



**HAL**  
open science

# Contribution au développement du CBED et de l'holographie HREM pour l'analyse des déformations de couches épitaxiées

Florent Houdellier

► **To cite this version:**

Florent Houdellier. Contribution au développement du CBED et de l'holographie HREM pour l'analyse des déformations de couches épitaxiées. Optique [physics.optics]. INSA Toulouse; CNRS-CEMES, 2006. Français. NNT: . tel-01754061

**HAL Id: tel-01754061**

**<https://hal.science/tel-01754061>**

Submitted on 30 Mar 2018

**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.

# THESE

présentée en vue de l'obtention du

## DOCTORAT

de l'Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse

Spécialité : Nanophysique, Nanosciences et Nanomesures

par

Florent HOUELIER

Contribution au développement du CBED et de l'holographie  
HREM pour l'analyse des déformations de couches épitaxiées

Soutenue le 29 septembre 2006 devant la Commission d'Examen :

Président	G. VANDERSCHAEVE	Professeur, INSA, Toulouse
Rapporteur	J.P. MORNIROLI	Professeur, LMPGM-CNRS , Lille
Rapporteur	J. THIBAUT	Directrice de recherche, TECSN-CNRS, Marseille
Examineur	D. JACOB	Maître de conférence, LSPES-CNRS, Lille
Directeur de thèse	C. ROUCAU	Directeur de recherche, CEMES-CNRS, Toulouse
Directeur de thèse	M.J. CASANOVE	Directrice de recherche, CEMES-CNRS, Toulouse





*Personne ne croit une nouvelle théorie sauf le théoricien qui l'a développée. Tout le monde croit des résultats expérimentaux sauf l'expérimentateur qui les a obtenus.*

*J.C.H Spence (1992)*



# Remerciements

C A y est voilà le moment d'écrire les remerciements, signe que trois années de ma vie consacrées à ma réelle passion (scientifique et artistique) de la microscopie électronique et du CBED en particulier, touchent à leurs fins. Cette partie me tient beaucoup à coeur puisque c'est la seule que l'on relit à posteriori, et qui nous renvoie aux événements de cette période intense dans un milieu peuplé de gens hors du commun, car passionnés par leur métier.

Que le lecteur voie dans cette partie la soupe de la surcharge émotionnelle (sensible que je suis) emmagasinée durant ce travail. Lire ces lignes accompagnées d'une petite musique douce et mélancolique pourra d'ailleurs aider. Tout commence en 2003, l'année de l'obtention de mon diplôme d'ingénieur, me donnant accès à une activité qui ne me correspondait pas du tout à ce moment de ma vie. Ma curiosité me pousse alors vers la recherche et la thèse. Sur ma route je trouve alors les premières personnes, et pas des moindres, que sont Christian ROUCAU et Marie-jo CASANOVE qui sont prêts à me faire confiance. Ils me présentent le sujet sur lequel j'ai potassé durant ces trois années, dont les résultats et réflexions sont résumés dans les 200 pages qui suivent ... Christian était alors à mes yeux de jeune thésard le sorcier du CBED, le seul à connaître le difficile secret caché derrière ces magnifiques figures de la nature; il l'est toujours ... Il a été dans cette thèse plus qu'un Directeur de thèse il fut mon CHEF. Il m'a soutenu alors que je potassais les chemins de Feynman (à priori sans rapport avec mon sujet) pendant les 6 premiers mois de la thèse, il écoutait tous les matins patiemment mes 30 minutes de monologue dans son bureau à propos de la physique, la politique, les postes CNRS, mon éternel stress concernant mon avenir dans cette recherche que j'aime tant, etc ... En fait il a réussi à me diriger sans que je m'en rende compte, et il reste un exemple. Bref je garderai pour lui le plus grand respect qu'un élève doit à son Chef. Me diriger ne fut pas une mince affaire (il n'arrêtait pas de le dire ...). Heureusement Marie-Jo était là. Sans elle notre travail n'aurait été qu'un énorme fouillis et " toutes " mes publis auraient été refusées avec la mention " your english is far from being satisfactory ". Tout comme Christian, elle m'a soutenu dans mes choix ("pourquoi pas l'holographie électronique?") tout en me recentrant pour ne pas que je perde pied ("mais je pense que tu te disperses florent!!! tu vas te noyer"). De plus, tout comme moi, elle fait preuve d'une réelle passion pour le papotage si bien que lorsque Marie-jo entrait dans mon monologue du matin fraîchement commencé, la discussion pouvait durer un certain temps et se concluait par " qu'est-ce que t'en penses Christian? " dont la réponse était la plupart du temps inattendue " tient, il faut que j'ailles chez le coiffeur!! ". Pour terminer, ils ont été pour moi deux responsables extrêmement complémentaires et j'espère pouvoir travailler avec eux encore longtemps ...

Une fois la thèse acceptée, le contrat signé, on me présente mon bureau, dans lequel je passerai le plus clair de mon temps à me torturer la tête sur des problèmes dont je suis le seul à me soucier sur cette planète. Dans ce bureau, habite aussi mon ami Thomas BLON, dans le coin à gauche, caché derrière son énorme écran. Il est passionné par tout ce qu'il fait (jazz, foot, guitare, physique, jargon parisien, cigarette roulée, etc ) et ce fut un réel plaisir de partager son bureau, bien qu'il y soit interdit de fumer! Et comme il avait l'habitude de dire, il m'a permis de toujours rester " underground " au cours de ces quelques années et je l'en remercie.

Je m'installe donc tranquillement et je profite de la vue qu'offre mon nouveau bureau. C'est à ce moment précis que la porte s'ouvre avec une grande violence et qu'un homme blond arrive d'un pas décidé près de Thomas et lui explique en 30 secondes le traitement GPA (qui prend plusieurs pages dans cette thèse!!) : " bon là tu fais la FFT, prends un masque de 30 pixels et tac tac, tu cliques là et tu définis ta réf, et boum c'est fait, dac dac , allez il faut que tu merdes". Je découvre donc son Directeur de thèse : Etienne SNOECK (snoeck dog pour les amis). Il m'est très difficile de remercier rapidement Etienne car il m'a apporté beaucoup plus qu'un simple collègue. Il a toujours eu confiance en moi et c'était toujours une grande satisfaction de discuter Science avec un Physicien comme lui. Il m'a surtout montré que l'on pouvait être speed et déchaîné tout en étant un excellent microscopiste, en venant taquiner l'atome qui normalement n'aime pas trop être bousculé. Il suffit de bien leur parler et Etienne est un pro en la matière (put... salo.. revient, à mer.. il est parti). Mon long travail de thèse commence par l'indispensable formation au microscope avec l'énigmatique et fantastique Robert FOURMAUX (Bob pour les intimes) et son acolyte Yannick LEFRAIS. Leur apport est considérable, puisqu'ils m'ont absolument tout appris sur cette machine fantastique et ils ont toujours su me faire confiance même lorsque le Tecnai est arrivé, mais on y reviendra ... Les premiers mois de la thèse se déroulent donc tranquillement et se séparent entre l'étude difficile de la théorie dynamique, les manipulations sur ce bon vieux CM30 et les discussions avec la douce Martiane CABIE dont le sujet de thèse était extrêmement proche du mien. Je la remercie vivement car elle fut une des rares personnes à porter de l'intérêt à la mesure de la déformation par CBED (" c'est joli mais ça n'a pas l'air de marcher beaucoup, alors que la courbure ... "), en plus d'une à Lille et une à Grenoble!! Elle n'était pas la seule à penser que le CBED était une technique trop compliquée, Christophe GATEL que j'ai côtoyé au début de ma thèse, et qui m'a appris la prépa, m'a toujours taquiné (" et à part le silicium parfait, le CBED ça marche ou pas? "). J'avais du mal à argumenter pour me défendre (" vous êtes tous des ignares!!! "). Ce fut un immense plaisir de passer ces quelques mois avec lui, bien qu'il soit parti beaucoup trop tôt ; mais voilà qu'il revient à la fin de ma thèse ...

Les mois s'écoulaient lentement dans le petit microcosme du Cemes, ces habitants isolés du reste du monde vaquent à leurs occupations (" oh regarde mes nanoparticules ", " mais elles montent ces dislocations!! ", " mais c'est impossible! ", et autres " je ne comprends rien!!! ", etc ...). Pour ma part, j'étais tranquillement assis devant mon ordinateur quand est apparue Bénédicte WAROT-FONROSE. La fameuse Bénédicte, ancienne thésarde de Marie-jo et Etienne dont m'avait tant parlé Marie-jo et Robert (" il n'y a pas meilleure microscopiste que Bénédicte ... "). Comme il faut que j'évite de m'emballer, je la remercierai simplement pour sa gentillesse, sa disponibilité (la seule à écouter mes histoires de joints spy sur mon 4x4), ses compétences (en physique, secrétariat, réservation d'hôtels, digromet, etc ...), sa confiance, son amitié. Mais, Bénédicte fait aussi partie du clan très étrange de ces personnes qui ont dans leurs mains un outil fascinant (le TEM pour ceux qui suivent pas) qui permet d'obtenir des images magnifiques de la matière, mais qui préfèrent travailler sur des courbes très moches appelées spectres EELS. Tout au long de la thèse j'ai côtoyé ces personnes avec notamment Virginie SERIN, Sylvie SCHAMM et Lionel CALMELS. Leur gentillesse, disponibilité et compétences scientifiques m'ont presque donné envie de travailler sur leur technique, ne serait-ce que pour côtoyer ce petit cluster tellement agréable.

C'est au cours d'un frais matin du printemps de ma première année de thèse, qu'arrivant au labo je croise le camion transportant la machine qui allait transformer ma thèse, l'étoile noire du CEMES, la bombe atomique de la microscopie : le TECNAI F20 équipé d'un correcteur d'aberration sphérique. Je ne remercierai jamais assez les microscopistes du CEMES dans leur ensemble pour m'avoir permis d'être un des premiers à mettre en route et à travailler sur ce bijou déjà attendu par le laboratoire alors que j'étais encore au lycée!!! Que toutes les personnes impliquées reçoivent une nouvelle fois mes plus vifs remerciements. C'est autour de cette

période que le laboratoire a définitivement accueilli le brillant (et le mot est faible) physicien Martin HYTCH avec qui je me suis empressé de travailler. Mis à part le fait qu'il soit anglais et moi français, très calme et moi très speed, théoricien et moi expérimentateur, qu'il déteste les voitures (consommation, pollution, bruit) et que j'ai un 4x4, chaque fois que nous avons eu l'occasion de travailler ensemble, nous nous sommes trouvés très complémentaires et de jolis résultats ont pu être obtenus malgré le peu de temps consacré. Sans oublier sa gentillesse, sa confiance, son humour, ses crémaillères de folie ... Je suis par conséquent impatient de pouvoir enfin travailler à temps plein avec lui durant le post doc qu'il m'a proposé ...

Mais le laboratoire est rempli de chercheurs avec lesquels travailler est synonyme de gentillesse, de respect, de confiance et de beaux résultats. Je pense en particulier à Anne ALTIBELLI, Florence PETTINARI-STURMEL, Joël DOUIN, Armand COUJOU, Philippe CASTANY, Marc LEGROS et Joseph MORILLO avec qui j'ai eu la chance de collaborer. Je remercie tout particulièrement Anne dont l'apport à cette thèse est considérable notamment en programmation. D'autres personnes, avec lesquelles je n'ai pas eu l'opportunité de travailler (à regret), mais qui m'ont toujours soutenu, alors qu'elles n'étaient pas impliquées, ont aussi croisé mon chemin au cours de cette thèse. En particulier Caroline BONAFOS (" j'en ai marre de t'entendre parler de CBED "), Alain CLAVERIE (" mais pour les dispos réels, ça marche le CBED oui ou non ? "), Daniel CAILLARD et Frédéric MOMPIOU avec qui j'ai pu réaliser quelques images HREM de ces fantastiques matériaux que sont les quasi-cristaux, Alain COURET et Guy MOLENAT l'organisateur des multiples visites de scolaires auxquelles j'ai eu le bonheur de participer avec Bénédicte.

C'est dans ce contexte, par conséquent très favorable, que ma thèse se déroule et rencontre certaines difficultés. Heureusement, le travail de recherche est entrecoupé de Congrès et d'Ecoles qui permettent de sortir de ces mauvaises passes. J'en profite ici pour dire que je ne me suis jamais aussi éclaté (scientifiquement et humainement) que pendant l'école QEM2005 organisé par Martin et Etienne. C'est au cours de ce type de congrès, que j'ai eu la chance de rencontrer Laurent CLEMENT et Damien JACOB, les deux autres personnes qui essayent de mesurer la déformation avec le CBED. C'est dans le soutien autour de cette technique difficile et dans l'amitié que nous formions les " CBED killers ". Certes nous avons terminé dernier au tournoi de pétanque de QEM2005, mais ensemble, notre petit groupe est venu à bout des différents problèmes évoqués dans cette thèse (éléments finis, vue plane, théorie dynamique, etc ...); nous avons ainsi pu créer une méthode de mesure fiable (mais applicable simplement par nous ...). Je n'oublierai pas non plus l'invitation de Damien à Lille où j'ai pu mieux faire connaissance avec lui (son humour, sa gentillesse, etc ...) et avec sa magnifique petite famille (bonjour à Sophie, Zélie et Garance). De plus, il me fait l'honneur d'être dans mon jury. Pourvu que je continue à travailler avec lui ...

La thèse c'est long, et comme toutes les bonnes choses elle a une fin ... C'est donc au cours de la troisième année que le manuscrit, que vous aurez le plaisir de lire dans les pages qui suivent, s'est difficilement construit, corrigé, recorrecté, et ... finalisé. Je remercie Jean-Paul MORNIROLI et Jany THIBAUT d'avoir accepté la lourde tâche qui consiste à lire, juger et écrire un rapport concernant ce travail. J'en profite aussi pour remercier Guy VANDERSHA EVE d'avoir accepté d'être dans mon jury ainsi que Jean-Claude et Catherine OUSSET pour m'avoir permis de réaliser cette thèse.

La thèse fut donc une très bonne expérience dans ma vie d'étudiant (sans hésiter, la meilleure), mais cela n'a été possible que grâce aux personnes citées ci-dessus et à tous les doctorants du CEMES que je tiens ici à remercier : Benjamin KHONG, Cécile GARCIA, Florian HUE, Raphaël SERRA, Jean-Pierre CLEUZIOU, Sabrina RELAIX et j'en passe ...

La thèse se vit aussi hors du laboratoire, en particulier grâce à mon ami de toujours, Benjamin LASSAGNE avec qui une séance de cinéma se transforme en discussion sur le réel sens physique de l'interprétation Feynmanienne ou Bohmienne de la mécanique quantique; on com-



prend alors pourquoi les personnes devant nous se retournent et nous susurrent très délicatement "Fermez la ou je vous casse la gueule! ". Il faut avouer que c'était pareil en cours à l'INSA ...

Je tiens aussi à remercier mes quatre beaux-parents, ma belle-soeur et mon beau-frère qui ont supporté mes nombreux délires de physicien à propos du correcteur d'aberration sphérique, des électrons, des trous noirs, etc ... lors des différents repas familiaux. Quelle patience!!

Je garde la fin de cette histoire pour mes parents qui, lorsque mon professeur de mathématiques de 5ème leur a dit que j'étais un incapable flemmard et qu'il fallait m'orienter rapidement, n'ont jamais cessé d'avoir confiance, et ont su recadrer l'adolescent turbulent que j'étais, sans que je m'en rende compte. Ils ont toujours été là pour moi lors des différents moments de cette thèse : bonheurs, coups durs voire très durs (qu'est-ce que j'ai pu leur crier dessus ...); je ne vous remercierai jamais assez pour tout ça! Merci aussi à ma soeur Blandine et au reste de ma famille pour qui le CBED n'a plus de secret.

Derrière l'homme apparemment équilibré que suis devenu, se cache une femme extraordinaire que j'ai eu la chance d'épouser. Je parle bien entendu de Naïs, grâce à qui ma vie est un réel bonheur qui me rend parfois coupable lorsque je vois le monde qui nous entoure ... Un jour, je discutais avec un ami autour d'une bière dans un bar pittoresque du Japon, et celui-ci trouva le mot juste pour décrire Naïs; il me montra qu'après 7 ans de vie commune, elle était devenue la Source de tout ce que je suis, et de tout ce que je réalise dans le travail, dans les voyages, et dans la vie puisqu'elle est la mère de ma magnifique petite fille Lalie. Un simple Merci n'est donc pas adapté, c'est pourquoi je lui dédie l'ensemble de ce travail (elle en a de la chance!!!).

# Sommaire

<b>I</b>	<b>Situation de l'étude</b>	<b>9</b>
<b>1</b>	<b>Description des systèmes étudiés</b>	<b>11</b>
1.1	Accommodation de la contrainte d'épitaxie . . . . .	11
1.1.1	Origine de la contrainte . . . . .	11
1.1.2	Déformation élastique . . . . .	12
1.1.3	Relaxation élastique de la contrainte épitaxiale par courbure . . . . .	12
1.2	Matériaux étudiés . . . . .	13
1.2.1	Semiconducteurs de type IV . . . . .	13
1.2.2	Semiconducteurs de type III-V . . . . .	14
1.3	Principales techniques adaptées à la détermination de l'état de déformation dans les hétérostructures épitaxiées . . . . .	16
<b>2</b>	<b>Diffraction électronique en faisceau convergent</b>	<b>19</b>
2.1	Principes de base de la diffraction électronique . . . . .	19
2.1.1	La loi de Bragg . . . . .	19
2.1.2	Géométrie de la diffraction électronique : cercle de Laue . . . . .	21
2.1.3	Mode diffraction dans un microscope électronique en transmission . . . . .	22
2.2	Diffraction électronique en faisceau convergent : CBED, LACBED etc ... . . . . .	23
2.2.1	Présentation générale . . . . .	23
2.2.2	Formation géométrique d'un cliché CBED . . . . .	24
2.2.3	Diffraction électronique en faisceau convergent à grand angle : LACBED . . . . .	27
2.3	Simulation des diagrammes CBED . . . . .	30
2.3.1	Intensités diffractée et transmise dans un cliché CBED . . . . .	30
2.3.2	Introduction des approches cinématique et dynamique . . . . .	31
2.3.3	Théorie dynamique de la diffraction électronique . . . . .	32
2.3.4	Formalisme général . . . . .	33
2.3.5	Diffraction des ZOLZ : potentiel indépendant de $z$ . . . . .	38
2.3.6	Diffraction des HOLZ (potentiel dépendant de $z$ ) : Cas de la théorie dynamique classique. Traitement par les ondes de Bloch tridimensionnelles . . . . .	40
2.3.7	Perturbation de l'hamiltonien de propagation par le potentiel cristallin total : l'algorithme multislice et la théorie cinématique . . . . .	41
2.4	Conclusion . . . . .	43
<b>3</b>	<b>Microscopie électronique à haute résolution et Holographie électronique</b>	<b>45</b>
3.1	Microscopie électronique à haute résolution . . . . .	45
3.1.1	L'image HREM : "voir" les colonnes atomiques! . . . . .	45
3.1.2	Détermination de l'état de déformation par la méthode des phases géométriques . . . . .	48
3.2	Holographie électronique HREM off-axis . . . . .	51
3.2.1	Formation et reconstruction de l'hologramme électronique off-axis . . . . .	51

3.2.2	Cas particulier de l'Holographie électronique HREM . . . . .	56
3.3	Conclusion . . . . .	57
<b>II</b>	<b>Etudes par diffraction électronique en faisceau convergent</b>	<b>59</b>
<b>4</b>	<b>Optimisation des conditions expérimentales</b>	<b>61</b>
4.1	Filtrage élastique . . . . .	61
4.2	Apport du correcteur d'aberration sphérique . . . . .	63
4.3	Détermination des paramètres de maille d'un cristal et de la tension d'accélération du microscope : principe de la méthode . . . . .	64
4.3.1	Détection précise de la position des lignes . . . . .	64
4.3.2	Comparaison avec des simulations cinématiques : ajustement des moindres carrés . . . . .	66
4.3.3	Influence du type d'axe de zone . . . . .	66
4.3.4	Comparaison avec des simulations dynamiques . . . . .	67
4.3.5	HOLZ shift et simulations quasi-cinématiques . . . . .	68
4.3.6	Applications aux couches épitaxiées . . . . .	71
<b>5</b>	<b>Observations en section transverse de couches épitaxiées : effet de la relaxation par les surfaces libres</b>	<b>75</b>
5.1	Résultats expérimentaux . . . . .	75
5.1.1	Couches épitaxiées de semiconducteur de type <i>IV</i> avec $t \gg d$ . . . . .	75
5.1.2	Couches épitaxiées de semiconducteur de Type <i>III - V</i> avec $t \gg d$ . . . . .	80
5.1.3	Couches épitaxiées de semiconducteur de Type <i>III - V</i> avec $t \approx d$ . . . . .	80
5.1.4	Discussion . . . . .	82
5.2	Modélisation de l'état de déformation des couches épitaxiées par éléments finis . . . . .	83
5.3	Simulations dynamiques des effets de relaxation : limite de l'approche classique . . . . .	86
5.4	Proposition d'une nouvelle approche basée sur les perturbations dépendantes du temps . . . . .	87
5.4.1	Cas du cristal parfait : perturbation des états de diffraction des ZOLZ par le potentiel des HOLZ . . . . .	87
5.4.2	Validation du traitement perturbatif du potentiel des HOLZ : comparaison avec le traitement classique des ondes de Bloch 3D . . . . .	89
5.4.3	Cas d'un cristal soumis à un champ de déplacement $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$ : introduction d'un nouveau potentiel perturbateur . . . . .	89
5.4.4	Validation du modèle : cas d'une dislocation . . . . .	92
5.4.5	Application aux couches épitaxiées . . . . .	92
5.4.6	Conclusion . . . . .	94
5.5	Description des différentes approches pour l'étude de la déformation épitaxiale en section transverse . . . . .	96
5.5.1	Cas où le champ de déplacement est inhomogène le long de la trajectoire électronique . . . . .	96
5.5.2	Cas où le champ de déplacement est homogène le long de la trajectoire électronique . . . . .	100
5.6	Conclusion des résultats obtenus dans le cas des sections transverses . . . . .	103
<b>6</b>	<b>Observations en vue plane de couches épitaxiées : effet de la courbure</b>	<b>105</b>
6.1	Résultats expérimentaux . . . . .	105
6.1.1	Echantillons de $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$ préparés par attaque ionique et chimique . . . . .	105

