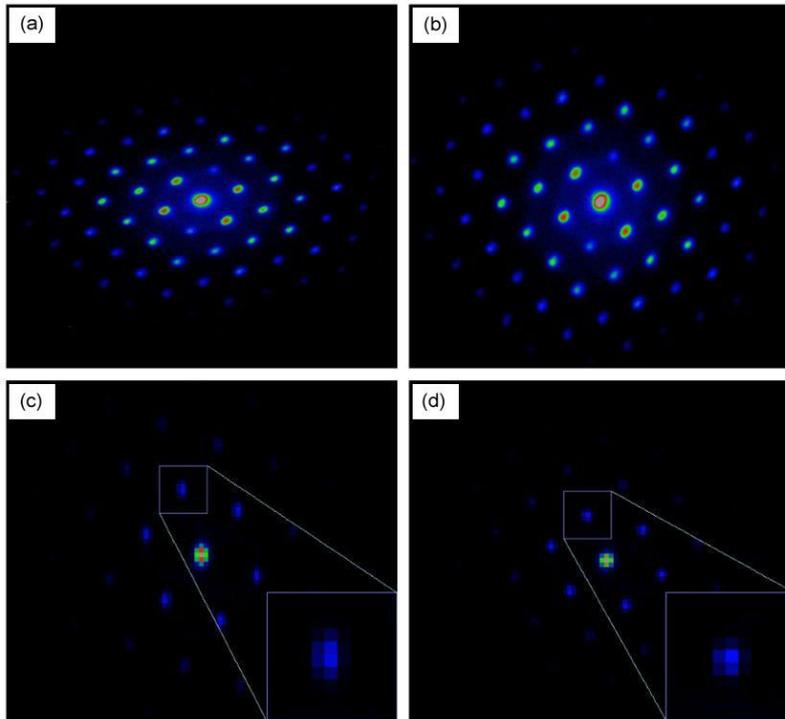


Figure III.3 : Images supposées périodiques et en fausses couleurs d'un cliché expérimental de diffraction PED obtenu sur un échantillon de silicium en axe de zone $\langle 110 \rangle$. (a) brut (b) Le même cliché corrigé avec notre méthode de redressement. (c-d) Les deux spectres de puissance de (a) et (b)

Ecart type des deux spectres de puissance : (a) $2,5 \times 10^{-9}$ et de (b): $4,0 \times 10^{-9}$

N'ayant pas accès aux paramètres d'ajustement (θ, μ, d) de manière précise, nous avons effectué une mesure grossière de l'angle de roulis et de l'angle axial de la caméra ($(\theta; \mu) = (46^\circ, 0^\circ)$). Par

la suite, un algorithme de minimisation (simplex) a été utilisé pour déformer un cliché de diffraction en utilisant l'expression III.6 afin de maximiser le contraste du spectre de puissance [5]. La Figure III.3 (c) présente le spectre de puissance optimisé obtenu avec cette méthode de redressement avec un cliché de diffraction expérimental réalisé avec un angle de précession de 1.44° . Cet optimum ($44.99^\circ ; 1.75^\circ$) a été trouvé proche des valeurs mesurées pour les deux angles (θ, μ) de la caméra. En outre, la transformation qui a permis d'obtenir ce résultat a été également utilisée pour redresser un cliché de diffraction produit par un matériau amorphe. Ce redressement a permis de restituer la symétrie centrale caractéristique de ce type de cliché.

Un même cliché type de diffraction de silicium a été redressé à l'aide de la méthode proposée par Nanomégas et avec notre méthode. La reconnaissance de ceux-ci a été réalisée via le logiciel ASTAR. La figure III.4 montre une identification du cliché de diffraction Si en axe de zone $\langle 110 \rangle$ plus juste lorsque le cliché est corrigé avec notre méthode.

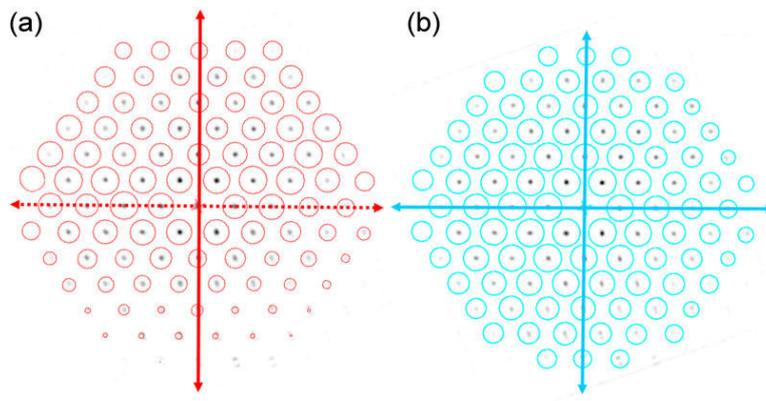


Figure III.4 : Restitution de la figure de diffraction expérimentale identifiée¹ à l'aide du logiciel ASTAR et du cliché de diffraction PED de silicium en axe de zone $\langle 110 \rangle$ (a) redressé avec la méthode de ASTAR (b) redressé avec la méthode développée pour ce travail. (les axes de symétrie remarquables sont représentés en trait plein. Un axe de symétrie non restitué est représenté en trait discontinu)

L'influence du redressement des perspectives sur la mesure des déformations est illustrée dans l'étude des multicouches Si/SiGe qui figure dans ce chapitre.

¹Indices figuratifs de la robustesse d'identification [6,7] (a) indice de qualité de correspondance cliché simulé / cliché expérimental : $Q=1241$, Indice d'ambiguïté (Reliability, pourcentage d'ambiguïté d'identification entre les deux meilleures solutions envisageables les plus proches) $R=48$ (b) $Q=1267$, $R=47$ (voir paragraphe III.B.1)

III.A.2.2 Algorithme Delaunay et mesure de déformations

La méthode de mesure des déformations par triangulation Delaunay [5] a pour objectif l'automatisation de la mesure des déformations en mode précession. Elle est fondée sur trois hypothèses :

- Un spot de diffraction présente une symétrie centrale lorsqu'il est produit par un monocristal irradié pour un faisceau faiblement convergent d'électrons.
- Un cliché de diffraction cinématique présente une distribution d'intensité périodique.
- Une portion de l'image de diffraction PED, contenue dans un disque de rayon R_{cin} , est susceptible de contenir une information "quasi cinématique" fortement sensible à la déformation du cristal diffractant.

Cette méthode a été conçue pour pouvoir effectuer une mesure des vecteurs de base du réseau réciproque du cristal, directement dans l'image de diffraction, sans avoir recours à une autocorrélation.

Tout d'abord, chaque cliché de diffraction est débarrassé du bruit parasite de mesure en appliquant un filtre en fréquence de type passe bande. Le fond continu de l'image filtrée est retiré en soustrayant un seuil, $\bar{I}_{\text{fond continu}} + 3\sigma_{\text{fond continu}}$, défini avec la moyenne $\bar{I}_{\text{fond continu}}$ et l'écart type $\sigma_{\text{fond continu}}$ de la distribution d'intensité mesurée dans une zone d'image exempte de tout signal dû à la diffraction. Après le filtrage des images de diffraction, la première hypothèse sur laquelle se fonde la méthode de mesure Delaunay est utilisée.

La position sub-pixel $(k_{i,x}, k_{i,y})$ de chaque spot i de diffraction est obtenue en calculant le centre de masse des zones contiguës du signal, au dessus d'un seuil, sur l'image filtrée. Ce seuil permet de distinguer un maximum de zones contiguës dans le signal. Ces zones sont les spots de diffraction. La mesure de la position des centres de masse respectifs des spots de diffraction est effectuée par le biais du module générique "3D Object Counter" du logiciel libre ImageJ.

Afin de minimiser l'erreur systématique faite sur la mesure de la norme d'un vecteur liant deux spots de diffraction, une série de N mesures distinctes d'un même vecteur \vec{g}_{hkl} est réalisée. De cette manière, l'erreur relative de mesure de $\Delta g_{hkl} / g_{hkl}$ est rapportée à $\Delta g_{hkl} N^{-1/2} / g_{hkl}$. La réalisation de ces N mesures est envisageable en précession puisque les clichés PED peuvent exhiber une grande quantité de spots de diffraction. La dernière difficulté pour réaliser cette mesure est d'identifier au préalable quelles sont les paires (i,j) de spots de position  et  qui doivent être utilisées pour mesurer un vecteur \vec{g}_{hkl} .

La triangulation Delaunay [8] est une méthode mathématique bien connue dans le domaine de la triangulation en téléphonie mobile (GSM). Cette méthode mathématique définit une façon de construire, à partir d'une série de points, une figure géométrique simple (ici un triangle), dans laquelle aucun point n'est inclus. Ces figures, nommées triangles de Delaunay, sont toutes construites suivant une même règle. Une triangulation Delaunay, effectuée sur un réseau parfaitement périodique de points, ne produit qu'un seul type de triangle caractérisé par trois

vecteurs de Delaunay $\mathbf{v}_m = \{\mathbf{v}_m^{(1)}, \mathbf{v}_m^{(2)}, \mathbf{v}_m^{(3)}\}$ [9]. Une représentation polaire des composantes de ces différents vecteurs permet de distinguer trois groupes principaux de vecteurs $\mathbf{v}_m^{(1)}$, $\mathbf{v}_m^{(2)}$ et $\mathbf{v}_m^{(3)}$ caractéristiques du réseau de spots de diffraction.

Expérimentalement l'histogramme des composantes polaires (k, θ) de ces trois groupes de vecteurs de Delaunay ne montre pas une distribution piquée. Ceci est dû, majoritairement, à une erreur systémique de mesure induite par la discrétisation des clichés lors de leur acquisition (pixellisation). A condition donc d'avoir une résolution de caméra suffisante, les composantes polaires et radiales des vecteurs de Delaunay sont réparties sur plusieurs distributions disjointes:

- Sur l'histogramme qui peut être réalisé suivant la composante θ : plusieurs distributions séparées par des intervalles non peuplés sont observées. Ces distributions dénotées par l'indice entier m sont classées de la distribution la plus peuplée à la moins peuplée. Les vecteurs qui les composent sont compris sur des intervalles nommés \mathbf{O}_m .
- Sur l'histogramme qui peut être réalisé suivant la composante radiale k des éléments inclus dans l'intervalle \mathbf{O}_m , plusieurs distributions sont observées, séparées par des intervalles non peuplés. Parmi ces distributions, la plus peuplée est conservée. Les coordonnées des vecteurs qui composent cette distribution sont comprises simultanément sur un intervalle Γ_m et sur l'intervalle \mathbf{O}_m .

Chaque population de vecteurs, dont les composantes polaires sont incluses simultanément sur deux ensembles $\Gamma_m = [k_m^{\min}, k_m^{\max}]$ et $\mathbf{O}_m = [\theta_m^{\min}, \theta_m^{\max}]$, est donc définie. Chacune est identifiée par une longueur et un angle moyen $(\bar{k}_m, \bar{\theta}_m)$ ainsi que deux écarts types $(\sigma(k_m), \sigma(\theta_m))$. En ne considérant que les distributions avec $m \in \{1; 2; 3\}$, on isole trois vecteurs du réseau réciproque $\mathbf{v}_m = \mathbf{v}_m(\bar{k}_m, \bar{\theta}_m)$.

Les trois vecteurs de base du réseau réciproque peuvent également être mesurés à partir de vecteurs qui lient deux spots $n^{\text{èmes}}$ voisins : \mathbf{v}_m . Après avoir constitué, pour $m \in \{1; 2; 3\}$, les populations de vecteurs (\mathbf{O}_m, Γ_m) , toutes les combinaisons de vecteurs $(k_i^{(x)}, k_i^{(y)}) + (k_j^{(x)}, k_j^{(y)})$ sont réalisées à partir des doublets de spots de diffraction (i,j) mesurés dans le cliché de diffraction. Les vecteurs dont les composantes polaires sont incluses simultanément dans les ensembles $[n\bar{k}_m \pm \sigma(\bar{k}_m)]$ et $[\bar{\theta} \pm \sigma(\bar{\theta}_m)]$ sont alors conservés. Ces vecteurs sont mesurés avec une erreur systémique moindre que pour une mesure effectuée avec les spots de diffraction plus proches voisins. En contrepartie, ces mesures plus précises sont d'autant moins nombreuses qu'on augmente le paramètre de mesure n (du fait de l'étendue limitée du réseau de spots de diffraction dans un cliché PED). Ceci explique qu'un optimum n_{opt} peut être défini pour permettre de minimiser l'erreur systémique de mesure $\Delta g_{hkl} / \sqrt{N}$ (avec N le nombre mesures).

La troisième hypothèse sur laquelle repose la méthode de mesure de déformation par triangulation Delaunay, est à ce stade de l'analyse aisément mise en pratique. Toute la

procédure ci-dessus peut être cantonnée à l'étude des spots de diffraction contenus dans un disque de rayon R_c centré sur la position du spot de diffraction le plus intense (faisceau transmis). En théorie, avec une mesure faite avec les spots premiers voisins, la sensibilité de la mesure de déformation décroît dès lors que des spots hors de ce disque sont utilisés. Pour ce rayon cinématique, un nouvel optimum pour la mesure n_{opt} peut être défini pour atteindre une sensibilité maximale à la déformation.