6.1.2	Echantillons de $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$ préparés par attaque mécanique : le tripode . . . . .	108
6.1.3	Puits quantiques de $GaAs(100nm)/Ga_{0,88}In_{0,12}As(10nm)/GaAs$ préparés par tripode . . . . .	111
6.2	Analyse quantitative des phénomènes observés en vue plane . . . . .	114
6.2.1	Cas des couches en surface de $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$ préparées par attaque ionique et chimique . . . . .	114
6.2.2	Cas des couches en surface de $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$ préparées par attaque mécanique tripode . . . . .	118
6.2.3	Cas des puits quantiques de $GaAs(100nm)/Ga_{0,8}In_{0,1}As(10nm)/GaAs$ préparés par attaque mécanique tripode . . . . .	123
6.3	Exemples d'application à la mesure de la déformation de couches épitaxiales en vue plane . . . . .	125
6.4	Conclusion des résultats obtenus dans le cas des vues planes . . . . .	128
<b>III Apport de la HREM et de l'Holographie électronique pour les mesures de déformation</b>		<b>131</b>
<b>7</b>	<b>HREM avec un correcteur d'aberration sphérique</b>	<b>133</b>
7.1	Conditions expérimentales . . . . .	133
7.2	Cartographie du champ de contrainte des couches épitaxiées : apport de la correction du $C_s$ . . . . .	135
7.2.1	Amélioration de la précision du traitement GPA . . . . .	136
7.2.2	Application à l'étude des couches de $SiGe/Si$ : comparaison avec les résultats CBED . . . . .	137
7.3	Contraste chimique observé dans une image HREM $C_s$ -corrigée ? . . . . .	139
7.4	Discussion . . . . .	141
<b>8</b>	<b>Applications de l'holographie électronique</b>	<b>143</b>
8.1	Combinaison des informations structurales et chimiques : cas des couches $SiGe/Si$	143
8.2	Traitement des taches de la bande latérale d'un hologramme HREM d'un cristal centrosymétrique . . . . .	147
8.2.1	Introduction théorique . . . . .	147
8.2.2	Application à la détermination du champ de déformation d'une couche de $Si_{0,7}Ge_{0,3}(27nm)/Si$ . . . . .	150
8.2.3	Discussion . . . . .	150
8.3	Application aux cas particulier des semiconducteurs de type III-V non-centrosymétriques	151
8.3.1	Evidence expérimentale . . . . .	152
8.3.2	Une interprétation du phénomène : détection de la relaxation par un effet piezoélectrique . . . . .	153
8.4	Discussion . . . . .	156
<b>A</b>	<b>Discussion sur l'interprétation physique du formalisme TDDT : principales différences avec la théorie dynamique classique</b>	<b>161</b>
<b>B</b>	<b>La microscopie électronique en transmission</b>	<b>165</b>
B.1	Introduction . . . . .	165
B.2	Présentation du MET . . . . .	166
B.2.1	Canon . . . . .	166
B.2.2	Système électro-optique . . . . .	167

B.2.3	Diaphragmes d'ouverture . . . . .	168
B.2.4	Résolution . . . . .	168
<b>C</b>	<b>Le correcteur d'aberration sphérique</b>	<b>169</b>
C.1	Les aberrations en optique électronique . . . . .	169
C.1.1	Aberrations géométriques . . . . .	170
C.1.2	Expressions générales du décalage à la trajectoire de Gauss du aux aberrations géométriques . . . . .	174
C.1.3	Aberration chromatique . . . . .	176
C.1.4	Pourquoi corriger l'aberration sphérique $C_s$ ? . . . . .	177
C.1.5	Les lentilles rondes : le théorème de Scherzer. Principe de la correction . . . . .	178
C.2	Principe du correcteur de Cs image en TEM . . . . .	179
C.2.1	Les Hexapoles . . . . .	179
C.2.2	Correcteur à 2 hexapoles : solution de Crewe . . . . .	179
C.2.3	Le correcteur de Rose : 2 hexapoles et 2 doublets . . . . .	181
C.3	Principe d'alignement du correcteur . . . . .	182
C.3.1	Tolérance du correcteur de Rose . . . . .	182
C.3.2	Correcteur réel de CEOS : principe et alignement . . . . .	183
C.4	Résultat et mesure des distorsions géométriques introduites par le correcteur . . . . .	188
C.4.1	Augmentation de la résolution et élimination de la délocalisation . . . . .	188
C.4.2	Détermination des distorsions géométriques introduites par le correcteur . . . . .	188
<b>D</b>	<b>Modélisation de la déformation par la méthode des éléments finis</b>	<b>191</b>
D.1	Théorie de l'élasticité : généralités . . . . .	191
D.1.1	Contraintes et déformations . . . . .	191
D.1.2	Loi de Hooke . . . . .	191
D.1.3	Symétrie cubique . . . . .	192
D.1.4	Etude des couches épitaxiées . . . . .	192
D.2	Modélisation par la technique des éléments finis . . . . .	194
D.2.1	principe du calcul . . . . .	194
D.2.2	Résolution des équations aux dérivées partielles (PDE) avec COMSOL multiphysics . . . . .	195
D.2.3	Modélisation 3D . . . . .	197
D.2.4	Modélisation 2D . . . . .	203
<b>E</b>	<b>Préparation des échantillons</b>	<b>205</b>
E.1	Technique classique de préparation en section transverse et en vue plane . . . . .	205
E.2	Préparation des échantillons MET par FIB . . . . .	206
E.2.1	Principe du FIB . . . . .	206
E.2.2	Technique de préparation de l'Hbar . . . . .	206

# Résumé

Les couches minces épitaxiées sur substrat subissent une déformation élastique, liée à la différence de paramètres cristallins, accompagnée ou pas de ségrégation chimique. Ces différents effets influent directement sur les propriétés des couches minces épitaxiées (caractéristiques d'émission dans les puits quantiques, transport et anisotropie magnétique ...). Ils sont au coeur d'une recherche tant fondamentale qu'appliquée visant à ajuster les propriétés par la maîtrise des états de déformation des systèmes épitaxiés. Les techniques expérimentales susceptibles de déterminer les paramètres cristallins des couches épitaxiées fournissent pour la plupart des informations partielles car moyennées sur l'ensemble de la couche ou sur sa surface. La microscopie électronique en transmission (MET) permet de sélectionner précisément les zones étudiées, ce qui est un avantage considérable en présence d'hétérogénéités. En particulier des mesures d'une très grande précision peuvent ainsi être obtenues par la diffraction électronique en faisceau convergent (CBED). Le but de ce travail est d'optimiser les techniques de mesure des déformations de couches minces avec une résolution spatiale de l'ordre du nanomètre. Nous avons choisi d'étudier l'état de déformation de couches minces épitaxiées dans les systèmes *SiGe/Si* et *GaInAs/GaAs*. Les diagrammes CBED sur des sections transverses révèlent une très forte déformation dans la couche et nous observons dans le substrat des modifications du profil des lignes de HOLZ en fonction de la distance de la zone diffractante à l'interface couche/substrat. Nous interprétons cette évolution comme caractéristique d'un phénomène de relaxation de la contrainte épitaxiale de la couche du à la faible épaisseur de l'échantillon. Cet effet dépend de nombreux paramètres, tels que l'épaisseur de l'échantillon, le misfit et la distance de la zone diffractante à l'interface couche/substrat. Afin de remonter à la déformation, nous avons développé une nouvelle méthode de mesure basée sur la combinaison de calculs par éléments finis et de simulations dynamiques obtenues grâce à un formalisme original développé au cours de ce travail appelé formalisme TDDT (Théorie dynamique dépendante du temps). Les effets de relaxation élastique ont pu aussi être mis en évidence dans les échantillons préparés en vue plane. Leur état de déformation a pu être déterminé à partir du CBED, et les simulations TDDT rendent bien compte de tous les contrastes observés. Ces différentes mesures de déformation ont été comparées à des études réalisées par holographie électronique en configuration HREM permettant de combiner les caractérisations structurales (déformations) et chimique à l'échelle atomique. Ce travail a grandement bénéficié de l'utilisation d'un microscope TEM-FEG doté d'un correcteur d'aberration sphérique et d'un filtre en énergie.



# Abstract

Epitaxial thin layers undergo an elastic strain, related to the difference in lattice parameters, accompanied or not by chemical segregation. These various effects influence directly the properties of the epitaxial thin layers (emission in quantum wells, transport and magnetic anisotropy...). They interest both fundamental research and applications aiming at adjusting the properties of epitaxial layers through the control of their state of strain. Most of the experimental techniques used to determine the lattice parameters in epitaxial layers only provide information averaged over the whole layer or its surface. On the contrary, Transmission electron microscopy (TEM) makes it possible to precisely select the studied zones, which is a considerable advantage in the presence of heterogeneities. In particular very accurate measurements can be obtained by convergent beam electron diffraction (CBED). This work aims at developing reliable methods to measure the strain in thin layers with a spatial resolution of the order of a nanometer. The selected systems for this study were *SiGe/Si* and *GaInAs/GaAs* epitaxial thin layers. CBED patterns obtained on cross-sectional specimens reveal a very heavy deformation in the layer and we observe, in the substrate, a strong evolution of the HOLZ line profile as a function of the distance between the studied zone and the interface. We showed that this evolution results from a free surface relaxation effect occurring in thin foils of strained specimens. This effect depends on many parameters, such as the thickness of the sample, the misfit and the distance between the studied zone and the interface. In order to retrieve the strain in the specimen, we developed a new method based on the combination of finite elements calculations and dynamical simulations obtained using an original formalism developed during this work and referred as TDDT (Time-Dependent Dynamical Theory). Elastic relaxation could also be observed in samples prepared in plan-view. The state of strain was thus determined in the various specimens through the comparison of simulated and experimental line profiles : remarkable agreements have been reached. These various measurements were compared with studies carried out by electron holography in HREM configuration making it possible to combine structural and chemical characterizations at an atomic scale. This work benefited from the use of a TEM-FEG instrument fitted with both a spherical aberration corrector and an energy filter.





# Introduction

L'étude des états de contrainte et/ou de déformation dans les matériaux nanostructurés, et en particulier dans les dispositifs électroniques, a suscité un important investissement de la communauté scientifique au cours de ces 10 dernières années. Cet investissement, qui s'explique par le rôle essentiel joué par les contraintes dans les propriétés physiques (électroniques, magnétiques, élastiques...) des dispositifs, s'est traduit par un nombre important d'articles, mais aussi par de nombreux symposiums dans les grands congrès internationaux consacrés aux matériaux. Au niveau national, la communauté s'est en grande partie structurée autour du GdR RELAX dédié à l'étude de la relaxation des contraintes dans les couches épitaxiées. Une part importante de l'effort consenti a visé le développement de techniques adaptées à la détermination de la déformation dans ces systèmes de dimensions nanométriques. C'est dans ce cadre que se situe ce travail de thèse qui vise à répondre à la question suivante :

*Comment déterminer expérimentalement l'état de déformation d'un cristal à l'échelle du nanomètre et avec une bonne précision ?*

Afin de résoudre ce problème, notre étude s'est concentrée sur l'analyse et le développement de techniques issues de la microscopie électronique en transmission. Parmi ces techniques, l'imagerie haute résolution est déjà couramment utilisée pour déterminer l'état de déformation avec une précision pouvant atteindre  $3pm$  dans certaines situations bien spécifiques (champ élastique autour d'une dislocation par exemple) [1]. L'intérêt du microscope électronique en transmission provient aussi de la possibilité de combiner les techniques d'imageries à la diffraction des électrons. Ainsi, en utilisant une configuration d'illumination convergente sur le cristal étudié, on peut analyser la diffraction de l'objet sur une région de taille égale voire inférieure à  $1nm$ . Cette technique appelée CBED (Convergent Beam Electron Diffraction) a de multiples applications dont la détermination de l'état de déformation. Ces deux techniques, imagerie et diffraction, semblent donc très bien adaptées pour résoudre le problème posé. Un des avantages du CBED est sa très grande précision, typiquement  $10^{-4}nm$ , sur la mesure des paramètres cristallins [2]. Mais une trop grande sensibilité peut aussi être pénalisante en présence d'inhomogénéités ou de déplacements trop importants. Pour éviter cette situation, la plupart des analyses CBED rapportées dans la littérature sont effectuées loin de la source du champ de déplacement. Or les régions sources, comme les interfaces dans les couches épitaxiées ou nanostructurées, sont précisément les régions dont l'étude est la plus pertinente. Dans ce contexte, le CBED nous a paru être la technique la plus adaptée à notre problème. Toutefois, à titre personnel, c'est avant tout l'aspect novateur, la difficulté des interprétations et surtout la fascinante beauté des diagrammes CBED qui m'ont motivé au cours de ces trois années de recherche. De plus, l'arrivée au cours de cette thèse d'un microscope doté d'un correcteur d'aberration sphérique, le TECNAI F20, nous a permis de proposer de nouveaux développements pour l'exploitation des images haute résolution en termes de déformation. Nous avons également pu débiter des analyses en holographie électronique grâce à l'utilisation d'un biprisme. Enfin, la présence d'un dispositif de filtrage en énergie sur cet appareil, a également été déterminant pour l'exploitation des diagrammes CBED.

Nous avons construit ce manuscrit autour de 3 parties : le contexte de l'étude, les résultats apportés par le CBED et ceux apportés en imagerie ( HREM et Holographie électronique). Dans la première partie on distingue trois chapitres :

- Le premier chapitre est consacré à la présentation des couches épitaxiées contraintes ainsi que des matériaux étudiés. On présentera aussi les principaux modes de relaxation de cette contrainte ainsi que les méthodes les plus couramment employées pour la mesurer.
- Le deuxième chapitre présentera la diffraction électronique en faisceau convergent dans ses diverses configurations utilisées (CBED, Kossel-Möllenstedt, LACBED) ainsi que le principe de mesure des paramètres réticulaires d'un cristal et de la tension du microscope à partir de la position des lignes. On présentera également la théorie dynamique de la diffraction électronique qui permet de simuler ce type de diagrammes.
- Enfin le chapitre 3 présentera l'imagerie Haute résolution et l'holographie électronique utilisées pour compléter les divers résultats obtenus avec le CBED.

La deuxième partie traite des résultats obtenus par diffraction électronique en faisceau convergent :

- Le premier chapitre présente l'optimisation des conditions expérimentales de la technique CBED (effet du GIF, correcteur d'aberration sphérique, etc ...).
- Le deuxième chapitre traite des observations en section transverse. C'est le coeur de la thèse car on introduit dans ce chapitre un nouveau formalisme de simulation qui permet de prendre en compte des inhomogénéités de déplacement le long de la trajectoire électronique. Ce formalisme nous a permis d'exploiter quantitativement des diagrammes CBED jugés jusqu'alors trop perturbés et de déterminer l'état de déformation dans les couches.
- Le troisième chapitre traite des observations en vue plane. On mettra en évidence des effets inédits dont on donnera une interprétation grâce au formalisme développé dans le chapitre qui précède. On en tirera alors de nouvelles méthodes de mesure de la déformation.

La dernière partie s'intéresse aux résultats obtenus en HREM et holographie électronique :

- Le premier chapitre présente les améliorations considérables apportées par le correcteur d'aberration sphérique à l'imagerie Haute résolution.
- Le deuxième et dernier chapitre présente les résultats d'holographie électronique, utilisée dans une configuration de haute résolution. On en déduira une nouvelle approche pour la mesure de la déformation. On présentera aussi de premières études sur la détection par holographie d'un champ piezoélectrique lié à l'état de contrainte.

L'essentiel de notre travail a été consacré au CBED. Les résultats obtenus par cette technique sont par conséquent beaucoup plus achevés que les développements effectués en HREM et en Holographie électronique.





Première partie

Situation de l'étude



# Chapitre 1

## Description des systèmes étudiés

L'objet de ce chapitre est de préciser le contexte de notre étude, de décrire les matériaux et de définir l'objectif de la thèse. Après avoir exposé quelques généralités sur la déformation et décrit la croissance épitaxiale, nous décrirons les matériaux utilisés à cet effet, puis nous terminerons par une courte revue des techniques de mesures de déformation.

### 1.1 Accommodation de la contrainte d'épitaxie

#### 1.1.1 Origine de la contrainte

La croissance épitaxiale est un cas particulier de la croissance cristalline. L'épitaxie correspond à la continuité du réseau cristallin à travers l'interface. La croissance épitaxiale est alors une croissance ordonnée des atomes d'un matériau A, la couche, sur un matériau B, le substrat. Pour qu'une telle croissance soit obtenue, il est nécessaire que le matériau B soit monocristallin et présente une surface quasi-parfaite. Il faut également que les conditions de dépôt (pression et température) permettent la condensation et la diffusion des adatoms sur cette surface. Les deux cristaux présentent alors des relations cristallographiques bien définies. Nous nous intéressons au cas de l'épitaxie cohérente où l'on peut observer deux régimes de croissance. En début de croissance le substrat impose son paramètre de maille  $a_{substrat}$  à la couche dans le plan. L'épitaxie est dite pseudomorphe (ou cohérente) et la couche subit une déformation élastique (voir figure(1.1)).

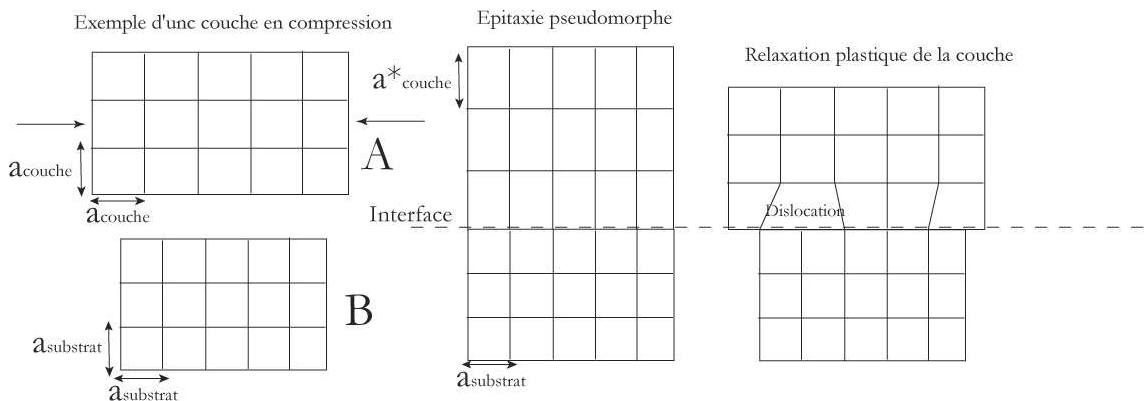


FIG. 1.1 – Schéma d'une croissance épitaxiale d'un cristal A de structure cubique sur un substrat B également cubique. On observe ainsi clairement la différence entre la croissance pseudomorphe et relaxée plastiquement.



Lorsque l'énergie élastique emmagasinée dans la couche devient trop importante, la couche épitaxiée relaxe la contrainte soit élastiquement via les surfaces libres ou en changeant de mode de croissance (2D vers le 3D type Stranski-Krastanov) soit plastiquement grâce à des dislocations de misfit (voir figure(1.1)).

Dans cette thèse on définit  $f$  le désaccord paramétrique entre la couche et le substrat par :

$$f = \frac{a_{substrat} - a_{couche}}{a_{couche}} \quad (1.1)$$

### 1.1.2 Déformation élastique

En présence d'un désaccord paramétrique  $f$ , la couche subit une déformation élastique dans le plan de l'interface. C'est une déformation réversible qui disparaît si l'origine de la contrainte est retirée. La théorie de l'élasticité linéaire permet de déterminer la déformation de la maille élémentaire de la couche déposée en fonction de ses constantes élastiques et du désaccord paramétrique suivant les trois directions de l'espace. Les principales notions utiles à ce travail sont détaillées dans l'annexe(D) consacrée aux simulations par éléments finis. La contrainte et la déformation sont représentées par les tenseurs  $\sigma$  et  $\epsilon$  respectivement. La déformation étant faible, la relation contrainte/déformation est linéaire et se décrit par la loi de Hooke :  $\sigma = C\epsilon$  où  $C$  représente le tenseur des modules d'élasticité dont les composantes correspondent aux constantes élastiques du matériau étudié. Dans le cas de cristaux cubiques seules 3 constantes élastiques sont nécessaires pour définir l'état de déformation (et de contrainte) du matériau dans son ensemble :  $C_{11}$ ,  $C_{12}$  et  $C_{44}$ . La relation linéaire peut alors s'écrire dans le repère du cube :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{xz} \\ \sigma_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} \\ \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{zz} \\ \gamma_{yz} \\ \gamma_{xz} \\ \gamma_{xy} \end{pmatrix} \quad (1.2)$$

Si l'on suppose que les axes  $x$  et  $y$  sont dans le plan de l'interface, les composantes de la déformation dans le plan sont :

$$\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = f \quad (1.3)$$

Lorsque le paramètre de maille du substrat est plus petit que celui de la couche,  $f$  est négatif et la couche est en compression. La contrainte d'épitaxie étant biaxiale, la composante  $\sigma_{zz}$  est nulle. De ce fait, on obtient la relation :

$$\begin{aligned} 2C_{12}\epsilon_{xx} + C_{11}\epsilon_{zz} &= 0 \\ \epsilon_{zz} &= -\frac{2C_{12}}{C_{11}}\epsilon_{xx} \end{aligned} \quad (1.4)$$

Si l'on suppose, ce qui est généralement le cas, qu'il n'y a pas de composante de cisaillement, alors  $\epsilon_{ij} = 0$  (si  $i \neq j$ ) et le tenseur des déformations est complètement défini.

### 1.1.3 Relaxation élastique de la contrainte épitaxiale par courbure

A côté des mécanismes de relaxation déjà évoqués (dislocation, transition 2D/3D), qui interviennent lors de la croissance, il est important de décrire un mécanisme de relaxation élastique propre à la préparation des échantillons pour les études TEM. Il intervient par une courbure de l'ensemble de la structure permettant de minimiser l'énergie élastique totale emmagasinée (voir figure(1.2)) [3, 4]. Ce phénomène et son application à la mesure de la déformation épitaxiale par

TEM sont décrits dans la thèse de Martiane Cabié (et articles) [5]. Plus l'épaisseur du substrat ( $t_{substrat}$ ) est faible par rapport à l'épaisseur de la couche, plus la relaxation élastique par les surfaces libres est importante, ce qui entraîne une diminution significative du rayon de courbure  $R$ . Ce phénomène est schématisé sur la figure(1.2).

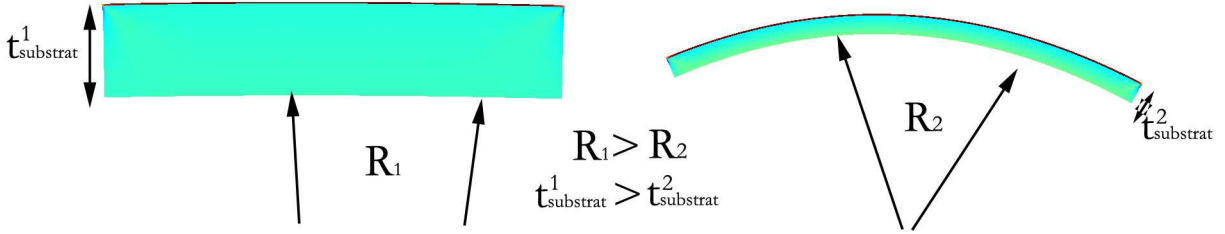


FIG. 1.2 – Schéma d'une bicouche en compression avec deux différentes épaisseurs de substrat  $t_{substrat}$ . L'épaisseur de la couche est constante. On peut ainsi apprécier l'augmentation importante de la courbure (diminution de  $R$ ).

A titre d'exemple, l'ordre de grandeur des rayons de courbure des hétérostructures étudiées est typiquement de plusieurs centaines de mètres, pour des contraintes biaxiales de l'ordre du  $GPa$  par % de misfit, des épaisseurs de couches de l'ordre de 10 à 30nm et des épaisseurs de substrat de l'ordre de 300 $\mu m$ . Cette relaxation élastique est donc un processus très faible comparé aux autres mécanismes précédemment introduits, c'est pourquoi on ne la considère que très rarement lorsqu'on étudie de tels échantillons. En revanche, le rayon de courbure devient très petit lorsque l'épaisseur du substrat atteint des dimensions nanométriques ce qui est le cas en TEM. Par exemple, dans les mêmes conditions que précédemment, il passe à  $R = 100\mu m$  si  $t_{substrat} = 300nm$  [6].

## 1.2 Matériaux étudiés

Durant notre étude nous avons travaillé sur des couches épitaxiées semiconductrices pouvant être classées en deux catégories : les semiconducteurs de type IV, comme le silicium (Si), et les semiconducteurs de type III-V, comme l'arseniure de gallium (GaAs). Ils présentent d'excellentes qualités structurales et constituent donc des matériaux adaptés au développement de méthodes expérimentales.

### 1.2.1 Semiconducteurs de type IV

Ils correspondent aux composés localisés dans la colonne  $IV$  de la classification périodique des éléments tels que le silicium (Si), le germanium (Ge) et les alliages formés avec ces deux types d'atomes. Ils sont en majorité utilisés dans les dispositifs de microélectronique, tel que les transistors, où on les rencontre parfois en couche mince. Le dépôt peut être réalisé par différentes techniques de croissance. Ils cristallisent dans une structure cubique diamant de groupe d'espace  $F4_1/d\bar{3}2/m$  [7], qui correspond à deux mailles cubiques à faces centrées (CFC) imbriquées, décalées d'un vecteur  $(\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4})$ . La structure du silicium est reportée dans le schéma(1.3).

Le paramètre de maille du Si vaut  $a_{Si} = 5,431\text{\AA}$ , du Ge  $a_{Ge} = 5,657\text{\AA}$ , et celui de l'alliage  $Si_{(1-x)}Ge_x$  peut être déterminé par la loi de Végard :

$$a_{Si_{(1-x)}Ge_x} = x.a_{Ge} + (1-x).a_{Si} \quad (1.5)$$

Les constantes élastiques du Si et Ge sont résumées dans le tableau(1.4). Les coefficients  $C_{ij}$

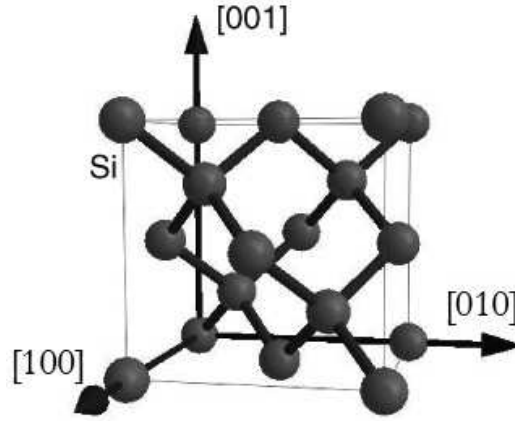


FIG. 1.3 – Structure CFC cubique diamant du Silicium.

$C_{ij}(GPa)$	Si	Ge
$C_{11}$	165	129
$C_{12}$	64	48
$C_{44}$	79, 2	67, 1

FIG. 1.4 – Constantes élastiques  $C_{ij}$  [8]

pour l'alliage  $Si_{(1-x)}Ge_x$  sont calculés à partir de la loi des mélanges (ou linéaire) identique à la loi de Végard pour le paramètre de maille (eq.(1.5)). Durant la thèse, nous avons pu étudier plusieurs types de couches épitaxiées semiconductrices de type IV :

- couches de  $27nm$  de  $Si_{0,8}Ge_{0,2}/Si$  et de  $Si_{0,7}Ge_{0,3}/Si$ . La croissance est réalisée par CVD (Chemical Vapor Deposition) dans la direction  $[001]$ . La couche de  $Si_{0,8}Ge_{0,2}$ , de paramètre  $a_{Si_{0,8}Ge_{0,2}} = 5,476\text{Å}$ , croît en compression avec  $f = -0,82\%$ , alors que  $Si_{0,7}Ge_{0,3}$  de paramètre  $a_{Si_{0,7}Ge_{0,3}} = 5,499\text{Å}$  croît en compression avec  $f = -1,2\%$
- couches de  $Si(6nm)/Ge(8nm)/Si_{0,5}Ge_{0,5}$  réalisées par LPCVD (Low pressure CVD) dans la direction de croissance  $[001]$ . La couche de Si est déposée en tension avec  $f = 2,08\%$  sur une couche de Ge épitaxiée en compression avec  $f = -1,99\%$  sur un substrat de  $Si_{0,5}Ge_{0,5}$  de paramètre  $a_{Si_{0,5}Ge_{0,5}} = 5,544\text{Å}$ . Le substrat est déposé sur du Si et se trouve complètement relaxé plastiquement par une région dense de dislocations de misfit enterrées, situées à plus de  $500nm$  de l'interface  $Ge/Si_{0,5}Ge_{0,5}$ .

Ces matériaux ont été réalisés au CEA-LETI dans l'équipe de J.M. Hartmann.

### 1.2.2 Semiconducteurs de type III-V

Ils correspondent aux composés localisés dans les colonnes *III* et *V* de la classification périodique des éléments tels que le gallium (Ga), l'arsenic (As), l'indium (In) et le phosphore (P) et tout alliage formé avec ces atomes. Ils sont en majorité utilisés dans les dispositifs d'opto-électronique comme les lasers à puits quantiques, où on les rencontre dans des hétérostructures de type  $Ga_{1-x}In_xAs/GaAs$ .

Ils cristallisent dans une structure zinc-blende de groupe d'espace  $F\bar{4}3m$  [7], qui correspond à deux mailles cubiques à faces centrées (CFC) imbriquées, décalées d'un vecteur  $(\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4})$ . La structure du  $GaAs$  est reportée dans le schéma(1.5).

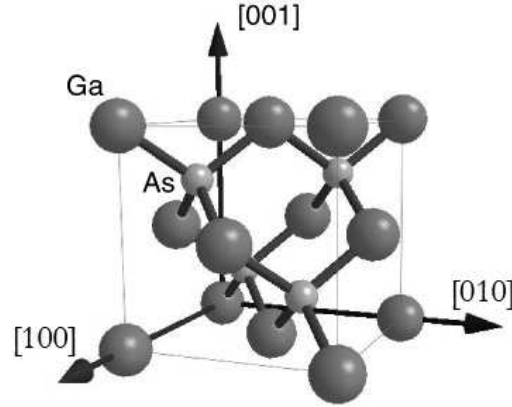


FIG. 1.5 – Structure CFC cubique de type zinc-blende du GaAs.

$C_{ij}$ (GPa)	$GaAs$	$InAs$
$C_{11}$	118	84,4
$C_{12}$	53,5	46,4
$C_{44}$	59,4	39,6
$d_{14}$ (pc/N)	2,60	-1,14

FIG. 1.6 – Constantes élastiques  $C_{ij}$  et coefficient  $d_{14}$  du tenseur de piezoélectricité pour les composés  $GaAs$  et  $InAs$  [8]

Les paramètres de mailles sont :

$$a_{GaAs} = 5,653\text{\AA}, a_{InAs} = 6,058\text{\AA}, a_{InP} = 5,869\text{\AA} .$$

Les paramètres de maille des alliages ternaires de type  $Ga_{(1-x)}In_xAs$  peuvent être déterminés via la loi de Végard (eq.1.5). Les constantes élastiques du GaAs et de l'InAs sont reportées dans le tableau(1.6). Celles des alliages  $Ga_{(1-x)}In_xAs$  seront calculées en s'aidant de la loi des mélanges lorsque cela est nécessaire. Au cours de la thèse, nous avons étudié divers types de couches semiconductrices épitaxiées de type III-V :

- Couche de 10nm de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As/GaAs$  de paramètre  $a_{Ga_{0,8}In_{0,2}As} = 5,734\text{\AA}$  réalisée par MBE dans la direction de croissance [001]. La couche est en compression avec  $f = -1,41\%$
- Couche de 100nm de  $Ga_{0,97}In_{0,03}As/GaAs$  de paramètre  $a_{Ga_{0,97}In_{0,03}As} = 5,665\text{\AA}$  réalisée par MBE (Molecular Beam epitaxy) dans la direction de croissance [001]. La couche est en compression avec  $f = -0,21\%$
- Couche encastrée de 10nm de  $GaAs(100nm)/Ga_{0,88}In_{0,12}As(10nm)/GaAs$  de paramètre  $a_{Ga_{0,88}In_{0,12}As} = 5,702\text{\AA}$  réalisée par MBE (Molecular Beam epitaxy) dans la direction de croissance [001]. La couche est en compression avec  $f = -0,85\%$

Les 2 premiers échantillons III-V ont été réalisés au LAAS (Laboratoire d'Automatisme et d'Architecture des Systèmes) de Toulouse dans l'équipe de Chantal Fontaine. Le second échantillon, caractérisé par une valeur  $f$  très faible, nous a permis d'étudier une couche épitaxiée d'une épaisseur supérieure à celles des hétérostructures plus classiques. Le puit est un échantillon mis à notre disposition par Damien Jacob de Lille, dans le cadre d'une collaboration.

### 1.3 Principales techniques adaptées à la détermination de l'état de déformation dans les hétérostructures épitaxiées

Il existe de nombreuses méthodes expérimentales de mesure des déformations et des contraintes dans les hétérostructures semiconductrices. On peut citer parmi les principales méthodes utilisées les techniques dérivées de la microscopie électronique en transmission, la diffraction des rayons X, la spectroscopie Raman et les méthodes optiques de mesure de la courbure.

La microscopie électronique en transmission (TEM) décrite dans l'annexe(B) est la technique que nous avons choisie pour cette étude. Elle utilise un faisceau d'électrons convenablement accélérés et qui, en raison de la nature ondulatoire des électrons, permet de réaliser des images de cristaux pouvant aller jusqu'à la résolution atomique. Ces images dites de haute résolution (HREM) peuvent être utilisées pour déterminer le champ de déformation du cristal observé avec une résolution spatiale qui vaut typiquement quelques nanomètres. Mais, grâce à ce microscope, on peut aussi observer la diffraction des électrons par le cristal dans différentes configurations de faisceau. Cette deuxième technique permettant de déterminer le champ de déformation du cristal est la diffraction électronique en faisceau convergent (CBED) offrant une résolution spatiale de  $1nm$ . Les principaux apports de la TEM sont d'une part sa très grande résolution dans l'espace réel pouvant atteindre l'échelle atomique (entre  $0,1nm$  et  $0,2nm$ ), avec des grossissements variant de  $10^3$  à  $10^6$ , d'autre part la possibilité de combiner l'information obtenue dans l'espace réel en mode image avec l'information obtenue dans l'espace de Fourier (ou réciproque) en mode diffraction. Ajouté à cela, la nature de l'interaction électron-matière permet de coupler les études structurales ou morphologiques à des études de composition chimique. Ce sont tous ces atouts qui font des techniques dérivées de la TEM un choix idéal pour l'étude de matériaux issus des nanotechnologies.

En diffraction de rayons X, l'échantillon est éclairé par un rayonnement électromagnétique X monochromatique. Le faisceau X pourra, si l'angle d'incidence sur les plans réticulaires du cristal correspond à l'angle de Bragg  $\theta_{bragg}$ , être diffracté par celui-ci. Des variations de distances interréticulaires par rapport à un cristal de référence (en général le substrat) peuvent ainsi être déduites à partir des variations d'angles de Bragg associées. Les composantes de la déformation sont ensuite calculées à partir de ces variations. En général on arrive à s'affranchir de la connaissance du désaccord paramétrique en mesurant à la fois le paramètre de maille hors plan et dans le plan. La résolution spatiale en diffraction des rayons X est de l'ordre de la centaine de microns. Mais elle présente l'avantage d'être non destructive.

En spectroscopie Raman, on détermine le spectre de diffusion de la lumière induit par le couplage électron-phonons. L'échantillon est éclairé par un rayonnement électromagnétique monochromatique. Une contrainte dans la couche induit un décalage en fréquence des pics associés aux modes optiques des phonons par rapport à une référence. Si on possède une connaissance des potentiels de déformation et une référence adéquate (le même matériau non contraint), en faisant des hypothèses on peut relier ce décalage à une déformation. La résolution spatiale de cette technique est micrométrique.

Enfin la méthode de la courbure permet de remonter à la contrainte présente dans la couche en mesurant le rayon de courbure  $R$  induit par la relaxation élastique présentée dans la partie(1.1.3). La mesure de  $R$  peut être réalisée grâce à la réflexion laser permettant de détecter des rayons allant jusqu'à  $km$  avec une précision spatiale qui est de l'ordre d'une centaine de microns. Une adaptation de cette technique à la microscopie électronique en transmission a pu être réalisée par Martiane Cabié durant sa thèse [5]. Dans ce cas les rayons de courbure sont beaucoup plus

petits, à cause de l'amincissement du substrat nécessaire à l'observation en transmission, et la résolution spatiale est améliorée pour atteindre le  $\mu m$ .

On remarque donc que, vis à vis de la problématique que l'on a posée en introduction, seules les techniques dérivées de la microscopie électronique en transmission remplissent la condition sur la résolution spatiale. On s'intéressera tout particulièrement à la diffraction électronique en faisceau convergent (CBED) qui semble assurer la deuxième condition sur la précision de la mesure (typiquement  $10^{-4}nm$  sur la mesure du paramètre de maille [2]). Cette technique est donc de plus en plus utilisée en microélectronique pour sa grande précision alliée à son excellente résolution spatiale. Des mesures de déformation dans des dispositifs électroniques ont ainsi été récemment obtenues [9, 10]. Un projet européen, STREAM a également été consacré ces dernières années à cette technique [11]. De plus, les résultats obtenus en CBED pourront être comparés à ceux donnés par HREM qui reste une des techniques les plus utilisées pour la mesure de la déformation en TEM. L'intérêt porté au CBED repose sur le nombre important d'interrogations, essentiellement fondamentales, qui restent encore posées. Ainsi beaucoup de concepts sont encore inexplorés comme les origines physique de la formation d'un cliché CBED dans un cristal déformé, l'influence de l'amincissement des échantillons (voir annexe(E)) obligatoire pour l'observation au microscope, etc ...

La suite présente le principe et les applications du CBED à la mesure de la déformation dans les cristaux. On s'intéressera ensuite à l'imagerie haute résolution et au traitement par les phases géométriques permettant de remonter au champ de déformation. Enfin nous présenterons l'holographie électronique dont l'application en configuration HREM nous a permis d'améliorer grandement le traitement des phases géométriques.



## Chapitre 2

# Diffraction électronique en faisceau convergent

Ce chapitre présente les bases nécessaires à la compréhension de la formation d'un cliché de diffraction électronique en faisceau convergent. Nous allons en premier lieu introduire le principe de base de la diffraction électronique en faisceau parallèle, connue depuis un peu moins d'un siècle [2, 12, 13, 14, 15]. On s'intéressera ensuite à la formation géométrique d'un cliché CBED, avant d'aborder l'étude des intensités diffractées observées dans les diagrammes [2, 16, 12].

## 2.1 Principes de base de la diffraction électronique

### 2.1.1 La loi de Bragg

#### Diffusion des électrons par un atome

Le faisceau d'électrons interagit avec un atome d'un élément donné par l'intermédiaire de son potentiel électrique. L'amplitude du faisceau est diffusée dans toutes les directions. Sa valeur, dans une direction qui fait un angle  $\alpha$  avec le faisceau incident, est proportionnelle à  $f(\alpha)$  le facteur de diffusion atomique des électrons pour cet élément. Le facteur de diffusion décroît très vite quand l'angle de diffusion  $\alpha$  augmente.

#### Diffusion des électrons par un cristal

Dans un cristal chaque atome va diffuser le faisceau d'électrons comme nous venons de le voir et ces différentes ondes vont interagir entre elles. En particulier les ondes diffusées dans certaines directions vont être renforcées si la différence de chemin optique entre ces ondes est un multiple de  $\lambda$ . Sur le schéma(2.1.a) nous avons rapporté le cas simple de deux atomes diffusants appartenant à deux plans réticulaires séparés par la distance interréticulaire  $d_{hkl}$ . La différence de chemin optique est de  $2d_{hkl}$ . La condition de renforcement peut donc s'écrire :

$$2d_{hkl}\sin\theta = n\lambda \quad (2.1)$$

Cette relation est la *loi de Bragg*.

Les valeurs  $d_{hkl}$  et  $\lambda$  étant données, la relation n'est vérifiée que pour certaines valeurs de  $\theta$ . Il ressort de cette relation qu'à une famille de plans cristallins est associé un angle  $\theta_{Bragg}$  (pour un  $n$  fixé) qui est l'angle d'incidence nécessaire pour que l'on ait un faisceau diffracté.



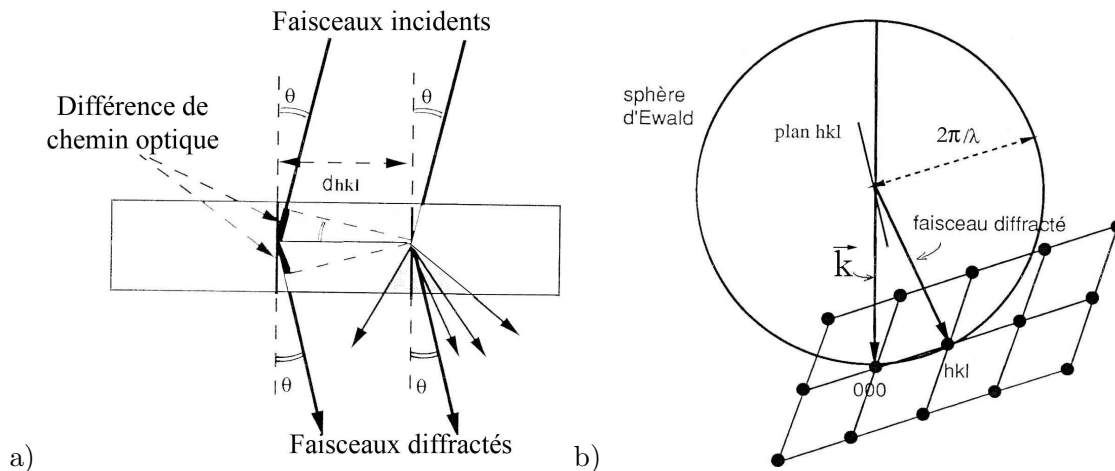


FIG. 2.1 – a) Principe de formation d'un faisceau d'électrons diffracté par interférence entre les faisceaux diffusés dans toutes les directions, par une famille de plans réticulaires  $(hkl)$ . b) Construction d'Ewald permettant de déterminer les faisceaux diffractés à partir de l'intersection d'une sphère de rayon  $\frac{2\pi}{\lambda}$  avec le réseau réciproque du cristal.

### Construction d'Ewald

Le diagramme de diffraction peut se déduire de l'intersection d'une sphère appelée sphère d'Ewald avec le réseau réciproque du cristal. Chaque point de ce réseau appelé noeud, représente une famille de plans cristallins  $(hkl)$  du réseau réel. La sphère d'Ewald est centrée au point d'incidence du faisceau sur le cristal et son rayon est  $\frac{2\pi}{\lambda}$ . L'origine du réseau réciproque est placée à l'extrémité du vecteur d'onde incident  $\vec{k}$  (figure(2.1.b)). Les taches du diagramme de diffraction correspondent aux noeuds du réseau réciproque qui sont sur la sphère d'Ewald. Il s'en suit que le diagramme de diffraction va dépendre du réseau réciproque et de son orientation mais aussi des caractéristiques de la sphère d'Ewald liées au rayonnement incident.

### Particularité de la diffraction électronique

**Longueur d'onde courte** Par rapport à la diffraction X, des différences importantes proviennent de la faible valeur de la longueur d'onde  $\lambda$  associée aux électrons. Ainsi  $\lambda = 0,002507nm$  à  $200kV$  de tension d'accélération du microscope et le rapport entre la longueur d'onde et la distance interatomique est de l'ordre de 100. Le rayon de la sphère d'Ewald ( $\frac{2\pi}{\lambda}$ ) est grand devant les distances entre les noeuds du réseau réciproque.

**Interaction électron-matière forte** Il en résulte que les échantillons en microscopie électronique sont nécessairement de faibles dimensions suivant la direction du faisceau incident. Cela implique un relâchement des conditions de Bragg dans la direction d'amincissement et donc un allongement des taches du réseau réciproque parallèlement à la normale à l'échantillon [14, 15]. Cela provient de l'application directe du principe d'incertitude d'Heisenberg [17, 18]. Puisque l'échantillon est aminci le faisceau électronique traversera rapidement le cristal, donc son temps d'interaction avec la matière est très court ( $\Delta t$  faible), ce qui augmente l'incertitude sur l'énergie d'interaction ( $\Delta E$ ), ou autrement dit, ce qui autorise d'autres conditions de diffraction. Il y a ainsi beaucoup plus de taches qui coupent la sphère d'Ewald avec des valeurs différentes de vecteur  $\vec{s}$ , représenté sur la figure(2.2.a), reliant le noeud du réseau réciproque  $\vec{g}$  à la sphère d'Ewald et dirigé le long du bâtonnet (et donc le long de la normale à l'échantillon).