En définitive la méthode de mesure par triangulation Delaunay permet de mesurer trois vecteurs qui décrivent le réseau périodique de spots de diffraction dans les clichés PED. Elle nécessite pour l'expérimentateur de choisir librement deux des trois vecteurs \mathbf{g}_i identifiés par la méthode pour mesurer la déformation, et de filtrer les clichés de diffraction en vue de leur analyse. Les vecteurs choisis : \mathbf{g}_1 et \mathbf{g}_2 constituent une matrice \mathbf{G}_{mesure} , représentative du réseau réciproque du cristal, en un point de mesure. En comparant une matrice du réseau réciproque \mathbf{G}_{mesure} à une seconde matrice du réseau réciproque \mathbf{G}_{ref} mesurée dans une zone de référence non contrainte [1], une mesure relative de la déformation ε_{ij} et de la rotation Ω_{ij} de la zone cristalline étudiée est obtenue (par rapport à la zone cristalline de référence) :

$$\left. \begin{array}{l} \mathbf{g}_1 = \begin{pmatrix} g_{1,x} \\ g_{1,y} \end{pmatrix} \\ \mathbf{g}_2 = \begin{pmatrix} g_{2,x} \\ g_{2,y} \end{pmatrix} \end{array} \right\} \mathbf{G}_{mesure} = \begin{bmatrix} g_{1,x} & g_{1,y} \\ g_{2,x} & g_{2,y} \end{bmatrix}, \quad \mathbf{D} = (\mathbf{G}_{mesure})^{-1} \mathbf{G}_{ref} - \mathbf{1} \quad \left\{ \begin{array}{l} \Omega_{ij} = \frac{1}{2}(D_{ij} - D_{ji}) \\ \varepsilon_{ij} = \frac{1}{2}(D_{ij} + D_{ji}) \end{array} \right. \quad (\text{III.7})$$

III.A.2.3 Influence des paramètres expérimentaux sur la mesure

Superposition de grains dans l'échantillon

Le faisceau d'électrons en précession traverse un volume d'échantillons plus ou moins étendu dans lequel plusieurs grains cristallins, ou matériaux, peuvent se trouver. Ces matériaux sondés simultanément produisent chacun une figure de diffraction propre qui, s'ajoutant aux autres, forme une nouvelle figure de diffraction. Plus le volume sondé par la sonde électronique en précession est occupé par un unique matériau et plus la figure de diffraction observée est représentative de ce matériau. Autrement dit, la mesure locale de la déformation, réalisée à partir de la diffraction est d'autant plus juste que la sonde en précession occupe un volume d'échantillons de faible étendue où un seul constituant de l'échantillon est irradié à la fois. Ceci se produit lorsque l'épaisseur de la lame MET est inférieure à la taille caractéristique des grains.

Lorsque deux matériaux sont sondés simultanément, et ne diffèrent que par leurs déformations, la figure de diffraction obtenue présente une superposition des spots de diffraction du premier et du second matériau sondé. La superposition de ces spots de diffraction les rend indiscernables et la mesure de la périodicité du cliché de diffraction obtenu renseigne sur une déformation "moyenne" évaluée dans les deux matériaux sondés.

Taille de sonde ou résolution spatiale en mode PED

La distribution d'intensité normalisée du faisceau d'électrons en précession V_{sonde} possède la forme d'un cône évidé. Une variation de cette distribution affecte la taille de la sonde en précession et modifie les valeurs des mesures de déformation. Expérimentalement, la sonde en précession est déplacée sur la surface de l'échantillon d'une position repérée par le vecteur \vec{r} à une autre. Ceci permet d'obtenir une mesure du champ de déformation Σ_{ij} qui peut être exprimée comme la convolution du champ de déformation ϵ_{ij} qui opère dans l'échantillon et de la projection de $V_{sonde}(\vec{r})$ suivant l'axe du faisceau I_{sonde} :

$$\Sigma_{ij} \approx \epsilon_{ij} \otimes I_{sonde} \tag{III.8}$$

Par convention Σ_{ij} est communément noté ϵ_{ij} dans la littérature, c'est pourquoi il apparaît ainsi, ailleurs dans ce document.

La distribution d'intensité V_{sonde} évolue lorsque le faisceau en précession est correctement aligné en fonction de trois paramètres qui varient d'une expérience à une autre :

- l'épaisseur de l'échantillon sondé
- Le demi-angle de convergence du faisceau d'électrons
- Le demi-angle de précession du faisceau d'électrons

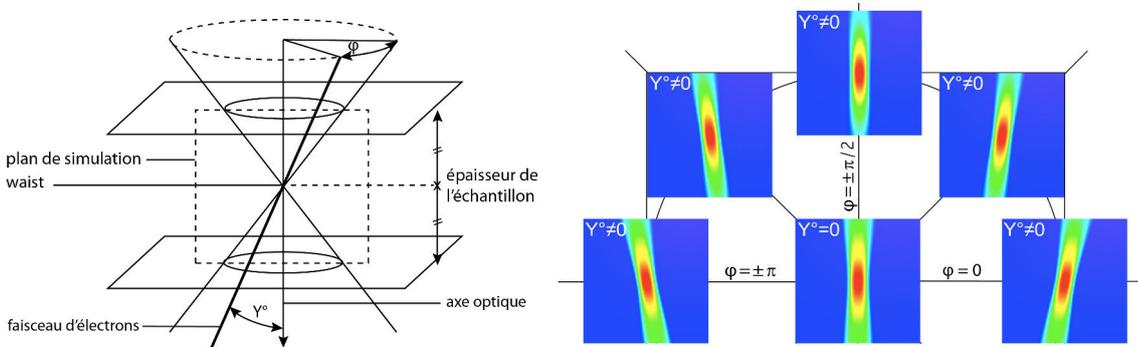


Figure III.5 : (a) Schématisation de la trajectoire du faisceau à travers l'échantillon (trajectoire repérée par les angles Y° et φ) (b) Exemples de calculs de densité d'énergie calculés dans le plan de simulation (illustré en (a)) pour un faisceau gaussien d'électrons avec un demi-angle de précession quelconque (et nul).

Afin d'évaluer l'impact de ces trois paramètres sur la résolution spatiale d'une mesure en précession, nous avons entrepris de simuler, de manière géométrique, l'évolution du volume d'échantillon irradié en mode PED. Cette simulation a été réalisée avec un faisceau supposé gaussien [10], dans le cas idéal d'un système optique sans aberrations, avec l'axe de révolution du cône de précession défini colinéaire à l'axe optique du MET. Le pouvoir de résolution de cet instrument idéal est supposé être limité par le seul phénomène de diffraction de Fraunhofer. Enfin, la géométrie de l'échantillon préparé en lame mince est prise en compte en effectuant le

calcul de V_{sonde} entre deux plans parallèles (Voir figure III.5).

La taille de sonde est définie comme l'écart type de la distribution normalisée I_{sonde} obtenue en projetant la distribution $V_{sonde}(\vec{r})$ simulée sur la surface de l'échantillon. La distribution d'intensité I_{sonde} s'avère être toujours assimilable à une somme de distributions gaussiennes centrées lorsque l'échantillon est positionné de sorte que le centre de l'épaisseur coïncide avec le centre de symétrie du cône de précession. Ailleurs, cette distribution adopte une forme différente et plus étendue. La taille de sonde est donc évaluée dans une situation qui place le centre de l'épaisseur de l'échantillon au niveau du centre de symétrie du cône de précession. L'évolution simulée de la taille de sonde $\sigma(I_{sonde})$ est représentée ci-après avec douze configurations de demi-angles de précession et de convergence différents. Les résultats du calcul de taille de sonde présentés sur la figure III.6 sont obtenus lorsque la distribution d'intensité $I_{sonde}^{(i)}$ simulée à l'issue de i itérations converge à 1×10^{-6} près :

$$I_{sonde} = I_{sonde}^{(i)} \sqrt{|I_{sonde}^{(i)} - I_{sonde}^{(i-1)}|} \leq 10^{-6}. \quad (III.9)$$

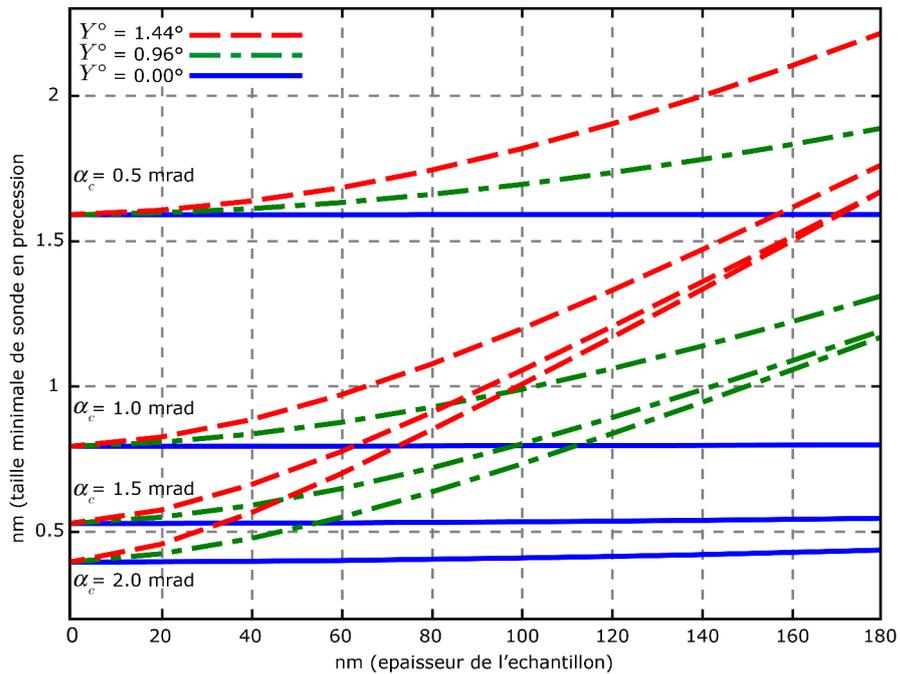


Figure III.6 : Taille de sonde en précession calculée pour un faisceau d'électrons gaussien dans un système optique sans aberrations, limité par la seule diffraction de Fraunhofer en fonction de l'épaisseur de l'échantillon (échantillon fictif non absorbant et non diffusif préparé sous la forme d'une lame mince MET) pour quatre demi-angles de convergence α_c et trois demi-angles de précessions Y° distincts.

L'alignement du faisceau en mode précession est d'autant plus difficile à réaliser que les demi-angles de précession et de convergence sont importants. En effet, plus le demi-angle de convergence est important, plus l'influence de l'aberration sphérique de la lentille objectif

devient pénalisante. Aussi, plus le demi-angle de précession est grand et plus l'ajustement de la position de l'échantillon dans la colonne du microscope doit être réalisé avec précision. Les résultats présentés sur la Figure II.6 montrent qu'une expérience est susceptible d'atteindre la même résolution spatiale pour deux configurations expérimentales qui ne nécessitent pas la même complexité d'alignement. Par exemple, on s'attend à obtenir une résolution spatiale identique pour une épaisseur de lame échantillon de 80 nm avec deux configurations différentes : ($Y^\circ = 0.96^\circ, \alpha_c = 1.0 \text{ mrad}$) et ($Y^\circ = 1.44^\circ, \alpha_c = 1.5 \text{ mrad}$).

Les simulations de taille de sonde effectuées ici ont également permis d'apprécier l'évolution de la forme de la sonde électronique en fonction de la position de l'échantillon le long de l'axe optique du MET. Dans le cas critique d'un défocus important (situation dans laquelle le centre de l'épaisseur de l'échantillon est éloigné du centre de symétrie du cône de précession) la sonde en précession I_{sonde} possède une forme de "volcan". Cette forme de sonde est particulièrement pénalisante pour effectuer une mesure de déformation. La convolution du profil de cette sonde et d'un signal carré (voir expression III.8) permet d'illustrer l'origine du profil qui a été obtenu expérimentalement en mesurant une déformation avec un fort défocus. Ce profil de déformation a été mesuré là où le faisceau d'électrons est venu franchir un duo d'interfaces abruptes qui délimitent trois zones cristallines Si/SiGe/Si : voir figure III.7. Cette forme de sonde mène à mesurer une figure de diffraction dans laquelle le matériau sondé contribue moins que les matériaux qui l'entourent.

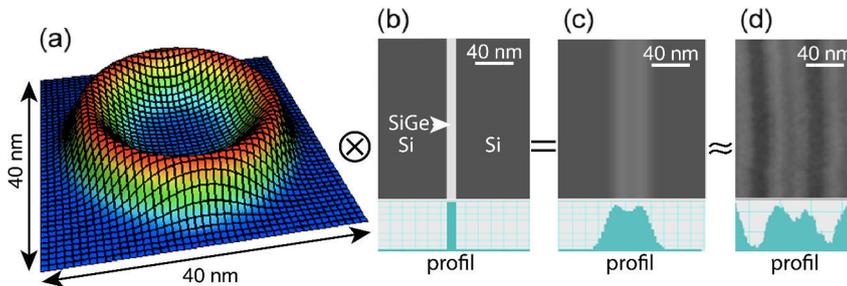


Figure III.7 : (a) profil d'intensité type (en "volcan") de la sonde électronique en précession simulé avec un fort défocus (b) cartographie et profil de déformation mesurable avec un dispositif expérimental parfait (c) Convolution de la cartographie théorique illustré en (b) et de la distribution d'intensité dans la sonde électronique illustrée en (a) (Cf expression III.A.8) (Le profil transverse de cette cartographie est également reporté ici). (d) cartographie et profil d'intensité mesuré en précession sur l'échantillon MET de multicouches Si/SiGe.

En conclusion, la taille et la forme de la sonde électronique sont deux paramètres qui peuvent être ajustés et qui doivent être contrôlés lors d'expérimentations en mode précession. La déformation mesurée avec un échantillon mal positionné le long de la colonne du microscope est peu représentative du champ de déformation qui opère dans l'échantillon étudié.

III.A.2.3 Influence des paramètres expérimentaux dans l'espace réciproque

Zone de mesure des clichés de diffraction en mode précession

A priori, la méthode de mesure en précession implique d'obtenir dans le plan de Fourier de la lentille objectif d'un MET deux portions distinctes aux propriétés différentes, que l'algorithme Delaunay est susceptible de différencier. En situation d'axe de zone, une de ces portions est dite "quasi-cinématique" (voir paragraphe II.2.1). Elle est circulaire et centrée sur le faisceau transmis. Dans cette première portion du plan de Fourier, la position des spots diffractés coïncide fortement avec celle attendue en condition cinématique. Ailleurs l'information mesurée est plus représentative des effets dynamiques subi par le faisceau d'électrons diffracté. En pratique, ces deux zones ne peuvent être observées en effectuant une mesure des déformations. En effet, la résolution de mesure des caméras ne permet pas de distinguer les écarts de positions des spots, par rapport aux positions cinématiques. En effet, ceux-ci sont trop faibles dans le champ de vue de la caméra d'enregistrement du MET (champ de vue de caméra $> 0.5 \text{ \AA}^{-1}$; écart de la position d'un spot par rapport à sa position théorique, cinématique : $< 10^{-2} \text{ \AA}^{-1}$). Pourtant, la mesure de la déformation en mode PED a montré qu'en utilisant les distances mesurables entre spots plus proches voisins, sur une portion de la diffraction, permet d'atteindre une sensibilité de mesure plus satisfaisante que lorsque la mesure des déformations est faite sur l'ensemble du cliché de diffraction (voir tableau III.1). Cette portion circulaire centrée sur le faisceau transmis a été mesurée avec un rayon R_c de $0.96 \pm 0.1 \text{ \AA}^{-1}$ sur du silicium avec un faisceau de 200 kV, en précession avec un demi-angle Y° de 1.44° . Cette zone optimale délimite deux portions dans le cliché de diffraction : l'une où le rapport signal sur bruit a permis de calculer convenablement la position des spots de diffraction, et l'autre où ce n'est pas le cas.

$R_c \text{ (}\text{ \AA}^{-1}\text{)}$	0.64	0.80	0.96	1.12	1.28
Sensibilité	9.66×10^{-4}	6.03×10^{-4}	3.41×10^{-4}	4.53×10^{-4}	7.07×10^{-4}

Tableau III.1 : Evolution de la sensibilité de la mesure de déformation faite en mesurant les spots plus proches voisins, en fonction du rayon R_c ($\leq R_c$) dans lequel ces derniers sont pris en compte pour l'analyse des clichés de diffraction PED.

La simulation par ondes de Bloch, en fonction du demi-angle de précession et de la valeur du rayon R_c a permis de mettre en évidence une évolution de ce paramètre en deux temps. Une première phase où R_c croît, suivie d'une seconde où plus aucune évolution n'est observée. Cette seconde phase survient pour un demi-angle de précession critique, dès lors que le facteur de diffusion du matériau devient trop faible pour que l'observation de spots de diffraction additionnels soit possible.

Les résultats de ces simulations (voir figure II.8) montrent qu'accroître le demi-angle de précession permet bien d'observer d'avantage d'ordres diffractés dans les clichés de diffraction. Cependant, cette tendance n'est pas vérifiée au delà d'une valeur critique du demi-angle de précession. Ainsi, avec un dispositif capable d'enregistrer 95% de l'intensité diffractée et pour

étudier un échantillon MET de silicium en axe de zone $\langle 110 \rangle$, de 100 nm d'épaisseur, l'emploi d'un demi-angle de précession supérieur à 0.98° ne mène plus à une augmentation significative du nombre de spots sur les clichés obtenus en mode PED.

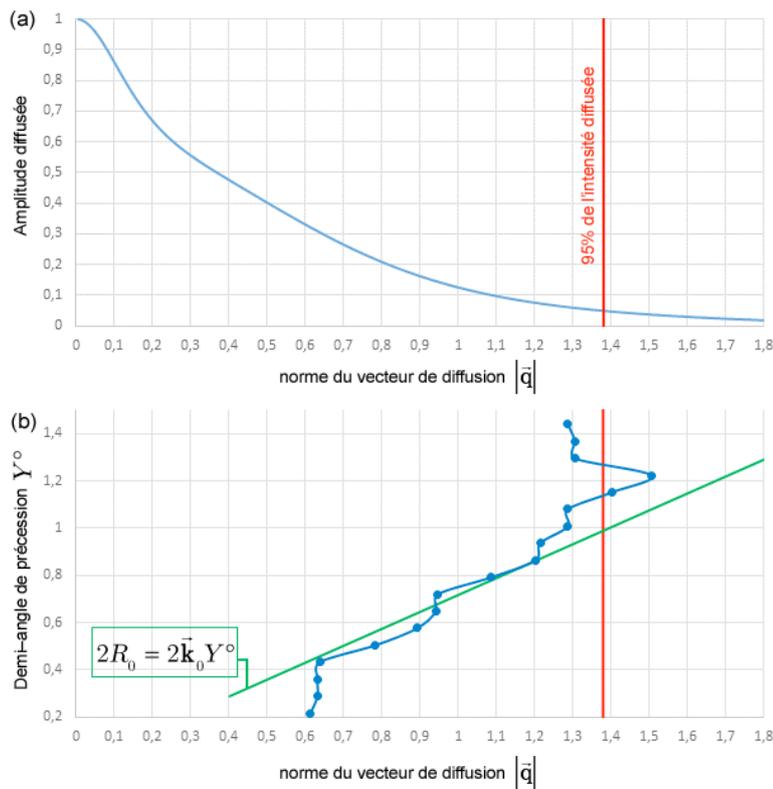


Figure III.8 : (a) (courbe bleue) Facteur de diffusion électronique évalué par le biais de l'approche proposée par Doyle et Turner sur du silicium pour un faisceau de 200 kV. (b) (courbe bleu) Evolution du demi-angle de précession en fonction de la distance au transmis dans laquelle 95% de l'intensité diffractée simulée est observée (simulation dynamique effectuée sur un échantillon de Silicium en axe $\langle 110 \rangle$ de 100 nm d'épaisseur, par le biais d'une approche par ondes de Bloch). (courbe verte; voir paragraphe II.2.1) Tracé de l'évolution théorique du rayon $R_c = \frac{1}{2} Y^\circ$ dans lequel l'intensité en précession est dite "quasi-cinématique". 95% de l'intensité est diffusée pour un vecteur de diffusion $q = 1.38 \text{ \AA}^{-1}$ avec l'échantillon de silicium simulé. L'indicateur rouge marque cette position sur les deux graphiques (a) et (b).

Rémanence de l'écran fluorescent

Faire le choix du temps caractéristique d'enregistrement des clichés de diffraction pendant une acquisition ne se résume pas à s'assurer que la diffraction est bien visible sur les images enregistrées.

Un écran fluorescent peut être observé pour permettre d'enregistrer la diffraction comme dans le microscope JEOL 2010A. Ce dispositif de mesures a une rémanence propre qui peut être mesurée en enregistrant la décroissance de l'intensité qu'il continue à produire après une interruption de signal (voir figure III.8). Sur le MET JEOL 2010A cet écran fluorescent produit

un signal lumineux qui diminue de moitié au bout d'un temps évalué à 60 ms après la fin d'une exposition au faisceau d'électrons.

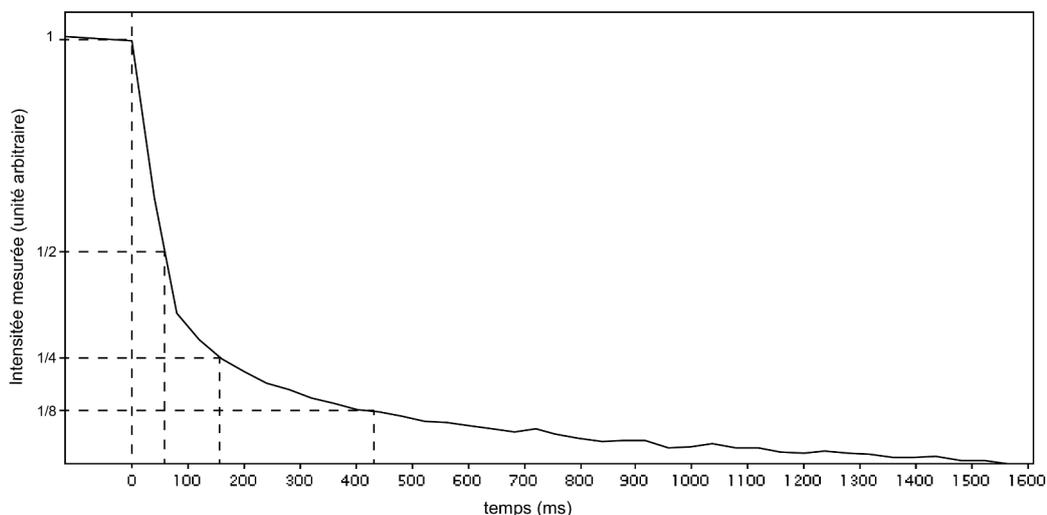


Figure III.9 : Décroissance de l'intensité mesurée sur l'écran fluorescent du MET JEOL 2010A suite à l'interruption du faisceau d'électrons incident à l'instant $t=0$ ms. Ce résultat est le fruit de 20 mesures moyennées et obtenues via la caméra Hamamatsu native du MET JEOL 2010 A.

Lorsqu'une mesure est réalisée avec une fréquence d'échantillonnage trop élevée, les clichés de diffraction obtenus présentent une intensité qui n'est que partiellement représentative du matériau sondé. Du fait de la rémanence de l'écran fluorescent, une partie du signal mesuré en un point sondé rend compte de la diffraction qui a pu être observée précédemment, ailleurs que sur le point de mesure. Le phénomène de rémanence entache la qualité de la mesure de la déformation en précession. Son influence peut être minimisée de deux manières :

- En faisant le choix de réduire la fréquence d'enregistrement des clichés de diffraction.
- En intercalant un temps de pause entre chaque acquisition durant lequel le faisceau d'électrons est masqué, ou simplement dévié, de sorte qu'il n'impacte pas l'écran fluorescent.

Pour mettre en pratique l'une de ces deux solutions, un équilibre doit être trouvé pour que l'échantillon puisse rester statique durant l'expérience. En effet l'accroissement de la période d'enregistrement allonge la durée globale des mesures et augmente la probabilité d'avoir une expérience qui pâtit des instabilités mécaniques² de l'expérience (dérives ou en anglais "drift").

² Une expérience de mesure d'une cartographie des déformations en mode PED devient également moins sujette aux instabilités mécaniques si l'enregistrement est réalisé après une période où le MET est laissé inactif. Cette période d'inactivité préliminaire dure 30 mn sur le microscope JEOL 2010A. Pendant cette période, les courants d'excitation des lentilles se stabilisent également si bien que l'alignement du faisceau d'électrons en précession gagne lui aussi en stabilité.

Courbure et épaisseur de l'échantillon

L'orientation du cristal diffractant en mode précession impacte la mesure des déformations. Par exemple la mesure de la déformation 2D dans un échantillon ne peut être réalisée que lorsque cet échantillon est irradié en position d'axe de zone. Plus l'échantillon est incliné hors de cette orientation optimale, plus la sensibilité de la mesure de déformation est dégradée. En contrepartie, plus le demi-angle de précession est choisi grand et moins la sensibilité de la mesure de déformation 2D pâtit de la désorientation de l'échantillon.

Pour illustrer ce constat, plusieurs simulations de clichés de diffraction PED ont été réalisées par ondes de Bloch avec un échantillon de Silicium incliné d'un angle croissant, hors de l'axe de symétrie [110]. Ces simulations ont été menées pour cinq demi-angles de précession distincts avec un demi-angle de convergence de 0,5 mrad. La déformation a été mesurée sur les clichés simulés, dans la direction orthogonale à l'axe d'inclinaison du cristal \vec{g}_{002} avec la méthode algorithmique Delaunay. Pour ce faire les distances entre spots premiers voisins ont été mesurées. La condition pour qu'un spot de diffraction soit pris en compte est la même pour chaque analyse: $d_{hkl} < 2.5 \times d_{111}$ (voir figure III.10).