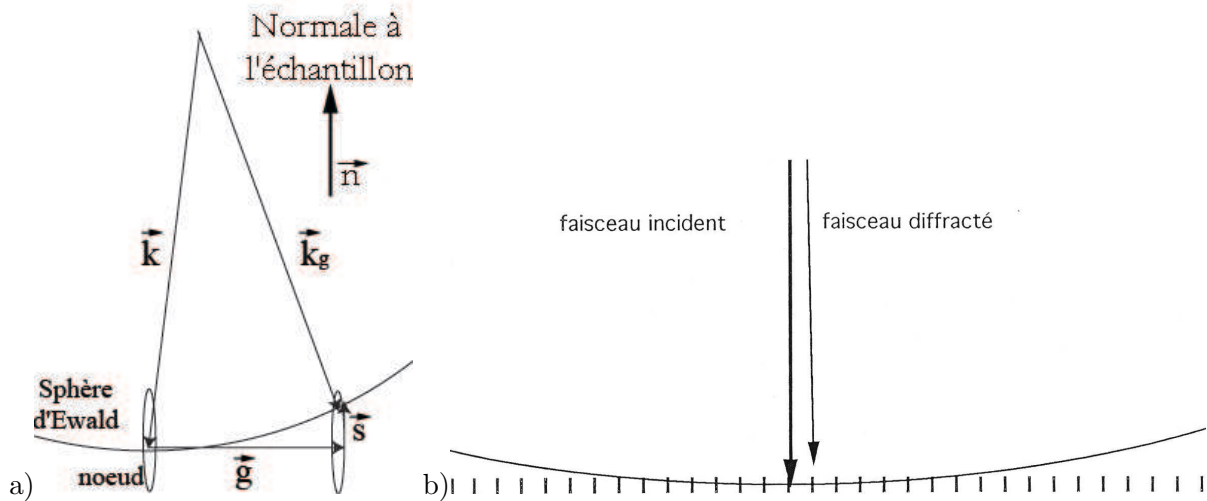


FIG. 2.2 – a) Effet du relachement des conditions de Bragg, intervenant après l'amincissement de l'échantillon, sur la construction d'Ewald. Le vecteur  $\vec{s}$  est toujours dirigé parallèlement à la normale  
 b) Construction d'Ewald tenant compte des particularités de la microscopie électronique : grand rayon de la sphère d'Ewald, noeuds remplacés par des bâtonnets.

**Angles de diffraction faibles** Du fait de la faible valeur de la longueur d'onde, les angles de diffraction sont très faibles, ainsi à  $100kV$  pour une distance interréticulaire de  $0,37nm$  :  $2\theta = \frac{\lambda}{d_{hkl}} = 10^{-2}rad$ . D'autre part la zone de la sphère d'Ewald concernée par la diffraction est très petite car les facteurs de diffusion atomique décroissent rapidement quand  $\theta$  augmente. Si l'on tient compte également du fait que le rayon de la sphère d'Ewald ( $2\pi/\lambda$ ) est grand, alors le diagramme de diffraction correspond à une partie du plan du réseau réciproque comme le montre la figure (2.2.b)

**Zones de Laue** Le rayon de la sphère d'Ewald est grand devant la distance séparant les plans du réseau réciproque perpendiculaires au faisceau incident. Cela a pour conséquence que la sphère coupe plusieurs plans parallèles du réseau réciproque. Ceux-ci vont donc apparaître dans le diagramme sous forme de zones circulaires concentriques appelées zones de Laue.

Le rayon des zones de Laue est relié à la distance entre les plans successifs. On peut observer la zone de Laue d'ordre 0 (ZOLZ), d'ordre 1 (FOLZ), d'ordre 2 (SOLZ), etc ... Les zones d'ordre supérieur à 0 sont appelées les HOLZ (High-Order Laue Zone).

### 2.1.2 Géométrie de la diffraction électronique : cercle de Laue

Si la direction du faisceau incident n'est plus perpendiculaire au plan du réseau réciproque, les zones de Laue ne sont plus centrées sur le faisceau incident.

La sphère d'Ewald n'est plus tangente à la ZOLZ mais coupe celle-ci, ainsi que les HOLZ, sur des cercles appelés *cercles de Laue*. Un cercle de Laue est visible sur la figure(2.3) où une représentation tridimensionnelle est dessinée dans laquelle les HOLZ ont été volontairement écartées pour simplifier. On note  $\vec{\chi}$  la projection sur le plan de ZOLZ, le long de l'axe de zone, du vecteur d'onde incident  $\vec{k}$ . Ce vecteur correspond au rayon du cercle de Laue, qui augmente avec l'angle  $\alpha$  de désorientation. On remarque ainsi que les conditions exactes de Bragg sont réalisées pour une famille de plans  $(hkl)$ , lorsque le noeud associé coupe le cercle de Laue. Plus la valeur de  $s$  sera faible, plus le noeud sera proche du cercle de Laue et plus l'intensité du faisceau diffracté sera importante. Dans la littérature, on définit aussi  $\vec{s}_{\vec{g}}$  caractérisé par l'erreur

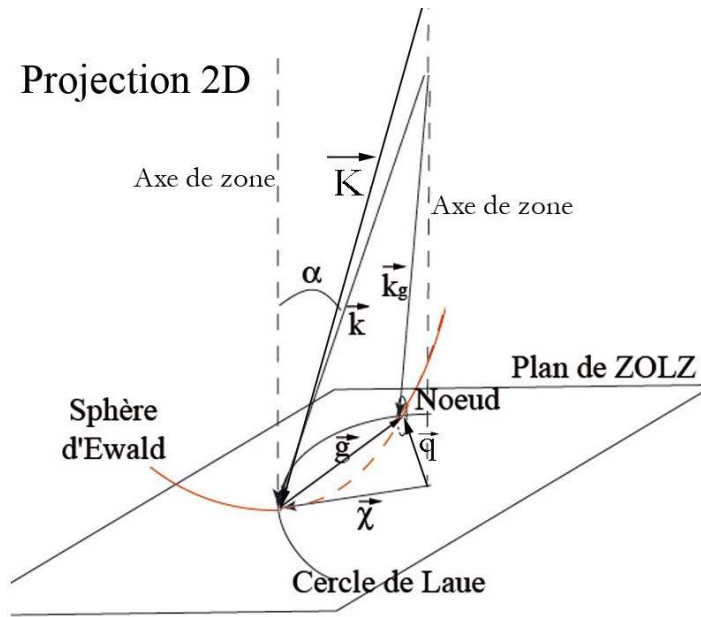


FIG. 2.3 – Conséquence géométrique d'une désorientation du faisceau (ou du cristal) par rapport à l'axe de zone. On a création du cercle de Laue qui définit les zones dans lesquelles on a réalisation des conditions exactes de Bragg.  $\vec{K}$  représente le vecteur d'onde incident dans le cristal qui diffère de  $\vec{k}$  si on prend en compte la réfraction des électrons lors de l'entrée du faisceau dans le cristal.

d'excitation de  $\vec{g}$  qui peut être différent de  $\vec{s}$  dans le cas de techniques impliquant un faisceau électronique faiblement accéléré [15]. Dans la suite on considèrera  $\vec{s}_{\vec{g}} = \vec{s}$  qui est une excellente approximation pour les très fortes tensions d'accélération utilisées en TEM.

Les taches du réseau réciproque étant allongées parallèlement à la normale à l'échantillon, la sphère d'Ewald coupe ces bâtonnets à des hauteurs différentes suivant les taches. Il en résulte des taches d'intensité variable. Les théories dynamique et cinématique permettent de calculer l'intensité du faisceau diffracté en fonction de  $s_{\vec{g}}$  [2]. Nous en discuterons en détail dans le paragraphe(2.3.3).

### 2.1.3 Mode diffraction dans un microscope électronique en transmission

Dans un microscope électronique en transmission il est possible d'observer l'image de la zone illuminée ou la diffraction associée, simplement en changeant l'excitation de la lentille intermédiaire. On peut ainsi observer sur l'écran, soit le *plan focal* de la lentille objectif où se situe le cliché de diffraction, soit le plan image de la lentille objectif où se situe l'image de l'objet.

La plupart des microscopes électroniques en transmission récents permettent d'utiliser plusieurs techniques de diffraction qui diffèrent soit par la convergence du faisceau, soit par la façon de limiter la zone qui diffracte. Nous allons décrire les plus couramment utilisées, avant de nous intéresser plus particulièrement à la principale technique employée dans cette thèse : le CBED.

#### Diffraction en aire sélectionnée

C'est la technique la plus courante. Le faisceau d'électrons parallèle arrive sur l'objet créant un faisceau transmis et les différents faisceaux diffractés focalisés dans le plan focal de l'objectif. Un diaphragme situé dans le plan image de la lentille objectif permet de sélectionner la partie de

l'objet qui participe au diagramme de diffraction. Cette sélection s'effectuant en mode image, on peut donc choisir précisément la zone à étudier. Il est alors possible d'obtenir des diagrammes provenant de domaines différents ou de précipités et donc d'avoir des renseignements sur une région particulière du cristal. Le diamètre minimum de l'aire que l'on peut ainsi sélectionner est de  $0,5\mu m$  environ. Il est limité par l'aberration sphérique de l'objectif. Mais d'autres méthodes permettent d'obtenir des diffractions sur des portions de l'échantillon plus petites.

**Microdiffraction**

Dans cette technique le faisceau d'électrons est focalisé sur l'objet et l'aire participant à la diffraction est celle éclairée par le faisceau. Il est donc inutile d'utiliser un diaphragme. La taille minimum de la zone diffractante est donc reliée directement aux possibilités de réduire la taille de la sonde électronique. Celle-ci peut être réduite jusqu'à  $10nm$  sur la plupart des nouveaux microscopes et jusqu'à  $1nm$  en mode nanoprobe. Cette méthode est adaptée à l'étude des petits précipités jusqu'à une dimension minimum de  $10nm$ , en deçà le volume diffractant devient très faible. Un des inconvénients de cette méthode est que le faisceau très focalisé sur l'objet peut entraîner un échauffement ou une dégradation locale de celui-ci.

**Diffraction en faisceau convergent**

Dans ce mode le faisceau d'électrons est focalisé sur l'objet, mais présente une ouverture angulaire importante. Les taches du diagramme de diffraction deviennent alors des disques dont le diamètre est directement relié à l'ouverture du faisceau incident. Chaque point des disques correspond alors à une orientation particulière du faisceau incident. Le disque est une carte à deux dimensions de l'intensité diffractée en fonction de l'orientation du faisceau par rapport au cristal. Une grande quantité d'informations peut être obtenue de l'analyse de ce genre de cliché.

**2.2 Diffraction électronique en faisceau convergent : CBED, LACBED etc ...**

**2.2.1 Présentation générale**

La diffraction électronique en faisceau convergent (CBED) comporte plusieurs variantes dépendant de l'angle de convergence et de la géométrie. Ce sont la microdiffraction, le CBED, la diffraction de Kossel-Möllenstedt, la méthode CBIM (Convergent Beam Imaging), la diffraction en faisceau convergent défocalisé et la diffraction en faisceau convergent aux grands angles (LACBED)(figure(2.4)).

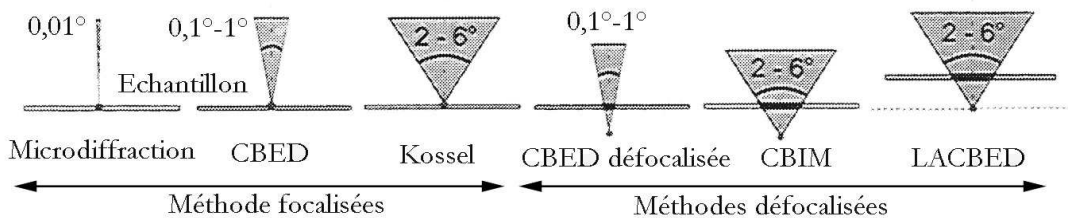


FIG. 2.4 – Présentation des différents modes possibles en diffraction électronique en faisceau convergent [12].

Dans toutes ces techniques, l'échantillon est illuminé par un faisceau incident convergent dont le demi angle de convergence est situé dans un domaine angulaire qui s'étend de  $0,01^\circ$  à

plusieurs degrés. Selon la technique, le faisceau est focalisé sur l'échantillon (Microdiffraction, CBED et Kossel-Möllenstedt) ou défocalisé (LACBED, CBIM, CBED défocalisé). Dans le mode focalisé la zone diffractante est directement définie par la taille du faisceau incident. Avec les microscopes utilisés au CEMES on peut atteindre des tailles de sonde de 1nm en mode nanoprobe. On peut alors considérer qu'il n'y a pas de variation d'épaisseur de l'échantillon et d'orientation des plans réticulaires dans la zone diffractante. Le cliché de diffraction obtenu est donc représentatif de la zone illuminée. Dans les modes défocalisés, le diamètre de la zone diffractante peut atteindre plusieurs microns ce qui permettra de caractériser les défauts cristallins.

### 2.2.2 Formation géométrique d'un cliché CBED

#### Formation d'une ligne : condition 2 ondes

Le CBED dit 2 ondes, considère le cas où une seule famille de plans réticulaires est en position de Bragg, ce qui est un artifice, souvent bien utile, destiné seulement à simplifier l'explication de la formation d'un cliché CBED. Lorsqu'on illumine un échantillon cristallin avec un faisceau convergent, le cliché de diffraction obtenu dans le plan focal de l'objectif est constitué de disques correspondants aux électrons transmis et diffractés. Chaque point dans les disques ( $P'$  et  $P''$  pour le disque transmis et diffracté respectivement : schéma(2.5.a)) provient d'une direction incidente unique  $P$ . Les disques forment ainsi une cartographie 2D de l'intensité transmise et diffractée en fonction de la direction incidente. Dans ce cas, et comme le montre le schéma(2.5.a), seule une rangée de direction incidente sera en position *exacte* de Bragg avec la famille de plan ( $hkl$ ). Seule cette rangée diffractera fortement créant une ligne blanche dans le disque diffracté dite ligne d'excès ( $hkl$ ). En raison de la conservation de l'intensité totale, on a apparition d'une ligne noire dans le disque transmis appelée ligne de défaut ( $hkl$ ) comme le montre le cliché expérimental (2.5.c).

La construction d'Ewald est alors donnée par la figure(2.5.b). Parmi toutes les directions du cône incident d'électrons, deux ont été choisies et tracées avec leurs sphères d'Ewald associées. Elles coupent toutes deux le bâtonnet correspondant à la famille ( $hkl$ ) en deux lieux distincts, caractéristiques de deux vecteurs  $\vec{s}$  différents. Le profil de la ligne d'excès (et donc de défaut) correspond ainsi au profil de l'intensité diffractée en fonction de l'écart à l'angle de Bragg  $\vec{s}$ .

#### Condition Multi ondes

Généralement plusieurs familles de plans réticulaires peuvent simultanément vérifier, de façon exacte ou approchée, les conditions de Bragg; le cliché de diffraction contient alors un disque transmis et plusieurs disques diffractés. Chacun des disques diffractés contient sa ligne d'excès. Le disque transmis quant à lui est composé d'une superposition géométrique des différentes lignes de défauts. Pour chaque point des disques transmis et diffractés, et donc chaque direction du faisceau incident, on définit l'extrémité du vecteur  $\vec{\chi}$  dont l'origine se situe sur l'axe de zone le plus proche et reste contenu dans le plan de ZOLZ. Il forme le rayon du cercle de Laue. On peut ainsi introduire le vecteur  $\vec{q} = \vec{\chi} + \vec{g}$  (voir figure(2.6.b)).

Le cliché CBED dans son ensemble peut aussi être interprété comme une cartographie de la diffraction électronique dans un cristal pour différents vecteurs  $\vec{\chi}$  et donc différentes configurations pour le cercle de Laue. Il peut en effet arriver que le cercle de Laue coupe trois (ou plus) noeuds du réseau réciproque, ce qui correspond dans le cliché à une intersection de trois (ou plus) lignes comme présenté sur le schéma(2.6.a) et donc à une condition à trois ondes (ou plus). L'intensité électronique est alors distribuée de manière complexe entre le faisceau transmis et les deux (ou plus) faisceaux diffractés.

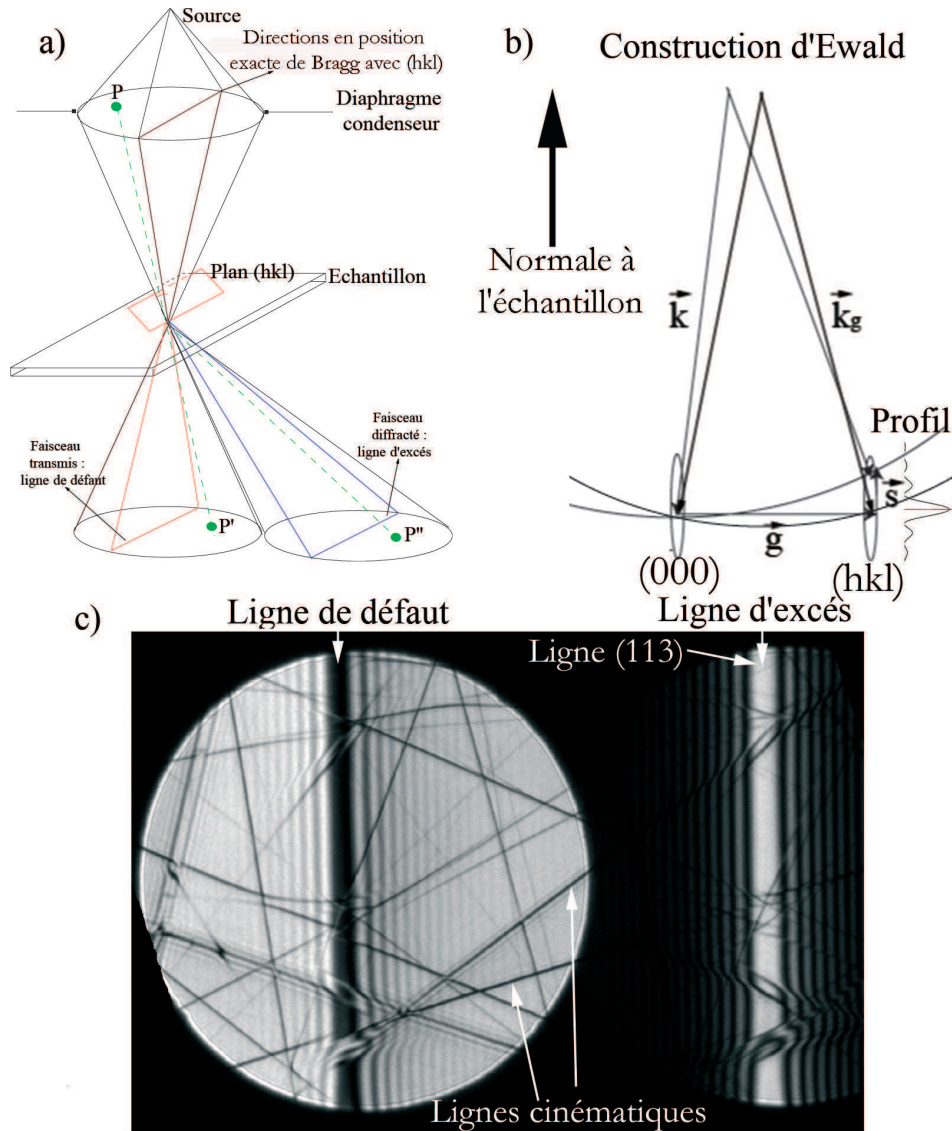


FIG. 2.5 – Principe de formation d'une ligne d'excès dans le disque diffracté et d'une ligne de défaut dans le disque transmis. a) dans l'espace direct : influence de la convergence b) dans l'espace réciproque : influence de la désorientation présente entre deux faisceaux incidents différents c) cliché CBED expérimental dans du silicium contenant notamment la ligne (113).

**Influence d'une variation du paramètre réticulaire sur la position des lignes** Une variation d'un ou de plusieurs paramètres réticulaires du cristal ( $a, b, c, \alpha, \beta, \gamma$ ) produit une variation des distances interréticulaires  $d_{hkl}$  et donc une variation des angles de Bragg  $\theta_B$  puisque ces derniers sont liés aux distances interréticulaires par la loi de Bragg. Sur un cliché CBED, cela se traduit par un déplacement des lignes d'excès et des lignes de défauts dans le disque transmis. Suivant le paramètre réticulaire affecté, les lignes peuvent translater mais aussi tourner. On peut estimer la sensibilité du déplacement des lignes par différentiation de la loi de Bragg, dans l'approximation aux petits angles,  $\lambda = 2d_{hkl}\theta_B$  par rapport à  $\theta$  et à  $d_{hkl}$  [19] :

$$2\theta\Delta d_{hkl} + 2d_{hkl}\Delta\theta = 0$$

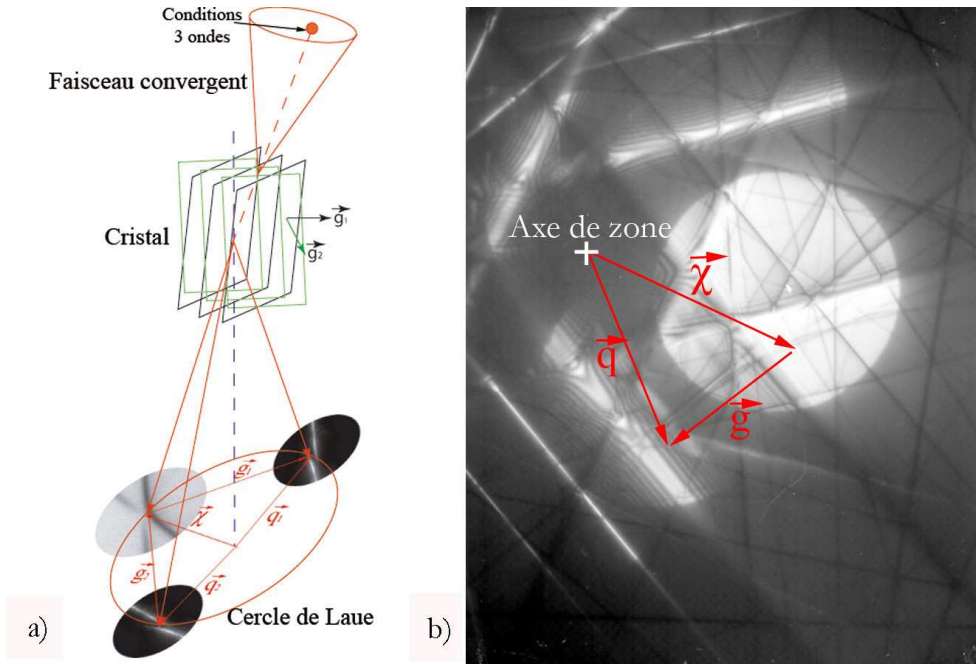


FIG. 2.6 – Définition des paramètres géométriques généraux d'un cliché CBED. a) schématisation d'une condition 3 ondes au centre du cliché : les extrémités des deux vecteurs  $\vec{g}$  sont sur le cercle de Laue. b) Cliché CBED expérimental proche de l'axe [120] d'un cristal de *GaAs*. Chaque point du cliché CBED correspond à un vecteur  $\vec{\chi}$  différent et donc à une configuration différente du cercle de Laue.

soit :

$$\frac{\Delta\theta}{\theta} = -\frac{\Delta d_{hkl}}{d_{hkl}}$$

Dans le cas d'un cristal cubique :

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}}$$

soit :

$$\frac{\Delta\theta}{\theta} = -\frac{\Delta a}{a}$$

Pour une variation donnée  $\Delta a$  du paramètre réticulaire, le déplacement  $\Delta\theta$  correspondant des lignes est d'autant plus important que l'angle de Bragg est grand. Rappelons que sur les clichés de diffraction en faisceau convergent, les lignes qui correspondent aux angles de Bragg les plus élevés sont les lignes de HOLZ. C'est pourquoi, il est possible d'effectuer des mesures très précises des paramètres réticulaires d'un cristal en comparant la position expérimentale des lignes de HOLZ d'un cliché CBED, avec la position de ces mêmes lignes obtenues pour différentes simulations [20, 21, 22, 23]. Une sensibilité de  $10^{-4}nm$  sur la variation du paramètre de maille est en général admise.

**Influence d'une variation de la tension d'accélération des électrons** Une variation  $\Delta E$  de la tension d'accélération des électrons se traduit par une variation  $\Delta\lambda$  de la longueur d'onde associée et, par l'intermédiaire de la loi de Bragg, par une variation  $\Delta\theta$  des angles de Bragg. Dans cette opération, le réseau direct n'est pas modifié puisqu'il n'intervient pas. Les

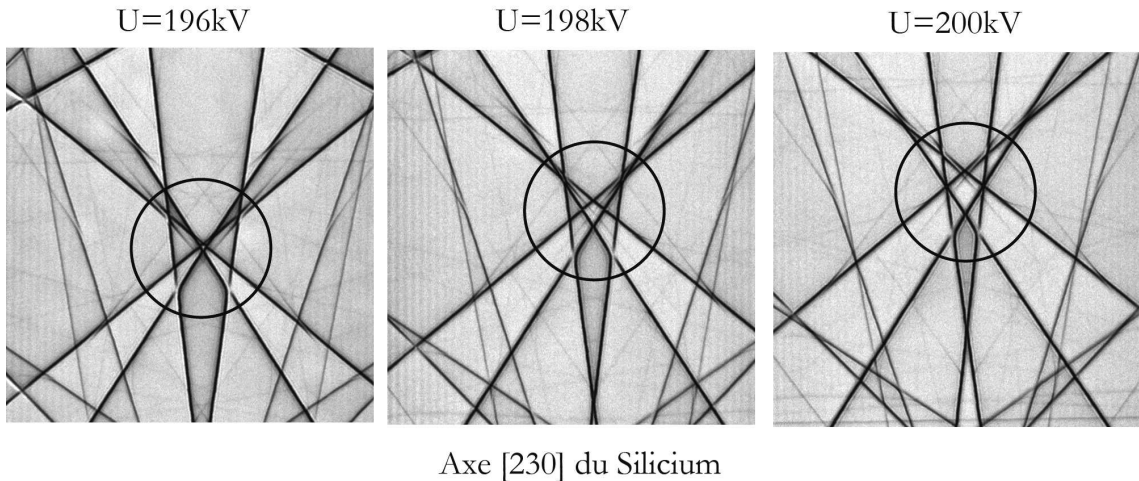


FIG. 2.7 – Clichés CBED pris dans l'axe [230] d'un cristal de silicium suivant 3 tensions d'accélération différentes. On observe le mouvement des lignes de défauts dans le cercle reporté.

angles entre les plans réticulaires sont donc inchangés et les lignes subissent un déplacement sans changement de direction. Cette propriété est illustrée sur la figure(2.7).

La sensibilité du déplacement des lignes s'obtient à partir de la relation :

$$\frac{\Delta\theta}{\theta} = -\frac{\Delta E}{2E}$$

Pour une variation d'énergie donnée  $\Delta E$ , le déplacement est d'autant plus important que l'angle de Bragg est grand. Ce sont les lignes de HOLZ qui sont les plus affectées. Une incertitude de 50V sur la tension mesurée est en général admise.

### 2.2.3 Diffraction électronique en faisceau convergent à grand angle : LACBED

#### Clichés de Kossel-Möllenstedt

Il est parfois préférable de travailler sur un nombre important de lignes de défaut dans le disque central. Pour cela il suffit d'augmenter expérimentalement l'angle de convergence lié à la taille du diaphragme condenseur 2. Dans ce cas le diamètre des disques transmis et diffractés augmente ; il peut alors se produire un recouvrement partiel des disques comme cela est schématisé sur la figure(2.8.a) [12]. Il existe simultanément les deux conditions de Bragg  $(hkl)$  et  $(\bar{h}\bar{k}\bar{l})$ . On a donc création de deux lignes d'excès parallèles  $(hkl)$  et  $(\bar{h}\bar{k}\bar{l})$ , avec leurs lignes de défauts associées présentes dans le faisceau transmis. En raison du recouvrement des disques transmis et diffractés, il y a superposition de certaines lignes de défaut  $(hkl)$  et d'excès  $(\bar{h}\bar{k}\bar{l})$ , ainsi que certaines lignes de défaut  $(\bar{h}\bar{k}\bar{l})$  et d'excès  $(hkl)$  (voir figure(2.8.a)). On a donc un cliché avec beaucoup plus de lignes, mais dont le contraste est altéré par ce phénomène de superposition comme le montre le cliché (2.8.b). Une manière d'améliorer le contraste tout en gardant un nombre important de lignes, consiste à utiliser la technique défocalisée LACBED [16, 12]. Elle présente aussi l'avantage de permettre une superposition de la diffraction et de l'image.

#### LACBED : principe

La méthode défocalisée LACBED consiste à surélever l'échantillon d'une hauteur  $\Delta h$ , pour séparer au niveau du plan objet (et du plan image) de la lentille objectif, les faisceaux diffractés



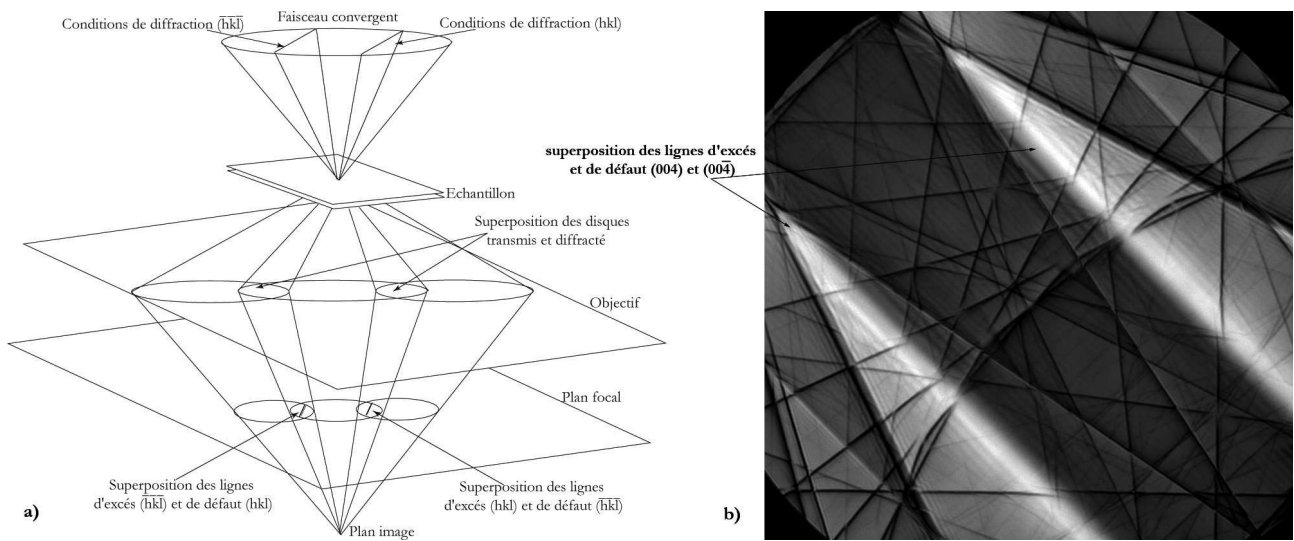


FIG. 2.8 – a) Principe de formation d'un cliché de Kossel-Möllenstedt b) cliché de Kossel-Möllenstedt du GaAs proche de l'axe  $[100]$ .

et le faisceau transmis (points  $E$ ,  $K$  et  $L$  dans la figure(2.9.a)). Dans cette configuration, nous avons toujours la superposition des lignes de défaut  $(hkl)$  et d'excès  $(\overline{hkl})$  (et inversement) dans le disque central. Le cliché ainsi obtenu n'est donc pas différent d'un cliché de Kossel-Möllenstedt, ce qui signifie que la surélévation de l'échantillon ne provoque aucune modification du cliché de diffraction de lignes situé dans le plan focal. Or, comme le montre la figure(2.9.a) les points  $E$ ,  $K$  et  $L$  situés dans le plan objet sont imagés par l'objectif en des points  $E'$ ,  $K'$  et  $L'$  situés dans le plan SA où se positionne le diaphragme de sélection d'aire. Il suffit alors de placer ce diaphragme autour du point  $E'$  de manière à ne sélectionner que le faisceau transmis. On observe alors un cliché formé uniquement des lignes de défaut  $(hkl)$  et  $(\overline{hkl})$ . Le cliché de diffraction obtenu dans ces conditions est appelé LACBED en champ clair. L'amélioration, par rapport au cliché de Kossel-Möllenstedt de la figure(2.8.b) est spectaculaire. On voit ainsi clairement apparaître, sur la figure(2.9.b), les lignes  $(004)$  ainsi que les lignes  $(002)$  qui étaient invisibles dans le cliché de Kossel-Möllenstedt. Les clichés LACBED en fond clair (BF LACBED) comprennent donc la même superposition de lignes qu'un cliché de Kossel-Möllenstedt, mais sans lignes d'excès. Si maintenant on sélectionne avec le diaphragme SA une tache diffractée dans le plan image (comme  $L'$  ou  $K'$ ), on observe un seul disque diffracté  $(hkl)$  avec sa ligne d'excès. Le cliché obtenu dans ces conditions est un cliché LACBED en fond noir (DF LACBED).

### Avantages et inconvénients du LACBED pour notre problème

Le principal avantage du LACBED est de pouvoir combiner les informations présentes dans l'image avec celles fournies par le cliché de diffraction de lignes [16, 12]. Cette propriété est clairement mise en évidence sur le schéma de la figure(2.9.a) où on a reporté un détail sur l'objet illuminé. Cette image, appelée "shadow image" n'est pas au point puisque l'échantillon n'est plus dans le plan objet. Contrairement au cliché CBED (ou Kossel-Möllenstedt) où les lignes (position, forme, etc ...) sont toutes caractéristiques de la même zone, chaque point d'un cliché LACBED correspond à des zones différentes de l'objet. Le cliché LACBED de la figure(2.10) met en évidence les lignes et la shadow image constituées des détails flous. Enfin, un avantage important de la technique LACBED provient de son pouvoir filtrant vis à vis des électrons ayant interagi inélastiquement. En effet le diaphragme SA permet d'arrêter ces électrons ce qui

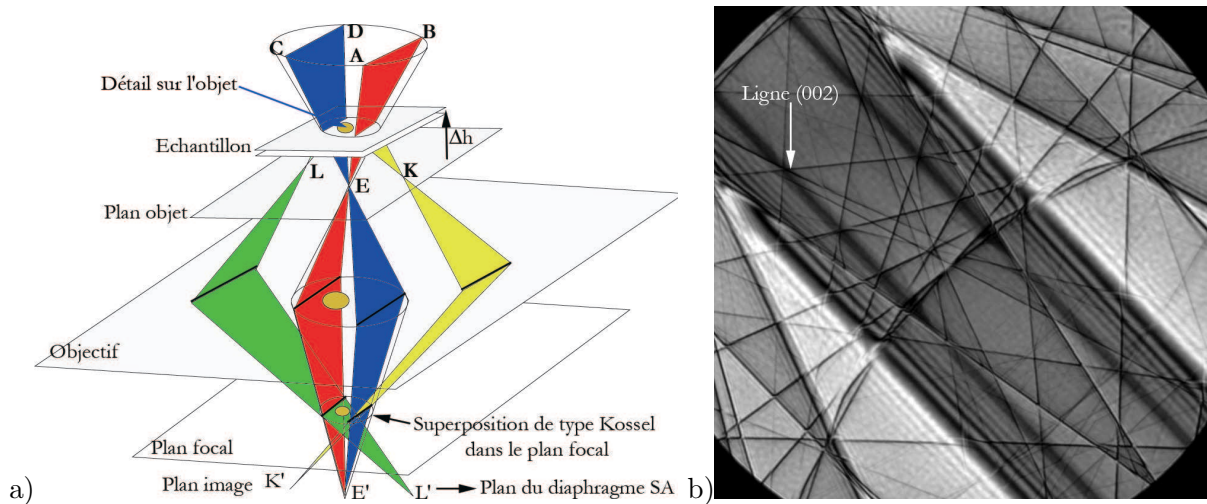


FIG. 2.9 – a) Principe de formation d'un cliché LACBED (Très inspiré du livre de J.P. Morniroli [12])  
b) cliché LACBED du GaAs proche de l'axe [100].

améliore considérablement la qualité du cliché LACBED par rapport aux clichés CBED ou de Kossel-Möllenstedt. Cette amélioration sera d'autant plus appréciable que le diaphragme SA utilisé sera petit.

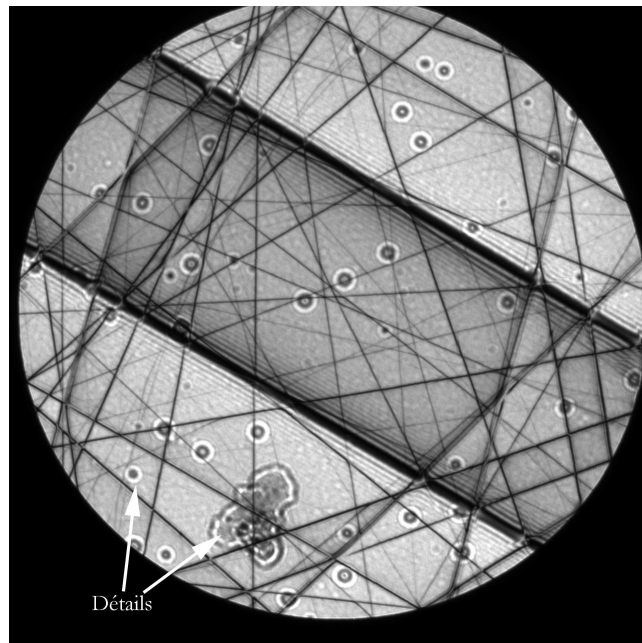


FIG. 2.10 – Cliché LACBED du silicium dans l'axe [230]. On observe très bien la superposition entre la shadow image et les lignes du cliché de diffraction

La combinaison des informations de l'image et de la diffraction, qui est un avantage pour l'étude de défauts peut se révéler un inconvénient lorsque l'on a affaire à des échantillons courbés [12]. Dans ce cas, le cliché LACBED est toujours formé par un cône de directions incidentes, mais le cristal changera lui aussi d'orientation dans la shadow image à cause de la courbure, si bien que l'axe de zone changera suivant la position dans le disque central de diffraction.

Le cliché LACBED s'en trouvera plus ou moins distordu suivant la valeur de la courbure. Ce défaut n'est évidemment pas présent dans les techniques focalisées où les caractéristiques des clichés proviennent d'un cristal d'orientation constante. Aussi, pour déterminer le paramètre réticulaire (ou la tension d'accélération du microscope), comme nous l'avons introduit dans le paragraphe(2.2.2), il est impératif de travailler avec des méthodes focalisées (CBED ou Kossel-Möllenstedt) si l'échantillon est courbé.

## 2.3 Simulation des diagrammes CBED

### 2.3.1 Intensités diffractée et transmise dans un cliché CBED

Le profil d'une ligne correspond donc à l'intensité diffractée en fonction de l'écart à l'angle de Bragg  $s$ . Sur la figure(2.5.c), on observe des lignes avec des profils différents plus ou moins complexes. Pour simplifier, on peut les classer en deux catégories : les lignes cinématiques et les lignes dynamiques. Les profils des lignes cinématiques sont constitués d'un maximum principal très important et de plusieurs maxima secondaires très faibles (voire invisibles). Les lignes dynamiques quant à elles, peuvent être constituées de deux maxima principaux, et ont des maxima secondaires beaucoup plus contrastés. C'est le cas de la ligne (113) de la figure(2.5.c). La figure(2.11) présente deux exemples de lignes d'excès obtenues avec un échantillon de Silicium observé dans un axe de zone proche de  $[230]$ .

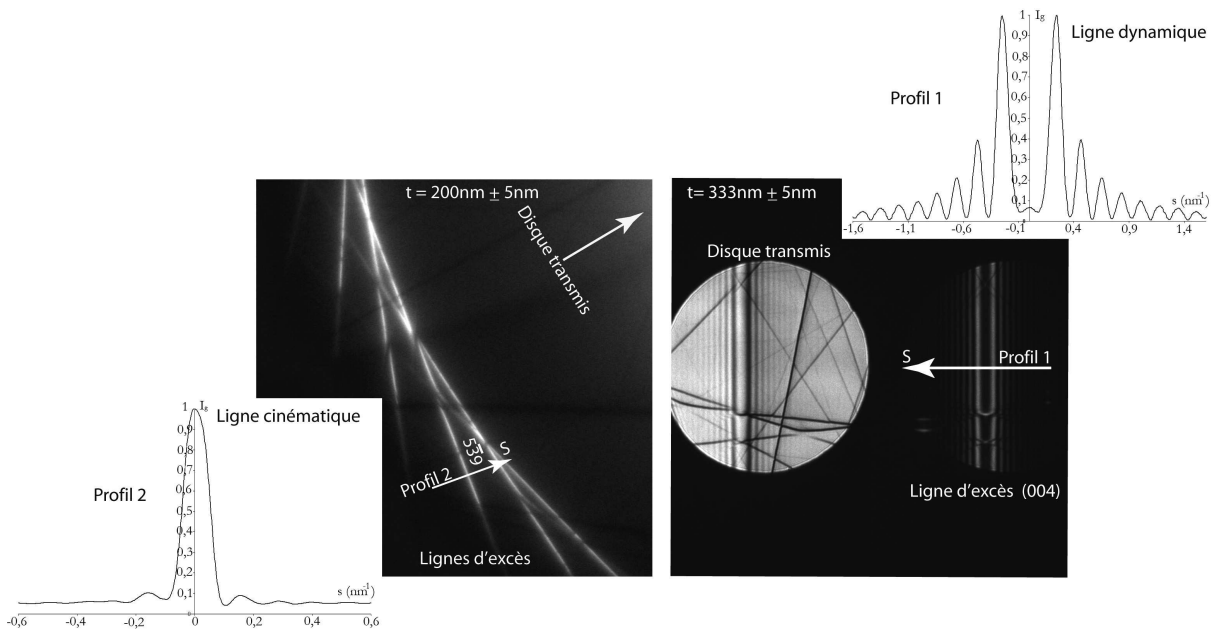


FIG. 2.11 – Profils d'une ligne d'excès cinématique ( $5\bar{3}9$ ) et dynamique (004) observées dans un échantillon de Silicium. On donne aussi les épaisseurs  $t$  correspondantes traversées par le faisceau d'électrons.

Les distances entre maxima sont très sensibles à l'épaisseur et peuvent donc être utilisées pour la mesurer par la méthode de Kelly et Allen [24].

La plupart des lignes provenant de la diffraction des HOLZ peuvent être considérées comme cinématiques, alors que les lignes dues à la diffraction des ZOLZ sont en général dynamiques. Le disque transmis du cliché(2.5.c) met ainsi en évidence la ligne dynamique (113) traversant le disque et une multitude de lignes fines cinématiques provenant de la diffraction des HOLZ. Cette image correspond donc à un cliché en condition multi-ondes avec différentes familles de plans.

Cependant une analyse grossière de la forme et de la position des lignes entre elles, montre qu'un cliché CBED réel ne peut être interprété par une simple superposition géométrique multi-ondes. Elle nécessite une analyse plus complète notamment au niveau des croisements. En effet, les conditions trois ondes (ou plus) réalisées aux intersections de lignes peuvent, dans certains cas, créer une division (en anglais "split") dite dynamique, beaucoup plus compliquée qu'une simple superposition de lignes. C'est ce que l'on observe sur certaines lignes de la figure(2.5.c) et sur le croisement de la figure(2.6.a). Cette interaction est dite dynamique car elle fait intervenir des multiples diffractions entre les familles de plans considérées. La théorie cinématique ne prend pas en compte ce genre de phénomène, et c'est pourquoi l'approche cinématique d'un cliché multi-ondes est considérée comme géométrique, construisant le disque transmis CBED par simple superposition des différentes lignes de défauts. Une simulation réelle d'un cliché CBED nécessite donc forcément un calcul dynamique comme nous allons le présenter dans le paragraphe(2.3.2).

### 2.3.2 Introduction des approches cinématique et dynamique

Au paragraphe(2.3.1) nous avons introduit les différences de concept entre une approche dynamique et cinématique de la simulation de diagramme CBED. La figure(2.12) représente le cliché CBED expérimental d'un cristal de silicium observé dans l'axe [130] associé à la simulation cinématique réalisée par le logiciel Electron diffraction [25] et la simulation dynamique réalisée par le logiciel JEMS [26].