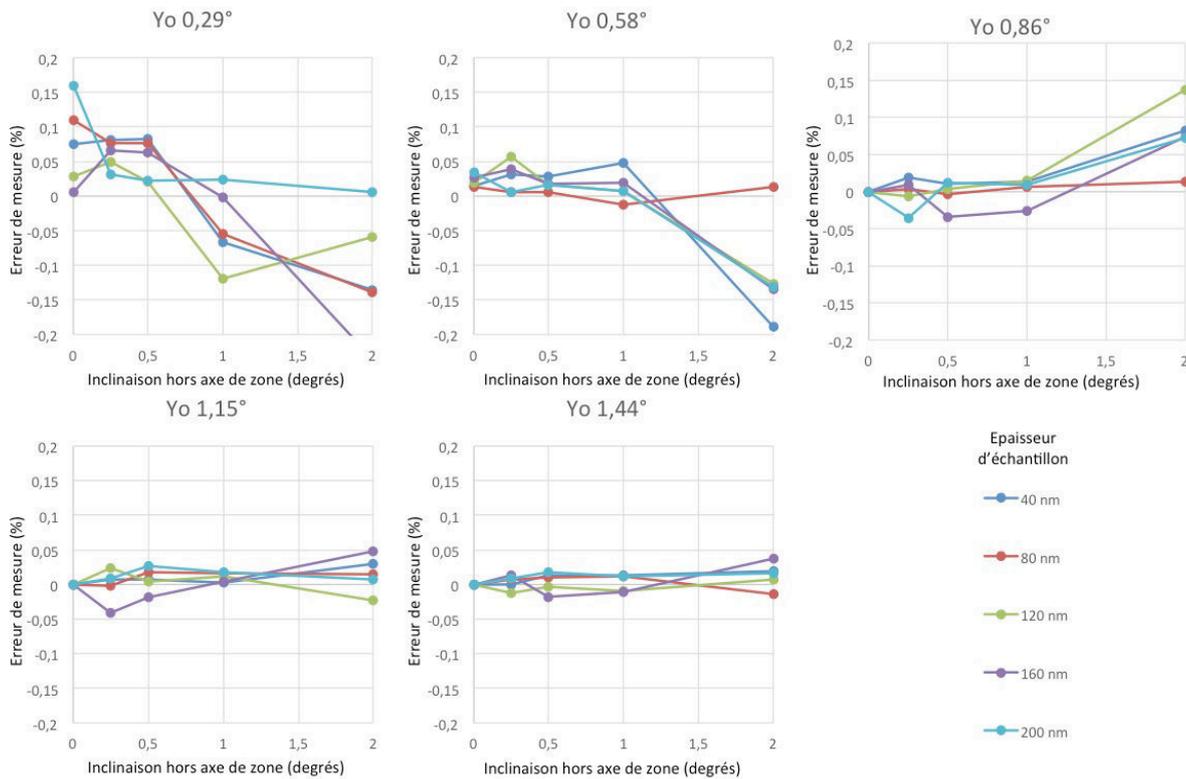


Figure III.10 : Déformation mesurée dans la direction orthogonale à l'axe d'inclinaison du cristal avec la méthode algorithmique Delaunay sur 20 simulations par ondes de Bloch obtenues sur du silicium. Les paramètres qui varient ici sont : l'épaisseur de l'échantillon MET, sa désorientation par rapport à l'axe cristallin [110] (exprimée en degrés) et le demi-angle de précession Y° .

Les résultats présents sur la figure III.10 illustrent le fait que plus le demi-angle de précession est grand, plus la déformation 2D est mesurée avec justesse sur un cristal faiblement désorienté.

Résolution de caméra et grandissement en mode diffraction

La sensibilité de la mesure de la déformation, basée sur l'exploitation des clichés de diffraction obtenus en précession, est dépendante de la qualité des images expérimentales. Plus les spots de diffraction observés sont enregistrés sur une image fortement résolue, et plus la mesure de la norme du vecteur \mathbf{g} , qui sépare deux spots de diffraction, est réalisée avec une incertitude relative $\Delta g/g$ faible. De la même manière, l'erreur systématique de mesure de la déformation diminue en effectuant des enregistrements de plus en plus résolus des clichés de diffraction. Pour obtenir une mesure plus fiable des déformations à partir de l'étude des clichés de diffraction en mode précession, il est donc préférable de s'assurer que les figures de diffraction enregistrées occupent pleinement l'espace d'enregistrement mis à disposition lors de l'expérience.

MET	Caméra / résolution (pixels)	Sensibilité de la mesure de déformations
JEOL 2010A	Stingray (perspectives corrigées) / 512x512	3.8×10^{-4}
JEOL 2010A	Hamamatsu / 1024x1024	2.4×10^{-4}
FEI Titan Ultimate	Gatan / 2048x2048	1.0×10^{-4}

Tableau III.2 : Sensibilité des mesures des déformations, effectuées avec la méthode algorithmique Delaunay sur positions des spots premiers voisins du faisceau transmis, en fonction de la résolution des clichés de diffraction.

Afin d'illustrer ces propos, nous avons réalisé deux enregistrements sur le MET JEOL 2010A, à partir des deux caméras disponibles sur ce microscope, sur un échantillon relaxé de silicium. Le même travail a été réalisé sur le MET FEI Titan Ultimate avec une caméra d'une résolution supérieure aux deux caméras utilisées sur le MET JEOL. Ces enregistrements ont fourni des clichés de diffraction qui occupent pleinement l'espace d'enregistrement disponible sur chaque caméra. Enfin chacune de ces acquisitions a été traitée via l'algorithme de triangulation Delaunay. Les mesures de déformation ainsi obtenues ont une sensibilité à la déformation qui décroît en même temps que la résolution de caméra croît (voir tableau III.2).

Convergence du faisceau d'électrons

Accroître la convergence du faisceau d'électrons permet d'effectuer une mesure spatialement plus résolue de la déformation. En revanche, les spots de diffraction apparaissent dans ce cas sous la forme de disques. Dès lors que le demi-angle de précession est suffisamment grand pour permettre de n'observer que de faibles variations d'intensité dynamique dans ces disques, la mesure de leurs positions peut être réalisée directement sur l'image expérimentale. Pour ce faire la position moyenne des pixels inclus dans chaque disque peut être calculée. Ces pixels sont sélectionnés au dessus d'un seuil de détection qui est défini en fonction du fond continu des images, comme dans le cas de l'identification de spots gaussiens en faisceau quasiment parallèle.

Ceci permet de ne considérer que le signal diffracté (disques de diffraction) au détriment du fond continu et du bruit dans les images. Cette méthode peut être utilisée pour obtenir les positions sub-pixel des disques de diffraction utilisables avec l'algorithme de mesure Delaunay.

Dans un cas d'étude où le demi-angle de précession ne permet pas d'observer une diffraction "quasi-cinématique", une autocorrélation peut se montrer utile. Dans ces conditions, les disques de diffraction sont peu nombreux et présentent des contrastes dynamiques non négligeables comme pour un mode d'observation CBED. Pour ce type d'étude, la périodicité des clichés de diffraction est évaluée à partir des positions des maxima dans l'autocorrélation. Pour calculer ces positions la valeur de la norme du gradient du signal de l'autocorrélation est tout d'abord calculée. Le centre de masse est alors évalué là où cette valeur est proche de zéro, au dessus d'une intensité seuil évaluée dans une zone dénuée de signal de diffraction.

III.A.3 EXEMPLES D'APPLICATIONS

III.A.3.1 Multicouches Si/SiGe

Présentation

Le premier échantillon étudié lors de ce travail est un échantillon couramment utilisé lors du développement, ou de l'étude, de nouvelles méthodes de mesure de déformations au laboratoire. Cet échantillon a été réalisé au LETI par RPCVD (Reduced Pressure-Chemical Vapour Deposition) [11]. Il est composé de quatre couches de SiGe de 10 nm d'épaisseur, distantes de 30 nm, et enterrées sur une couche de silicium (150 nm ; voir figure III.11). La composition en germanium dans ces couches croît au fur et à mesure que l'on se rapproche de la surface libre de l'échantillon. Ceci permet d'obtenir des couches déformées de plus en plus fortement.

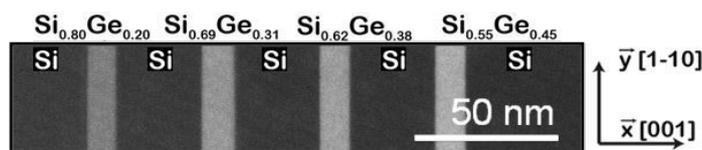


Figure III.11 : Image STEM de l'échantillon multicouche Si/SiGe

De nombreuses études ont d'ores et déjà été menées pour étudier la déformation [12] et la distribution chimique des constituants de cet échantillon [13,14]. Pour ce travail, l'échantillon multicouche Si/SiGe a été préparé par FIB sous la forme d'une lame MET à faces parallèles. Cette élaboration s'est achevée par une étape de finition par FIB à basse tension (1 kV). Cette finition a permis de réduire la présence de composés amorphes sur la surface de la préparation. L'épaisseur que nous avons mesurée pour cette lame par perte faible d'énergie EELS [14] est de 80 nm. La composition des couches SiGe a été évaluée de la même manière et l'épaisseur de chaque couche a été mesurée, dans le MET FEI Titan Ultimate, en imagerie STEM (voir figure III.11). Les épaisseurs et teneurs en germanium mesurées dans chaque couche sont recensées dans le tableau suivant :

	Couche 1	Couche 2	Couche 3	Couche 4
Épaisseur (nm)	10,37 ± 2,1	11,8 ± 2,1	10,7 ± 2,1	11,8 ± 2,0
Composition en germanium (%)	20,5 ± 3	32,1 ± 3	37,4 ± 3	47,0 ± 3

Tableau 3 : Teneur en Germanium (mesurée par spectroscopie EELS) et épaisseurs (mesurées par imagerie STEM) de chaque couche de l'échantillon multicouche Si/SiGe.

La géométrie de l'échantillon préparé pour cette étude est simple. Ceci constitue le deuxième atout qui fait de cet échantillon multicouche SiGe un bon référent. La simulation de la déformation des couches SiGe peut être réalisée en 2D (et non en 3D) par éléments finis³ (à l'aide du logiciel COMSOL). Cette simulation est faite pour un échantillon préparé en lame MET, de 80 nm d'épaisseur, avec une concentration en germanium dans les quatre couches de 20, 31, 38 et 45%.

Tout ceci permet d'établir un référent fiable qui peut être comparé à des mesures expérimentales de la déformation.

Résultats

Nous avons étudié l'échantillon multicouches Si/SiGe, en mode précession, aux moyens du MET JEOL 2010A avec un demi-angle de précession de 1,44° et un demi-angle de convergence de 0,5 mrad. La largeur à mi-hauteur de la sonde en précession a été évaluée dans le substrat de silicium à 4,2 nm. Chaque cliché de diffraction en précession a été enregistré grâce à la caméra hors axe Stingray, à intervalles de 30 ms, avec un pas de 2,7 nm sur une surface de 200 x 240 nm². Chaque cliché de diffraction enregistré a été redressé avec la méthode de correction des perspectives présentée dans ce chapitre.

Afin de ne pas être lésé par la présence d'une rémanence de l'écran fluorescent, le sens du balayage de la sonde en précession, a été choisi de sorte que chaque ligne de la cartographie de déformation soit parallèle aux interfaces Si/SiGe dans l'échantillon ($y = \text{constante}$). La série de clichés de diffractions PED ainsi obtenue a été traitée de quatre manières différentes :

- Une analyse de la déformation via la méthode de mesure établie en mode d'observation NBED (basé sur l'étude de l'autocorrélation des figures de diffraction) sans correction des effets de perspectives.
- Une analyse identique à la précédente mais avec correction des effets de perspectives dans les clichés de diffraction.

³ Conditions limites de simulation 2D par éléments finis COMSOL (simulation de l'échantillon dans le plan (Oxy)): **3 surfaces libres** (une à la jonction avec le vide, proche de la couche SiGe avec la concentration la plus forte en germanium et deux autres sur les faces de l'échantillon dans le plan (Oxy)). **1 surface fixe** (située à 150 nm sous la couche SiGe la plus enterrée, avec la concentration en germanium la plus faible). **1 face avec des conditions aux limites périodiques** (suivant l'axe z de l'échantillon).

- Une analyse de la déformation en utilisant la méthode algorithmique basée sur la triangulation Delaunay.
- Une analyse équivalente à cette dernière mais où l'autocorrélation des clichés de diffraction a été utilisée plutôt que les images expérimentales brutes.