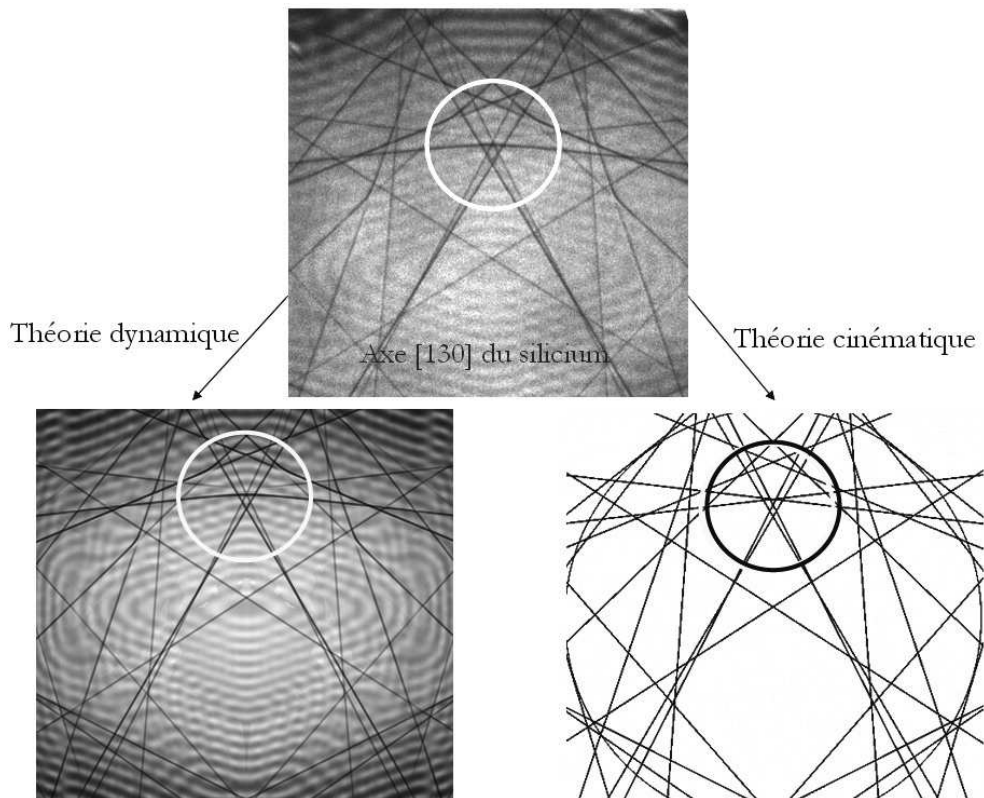


FIG. 2.12 – Cliché CBED observé dans l'axe [130] d'un cristal de silicium parfait. Les simulations réalisées par une approche cinématique et dynamique y sont associées.

On peut ainsi apprécier la grande différence entre les deux approches :

1. La simulation cinématique réalise une superposition géométrique des différentes lignes de défauts. La position des lignes semble être correcte mais divers contrastes observés dans

l'image expérimentale ne sont pas rendus. Par exemple les franges qui couvrent tout le cliché CBED et qui proviennent de lignes dynamiques extérieures au cliché ne sont pas observées. L'effet localisé au croisement encerclé n'est, lui non plus, pas reproduit. De fait, aucun des effets dynamiques n'est pris en compte.

2. La simulation dynamique reproduit la position des lignes de défauts ainsi que les différents contrastes observés dans l'image expérimentale. On retrouve en particulier l'effet observé au croisement encerclé.

Une simulation cinématique est quasiment instantanée alors qu'une simulation dynamique contenant suffisamment de lignes peut prendre plusieurs heures. L'approche cinématique est donc particulièrement intéressante pour des études nécessitant beaucoup de simulations et pour lesquelles l'aspect géométrique est suffisant. C'est le cas lors des mesures de paramètres réticulaires ou de tension d'accélération du microscope réalisées à partir de la position des lignes de HOLZ. Nous montrerons dans le chapitre(4.3) que l'on peut améliorer les simulations cinématiques en introduisant une correction dynamique qui, pour certains axes de zones, permet de déterminer la position des lignes de défauts avec une meilleure précision.

Nous allons dans la suite rappeler les bases de la théorie dynamique de la diffraction et de ses approximations en utilisant un formalisme dérivé de la mécanique quantique.

### 2.3.3 Théorie dynamique de la diffraction électronique

La théorie dynamique peut se décrire suivant deux approches complémentaires : une formulation matricielle [27, 28, 29, 30, 31] et une utilisant un langage optique [32, 13]. L'origine de cette dernière s'explique de façon évidente par la nature de l'instrument utilisant ces phénomènes de diffraction électronique : le microscope électronique en transmission. Les deux approches sont physiquement équivalentes [33, 34], la première ayant été développée en grande partie pour répondre aux besoins de la microscopie électronique conventionnelle, alors que la seconde est essentiellement utilisée pour les calculs des images haute résolution [33]. Les deux formulations peuvent en effet être exprimées dans un même langage de mécanique quantique basé sur le formalisme de Dirac [35]. Des équivalences de ce type ne sont évidemment pas une surprise puisque les formalismes de Heisenberg (matriciel) et de Schrödinger (ondulatoire) ont été rassemblés sous un même langage par Dirac dès le début de la mécanique quantique.

Aujourd'hui encore cette équivalence ne semble toujours pas être très utilisée dans le monde de la microscopie électronique. Il faut dire qu'il existe des modes de microscopie très différents correspondant en fait à des approximations distinctes de la physique électronique : électrons presque libres (théorie cinématique et théorie dynamique à deux ondes) ou liaisons fortes (condition multi-ondes) qui contribuent un peu plus à semer le trouble. Des théories simples ont été développées dans le cadre de la microscopie conventionnelle en champ sombre ou en champ clair et le lien avec la théorie des électrons presque libres a été fait assez tôt [30]. Ces théories correspondant aux approches cinématiques ou dynamiques à deux ondes considèrent la diffraction du faisceau électronique par une seule famille de plan représentée par un vecteur du réseau réciproque  $\vec{g}$ . Dans le cas de l'hypothèse cinématique le faisceau diffracté ne pourra pas être rediffracté par la famille  $\vec{g}$  parce que trop faible. On suppose ainsi une indépendance entre le faisceau diffracté et le faisceau transmis. C'est le cas de la première approximation de Born, lorsqu'on néglige l'atténuation du faisceau incident due à la diffraction. Cette hypothèse n'est pas retenue en théorie dynamique où le faisceau diffracté peut être rediffracté par la famille  $\vec{g}$  pour aller renforcer le faisceau incident, et ce, un nombre de fois dépendant de l'épaisseur traversée. C'est pourquoi la notion importante de distance d'extinction  $\xi_{\vec{g}}$  est introduite par la théorie dynamique à deux ondes et représente l'épaisseur à partir de laquelle une deuxième diffraction par une famille  $\vec{g}$  intervient et donc une extinction du faisceau diffracté. Dans la plupart des cas, suivant la ligne  $\vec{g}$ ,

on peut calculer l'intensité diffractée (ou transmise) grâce à l'approximation cinématique, dans le cas où la distance d'extinction  $\xi_{\vec{g}}$  est plus importante que l'épaisseur traversée  $t$  ( $\xi_{\vec{g}} > t$ ), et grâce au formalisme de la théorie dynamique à deux ondes pour les cas où  $\xi_{\vec{g}} < t$ . On retrouve ainsi les définitions de lignes cinématiques ou lignes dynamiques déjà introduites précédemment. Le calcul de l'intensité transmise et diffractée en théorie dynamique à deux ondes se fait par l'intermédiaire des équations d'Howie-Whelan [30].

Mais ces deux approximations ne sont bien sûr plus applicables lorsque plusieurs faisceaux diffractés interviennent. C'est le cas notamment en haute résolution où le cristal est orienté en axe de zone et où plusieurs vecteurs  $\vec{g}$  appartenant à la ZOLZ participent à la formation de l'image. Mais c'est aussi le cas de la diffraction en faisceau convergent (CBED, LACBED) où des vecteurs de la ZOLZ et des HOLZ peuvent intervenir. En effet l'approche deux ondes ne permet pas de modéliser les croisements entre lignes (conditions 3,4, ... N ondes) ou les influences complexes de la diffraction des lignes de ZOLZ sur la position des lignes de HOLZ. Comme pour la haute résolution, cette configuration nécessite l'utilisation d'une théorie dynamique à N ondes. Actuellement il existe de nombreux programmes de simulation permettant de réaliser des calculs faisant intervenir N ondes :

1. les programmes "multislice" plutôt de type "optique" [32, 34]
2. les programmes utilisant le formalisme des ondes de Bloch tridimensionnelles [36, 37, 13]

Le formalisme des ondes de Bloch tridimensionnelles considère le cristal comme un potentiel tridimensionnel dans lequel évolue l'onde électronique [36, 38] alors que le multislice décrit le cristal comme une succession de couches de potentiels bidimensionnels (potentiel projeté) caractérisées par des plans d'épaisseurs infinitésimales entre lesquelles les ondes se propagent dans le vide suivant la formulation de Huygens-Fresnel. La propagation et la diffraction sont ainsi traitées séparément, la première dans le réseau réciproque et la seconde dans le réseau réel.

En 1981 Portier et Gratias ont proposé une approche unifiée de la théorie dynamique basée sur le traitement de Dirac [35]. Cette approche, qui reste très originale en microscopie, nous a paru particulièrement pertinente pour développer les simulations des clichés CBED comme nous le verrons dans la suite. Nous allons dans cette partie rappeler les bases de l'approche de Portier et Gratias en la resituant dans le contexte particulier de la diffraction électronique en faisceau convergent. L'objectif est de préciser le cadre théorique dans lequel nous avons développé, au cours de ce travail, la simulation des diagrammes CBED des systèmes contraints étudiés. Certaines parties du texte (reportées en italique) qui suit s'inspirent du cours donné par Portier et Gratias lors de l'école de Bombannes [39].

### 2.3.4 Formalisme général

L'équation générale qui décrit la diffusion élastique des électrons par un potentiel  $V$  s'écrit [40] :

$$(\vec{\nabla}^2 + k^2)\Phi(\vec{r}) = U(\vec{r})\Phi(\vec{r}) \quad \text{avec} \quad U = -\frac{2m}{\hbar^2}eV \quad (2.2)$$

où  $k^2$  est le module du vecteur d'onde incident :

$$k = \frac{1}{\hbar} \sqrt{2m_0 e E_0 + \frac{e^2 E_0^2}{c^2}} \quad (2.3)$$

$m_0$  est la masse au repos de l'électron,  $e$  la valeur absolue de la charge électronique,  $c$  la vitesse de la lumière dans le vide et  $E_0$  la tension accélératrice. L'énergie potentielle  $U$  dans l'échantillon

$E_0(\text{kV})$	$\gamma$	$\lambda$ (pm)	$v/c$
50	1,098	5,362	0,412
100	1,119	3,706	0,548
200	1,391	2,511	0,695
500	1,978	1,423	0,862
1000	2,957	0,873	0,941

FIG. 2.13 – Correction relativiste, longueur d'onde et vitesse de l'électron pour différentes tensions d'accélération

est reliée très simplement au potentiel électrostatique  $V$  par la relation(2.2) où  $m$  est la masse relativiste :

$$m = \gamma m_0 \quad , \quad \gamma = 1 + \frac{eE_0}{m_0 c^2} = 1 + 1,95810^{-3} E_0(\text{kV}) \quad (2.4)$$

On remarque que la tension accélératrice  $E_0$  intervient à deux niveaux : elle apparaît de façon évidente dans l'expression du vecteur d'onde, mais également dans l'expression de l'énergie potentielle  $U$  par l'intermédiaire du facteur relativiste. Cette correction relativiste n'est pas évidente a priori car le mariage de la mécanique quantique et de la relativité se fait par l'intermédiaire de l'équation de Dirac [41]. Si dans notre cas la correction se fait de façon aussi simple c'est qu'implicitement il a été tenu compte du fait que le mouvement est relativiste dans une direction de propagation privilégiée (l'axe du microscope), tandis que le mouvement transverse (dans le plan de l'échantillon) fait intervenir des énergies beaucoup plus faibles [42]. La correction relativiste n'en est pas pour autant négligeable, on voit en effet d'après la formule(2.2) que le potentiel est multiplié par  $\gamma$  et donc fictivement les électrons vont voir un potentiel plus attractif à forte énergie.

Dans le tableau(2.13) nous avons donné les ordres de grandeur du facteur relativiste en fonction du potentiel accélérateur, qui nous montre que dans les conditions usuelles d'utilisation du microscope les électrons sont relativistes.

### Equation de Schrödinger bidimensionnelle

L'approximation essentielle de la microscopie électronique en transmission est celle de la diffraction aux petits angles [43, 44, 45]. Elle est basée sur le fait que l'énergie des particules incidentes est très grande par rapport au potentiel diffuseur. Cela revient à assimiler le cosinus de l'angle de diffraction à l'unité et à exclure les solutions correspondant à des électrons rétrodiffusés. C'est sur cette approximation que l'approche quantomécanique de la diffraction est basée, dont le principe peut être exprimé comme suit :

1. Le microscope électronique détruit l'isotropie spatiale en décomposant l'espace en une direction  $z$  selon l'axe optique et en un plan  $(x, y)$  perpendiculaire à  $z$  : les variables  $x$  et  $y$  d'une part et  $z$  d'autre part, sont appelées à jouer des rôles distincts dans le formalisme alors que du strict point de vue quantomécanique, la diffusion est décrite à partir de trois variables dynamiques  $x, y$  et  $z$ . C'est l'approximation aux petits angles qui distingue la direction  $z$  : **le problème stationnaire à 3 dimensions est remplacé par un problème à 2 dimensions qui dépend du "temps" représenté par la variable  $z$**  et peut se résoudre à partir de la théorie des perturbations dépendantes du temps.
2. Le phénomène de diffraction est essentiellement un processus de transition et peut être posé en ces termes : étant donné un état initial connu (le faisceau d'électrons incident), quelle est la probabilité de transition vers un état final choisi (un des faisceaux diffractés) après interaction avec le potentiel diffuseur pendant un "temps" donné,  $z$ , correspondant

à l'épaisseur du cristal. Ainsi, la théorie dynamique conduisant au calcul des amplitudes diffractées dans un ensemble de directions sélectionnées revient à la mesure des densités de probabilité de transition de l'état initial vers ces directions

Essayons d'être plus précis sur la géométrie du problème. Il est pratique de choisir une direction  $z$ , non pas comme la direction initiale de propagation des électrons i.e. le vecteur d'onde incident  $\vec{k}$ , mais plutôt de se repérer par rapport à un axe de zone (axe de forte symétrie) du cristal qui est le plus proche de la direction incidente. C'est cet axe que l'on choisit comme direction  $0z$ , le plan  $(x, y)$  lui étant perpendiculaire. Le vecteur d'onde incident qui n'est plus nécessairement exactement suivant  $0z$  (mais doit en être proche) a une composante dans le plan  $(x, y)$  que l'on note  $\vec{\chi}$  soit  $\vec{k} = (\vec{\chi}, k_z)$ .

Pour tenir compte de l'anisotropie du problème dans les équations, on isole le terme  $e^{ik_z z}$  qui oscille fortement selon  $0z$ , du fait de la petite longueur d'onde des électrons, et on écrit la fonction d'onde  $\Phi$  sous la forme :

$$\Phi(\vec{r}) = e^{ik_z z} \Psi(\vec{\rho}, z) \quad \text{avec} \quad \vec{\rho} = (x, y) \quad (2.5)$$

Par construction  $\vec{k}$  est proche de l'axe de zone  $0z$  donc  $\Psi(\vec{\rho}, z)$  doit varier lentement avec  $z$ . En rentrant (2.5) dans (2.2) et en négligeant  $\frac{\partial^2 \Psi}{\partial z^2}$ , ce qui revient à négliger la rétrodiffusion des électrons, on obtient l'équation fondamentale suivante :

$$\begin{aligned} i \frac{\partial \Psi(\vec{r})}{\partial z} &= H(\vec{r}) \Psi(\vec{r}) \\ 2k_z H(\vec{r}) &= -\vec{\nabla}_{x,y}^2 - \chi^2 + U(\vec{r}) \end{aligned} \quad (2.6)$$

$\vec{\nabla}_{x,y}^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$  est l'opérateur énergie cinétique transverse. Comme cela a été remarqué par plusieurs auteurs [46, 35] l'équation(2.6) est équivalente à **une équation de Schrödinger bidimensionnelle dépendant du temps où l'épaisseur  $z$  joue le rôle du temps**.

### Expression du potentiel cristallin : cas du cristal parfait

Avant de discuter les solutions de l'équation(2.6), il est important de s'intéresser à la forme du potentiel  $U(\vec{r})$ . Dans un cristal parfait, le potentiel est périodique, i.e.  $U(\vec{r} + \vec{l}) = U(\vec{r})$ , où  $\vec{l}$  est un vecteur de translation du réseau. On peut ainsi écrire le potentiel en le développant en série de Fourier [47] :

$$\begin{aligned} U(\vec{r}) &= \sum_{\vec{g}} U_{\vec{g}} \exp(i\vec{g} \cdot \vec{r}) \\ U_{\vec{g}} &= \frac{1}{V_c} \int_{\text{maille}} d\vec{r} U(\vec{r}) \exp(-i\vec{g} \cdot \vec{r}) \end{aligned} \quad (2.7)$$

où  $\vec{g}$  correspond à un vecteur du réseau réciproque et  $V_c$  est le volume de la maille. La géométrie de la diffraction en axe de zone peut ainsi être schématisée comme une succession de plans perpendiculaires à l'axe de zone comme reporté sur la figure(2.14). Dans le cas d'un axe de zone  $[uvw]$ , les points  $(hkl)$  appartenant à la zone de Laue d'ordre 0 (ZOLZ) obéissent à la relation  $hu + kv + lw = 0$ . On désignera par  $\vec{G}$  un vecteur de l'espace réciproque appartenant à la ZOLZ. L'expression générale d'un vecteur du réseau réciproque appartenant à la  $n^{\text{ieme}}$  zone de Laue peut ainsi s'écrire  $\vec{g}^{(n)} = (\vec{G}, -ng_z)$ . Le signe moins apparaît dans la composante  $z$  à cause du choix de la direction de l'axe  $z$  convenu sur la figure(2.14). Cette convention nous permet d'écrire plus simplement les notations puisque la diffraction par une famille de plans réticulaires associée à un point appartenant à la zone de Laue d'ordre  $n$  se note  $\vec{g}^{(n)}$  dans ce cas au lieu de  $\vec{g}^{(-n)}$ . La



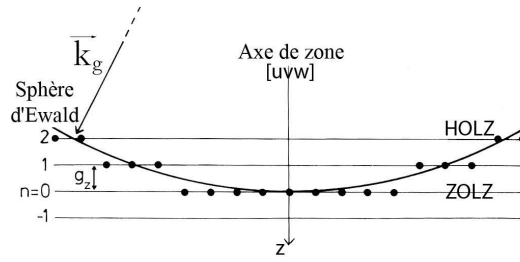


FIG. 2.14 – Construction d'Ewald mettant en évidence la structure en zones de Laue de la diffraction en axe de zone

somme sur les  $\vec{g}$  dans la série de Fourier du potentiel (2.7) peut ainsi être réécrite en séparant les contributions de la ZOLZ et des HOLZ :

$$U(\vec{r}) = U^{(0)}(\vec{\rho}) + \sum_{n \neq 0} \exp(-in g_z z) U^{(n)}(\vec{\rho}) \quad (2.8)$$

$$U^{(n)}(\vec{\rho}) = \sum_{\vec{G}} U_{(\vec{G}, -n g_z)}^{(n)} \exp(i\vec{G} \cdot \vec{\rho}) \quad (2.9)$$

où  $\vec{\rho}$  représente le vecteur position bidimensionnel dans l'espace direct  $(x, y)$  (eq.(2.5)). On observe ainsi la division naturelle entre les coordonnées transverses  $\vec{\rho}$  et longitudinale  $z$ . Le potentiel provenant de la ZOLZ est indépendant de  $z$ , alors que ceux introduit par les HOLZ dépendent de  $z$ . Chaque couche d'ordre  $n$  contribue par l'intermédiaire d'un potentiel bidimensionnel  $U^{(n)}(\vec{\rho})$  défini par les équations(2.8).  $U^{(0)}(\vec{\rho})$  correspond au potentiel projeté. Les autres composantes  $U^{(n)}(\vec{\rho})$  sont connues sous le nom de potentiel projeté conditionnel [48].

La configuration décrite peut être résumée par le schéma de la figure(2.15). Cette géométrie correspond à celle utilisée précédemment pour définir la structure d'un cliché CBED (voir paragraphe(2.2.2)). On retrouve ainsi le vecteur du réseau réciproque projeté sur la ZOLZ  $\vec{G}$  et le vecteur  $\vec{q} = \vec{\chi} + \vec{G}$  associé.

### Opérateur évolution pour la diffraction aux petits angles

L'intégration formelle de l'équation de Schrödinger bidimensionnelle (2.6) est immédiate en terme d'opérateur d'évolution  $\mathcal{U}$  :

$$\Psi(\vec{\rho}, z) = \mathcal{U}(z, 0)\Psi(\vec{\rho}, 0) \quad \text{avec} \quad i \frac{\partial}{\partial z} \mathcal{U}(z, 0) = H(z)\mathcal{U}(z, 0) \quad (2.10)$$

$\Psi(\vec{\rho}, 0)$  est la fonction d'onde des électrons à l'entrée de l'échantillon ( $z = 0$ ). Cette écriture pour l'instant est purement formelle mais elle permet d'avoir une expression compacte et élégante.

Il est maintenant très pratique d'utiliser le formalisme opératoire de la mécanique quantique avec les notations de Dirac en bra  $|\rangle$  et ket  $\langle|$  [41, 18, 17]. L'état initial est noté  $|0\rangle$ , la fonction d'onde correspondante <sup>1</sup> s'écrit dans l'espace réel  $\Psi(\vec{\rho}, 0) = \langle \vec{\rho} | 0 \rangle$ ; de même à l'épais-

<sup>1</sup>Il faut bien distinguer le vecteur d'état  $|\Psi\rangle$  et sa représentation dans une base particulière. En particulier dans l'espace réel  $\Psi(\vec{\rho}, 0) = \langle \rho | \Psi \rangle$  est la "traditionnelle" fonction d'onde que l'on doit bien différencier du vecteur d'état.

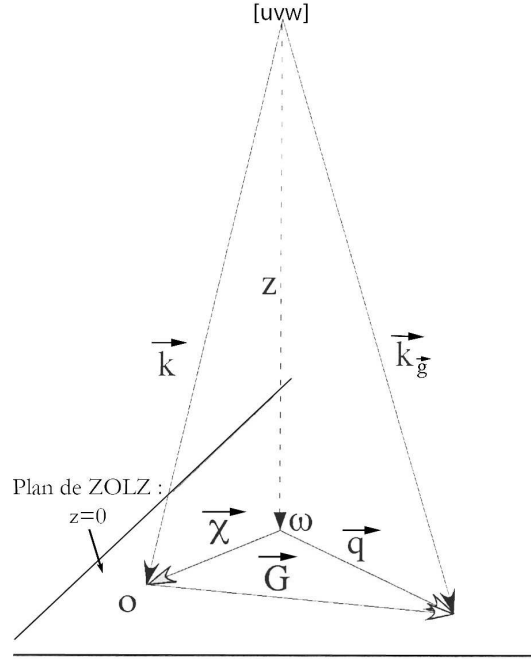


FIG. 2.15 – Configuration géométrique de la diffraction électronique [2]

seur  $z$  le vecteur d'état est noté  $|\Psi_z\rangle$  et alors  $\Psi(\vec{\rho}, z) = \langle \vec{\rho} | \Psi_z \rangle$ <sup>2</sup>. Avec ces notations de Dirac l'équation d'évolution(2.10) s'écrit formellement :

$$|\Psi_z\rangle = \mathcal{U}(z, 0) |0\rangle \quad (2.11)$$

L'état initial du système  $|0\rangle$  se note :

$$|0\rangle = e^{i\vec{\chi}\cdot\vec{\rho}} = |\vec{\chi}\rangle \quad (2.12)$$

En utilisant l'équation(2.11) et compte tenu du fait que l'intensité diffractée dans une direction  $\vec{q}$  correspond à la probabilité de transition de l'état  $|0\rangle$  vers l'état  $|\vec{q}\rangle$  après un "temps"  $z$ , on peut écrire cette intensité sous la forme :

$$I_{\vec{q}} = |\langle \vec{q} | \mathcal{U}(z, 0) |0\rangle|^2 \quad (2.13)$$

L'équation d'évolution(2.10), permettant de déterminer  $\mathcal{U}(z, 0)$ , n'est pas, en général, intégrable directement. Cependant si  $H(z)$  et  $\frac{\partial H(z)}{\partial z}$  commutent, l'opérateur évolution s'écrit sous la forme intégrée :

$$\text{Si } \left[ H(z), \frac{\partial H(z)}{\partial z} \right] = 0 \Rightarrow \mathcal{U}(z, 0) = \exp\left(-i \int_0^z H(\tau) d\tau\right) \quad (2.14)$$

Mais ce cas n'apparaît que si :

<sup>2</sup>Avec les notations de Dirac toute base orthonormée  $|i\rangle$  vérifie une relation appelée communément relation de fermeture qui s'écrit symboliquement  $\sum_i |i\rangle\langle i| = 1$ . Ce qui est une façon élégante (et utile dans les calculs) d'écrire l'opérateur unité dans une base orthonormée. Notons tout de même que le fait de considérer une base orthonormée est crucial car dans ce cas la base directe et la base duale coïncident. Si l'on doit manipuler des bases quelconques il faut être extrêmement prudent dans la manipulation des relations de fermeture. De manière générale en représentation  $|i\rangle$  tout opérateur  $O$  s'écrit simplement  $O = \sum_{i,j} |i\rangle\langle i| O |j\rangle\langle j|$ . De plus il est important de noter que si l'opérateur  $O$  est une observable (hermétique :  $O = O^\dagger$ ) alors il existe une base de vecteur propre  $|\alpha\rangle$  de  $O$  ( $O|\alpha\rangle = o_\alpha|\alpha\rangle$ ) formant une base orthonormée vérifiant la relation de fermeture  $\sum_\alpha |\alpha\rangle\langle\alpha| = 1$

1. Le potentiel  $V(\vec{r})$  est négligé : c'est le cas du propagateur
2.  $H(z)$  se réduit au terme potentiel : c'est le cas de l'objet de phase
3. le potentiel est indépendant de  $z$

Dans tous les autres cas, l'équation d'évolution ne peut se résoudre qu'approximativement à partir des méthodes des perturbations dépendantes du temps.

Dans le cas du CBED nous devons considérer séparément la diffraction des ZOLZ et des HOLZ. En effet l'équation (2.6) peut être réécrite en utilisant l'expression(2.8) du potentiel cristallin :

$$2k_z H(\vec{r}) = -\vec{\nabla}_{xy}^2 - \chi^2 + U^{(0)}(\vec{\rho}) + \sum_{n \neq 0} \exp(-ing_z z) U^{(n)}(\vec{\rho}) = 2k_z H^{(0)}(\vec{\rho}) + \sum_{n \neq 0} \exp(-ing_z z) U^{(n)}(\vec{\rho}) \quad (2.15)$$

ce qui peut se réécrire :

$$2k_z H(\vec{r}) = 2k_z H^{0 \Rightarrow ZOLZ}(\vec{\rho}) + U^{n \Rightarrow HOLZ}(\vec{\rho}, z) \quad (2.16)$$

Nous avons ainsi séparé la contribution des ZOLZ dont le terme  $H^{(0)}(\vec{\rho})$  est indépendant du "temps"  $z$  et celle des HOLZ qui ajoute un terme dépendant du "temps"  $z$ . La diffraction des ZOLZ peut être vue comme un problème indépendant du "temps"  $z$  et ainsi être traitée en calculant l'opérateur évolution  $\mathcal{U}(z, 0)$  exprimé dans l'équation(2.14).

### 2.3.5 Diffraction des ZOLZ : potentiel indépendant de $z$

C'est le cas de l'approximation du potentiel projeté  $U^{(0)}(\vec{\rho})$  provenant de la ZOLZ. L'hamiltonien dans ce cas s'écrit :

$$2k_z H^{(0)}(\vec{\rho}) = -\vec{\nabla}_{xy}^2 - \chi^2 + U^{(0)}(\vec{\rho}) \quad (2.17)$$

Nous pouvons exprimer ce problème dans différentes bases. Dans la base des fonctions propres ( $|q\rangle$ ) de l'opérateur  $\frac{1}{2k_z}(-\vec{\nabla}_{xy}^2 - \chi^2)$ , les valeurs propres associées sont  $\frac{\vec{q}^2 - \chi^2}{2k_z}$ . Dans la base des fonctions propres  $|j\rangle$  de  $H^{(0)}(\vec{\rho})$  qui sont les ondes de Bloch bidimensionnelles, les valeurs propres sont définies par :

$$H^{(0)} |j\rangle = \gamma_j |j\rangle \quad (2.18)$$

Le premier cas permet un calcul simple pour l'ordinateur [27]. Par contre il n'est pas du tout adapté lorsque l'on fait intervenir les HOLZ. Dans ce cas le choix de la base des ondes de Bloch bidimensionnelles  $|j\rangle$  est plus astucieux. C'est pourquoi nous allons nous intéresser seulement à cette situation.

Il est bien connu que, dans un potentiel périodique, il existe un ensemble complet d'états propres pour les électrons : les ondes de Bloch. L'hamiltonien "de la diffraction aux petits angles" (2.17) représente en fait, l'hamiltonien exact d'un système à deux dimensions  $(x, y)$  dont les fonctions propres, pourvu que  $U^{(0)}(\vec{\rho})$  soit périodique, sont des ondes de Bloch. L'opérateur d'évolution (2.14) s'écrit alors :

$$\mathcal{U}^{(0)}(z, 0) = \sum_j e^{-i\gamma_j z} |j\rangle \langle j| \quad (2.19)$$

Comme il est diagonal sur  $|j\rangle$ , il n'y a pas de transition entre les ondes de Bloch.

La fonction incidente est une onde plane  $|0\rangle$ , la fonction à la sortie de l'échantillon peut être développée sur la base des ondes planes  $|q\rangle$  :

$$|\Psi_z\rangle = \sum_{\vec{q}} \phi_{\vec{q}}(z) |\vec{q}\rangle \quad (2.20)$$

La composante  $\phi_{\vec{q}}(z)$  peut ainsi être réécrite en utilisant (2.19) :

$$\phi_{\vec{q}}(z) = \langle \vec{q} | \mathcal{U}^{(0)}(z, 0) | 0 \rangle = \sum_j e^{-i\gamma_j z} \langle \vec{q} | j \rangle \langle j | 0 \rangle \quad (2.21)$$

Il est pratique d'introduire, dans notre problème, les notations classiques de la théorie dynamique utilisant les ondes de Bloch tridimensionnelles [2]. Cela nous permet de mieux discerner les similitudes entre ce formalisme quantique et le formalisme classique [2, 14, 15]. On note ainsi

$$\begin{aligned} \langle j | 0 \rangle &= C_0^{j*} \\ \langle \vec{q} | j \rangle &= C_{\vec{q}}^j \end{aligned}$$

où  $C_0^{j*}$  est la composante (conjuguée) de l'état initial sur l'état propre  $| j \rangle$  et  $C_{\vec{q}}^j$  est la composante  $|\vec{q}\rangle$  sur l'état  $| j \rangle$ . La fonction d'onde électronique de sortie (2.20) s'écrit donc :

$$|\Psi_z\rangle = \sum_j C_0^{j*} \sum_{\vec{q}} C_{\vec{q}}^j e^{-i\gamma_j z} |\vec{q}\rangle \quad (2.22)$$

où  $\sum_{\vec{q}} C_{\vec{q}}^j e^{-i\gamma_j z} |\vec{q}\rangle$  correspond à l'onde de Bloch  $| j \rangle$ .

Afin de pouvoir calculer les intensités diffractées et transmises, il reste à déterminer ce système d'onde de Bloch. On forme ainsi la représentation  $|\vec{q}\rangle$  de l'équation(2.18) :

$$\langle \vec{q} | H^{(0)}(\vec{\rho}) | j \rangle = \gamma_j \langle \vec{q} | j \rangle \quad (2.23)$$

Pour l'instant nous avons exprimé  $U^{(0)}(\vec{\rho})$  dans l'espace réel car c'est la représentation la plus immédiate physiquement, mais la représentation dans la base des ondes planes  $|\vec{q}\rangle$  est également très utile pour tous les phénomènes de diffraction, pour lesquels c'est la base la plus adaptée. Dans la base  $|\vec{q}\rangle$  le potentiel  $U^{(0)}(\vec{\rho})$  s'écrit de façon générale :

$$U^{(0)}(\vec{\rho}) = \sum_{\vec{q}, \vec{q}'} |\vec{q}\rangle \langle \vec{q}' | U^{(0)}(\vec{\rho}) | \vec{q}' \rangle \langle \vec{q}' | \quad (2.24)$$

Par ailleurs les éléments de matrice de l'énergie potentielle  $\langle \vec{q} | U^{(0)}(\vec{\rho}) | \vec{q}' \rangle = U_{\vec{q}'-\vec{q}}^{(0)}$  possèdent la propriété intéressante de n'être non nuls que pour les vecteurs  $\vec{q}$  et  $\vec{q}'$  qui diffèrent d'un vecteur du réseau réciproque  $\vec{G}$ . L'hamiltonien (2.17) s'écrit donc :

$$2k_z H^{(0)}(\vec{\rho}) = \sum_{\vec{q}} |\vec{q}\rangle (\vec{q}^2 - \vec{\chi}^2) \langle \vec{q} | + \sum_{\vec{q}, \vec{G}} |\vec{q}\rangle U_{\vec{G}}^{(0)} \langle \vec{q} + \vec{G} | \quad (2.25)$$

En introduisant l'équation (2.25) dans (2.23) on obtient :

$$\begin{aligned} (\vec{q}^2 - \vec{\chi}^2) \langle \vec{q} | j \rangle + \sum_{\vec{G}} U_{\vec{G}}^{(0)} \langle \vec{q} + \vec{G} | j \rangle &= 2k_z \gamma_j \langle \vec{q} | j \rangle \\ (\vec{q}^2 - \vec{\chi}^2) C_{\vec{q}}^j + \sum_{\vec{G}} U_{\vec{G}}^{(0)} C_{\vec{q}+\vec{G}}^j &= 2k_z \gamma_j C_{\vec{q}}^j \end{aligned} \quad (2.26)$$

Nous reconnaissons le système classique d'équations séculaires [15, 14, 2] que nous pouvons écrire sous forme matricielle :

$$(\mathcal{M}) (C^j) = \gamma_j (\mathcal{I}) (C^j) \quad (2.27)$$

où  $(C^j)$  est le vecteur colonne des  $C_{\vec{q}}^j$  (vecteur propre de  $(\mathcal{M})$ ).  $(\mathcal{I})$  est la matrice diagonale unité et  $(\mathcal{M})$  est la matrice de diffraction telle que

$$(\mathcal{M})_{ij} = \frac{q_i^2 - \chi^2}{2k_z} \delta_{ij} + \frac{1}{2k_z} U_{\vec{G}_j}^{(0)} \quad (2.28)$$

Ce système n'admet de solution que si le déterminant de  $(\mathcal{M}) - \gamma_j (\mathcal{I})$  est nul, ce qui donne  $n$  valeurs possibles pour  $\gamma_j$  (il y a  $n$  faisceaux  $\vec{q}$ ) appelé l'anpassung, et pour chacune d'elles, (2.27) conduit à un ensemble de coefficients  $C_{\vec{q}}^j$ .

### 2.3.6 Diffraction des HOLZ (potentiel dépendant de $z$ ) : Cas de la théorie dynamique classique. Traitement par les ondes de Bloch tridimensionnelles

#### Formulation dans un cristal parfait

On reconnaît, dans les équations précédentes, le formalisme de la matrice de diffraction [49, 50] que l'on utilise généralement en théorie dynamique. La principale différence entre l'approche quanto-mécanique et l'approche matricielle traditionnelle provient du type de base utilisée pour diagonaliser la matrice  $\mathcal{M}$ . Si le potentiel  $U(\vec{r})$  est aussi périodique dans la direction  $z$ , précédemment considérée comme le temps, les deux formalismes se rejoignent en considérant une base d'ondes de Bloch tridimensionnelles  $|J_{3D}\rangle$  pour l'hamiltonien contenant les ZOLZ et les HOLZ. Dans ce cas seulement, le traitement de la diffraction des électrons par le cristal peut être effectué grâce à l'équation séculaire(2.26) que l'on peut réécrire en considérant la nouvelle base 3D [2, 15] :

$$(K^2 - \vec{k}_{\vec{g}}^2)C_{\vec{g}}^j + \sum_{\vec{h}} U_{\vec{h}} C_{\vec{g}-\vec{h}}^j = 0 \quad (2.29)$$

où  $K^2 = \frac{meE}{\hbar^2} + U_0$  et les coefficients  $C$  correspondent aux composantes des ondes de Bloch 3D. Ces ondes de Bloch sont par conséquent définies par le potentiel des ZOLZ et des HOLZ. Il est utile de réécrire ce système sous forme matricielle comme suit :

$$\mathcal{A}C^j = \gamma_j \mathcal{I}C^j \quad (2.30)$$

où  $\mathcal{A}$  correspond à la matrice de diffraction définie pour un cristal périodique dans les trois dimensions. Les vecteurs propres  $C^j$  correspondent à la matrice des coefficients  $C_{\vec{g}}^j$  des ondes de Bloch 3D  $j$ . Les nouvelles valeurs propres  $\gamma_j$  correspondent à leur énergie propre. Pour calculer l'intensité diffractée  $I_{\vec{g}}$ , considérons la matrice  $C$  des  $n$  vecteurs propres correspondant aux  $n$  ondes de Bloch  $j$ . Chacune des colonnes de  $C$  correspond à un vecteur propre  $C^j$ . La matrice des amplitudes  $\mathcal{W}$  en sortie d'un cristal parfait est alors définie par l'équation fondamentale de la théorie dynamique à  $N$  ondes, en fonction de la matrice des amplitudes d'entrée au cristal  $\mathcal{W}$  [15, 31, 51, 2] :

$$\begin{aligned} \mathcal{W}' &= C \|\exp(2\pi i \gamma_j \delta z)\| C^{-1} \mathcal{W} \\ &= \mathcal{S} \mathcal{W} \end{aligned} \quad (2.31)$$

$\mathcal{W}'$  est alors définie par une colonne contenant les différentes amplitudes  $w_{\vec{g}'}$  et l'intensité diffractée vaut :  $I_{\vec{g}} = w_{\vec{g}'} \times w_{\vec{g}'}^*$ . La matrice  $\mathcal{S}$  est appelée "matrice de diffusion" et  $\delta z$  correspond à la dimension du cristal suivant la direction  $z$ . La matrice  $\|\exp(2\pi i \gamma_j \delta z)\|$  est une matrice diagonale correspondant aux différentes valeurs propres  $\gamma_j$ . L'équation(2.31) ne prend pas en compte les phénomènes d'absorption. En théorie dynamique, ces effets sont introduits de manière phénoménologique en considérant une partie imaginaire supplémentaire pour chacune des composantes de Fourier du potentiel  $U_{\vec{g}} + iU_{\vec{g}'}$ . Le rapport  $R_{\vec{g}} = \frac{U_{\vec{g}'}}{U_{\vec{g}}}$  appelé coefficient d'absorption anormale pour les  $\vec{g}$  et normale pour le faisceau transmis, est en général pris autour de 0,1. Il définit la force de l'absorption.

#### Formulation dans un cristal imparfait

La condition de périodicité imposée à la direction  $z$ , nécessaire à l'application de ce formalisme, n'est strictement vérifiée que dans le cas des cristaux parfaits. Le traitement des défauts dans le cadre de ce formalisme, qui peuvent être considérés comme une perturbation de la périodicité suivant la direction de propagation  $z$ , se fait par un simple déphasage des coefficients

des ondes de Bloch (vecteurs propres de la matrice  $\mathcal{A}$ ).

Considérons un défaut créant un champ de déplacement  $\vec{u}(\vec{r})$  par rapport aux positions atomiques du cristal parfait. En théorie dynamique classique ce déplacement ne crée aucun changement dans les valeurs propres de la matrice de diffraction  $\mathcal{A}$  (même pour un cristal désorienté), et les vecteurs propres complexes  $C_{\vec{g}}^j$  sont simplement déphasés par le champ de déplacement en multipliant par  $e^{-i2\pi\vec{g}\cdot\vec{u}(\vec{r})}$ . Pour écrire ces modifications dans la formulation matricielle considérons la matrice diagonale  $\mathcal{Q} = \|\exp(2\pi i\vec{g}\cdot\vec{u}(\vec{r}))\|$ . La matrice des vecteurs propres devient alors  $\mathcal{Q}^{-1}\mathcal{C}$ , et par conséquent la matrice  $\mathcal{S}$  s'écrit  $\mathcal{Q}^{-1}\mathcal{S}\mathcal{Q}$ . Pour des défauts étendus, on peut alors découper le cristal en  $n$  tranches, chaque tranche étant définie par le champ de déplacement  $\vec{u}_n(\vec{r})$  du défaut et par la matrice  $\mathcal{S}_n^{def} = \mathcal{Q}_n^{-1}\mathcal{S}_n\mathcal{Q}_n$ . Le calcul des intensités transmise et diffractée peut alors être réalisé en utilisant l'équation fondamentale de la théorie dynamique(2.31) en définissant la matrice  $\mathcal{S}^{def}$  du cristal dans son ensemble, par une simple multiplication des matrices  $\mathcal{S}_i^{def}$  de chacune des tranches comme suit :

$$\mathcal{S}^{def} = \prod_{i=1}^n \mathcal{S}_i^{def} \quad (2.32)$$

Comme toutes les théories, cette formulation de la théorie dynamique dans un cristal imparfait contient des limites. L'utilisation des coefficients complexes  $C_{\vec{g}}^j$  implique que l'onde de Bloch 3D reste toujours définie à un déphasage près, et que, par conséquent, la périodicité suivant la troisième dimension n'est que très peu altérée. Si on considère un découpage en tranche du cristal, cette condition ne peut être vérifiée que si la variation des déplacements entre chaque tranche n'est pas trop importante, ou que le champ de déplacement reste localisé dans la matrice 3D d'un cristal parfait. C'est le cas par exemple de la dislocation, où les ondes de Bloch 3D peuvent être définies au-dessus (1) et au-dessous (2) de la dislocation. On comprend alors pourquoi l'action du champ de déplacement ponctuel de la dislocation peut être simplement considéré comme un déphasage de l'onde de Bloch (1) par rapport à l'onde de Bloch (2). L'interaction peut être alors comprise comme une interférence entre ces deux ondes de Bloch. Cette formulation est donc particulièrement bien adaptée pour l'étude du contraste des défauts tels que les dislocations, les fautes d'empilements, les parois d'antiphase ou autre défauts créant un champ de déplacement pouvant être considéré comme local.

Nous verrons dans la suite que le champ de déplacement introduit par la contrainte épitaxiale peut, selon le type de préparation, engendrer une perte de périodicité suivant  $z$ . Le formalisme des ondes de Bloch 3D n'est alors plus adapté et nous nous sommes attachés, au cours de ce travail, au développement d'une approche traitant différemment les HOLZ et les variations du potentiel suivant  $z$  de manière générale. Cette nouvelle description fera l'objet d'une étude détaillée dans la partie consacrée aux résultats expérimentaux et théoriques.