La sensibilité de la mesure de déformation a été évaluée pour chacune des études menées en calculant l'écart type de la déformation sur 800 mesures contiguës obtenues sur une zone occupée par le substrat de silicium supposé relaxé. Seule la composante ϵ_{yy} (supposée constante dans ce cas) a été utilisée pour ce calcul. En effet, la dimension de l'échantillon peut être approximée infinie, suivant la direction \vec{y} . La mesure des déformations, effectuée sur les images brutes par la méthode de mesure Delaunay a atteint une sensibilité optimale en utilisant des vecteurs du

réseau réciproque mesurés avec les spots de diffraction seconds voisins pour un vecteur de diffusion $\vec{g} \leq 2,5 \times \vec{g}_{11}$. La même mesure, menée sur les positions de maxima dans les autocorrélations des clichés PED, a atteint une sensibilité optimale à la déformation en utilisant les vecteurs du réseau réciproque mesurés avec les distances entre les maxima seconds voisins identifiés dans l'autocorrélation.

La cartographie de la déformation représentée suivant les composantes ϵ_{yy} ou ϵ_{xy} ne présente pas de variations significatives. La cartographie de la déformation ϵ_{xx} (voir figure III.12) permet d'identifier clairement les quatre couches SiGe de l'échantillon.

Afin d'apprécier la concordance de la déformation mesurée avec la simulation du champ de déformation calculé par éléments finis dans l'échantillon, nous avons moyenné les résultats obtenus dans chacune des lignes analysées ($y = \text{constante}$ ou lignes parallèles aux interfaces Si/SiGe). Cette opération a permis d'obtenir pour chaque analyse un profil de la déformation suivant \vec{y} (voir figure III.13). Ces profils ont pu être comparés au profil de déformation simulé, préalablement convolué par une distribution gaussienne avec un gain statique égal à 1 et une largeur à mi-hauteur identique à celle mesurée sur la sonde en précession (4,2 nm). Cette comparaison a été obtenue en calculant l'écart quadratique moyen entre chacun des profils de déformations mesurés et le profil de déformation simulé (voir tableau III.4).

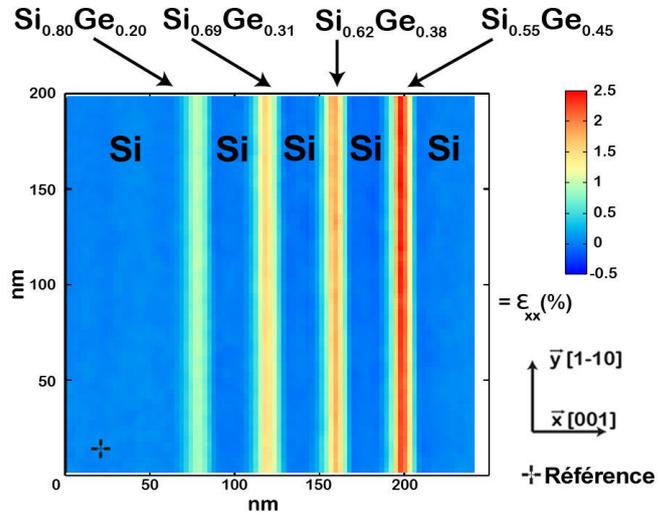


Figure III.12 : Cartographie de la ϵ_{xx} de la déformation, mesurée par le biais de la méthode d'analyse Delaunay, dans l'échantillon multicouche Si/SiGe avec le MET JEOL 2010A.

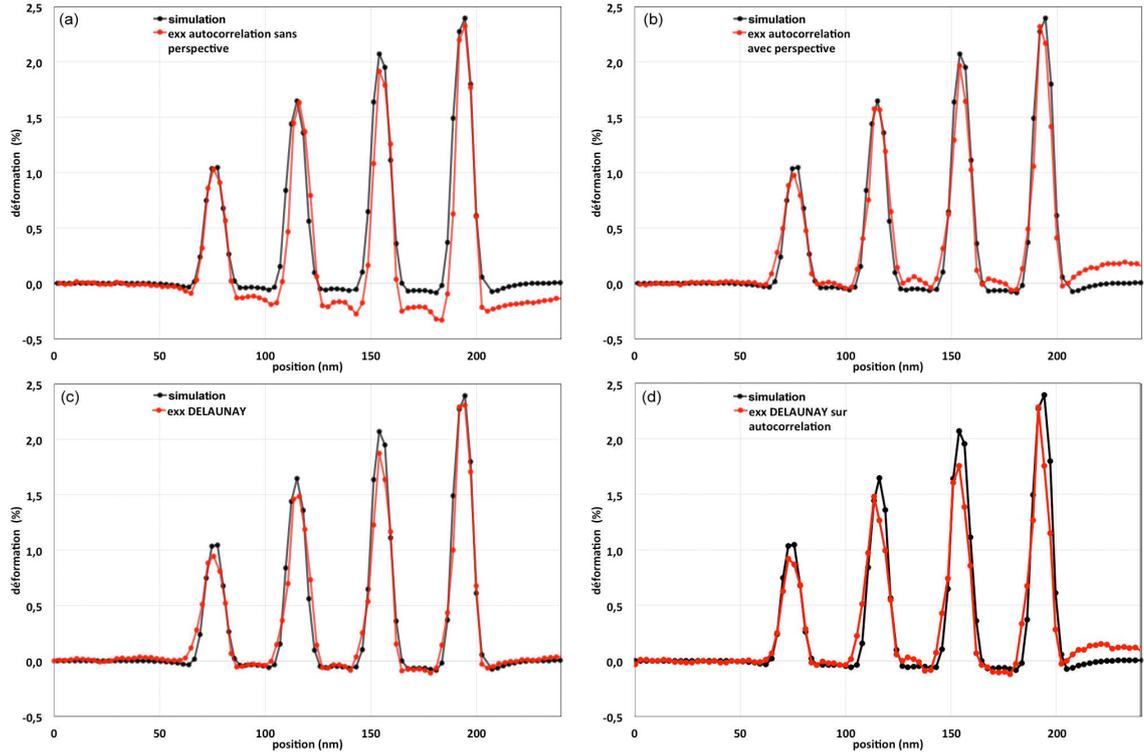


Figure III.13 : Profils de déformation moyennés suivant la direction \perp . (a) Profil mesuré avec une analyse de la déformation via la méthode de mesure dédiée au mode d'observation NBED sans correction de perspective (b) Profil mesuré avec une analyse identique à la précédente mais avec correction des effets de perspectives dans les clichés de diffraction (c) Profil mesuré avec une analyse de la déformation par le biais de la méthode algorithmique basée sur la triangulation Delaunay (d) Profil mesuré avec une analyse similaire à la précédente, avec les maxima dans l'autocorrélation des clichés de diffraction.

Analyse des clichés expérimentaux obtenus	Sensibilité atteinte	Désaccord avec la simulation
Analyse basée sur l'étude de l'autocorrélation sans correction de perspective (figure III.13 (a))	3.7×10^{-4}	3.6×10^{-2}
Analyse basée sur l'étude de l'autocorrélation avec correction de perspective (figure III.13 (b))	4.0×10^{-4}	2.0×10^{-2}
Analyse par la méthode Delaunay sur les clichés PED. (figure III.13 (c))	2.7×10^{-4}	1.4×10^{-2}
Analyse par la méthode Delaunay sur les autocorrélations des clichés PED. (figure III.13 (d))	4.3×10^{-4}	3.1×10^{-2}

Tableau III.4 : Sensibilité et accord avec la simulation COMSOL évalué pour chaque chacune des quatre analyses ayant fournis les résultats présentés dans la figure III.9.

Les Figures III.13 (a) et (c) permettent de constater que l'utilisation de la correction des effets de perspective permet d'obtenir un profil plus fidèle de la déformation avec une caméra hors axe. En effet l'utilisation de cette méthode de correction a permis d'obtenir un profil en meilleur

accord avec le profil attendu de la déformation (voir tableau III.4). Aussi, l'utilisation de la méthode de mesure Delaunay a permis d'obtenir le profil de déformation le plus en accord avec le profil de déformation simulé par éléments finis. La sensibilité à la déformation atteinte avec cette analyse est également plus satisfaisante que pour les autres méthodes algorithmiques présentées. Celle-ci a atteint la valeur de $2,7 \times 10^{-4}$. Enfin les résultats illustrés dans la figure III.13 (b) et dans le tableau III.4 montrent que l'utilisation de l'autocorrélation, pour traiter les clichés de diffraction, ne permet pas d'améliorer la qualité de la mesure des déformations avec la méthode Delaunay, pour une acquisition menée avec un faisceau faiblement convergent.

III.A.3.2 Puits quantiques d'InGaAs

Présentation

Le second échantillon étudié lors de ce travail est un dispositif qui compte parmi ses constituants une couche d'InGaAs. Cet alliage est étudié pour, à terme, remplacer le silicium dans des dispositifs en optoélectronique et en microélectronique. Aujourd'hui, l'InGaAs est difficile à élaborer sur un substrat de silicium car le désaccord de maille entre ces deux matériaux est important. En effet, ce fort désaccord de maille se manifeste par l'apparition de défauts [15] qui dégradent considérablement les propriétés du matériau ; c'est pourquoi le laboratoire LTM travaille à la conception d'une méthode d'élaboration qui permet d'obtenir une couche d'InGaAs exempte de tous défauts. L'architecture qui a été privilégiée pour développer cette méthode d'élaboration est celle d'un puits quantique [16]. Cette conception particulière permet d'adresser l'étude des couches d'InGaAs élaborées à un très large panel de méthodes de caractérisation parmi lesquelles figure la méthode de mesure des déformations en mode précession.

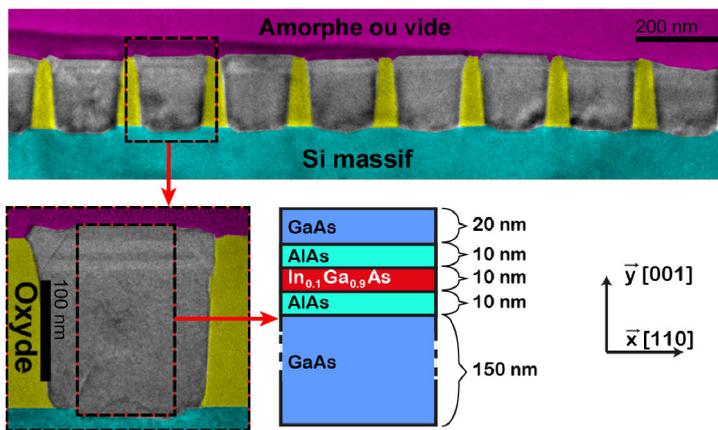


Figure III.14 : Observations MET du dispositif à puits quantique InGaAs étudié et schéma de l'empilement cristallin qui le caractérise.

Les puits quantiques fournis par le laboratoire CNRS-LTM sont élaborés sur du silicium massif selon la structure suivante Si(massif)/GaAs/AlAs/**InGaAs**/AlAs/GaAs. La partie dénuée de silicium dans cette structure a été épitaxiée par MOCVD sur le silicium situé au fond de tranchées délimitées par des barrières d'oxyde de silicium. Ces barrières permettent de bloquer

les dislocations qui surviennent à proximité du substrat de silicium suivant les plans denses $\langle 111 \rangle$ de la structure. Elles ont été élaborées par lithographie UV et par gravure plasma (voir Figure III.14). Aussi, la teneur en gallium dans les puits quantiques varie au détriment de la teneur en indium. Elle a été évaluée par SIMS à 90% si bien que l'alliage qui constitue le cœur des puits est : $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$. Pour effectuer une observation MET en précession, le dispositif a été préparé par FIB sous la forme d'une lame à faces parallèles de 80 nm d'épaisseur.

Résultats

L'échantillon à puits quantique d'InGaAs a été étudié avec une configuration expérimentale et avec des paramètres d'analyse, propres à la méthode Delaunay, qui sont les mêmes que pour l'étude de l'échantillon à multicouches Si/SiGe. Le faisceau d'électrons en précession produit par le MET JEOL 2010A a été aligné dans une configuration où les demi-angles de précession et de convergence du faisceau sont respectivement 1.44° et 0.5 mrad . La largeur à mi-hauteur de la sonde électronique en précession a été mesurée dans le matériau pour une valeur de 4.2 nm. Les clichés PED obtenus expérimentalement ont été corrigés des effets de perspective et leur analyse par la méthode Delaunay a été réalisée sur la base de la mesure des distances entre les spots seconds voisins observés avec un vecteur de diffusion $|\mathbf{g} \leq 2.5 \frac{|\mathbf{g}_{111}|}{|g_{111}|}$. Dans cette configuration, la sensibilité de la mesure de déformation a été évaluée à 0.03% dans une zone de l'échantillon occupée par le silicium massif.

La référence choisie pour cette étude a été positionnée sur le GaAs qui sépare le puits quantique du silicium dans une zone où aucune variation des déformations n'est constatée (voir figure III.15). La cartographie de la déformation ainsi obtenue présente les variations des trois composantes indépendantes du tenseur de déformation dans l'échantillon, sur une zone de $160 \times 85 \text{ nm}^2$.

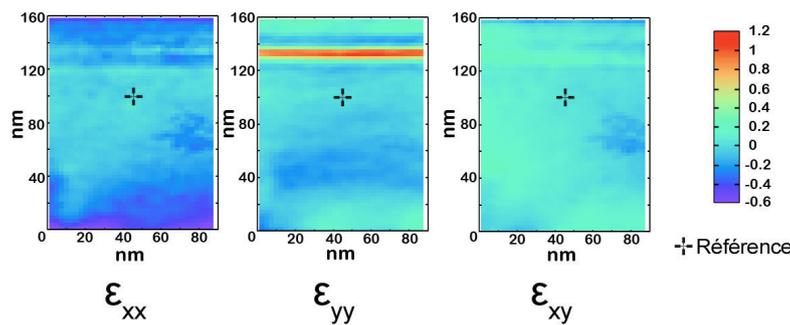


Figure III.15 : Déformations mesurées dans un échantillon à puits quantiques InGaAs.

Les résultats présentés sur la figure III.16 permettent de constater qu'une déformation est bien mesurée à proximité du silicium dans la portion cristalline GaAs de l'échantillon. Du fait de la méthode d'élaboration choisie pour ce dispositif, cette contrainte est absorbée par les premiers 100 nm de GaAs dans l'échantillon. Elle n'atteint donc pas le puits quantique InGaAs qui est contraint uniformément suivant la direction \blacksquare parallèle aux interfaces de l'empilement GaAs/AlAs/InGaAs/AlAs/GaAs. Ceci traduit l'absence de défauts (dislocations) à l'intérieur du puits. L'environnement proche de ce puits ($\pm 20 \text{ nm}$) présente des fluctuations de la déformation qui sont imputables à des variations de la distribution des éléments chimiques dans

cette zone.

III.A.3.4 Nanofil SiGe pour transistor " Ω -gate"

Présentation

L'exemple qui suit porte sur l'étude de la déformation qui opère dans le nanofil SiGe contraint qui fait office de canal dans un transistor de nouvelle génération appelé " Ω -gate". L'architecture d'un tel transistor permet de concevoir un dispositif avec un courant de saturation I_{ON} 90% plus élevé que pour un transistor silicium conventionnel, avec un très bon contrôle électrostatique. La grille d'un tel dispositif peut également être plus petite que pour un transistor classique ($L_G \approx 15$ nm). Le nanofil qui compose le transistor dans cette étude a été obtenu par lithographie et gravure d'un substrat SOI. Ce dernier est orienté suivant l'axe cristallographique [110]. Cette élaboration a été menée conjointement à un enrichissement en Germanium qui a permis d'obtenir un nanofil $\text{Si}_{0.7}\text{Ge}_{0.3}$ de 12 nm de diamètre [17] (voir figure III.16 ci dessus).

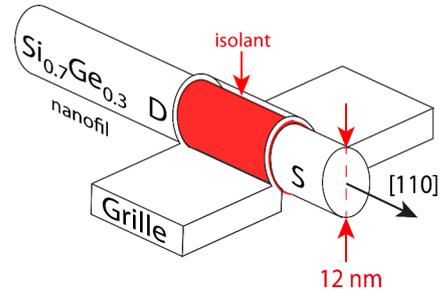


Figure III.16 : Architecture du transistor " Ω -gate" étudié. (D : drain, S : source, du transistor)

Le nanofil au cœur de ce nouveau type de transistor a été préparé par FIB pour une observation avec un MET en mode précession suivant une coupe transverse. La coupe longitudinale d'un dispositif " Ω -gate" équivalent a été également effectuée par FIB. Ce transistor est conçu avec un canal $\text{Si}_{0.7}\text{Ge}_{0.3}$ en forme de nano-ruban.

Résultats

Les deux préparations FIB SiGe ont été observées en mode précession avec le MET FEI Titan Ultimate par N.Bernier avec deux demi-angles, de précession et de convergence, de $0,7^\circ$ et $2,4$ mrad. Cette configuration expérimentale a permis d'obtenir, pour chaque échantillon, une série de clichés PED avec une résolution spatiale de 1 nm. Les distances entre les maxima seconds voisins, visibles dans l'autocorrélation filtrée des clichés PED, ont été utilisées pour mesurer la déformation qui opère dans le nanofil, par rapport à une référence prise sur du silicium relaxé, via l'algorithme de mesure Delaunay.

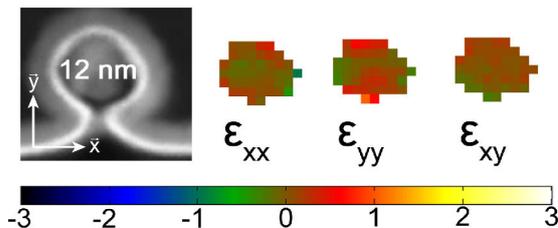


Figure III.17 : Image STEM et Déformation évaluée par le biais de la méthode Delaunay sur un nanofil étudié en mode précession (résultats obtenus avec le MET FEI Titan Ultimate).

La déformation suivant la coupe transverse du transistor " Ω -gate" montre que le nanofil $\text{Si}_{0.7}\text{Ge}_{0.3}$ qui fait office de canal est quasiment relaxé.

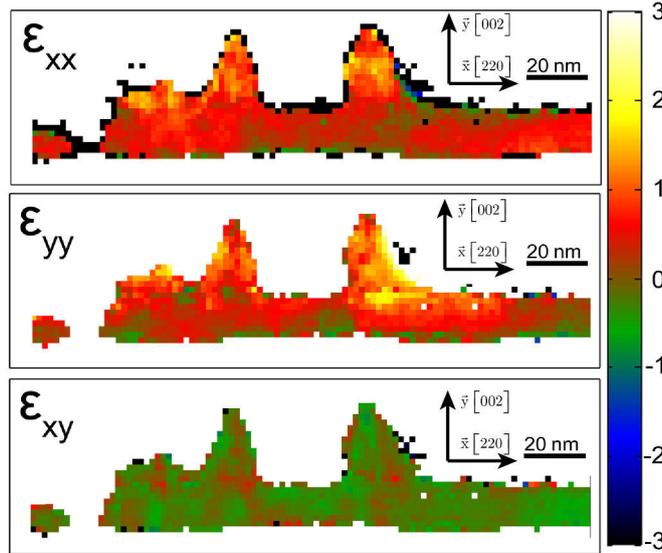


Figure III.18 : Déformation évaluée par le biais de la méthode Delaunay sur un transistor étudié en mode précession avec deux demi-angles de précession et de convergence de $0,7^\circ$ et $2,4$ mrad sur le MET FEI Titan Ultimate.

La déformation mesurée par rapport au silicium (voir figure III.18 ci dessus). suivant une coupe longitudinale du dispositif équivalent au transistor " Ω -gate" montre quant à elle une déformation $\epsilon_{xx} = 0,51 \pm 0,11\% < \left(a_{\text{Si}_{0,7}\text{Ge}_{0,3}} - a_{\text{Si}} \right) / a_{\text{Si}} = 1,15\%$ sous la grille du transistor. En l'absence de relaxations importantes des contraintes dans la préparation MET, cette déformation indique qu'une contrainte compressive opère dans la direction $[110]$ du nanofil. Cette contrainte permet d'obtenir un canal de transistor $\text{Si}_{0,7}\text{Ge}_{0,3}$ dans lequel la mobilité des trous est mesurée 135% plus élevée que dans un canal identique, non contraint.

III.A CONCLUSION

La méthode de mesure des déformations par triangulation Delaunay a pu être utilisée avec succès sur des résultats expérimentaux obtenus avec deux METs distincts dans deux configurations différentes. La meilleure sensibilité à la déformation atteinte avec cette méthode est de 1×10^{-4} (avec une résolution spatiale de 3 nm). Cette mesure a été réalisée sur un microscope FEI Titan Ultimate corrigé avec une caméra GATAN de 2Kx2K. Combinée avec un redressement approprié des perspectives, la méthode de mesure des déformations basée sur la triangulation Delaunay peut être utilisée pour étudier la déformation à l'échelle nanométrique. Ces mesures peuvent être obtenues avec un dispositif expérimental qui comprend une caméra déportée de l'axe optique d'un MET non corrigé (dispositif expérimental générique Nanomégas, JEOL 2010 A) [18]. Dans cette dernière configuration, une déformation a pu être mesurée avec une sensibilité de $2,7 \times 10^{-4}$ pour une résolution spatiale de 4,2 nm.

L'étude de la déformation, pratiquée sur l'autocorrélation des clichés obtenue en précession, montre encore une incapacité de la méthode développée à analyser des clichés de diffraction fortement occultés pas une diffusion d'amorphe ou produit conjointement par plusieurs cristaux. Un mieux peut être envisagé de ce point de vue en faisant usage d'une méthode de recherche de maxima plus performante sur l'autocorrélation des clichés PED (comme la méthode "matching

poursuit") ou en utilisant un filtre en énergie directement au sein d'un MET [19]. Dans ce dernier cas, l'expérience a montré que l'utilisation du filtre en énergie rend l'alignement du MET en mode précession plus difficile qu'il ne l'est déjà. L'utilisation de ce filtrage sur le MET JEOL 2010A a permis d'obtenir des ordres diffractés plus nets quoi que moins nombreux si bien que les mesures effectuées de la sorte n'ont pas pu être valorisées pour mesurer une déformation avec la sensibilité attendue.

Pour conclure la précession électronique en mode diffraction est une méthode d'étude qui permet d'obtenir une mesure des déformations dans des dispositifs de la microélectronique. La sensibilité de la mesure des déformations est accrue dans son cas, au détriment de la résolution spatiale de mesure.

PARTIE B : Algorithme d'évaluation de cristallinité

III.B.0 INTRODUCTION

En mode précession, le réglage de la position de l'échantillon est difficile à réaliser et les valeurs caractéristiques des courants d'excitation des lentilles sont parfois sujettes à des dérives. Ces instabilités peuvent être compensées, dans une certaine mesure, en effectuant un alignement en deux temps. L'un est réalisé avant et l'autre après une période pendant laquelle le microscope est laissé sans intervention humaine dans le mode de fonctionnement désiré. Durant cette période "d'inactivité", les températures et les courants des lentilles du MET se stabilisent. Malgré cette précaution, il est possible d'obtenir en mode précession une cartographie avec un alignement imparfait ou bien avec un échantillon qui n'est pas resté statique pendant l'acquisition.

Exploiter des clichés de diffraction pour effectuer une mesure de cristallinité est une opération délicate également. La méthode proposée pour effectuer ce type d'analyses est fortement dépendante de l'alignement du MET en précession et des différentes aberrations qui affectent la distribution d'intensité dans les clichés de diffraction.

La méthode présentée dans ce chapitre a été créée pour concrétiser deux objectifs. Elle constitue un moyen simple à mettre en œuvre, robuste et rapide pour :

- Pouvoir contrôler si une cartographie en précession a été réalisée avec un alignement convenable et sans dérive de l'échantillon.
- Pouvoir observer les disparités cristallines dans un échantillon sans employer aucune méthode de reconnaissance de clichés de diffraction.

Ce dernier objectif permet entre autre de s'assurer qu'une analyse plus complexe des cartographies a permis d'obtenir une évaluation tangible de la cristallinité ou de la déformation d'un échantillon.

III.B.1 METHODE EXISTANTE EN PRECESSION (Nanomegas)

La méthode disponible à l'heure actuelle pour analyser une série de clichés de diffraction en mode précession est proposée dans la suite de logiciels ASTAR [7] fournie par la société

Nanomegas. Cette méthode d'analyse permet d'identifier des phases et des orientations cristallines dans l'échantillon par une méthode dite de "bibliothèque". Chaque cliché PED est comparé à une banque de clichés simulés au préalable, à partir des différents constituants hypothétiquement présents dans l'échantillon. En pratique, il est admis qu'une telle analyse est robuste dès lors que le nombre de composés et phases envisagés pour un échantillon ne dépasse pas le nombre de 4. La meilleure correspondance entre un cliché expérimental et un cliché simulé est retournée par le logiciel et la qualité de cette correspondance est contrôlée par deux indicateurs :

$$Q_i = \frac{\sum_{j=1}^m P(p_{x,j}, p_{y,j}) T_i(p_{x,j}, p_{y,j})}{\sqrt{\sum_{j=1}^m P^2(p_{x,j}, p_{y,j})} \sqrt{\sum_{j=1}^m T_i^2(p_{x,j}, p_{y,j})}} \quad \text{et} \quad R = 100 \left(1 - \frac{Q_2}{Q_1} \right), \quad (\text{III.10 et 11})$$

avec T_i une distribution d'intensité i simulée, comparée à un cliché expérimental dont l'intensité est notée P . La valeur de Q_i la plus élevée renseigne sur la solution i reconnue par la méthode d'identification. Cette solution est nommée Q_1 et est systématiquement comparée à la seconde meilleure solution Q_2 trouvée, par le biais de l'indicateur R . Plus ce dernier indicateur prend une valeur élevée et plus l'identification d'un cliché expérimental est robuste.

Pour ce type d'analyse, les clichés de diffraction doivent être enregistrés dans des conditions idéales, à savoir : dans l'axe de la colonne du microscope et sans aucune aberration. Cette condition n'est pas satisfaite dans le contexte expérimental le plus répandu. En effet, pour créer un dispositif générique de mesure, une caméra hors axe est utilisée et observe l'écran fluorescent du microscope. Cette caméra génère des distorsions qui s'ajoutent à celles provoquées par les aberrations qui affectent les lentilles d'un MET. A condition donc qu'un cliché de référence soit parfaitement identifié dans une cartographie PED, une correction des distorsions appropriée peut être réalisée. Cette opération de redressement des distorsions ne permet pas de corriger complètement les effets de perspective (voir paragraphe III.2.1). Elle est délicate et primordiale car son accomplissement affecte une étude de la cristallinité d'un échantillon dans son ensemble.

III.B.2 ALGORITHME D'ÉVALUATION DE CRISTALLINITE

La méthode d'imagerie en champ sombre est appliquée notamment pour observer des dislocations dans les matériaux en mode image en microscopie électronique en transmission [20]. Elle consiste à conserver, avec le diaphragme objectif du microscope, un unique faisceau diffracté qui est produit par une portion de l'échantillon imagé. Ces portions d'échantillon sont alors observées en mode image dans le MET. Ainsi, la méthode d'imagerie en champ sombre permet d'observer des portions d'un échantillon qui partagent une propriété cristalline commune.

Dans une cartographie acquise en mode précession, de nombreux spots de diffraction apparaissent dans les clichés de diffraction. Chacun peut être isolé pour produire une image des zones de l'échantillon qui a généré ce signal spécifique dans la diffraction. L'image obtenue en isolant un unique spot de diffraction présente toutes les caractéristiques d'une image obtenue en

champ sombre dans un MET : des cristaux sont observés et les dislocations sont imagées [21].

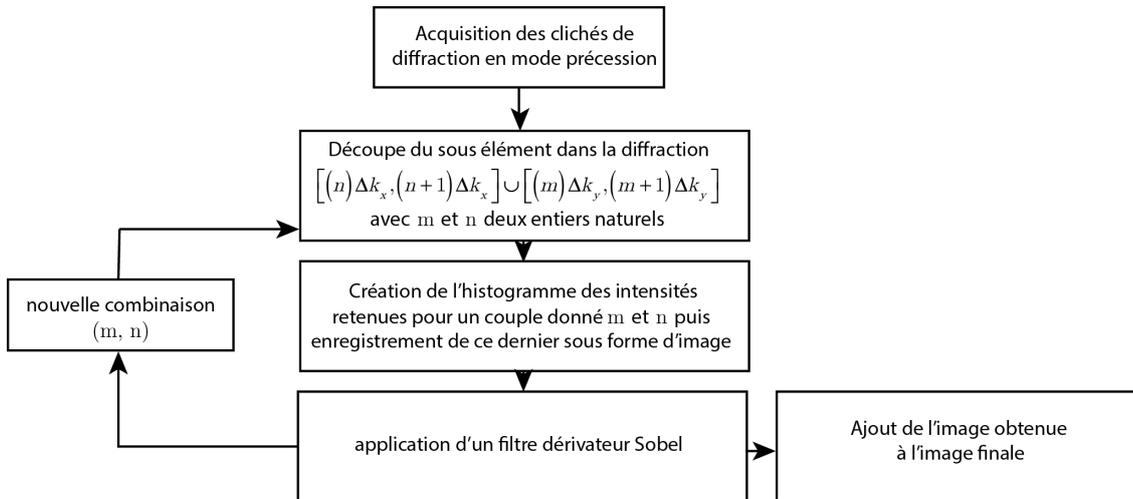


Figure III.19 : Schémas de l'algorithme d'évaluation de cristallinité.

Numériquement, chaque sous-espace de l'espace de Fourier peut être considéré dans la diffraction pour produire des images qui rendent compte des disparités cristallines dans l'échantillon. Chacune des images ainsi obtenues ont la même dimension que la cartographie de mesure étudiée. Elles présentent des variations plus ou moins abruptes de l'intensité à la jonction entre des zones qui diffractent et d'autres qui diffractent moins. Toutes ces fluctuations sont mises en évidence en appliquant un filtre dérivateur (Sobel) à ces images. La somme de ces images filtrées produit une dernière image qui rend donc compte de toutes les disparités cristallines dans l'échantillon étudié (voir figure III.19). Sur cette image, les zones où une forte valeur est constatée, représentent les jonctions entre les zones cristallines qui ont été observées de manière récurrente pendant le processus de traitement algorithmique. Les autres zones contiennent une information provenant de fluctuations marginales de l'intensité diffractée. L'information la plus marginale, au sens où elle n'est pas observée de manière récurrente pendant le processus algorithmique, est constituée par le bruit électronique expérimental. Elle apporte une contribution négligeable dans la formation de l'image sommée obtenue par le biais de cet algorithme.

La méthode algorithmique présentée ici ne nécessite d'émettre aucune hypothèse pour être mise en œuvre. Elle fait l'objet d'un brevet [22] et permet d'observer chacune des zones cristallines distinctes dans un échantillon. Le traitement algorithmique qui lui est associé nécessite 5×10^{-4} s par cliché de diffraction traité. Il peut donc être intégré au protocole expérimental qui permet l'acquisition et le traitement des clichés en mode précession.

III.B.3 EXEMPLES D'APPLICATIONS

III.B.3.1 Contrôle de la cristallinité d'un échantillon et de l'alignement PED

La méthode algorithmique d'évaluation de cristallinité a été appliquée sur deux cartographies en précession réalisées sur un échantillon susceptible de contenir les composés TiAl_3 , $\text{Ti}_3\text{Al(N)}$ et TiN . Ces deux études ont pu être visualisées de la manière suivante avec ce traitement :

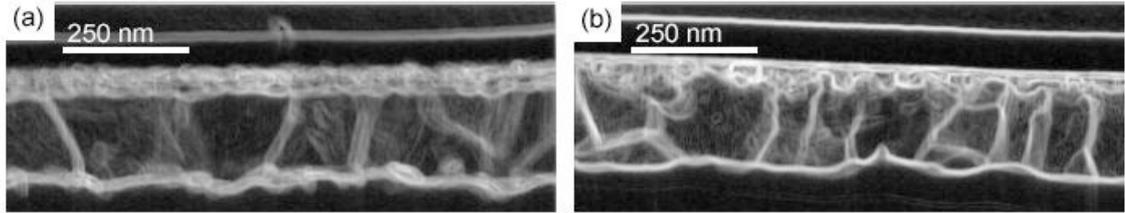


Figure III.20 : Cartographie en mode PED avec un alignement (a) imparfait (b) adéquat.

Le traitement des cartographies présenté figure III.20 (a) montre l'effet d'un alignement imparfait de la précession sur l'acquisition d'une cartographie. Les interfaces entre grains apparaissent floues dans ce cas car l'échantillon est en position de défocus. La sonde en précession a donc eu une taille trop étendue pendant l'acquisition. La figure IV.1 (b) montre le résultat obtenu avec le même traitement sur une cartographie acquise en mode précession avec un alignement adéquat. Les grains dans l'échantillon sont discernables et on distingue la forme de leurs interfaces dans le volume de l'échantillon.

III.B.3.2 Mémoires à changement de phases PRAM

L'algorithme présenté ici présente un fort intérêt pour étudier des échantillons dont la chimie et la structure cristalline n'est pas strictement déterminée. C'est le cas des mémoires résistives à changement de phase PRAM. Ces dispositifs utilisent des matériaux chalcogénures qui peuvent changer rapidement de phase. Sous une forme cristalline ces matériaux sont conducteurs tandis que sous une forme amorphe, ils sont isolants.

Dans un dispositif PRAM, une impulsion électrique peut être appliquée aux bornes du matériau chalcogénure via un contacteur appelé "heater" (voir figure III.22). Cette impulsion électrique provoque, par effet Joule, un échauffement de la matière qui permet de placer l'élément mémoire dans un état conducteur (chalcogénure cristallin) ou dans un état isolant (chalcogénure amorphe). Cette opération est donc utilisée pour enregistrer une information binaire.

Pour ce travail, un unique dispositif PRAM a été étudié. Celui-ci a été conditionné dans un état isolant, puis préparé sous la forme d'une lame MET par M. Coué pour pouvoir observer la cristallinité du matériau chalcogénure qui le constitue. L'échantillon ainsi obtenu a été étudié en mode précession avec un demi-angle de précession $Y^\circ = 1,44^\circ$ et un demi-angle de convergence de 0,5 mrad avec le MET JEOL 2010A. L'algorithme d'identification cristalline a été employé sur la cartographie ainsi obtenue et a permis d'observer un chalcogénure amorphe et en forme de "champignon", à proximité du contact électrique, dans l'élément PRAM observé.

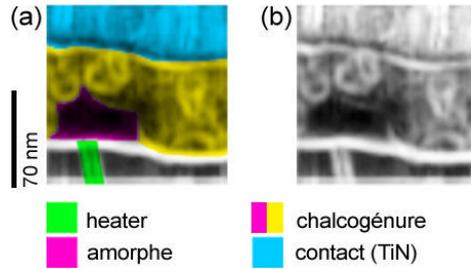


Figure III.21 : Image obtenue avec l'algorithme d'évaluation de cristallinité sur un dispositif mémoire PRAM (a) commentée (b) brute.

La figure III.21 montre une image dans laquelle l'étendue de la zone amorphe du dispositif PRAM, placé dans un état isolant, est quantifiable. Le heater et le contact TiN peut également être visualisé sur cette image du dispositif. La même mesure pourra être reproduite dans un microscope corrigé comme le FEI Titan Ultimate pour étudier l'état non isolant d'un dispositif PRAM avec une résolution spatiale plus élevée.

III.B.3.3 Puits quantiques InGaAs

L'algorithme présenté ici a fourni une image de l'échantillon à puits quantiques présenté auparavant. Cette image a pu être superposée aux mesures des déformations dans ces puits ce qui a permis d'observer ces cartographies de la manière suivante :

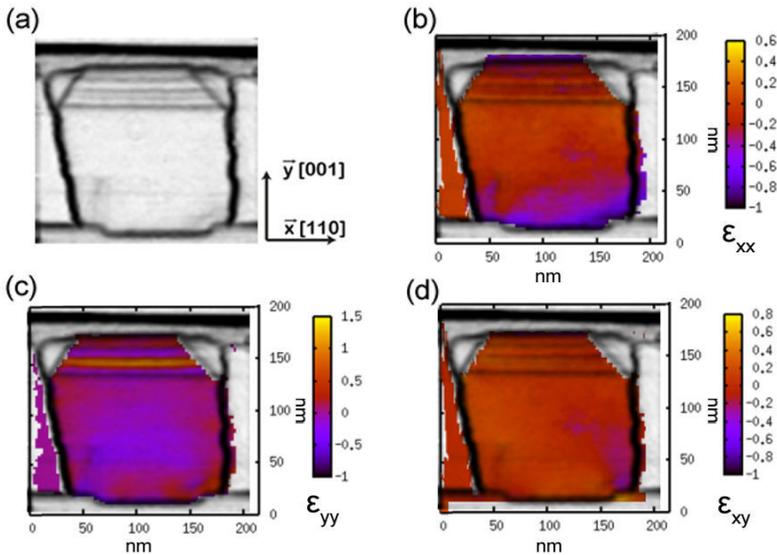


Figure III.22 : Analyses obtenues sur l'échantillon à puits quantique InGaAs présenté dans le chapitre III (a) avec l'algorithme présenté dans ce chapitre (image en négatif) (b)(c)(d) par juxtaposition de l'image obtenue en (a) et des résultats de l'étude des déformations obtenue dans le dispositif, par la méthode Delaunay.

La figure III.20 (a) permet de situer la cartographie de déformation obtenue dans son contexte : entre les deux barrières d'oxyde de silicium, sur le substrat de silicium. Sur cette même figure l'empilement cristallin est visible et deux dislocations sont observées en son sein, là où les barrières d'oxydes s'arrêtent.

III.B.3.4 Batteries $\text{LiFePO}_4/\text{FePO}_4$

L'algorithme d'évaluation de cristallinité a été appliqué sur huit cartographies, jointes les unes aux autres, obtenues en mode précession. Ces huit cartographies ont été mesurées par A.Boulineau et D.Robert sur un échantillon composé de nanoparticules de LiFePO_4 et FePO_4 . Pour ce cas d'étude, le faisceau d'électrons du MET JEO 2010A a été aligné en mode précession avec un demi-angle de $1,44^\circ$. Ces composés remplissent le rôle de cathode dans des piles au lithium développées au laboratoire LITEN du CEA. Ils subissent, pendant les phases de charge et de décharge des batteries, des changements de phases qui sont étudiés [23].

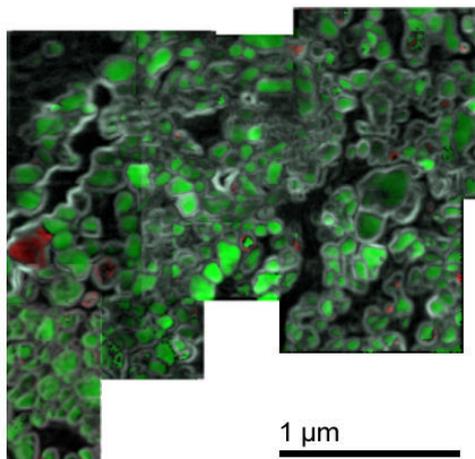


Figure III.23 : Image obtenue en superposant le résultat d'une étude de la phase dans un échantillon constitué de nanoparticules LiFePO_4 et FePO_4 (respectivement en rouge et en vert) et du résultat obtenu avec l'algorithme de contrôle de ce chapitre.

L'utilisation de ces résultats permet de mettre en avant le fait que les images produites avec la méthode algorithmique présentée ici se recourent de sorte qu'elles peuvent être assemblées. Aussi ce traitement a permis d'évaluer la qualité de l'identification de phases cristallines qui a pu être faite par le biais du logiciel ASTAR (voir figure III.23).

La superposition des deux traitements menée ici montre que la majeure partie des grains présents dans l'échantillon a pu être observée avec une analyse des phases cristallines via le logiciel ASTAR.

III.B.4 CONCLUSION

La méthode algorithmique d'évaluation de cristallinité brevetée et présentée ici permet d'identifier chaque changement de cristallinité dans un échantillon en effectuant la mesure d'une cartographie en précession. Celle-ci n'implique pas d'identification de clichés de diffraction. Il n'est pas nécessaire d'émettre d'hypothèses sur la nature d'un échantillon étudié pour pouvoir la mettre en œuvre. Cet algorithme se montre fiable et rapide si bien qu'il peut être utilisé pour contrôler si une cartographie en précession a été réalisée, ou interprétée, dans des conditions appropriées.

L'algorithme présenté ici pourra éventuellement être utilisé et associé à l'algorithme de mesure de déformation Delaunay pour pouvoir effectuer une cartographie des déformations qui opèrent dans chacun des grains d'un échantillon polycristallin.

Bibliographie

- [1] J. L. Rouvière and E. Sarigiannidou, *Ultramicroscopy* 106, 1 (2005).
- [2] A. Beche, *Mesure de Déformation À L'échelle Nanométrique Par Microscopie Électronique En Transmission*, 2009.
- [3] J.-L. Rouvière, A. Béch , Y. Martin, T. Denneulin, and D. Cooper, *Applied Physics Letters* 103, 241913 (2013).
- [4] E. Peli, *J. Opt. Soc. Am. A* 7, 2032 (1990).
- [5] M. P. Vigouroux, V. Delaye, N. Bernier, R. Cipro, D. Lafond, G. Audoit, T. Baron, J. L. Rouvière, M. Martin, B. Chenevier, and F. Bertin, *Applied Physics Letters* 105, 191906 (2014).
- [6] E. F. Rauch and M. Véron, *Materials Characterization* 98, 1 (2014).
- [7] E. Rauch and L. Dupuy, *Arch. Metall. Mater.* 50, 87 (2005).
- [8] B. Delaunay, *Izv. Akad. Nauk SSSR, Otdelenie Matematicheskii I Estestvennyka Nauk* 7, 1 (1934).
- [9] G. Oh and S. Lee, *Pattern Recognition Letters* 23, 1179 (2002).
- [10] L. Reimer and H. Kohl, *Transmission Electron Microscopy: Physics of Image Formation*, 5th edition (Springer, New York, NY, 2008).
- [11] J. M. Hartmann, F. Andrieu, D. Lafond, T. Ernst, Y. Bogumilowicz, V. Delaye, O. Weber, D. Rouchon, A. M. Papon, and N. Cherkashin, *Materials Science and Engineering: B* 154–155, 76 (2008).
- [12] A. Béch , J. L. Rouvière, J. P. Barnes, and D. Cooper, *Ultramicroscopy* 131C, 10 (2013).
- [13] A. Béch , *Mesure de Déformation À L'échelle Nanométrique Par Microscopie Électronique En Transmission*, Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2009.
- [14] L. Clement, *Le Site Du SCIB* (2006).
- [15] Y. B. Bolkhovityanov and O. P. Pchelyakov, *Phys.-Usp.* 51, 437 (2008).
- [16] R. Cipro, T. Baron, M. Martin, J. Moeyaert, S. David, V. Gorbenko, F. Bassani, Y. Bogumilowicz, J. P. Barnes, and N. Rochat, *Applied Physics Letters* 104, 262103 (2014).
- [17] P. Nguyen & al, *Iedm* (accepté Pour Publication) (2014).
- [18] S. Nicolopoulos, D. Bultreys, and E. Rauch, *Methods and Devices for High Throughput Crystal Structure Analysis by Electron Diffraction* (Google Patents, 2010).
- [19] G. Benner, H. Niebel, and G. Pavia, *Cryst. Res. Technol.* 46, 580 (2011).
- [20] D. B. Williams and C. B. Carter, *Transmission Electron Microscopy* 463 (2009).
- [21] E. Rauch and M. Véron, *SF11* 2013 (2013).
- [22] M. P. Vigouroux, N. Bernier, and R. Scarazzini, *FR14* 59650 (8 November 2014).
- [23] D. Robert, T. Douillard, A. Boulineau, G. Brunetti, P. Nowakowski, D. Venet, P. Bayle-Guillemaud, and C. Cayron, *ACS Nano* 7, 10887 (2013).

Conclusion générale

Lors de ce travail, l'influence des paramètres expérimentaux en mode précession (PED, Precession Electron Diffraction) a été détaillée et l'aspect "quasi-cinématique" des clichés de diffraction PED a été discuté. Une méthodologie a été élaborée sur la base de ces résultats pour mettre en œuvre cette technique et trois approches nouvelles ont été développées. Deux de ces approches ont donné lieu à une publication et la troisième a été valorisée avec un brevet. Ces trois méthodes d'analyse ont été conçues pour pouvoir tirer au mieux profit de la richesse des clichés de diffraction PED et obtenir soit une information 2D sur la déformation, soit une évaluation de la cristallinité à une échelle nanométrique dans des échantillons.

Tout d'abord, deux approches algorithmiques innovantes ont été élaborées pour analyser les déformations et contribuer à l'essor de la technique PED qui peut être utilisée sur tous les types de MET (Microscope Electronique en Transmission) avec le module générique DigiSTAR commercialisé en 2003 par la société Nanomégas.

La première de ces deux approches algorithmiques a permis d'obtenir des clichés de diffraction PED qui peuvent être utilisés pour mesurer une déformation en compensant les distorsions de perspective induites par les caméras. Cette première méthode a permis d'obtenir un redressement des images de meilleure qualité que pour la méthode de redressement jusqu'alors préconisée. Elle est utilisée lorsque la caméra d'enregistrement est située hors de l'axe optique du MET. Cette correction permet à la méthode algorithmique qui suit d'être appliquée.

La seconde méthode développée pour pouvoir mesurer des déformations 2D en mode PED a été conçue pour minimiser les erreurs systématiques faites lors de la mesure des variations de position des spots de diffraction. L'algorithme mis en œuvre est basé sur la méthode de triangulation Delaunay. Cette méthode permet, de manière automatisée, de tirer parti de la multiplicité des spots de diffraction dans les clichés PED. Elle a été appliquée avec succès en utilisant deux microscopes (un MET JEOL 2010A et un MET FEI Titan Ultimate), sur un échantillon multicouche SiGe de référence et sur deux dispositifs innovants de la microélectronique.

De manière générale, la sensibilité à la déformation est toujours améliorée au détriment de la résolution spatiale de la mesure et vis versa. Une mesure résolue spatialement à 4,2 nm et effectuée sur le MET JEOL 2010A a permis d'évaluer une déformation avec une sensibilité de $2,7 \times 10^{-4}$ tandis qu'une autre réalisée sur le MET FEI Titan Ultimate avec une résolution spatiale de 3 nm et une qualité d'enregistrement des clichés similaires, a atteint une sensibilité à la déformation de $8,0 \times 10^{-4}$. La sensibilité maximale atteinte pour mesurer des déformations a été évaluée à 1×10^{-4} , sur le MET FEI Titan Ultimate, avec une résolution spatiale de 3 nm et un enregistrement des clichés de diffraction sur une caméra haute résolution GATAN 2k x 2k.

Le troisième algorithme développé lors de ce travail permet l'évaluation fiable et rapide de la polycristallinité des échantillons en mode PED. Cette méthode algorithmique peut être appliquée sans faire d'hypothèses sur les matériaux étudiés et sans effectuer de corrections de

distorsions ou de pré-traitements dans les images expérimentales.

D'une part, cette solution d'analyse est suffisamment rapide pour être utilisée afin de contrôler la qualité d'un alignement durant l'expérience. D'autre part, cet algorithme permet d'observer la polycristallinité d'un échantillon de façon simple et immédiate. Les résultats obtenus peuvent être utilisés, soit pour effectuer un contrôle de routine (pour étudier des matériaux utilisés en métallurgie ou en microélectronique) soit pour contrôler si une série de clichés PED a été interprétée de manière convenable avec une autre méthode d'analyse.

Perspectives

L'étude de la déformation, pratiquée sur l'autocorrélation des clichés obtenus en précession, permet de mesurer une déformation en utilisant des clichés PED obtenus avec un faisceau d'électrons convergents (>1 mrad) et par conséquent avec une forte résolution spatiale. Toutefois, l'étude de ces résultats expérimentaux montre encore une incapacité de la méthode développée à analyser des clichés de diffraction fortement occultés par la diffusion d'une couche amorphe ou produits simultanément par plusieurs cristaux. Une amélioration peut être envisagée en faisant usage d'une méthode de recherche de maxima plus performante sur l'autocorrélation des clichés PED (comme la méthode "matching pursuit"). En outre l'utilisation d'une telle méthode devra permettre d'améliorer encore la sensibilité des mesures de déformation réalisées en mode précession.

Pour conclure, l'étude menée pendant ce travail de thèse pour évaluer l'influence des paramètres expérimentaux sur la mesure des déformations a montré qu'une mesure 2D des déformations peut être obtenue avec une observation réalisée avec une incidence de 0° à 2° hors d'un des axes de symétrie d'un cristal. Ce type d'alignement est caractéristique des désorientations qui peuvent être observées au sein d'un grain cristallin dans un échantillon. Ainsi la méthode d'identification de cristallinité et la méthode de mesure des déformations Delaunay développés lors de cette thèse peuvent être combinées pour pouvoir mesurer des déformations dans chacun des grains d'un échantillon cristallin. Ce type d'étude est notamment susceptible d'être adressée aux domaines de la microélectronique et de la métallurgie.

RESUME

La diffraction électronique en mode précession (PED) est une méthode récente d'acquisition de clichés de diffraction permettant de minimiser les interactions dynamiques. L'objectif de cette thèse est de développer une méthodologie d'acquisition et de traitement des clichés de diffraction en mode précession afin de mesurer les champs de déformation en combinant une résolution spatiale nanométrique et une sensibilité inférieure à 10^{-3} typiquement obtenues par d'autres techniques usuelles de microscopie, telle que l'imagerie haute-résolution. Les mesures ont été réalisées sur un JEOL 2010A équipé du module de précession Digistar produit par la société Nanomegas.

Un système modèle constitué de multicouches Si/SiGe de concentrations connues en Ge a été utilisé pour évaluer les performances de la méthodologie développée dans cette thèse. Les résultats indiquent une sensibilité sur la mesure de contraintes qui atteint, au mieux, 1×10^{-4} et un accord excellent avec les contraintes simulées par éléments finis. Cette nouvelle méthode a pu ensuite être appliquée sur des puits quantique d'InGaAs et sur des transistors de type Ω -gate.

La dernière partie traite d'un nouvel algorithme permettant d'évaluer de manière robuste et rapide la polycristallinité des matériaux à partir d'une mesure PED. Nous donnons des exemples d'application de cette méthode sur divers dispositifs

Mots clés : Contraintes, déformations, polycristallinité, Diffraction Électronique en mode Précession (PED), relaxation, éléments finis, lame mince, Microscopie Électronique en Transmission (MET), SiGe, InGaAs, transistor " Ω -gate", mémoire à changement de phase (PRAM).

ABSTRACT

Precession electron diffraction (PED) is a recent technique used to minimize acquired diffraction patterns dynamic effects. The primary intention of this PhD work is to improve PED (Precession Electron Diffraction) data analysis and treatment methodologies in order to measure the strain at the nanoscale. The strain measurement is intended to reach a 10^{-3} strain precision as well as usual microscopy techniques like high-resolution imaging. To this end, measurements were made with a JEOL 2010A with a Digistar Nanomegas precession module.

The approach developed has been used and tested by measuring the strain in a Si/SiGe multilayered reference sample with a known Ge Content. Strain measurements reached 1×10^{-4} sensitivity with excellent finite element strain simulation agreement. This process has been also applied to measure the strain in microelectronic InGaAs Quantum Well and an " Ω -gate" experimental transistor devices.

The second approach developed has been made to provide a robust means of studying electron transparent nanomaterial polycrystallinity with precession. Examples of applications of this analysis method are shown on different devices.

Key words : Strain, deformation , polycrystallinity, precession electron diffraction (PED), strain relaxation, finite element simulation, Transmission Electron Microscopy (MET), SiGe, InGaAs, " Ω -gate" transistor, Phase-change memory (PRAM).