### 2.3.7 Perturbation de l'hamiltonien de propagation par le potentiel cristallin total : l'algorithme multislice et la théorie cinématique

#### Perturbation générale : cas du multislice

Une autre façon de traiter un potentiel dépendant du "temps"  $z$ , est de s'aider de la forme intégrée de l'opérateur évolution (2.14). Celle-ci n'est plus valable et nous devons soit l'évaluer numériquement, soit réaliser un traitement des perturbations [18, 17]. Dans le premier cas on retrouve l'approche classique développée par Darwin [38], qui consiste à calculer l'opérateur d'évolution par l'intermédiaire d'une intégration pas à pas réalisée sur le potentiel  $U(\vec{r})$  en  $z$ . La deuxième approche permet d'introduire l'effet du potentiel comme une perturbation des états de base bidimensionnels  $|\vec{q}\rangle$  provenant de la partie propagative de l'hamiltonien. Nous savons que l'opérateur d'évolution d'un système perturbé peut être développé en série de perturbations

[18] :

$$\mathcal{U}(z, 0) = \mathcal{U}^{(0)}(z, 0) + \sum_{m=1}^{\infty} \mathcal{U}^{(m)}(z, 0) \quad (2.33)$$

où  $\mathcal{U}^{(0)}(z, 0)$  représente l'opérateur d'évolution du système non perturbé. Le  $m^{ime}$  terme de cette série peut s'écrire :

$$\mathcal{U}^{(m)}(z, 0) = -i \int_0^z d\tau \mathcal{U}^{(0)}(z, \tau) U^{perturbation}(\tau) \mathcal{U}^{(m-1)}(\tau, 0) \quad (2.34)$$

et où  $U^{perturbation}$  représente le terme perturbateur. Par récurrence, on peut réécrire le  $m^{ime}$  terme de la série comme suit :

$$\begin{aligned} \mathcal{U}^{(m)}(z, 0) = & (-i)^m \int_0^z d\tau_n \int_0^{\tau_n} d\tau_{n-1} \dots \int_0^{\tau_2} d\tau_1 \mathcal{U}^{(0)}(z, \tau_n) \\ & U^{perturbation}(\tau_n) \mathcal{U}^{(0)}(\tau_n, \tau_{n-1}) U^{perturbation}(\tau_{n-1}, \tau_{n-2}) \dots \mathcal{U}^{(0)}(\tau_2, \tau_1) U^{perturbation}(\tau_1) \mathcal{U}^{(0)}(\tau_1, 0) \end{aligned} \quad (2.35)$$

Avec un potentiel dépendant de  $z$ , l'hamiltonien du système peut se réécrire :

$$2k_z H(\vec{\rho}, z) = (-\vec{\nabla}_{x,y}^2 - \chi^2) + U(\vec{\rho}, z) \quad (2.36)$$

On sépare ainsi la partie propagative de l'hamiltonien et le terme potentiel. Dans ce cas, le formalisme des perturbations dépendantes du temps peut s'appliquer, conduisant au formalisme de Cowley et Moodie [32] où l'opérateur d'évolution non perturbé  $\mathcal{U}^{(0)}(z, 0)$  correspond au propagateur :

$$\mathcal{U}^{(0)}(z, 0) = \int d^2 \vec{q}' e^{-i \frac{\vec{q}'^2 - \chi^2}{2k_z} z} | \vec{q}' \rangle \langle \vec{q}' |$$

et admet donc les ondes planes  $| \vec{q}' \rangle$  comme base de fonctions propres (base continue). L'intensité diffractée s'écrit alors de manière très simple comme suit :

$$I_{\vec{q}} = | \langle \vec{q}' | \mathcal{U}(z, 0) | 0 \rangle |^2 \quad (2.37)$$

Pour calculer cette expression, nous devons exprimer le terme  $m$  du développement en fonction des termes d'ordre inférieur. En utilisant l'expression(2.34) et en introduisant la relation de fermeture de la base  $| \vec{q}' \rangle$ , entre les opérateurs d'évolution et le terme perturbateur  $\frac{U(\vec{\rho}, z)}{2k_z}$  on obtient :

$$\langle \vec{q}' | \mathcal{U}^{(m)}(z, 0) | 0 \rangle = -i \int_0^z d\tau e^{-i \frac{\vec{q}'^2 - \chi^2}{2k_z} (z-\tau)} \sum_{\vec{q}''} \frac{U_{\vec{q}''-\vec{q}'}(\tau)}{2k_z} \langle \vec{q}'' | \mathcal{U}^{(m-1)}(\tau, 0) | 0 \rangle \quad (2.38)$$

Le terme de somme sur  $\vec{q}''$  correspond au produit de convolution de la contribution d'ordre  $(m-1)$  par la fonction objet (potentiel) et il est multiplié par le propagateur de Fresnel. Cette approche correspond à un raisonnement d'optique physique où les ondes planes sont perturbées par le potentiel total  $\frac{U(\vec{\rho}, z)}{2k_z}$ . C'est l'approche traditionnelle employée par l'algorithme multislice. Ce formalisme est particulièrement adapté à la simulation des images HREM où l'épaisseur traversée par le faisceau électronique est très faible (quelques dizaines de nm) ; ainsi considérer le potentiel cristallin total comme une perturbation des ondes planes reste une bonne approximation. Il n'est pas du tout adapté, sous cette forme, à la simulation des clichés CBED, où les épaisseurs traversées sont très importantes. Dans ce cas on ne peut considérer des ondes planes perturbées, mais obligatoirement des ondes de Bloch 3D comme cela a été présenté dans le paragraphe précédent[52].

Dans la deuxième partie nous nous intéresserons au traitement développé au cours de la thèse, précédemment évoqué, combinant les avantages des deux formalismes.

### Développement à l'ordre 1 quand le potentiel ne dépend pas de $z$ : théorie cinématique

Le principe de la théorie cinématique, déjà introduit, peut facilement se comprendre comme une perturbation au premier ordre de l'hamiltonien de propagation. Cela correspond au formalisme de Cowley et Moodie au premier ordre dans le cas où on ne considère que la partie indépendante de  $z$  du potentiel. En effet, dans ce cas nous pouvons écrire :

$$H = H^0 + U \quad (2.39)$$

avec  $2k_z H^0 = -\vec{\nabla}_{x,y}^2 - \chi^2$  l'hamiltonien de propagation qui possède une base propre d'ondes planes  $|\vec{q}\rangle$ . Le terme du premier ordre conduit à :

$$\langle \vec{q} | \mathcal{U}^{(1)}(z, 0) | 0 \rangle = -i \int_0^z d\tau \langle \vec{q} | \mathcal{U}^{(0)}(z, \tau) U \mathcal{U}^{(0)}(\tau, 0) | 0 \rangle \quad (2.40)$$

En introduisant la relation de fermeture exprimée pour la base discrète des ondes planes entre le terme potentiel  $U$  et les deux opérateurs  $\mathcal{U}^{(0)}$ , et en posant  $\frac{q^2 - \chi^2}{2k_z} = -2\pi s_{\vec{q}}$  où  $s_{\vec{q}}$  mesure l'erreur d'excitation de  $\vec{q}$ , on peut écrire :

$$\begin{aligned} \langle \vec{q} | \mathcal{U}^{(1)}(z, 0) | 0 \rangle &= -i U_{0-\vec{q}} \int_0^z e^{2\pi i s_{\vec{q}}(z-\tau)} d\tau \\ &= -i U_{0-\vec{q}} e^{\pi i s_{\vec{q}} z} \frac{\sin(\pi s_{\vec{q}} z)}{\pi s_{\vec{q}}} \end{aligned} \quad (2.41)$$

On retrouve ainsi l'expression classique de l'intensité diffractée exprimée grâce à la théorie cinématique.

Il est intéressant de mettre en avant que, sans avoir abordé toutes les méthodes de théorie dynamique permettant de calculer les intensités transmise et diffractée du faisceau d'électrons, les principales d'entre elles peuvent être *naturellement* dérivées d'un formalisme unique de mécanique quantique.

## 2.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons introduit la technique du CBED comme une configuration particulière de la diffraction électronique. Nous avons pu étudier en détail le principe de formation d'une ligne de défaut dans le disque transmis avec sa ligne d'excès associée dans le disque diffracté. On a montré que, dans ce type de cliché, les lignes appartiennent, de façon schématique, à 2 catégories :

1. les lignes dynamiques dont la distance d'extinction  $\xi_{\vec{g}} \leq \frac{t}{3}$ . Ces lignes sont en général associées à des indices de Miller faibles et possèdent des franges dont la distance permet de mesurer  $t$ . Elles proviennent en général de la ZOLZ.
2. les lignes cinématiques dont la distance d'extinction  $\xi_{\vec{g}}$  est largement supérieure à l'épaisseur traversée  $t$ . Ces lignes sont en général associées à des indices de Miller importants et possèdent un maximum (dans le cas de la ligne d'excès) principal en position exacte de Bragg. Elles proviennent en général des HOLZ.

En fait il n'existe pas de frontière entre les deux types mais une évolution continue qui va dépendre de l'épaisseur  $t$  traversée par le faisceau. Puisque la position relative des lignes fines de HOLZ est très sensible au paramètre de maille, on a pu envisager une méthode permettant de



déterminer la déformation d'un cristal, en comparant systématiquement la position expérimentale de ces lignes avec celles données par des simulations. Nous avons montré que la formation d'un cliché CBED réel ne pouvait être vu comme une simple superposition géométrique des lignes mais nécessitait des simulations dynamiques, notamment pour reproduire des effets locaux comme ceux observés dans les croisements entre lignes. Enfin, et c'est le plus important, nous avons décrit la théorie dynamique dans un formalisme quantique très peu (voire jamais) utilisé en microscopie électronique. Nous avons notamment mis en évidence la possibilité de regrouper sous un même langage la théorie classique des ondes de Bloch 3D et le multislice, qui diffèrent en apparence seulement. Une discussion de la validité des différentes approches a pu être entreprise, notamment sur les conditions de périodicité requises pour l'utilisation des ondes de Bloch 3D. Le formalisme ainsi présenté offre la possibilité de créer un nouveau modèle si ces conditions ne sont plus vérifiées, notamment grâce aux développements en perturbations dépendantes du temps. La deuxième partie sera consacrée à ce type de développement. Nous allons maintenant nous intéresser aux techniques HREM et holographie utilisées au cours de nos études.

## Chapitre 3

# Microscopie électronique à haute résolution et Holographie électronique

L'objet de ce chapitre est de présenter sommairement la microscopie électronique à haute résolution et l'holographie électronique ainsi que les théories sous-jacentes à chacune de ces deux techniques. Leur intérêt est de permettre des mesures de déformation avec une très bonne résolution dans l'espace direct. On commencera par le principe de formation d'une image HREM (High Resolution Electron Microscopy) dans un microscope électronique en transmission, puis nous introduirons le traitement des images par filtrage de Fourier, en particulier la méthode dite des phases géométriques (GPA) permettant de réaliser des analyses quantitatives de déformations. On terminera par la présentation de l'holographie électronique.

### 3.1 Microscopie électronique à haute résolution

La microscopie électronique à haute résolution est utilisée pour explorer la matière à l'échelle atomique en utilisant les très petites longueurs d'onde, de l'ordre du picomètre, associées à des électrons relativistes. L'observation des atomes a toujours été l'un des buts ultimes de la microscopie électronique, sinon le thème central de son développement. Les microscopes ont atteint un pouvoir de résolution proche de l'Angström. Cette résolution, notamment limitée par l'aberration sphérique, est maintenant améliorée grâce à la mise au point de correcteurs d'aberration sphérique tels que celui implanté sur le TECNAI F20 du CEMES (voir annexe(C)). Ils sont couplés avec des ordinateurs pour la simulation et le traitement des images. Nous allons commencer par présenter rapidement la formation des images HREM et leur interprétation. Puis nous analyserons les applications de cette technique pour la mesure de la déformation.

#### 3.1.1 L'image HREM : "voir" les colonnes atomiques !

##### Formation de l'onde électronique sortante

Les objets que l'on observe en HREM sont toujours orientés selon un axe de zone de grande symétrie du cristal. On décompose ainsi le potentiel en série de Fourier comme présenté dans l'équation(2.7). La fonction d'onde en sortie du cristal peut être décomposée dans la base des ondes planes et s'écrit :

$$|\Psi_z\rangle = \sum_{\vec{q}} \phi_{\vec{q}} |\vec{q}\rangle \quad (3.1)$$

Dans le cas développé ici, on s'intéresse à la formation de l'image dans l'espace direct défini par le vecteur  $\vec{\rho}$ . L'intensité en un point  $\vec{\rho}$  de l'image est obtenue grâce à la relation, [35] :

$$I(\vec{r}) = |\langle \vec{\rho} | \Psi_z \rangle|^2 = \left| \sum_{\vec{q}} \phi_{\vec{q}} \langle \vec{\rho} | \vec{q} \rangle \right|^2 \quad (3.2)$$

Dans les axes de zone de forte symétrie, beaucoup de faisceaux diffractés  $|\vec{q}\rangle$  sont à considérer. Le développement de l'intensité dans la formule(3.2), fait apparaître des termes provenant de l'interférence entre le faisceau transmis et chacun des différents faisceaux diffractés. Chaque processus d'interférence est à l'origine d'une série de franges de fréquences spatiales  $\vec{G}$  correspondant à la projection de la famille de plans réticulaires diffractante. La superposition de ces différentes familles mène à la projection des colonnes atomiques dans l'axe de zone considéré. En haute résolution seules les familles associées à un vecteur  $\vec{G}$  appartenant à la ZOLZ sont considérées dans la formation de l'image. Toutefois, des termes provenant de l'interférence entre les différents faisceaux diffractés peuvent aussi intervenir et introduire des artefacts à l'origine d'un contraste s'éloignant de la position réelle des colonnes atomiques. Pour obtenir une image proche de la structure cristalline, il est nécessaire de minimiser l'influence de ces derniers termes. Il est malgré tout important de pouvoir simuler les images ainsi formées.

Pour cela on réécrit l'équation(3.2) en utilisant l'opérateur d'évolution causale :

$$I(\vec{r}) = |\langle \vec{\rho} | \mathcal{U}(z, 0) | 0 \rangle|^2 \quad (3.3)$$

Tout le travail consiste donc à exprimer l'opérateur évolution  $\mathcal{U}(z, 0)$ . En règle générale, le formalisme multislice, présenté au paragraphe(2.3.7) est utilisée pour réaliser cette opération.

Dans le cas le plus simple où l'objet est très fin et constitué d'éléments légers, on peut introduire l'approximation de l'objet de phase [53, 54, 55]. L'interaction du faisceau avec l'objet peut alors être décrite avec une très bonne approximation comme un simple déphasage de l'onde incidente. On écrit alors :

$$\mathcal{U}(z, 0) \approx e^{i\xi(\vec{\rho})} \quad \text{avec} \quad \xi(\vec{\rho}) = C_E \int V(\vec{\rho}, z) dz \quad (3.4)$$

où  $V(\vec{\rho}, z)$  est défini au paragraphe(2.3.4) et  $C_E = \frac{2\pi}{\lambda} \left( \frac{E+E_0}{E(E+2E_0)} \right)$ .  $z$  est la direction incidente du faisceau d'électron,  $\vec{\rho}$  les coordonnées dans le plan de l'échantillon,  $\lambda$  la longueur d'onde de l'électron, et  $E$ ,  $E_0$  sont, respectivement, l'énergie cinétique et l'énergie au repos ( $m_0c^2$ ) de l'électron. La constante  $C_E$  vaut  $7,29.10^6 \text{ rad.V}^{-1}\text{m}^{-1}$  pour une tension d'accélération de  $200\text{kV}$ .

### Transfert du microscope

Considérons maintenant le rôle du microscope : il donne une image fortement agrandie de l'objet, de l'ordre du million de fois. Les angles de diffusion des électrons qui forment cette image restent toutefois inférieurs à quelques dizaines de  $mrad$  et le champ image ne dépasse guère quelques dizaines de  $mm$ . Le rôle du microscope peut ainsi être réduit à celui d'un système optique pratiquement isoplanaire [54], où l'onde image résulte d'un simple produit de convolution de l'onde objet par la réponse impulsionnelle du système. Si on définit la fonction d'onde objet en sortie du cristal par :

$$\psi_O(\vec{\rho}, z) = \langle \vec{\rho} | \Psi_z \rangle = \langle \vec{\rho} | \mathcal{U}(z, 0) | 0 \rangle = A_O(\vec{\rho}) e^{i\xi_O(\vec{\rho})} \quad (3.5)$$

alors la fonction d'onde image transférée par le microscope s'écrit :

$$\psi_i(\vec{\rho}, z) = \psi_O(\vec{\rho}, z) \otimes K(\vec{\rho}) = A_i(\vec{\rho})e^{i\xi_i(\vec{\rho})} \quad (3.6)$$

Dans les équations précédentes,  $A$  et  $\xi$  correspondent à l'amplitude et la phase de l'onde complexe, les indices  $O$  et  $i$  correspondent à l'objet et l'image respectivement. La réponse impulsionnelle représente l'image d'un point objet : elle caractérise la dégradation de l'image (par rapport à l'objet) qui résulte de l'imperfection du transfert des ondes à travers le système, depuis le plan objet jusqu'au plan image. Si le transfert est linéaire, la transformée de Fourier de la réponse impulsionnelle est d'ailleurs appelée fonction de transfert du microscope  $TF(K(\vec{\rho})) = \tilde{K}(\omega)$ . En HREM, ce transfert est principalement limité par l'ouverture physique, le défaut de mise au point  $\Delta z = C_1$ , et les autres aberrations de la lentille objectif du microscope notamment l'aberration sphérique  $C_s = C_3$  :  $\tilde{K}(\omega) \approx e^{i\chi(\omega)}$  détaillée en annexe(C) [54, 55]. Ainsi les amplitudes complexes diffractées sont modifiées par la fonction  $\tilde{K}(\vec{q})$ . En utilisant la relation de fermeture de la base complète des ondes planes, on peut réécrire l'intensité de l'image HREM, initialement introduite dans l'équation(3.3), en prenant en compte le transfert du microscope :

$$I(\vec{r}) = \left| \sum_{\vec{q}, \vec{q}'} \langle \vec{\rho} | \vec{q}' \rangle \langle \vec{q}' | \tilde{K}(\vec{q}) | \vec{q} \rangle \langle \vec{q} | \mathcal{U}(z, 0) | 0 \rangle \right|^2 \quad (3.7)$$

Puisque l'on considère un transfert linéaire du microscope,  $\tilde{K}(\vec{q})$  est diagonal dans la base ( $|\vec{q}\rangle$ ) [56]. On peut donc réécrire l'intensité en un point de l'image HREM comme suit :

$$I(\vec{r}) = \left| \sum_{\vec{q}} \langle \vec{\rho} | \vec{q} \rangle \tilde{K}(\vec{q}) \langle \vec{q} | \mathcal{U}(z, 0) | 0 \rangle \right|^2 \quad (3.8)$$

### Formation de l'image électronique

En pratique, le faisceau incident n'est jamais parfaitement cohérent, comme on l'a supposé jusqu'ici. Il existe des défauts de cohérence temporelle, inhérents au microscope utilisé, qui sont dus à des fluctuations de l'énergie des électrons, auxquelles il faut ajouter celles du champ magnétique de la lentille objectif : ils conduisent à un étalement de l'image dans la direction longitudinale de l'axe du microscope. Interviennent par ailleurs des défauts de cohérence spatiale, variables selon les conditions expérimentales. Ils sont principalement dus à l'ouverture d'illumination et à des instabilités mécaniques et sont responsables d'autres étalements, suivant des directions obliques et transversales. L'image réelle de l'objet est donc en fait une image moyenne qui résulte du cumul incohérent de ces divers étalements.

On peut cependant facilement comprendre ce que l'image électronique représente dans le cas particulier où l'objet observé peut être assimilé à un objet de phase faible. En effet, le contraste de l'image et le déphasage introduit par l'objet sont alors directement reliés par une fonction de transfert de contraste de phase (phase contrast transfert function ou PCTF) qui dépend très simplement de la fonction de transfert du microscope ainsi que des défauts de cohérence évoqués ci-dessus. Cette fonction agit comme un filtre : parmi les fréquences spatiales  $\vec{G}$  présentes dans la fonction d'onde à la sortie de l'objet orienté en axe de zone (équation(3.1)), elle sélectionne celles qui sont transférées vers l'image. Son efficacité varie beaucoup avec la mise au point du microscope : en sous focalisant de façon appropriée, on peut améliorer la ressemblance entre le contraste de l'image et le potentiel cristallin de l'objet. L'image optimale d'un objet de phase faible est en général obtenue autour de la défocalisation de Scherzer [53] pour des épaisseurs faibles.

Si l'épaisseur de l'objet observé augmente, un contraste complexe peut apparaître dans l'image

n'ayant plus de lien direct avec le potentiel projeté (position des colonnes atomiques). Ces divergences proviennent des interactions dynamiques définies dans le chapitre(2.3.3). Ces défauts varient beaucoup, suivant l'épaisseur de l'objet, la défocalisation du microscope, et aussi la nature, la densité et la distribution spatiale des atomes mis en jeu.

A partir d'une image HREM, observée dans le plan image de l'objectif, on peut grâce à un traitement adapté, remonter à l'état de déformation de l'échantillon cristallin observé. Ce traitement basé sur les phases géométriques et son application à l'étude de la déformation des couches épitaxiées sont l'objet du prochain paragraphe.

### 3.1.2 Détermination de l'état de déformation par la méthode des phases géométriques

L'analyse des phases géométriques est une technique de traitement d'image extrêmement sensible aux petits déplacements des franges réticulaires observées dans les images HREM [57, 58, 59]. Chaque série de franges représente une famille de plans ( $hkl$ ) du cristal et peut être assimilée à une onde. Un déplacement des franges dans une région donnée de l'image peut alors se traduire en termes de déphasage.

Le traitement des phases géométriques en une dimension peut être illustré en utilisant deux ondes sinusoïdales. La figure(3.1.a) montre une onde sinusoïdale "parfaite" (trait plein) et une autre onde où trois maxima ont été déplacés (lignes en pointillé). L'onde parfaite est prise comme référence, et le déplacement des pics correspond simplement à notre changement de phase (figure(3.1.a)). En mesurant la variation relative de la phase ainsi introduite, on accède à la valeur du déplacement ainsi qu'à sa position. L'analyse des déplacements *bidimensionnels* des franges d'une image HREM est identique au traitement qui vient d'être fait. En effet, nous avons montré qu'une image HREM d'un cristal orienté dans un axe de zone de grande symétrie pouvait représenter la structure cristalline projetée et être ainsi décomposée en une superposition d'images de franges caractéristiques, chacune d'une série de plans réticulaires, et représentée par un vecteur  $\vec{G}_i$  dans la transformée de Fourier de l'image. On peut ainsi réécrire l'équation(3.2) sous la forme d'une somme de ces différentes séries de franges :

$$I(\vec{r}) = \sum_i I_{\vec{G}_i}(\vec{\rho}) \exp(i\vec{G}_i \cdot \vec{\rho}) \quad (3.9)$$

$I(\vec{\rho})$  représentant l'intensité locale de l'image, et  $I_{\vec{G}_i}(\vec{\rho})$  la composante de Fourier  $\vec{G}_i$  de l'image en fonction de la position bidimensionnelle  $\vec{\rho}$ . Une image de franges parfaite est périodique dans la direction  $\vec{G}_i$  et sinusoïdale de période  $\frac{2\pi}{G_i}$  (eq.(3.10)).

$$I_{\vec{G}_i}(\vec{\rho}) = A_{\vec{G}_i}(\vec{\rho}) \exp(iP_{\vec{G}_i}(\vec{\rho})) \quad (3.10)$$

avec  $P_{\vec{G}_i} = -\vec{G}_i \cdot \vec{\rho}$  représentant la phase géométrique et  $A_{\vec{G}_i}(\vec{\rho})$  le contraste local des franges. Les franges non perturbées sont prises comme référence. Dans les cristaux réels on observe souvent des défauts comme les dislocations, interfaces, etc ..., qui vont induire des modifications dans la périodicité des franges qui correspondent à des déplacements atomiques. Ces déplacements  $\vec{u}(\vec{\rho})$  sont traduits en terme de changements de phase par rapport à la référence et localisés en  $2D$  sur l'image, dans la zone du défaut considéré. La phase géométrique dans l'image peut ainsi se réécrire en fonction de ces déplacements atomiques (eq.(3.11))[59].

$$P_{\vec{G}_i}(\vec{\rho}) = -\vec{G}_i \cdot \vec{u}(\vec{\rho}) \quad (3.11)$$

En pratique le traitement, représenté sur la figure(3.1.b), consiste à réaliser une transformée de Fourier numérique de l'image (Fast Fourier Transform : FFT), et à appliquer un filtrage

en positionnant un masque autour d'une tache  $\vec{G}$ . La taille du masque détermine à quel point l'espace réciproque sera échantillonné, et inversement, la zone de l'espace direct sur laquelle les informations seront moyennées. Le choix de la taille du masque est déterminé par la balance entre le besoin de précision spatiale, nécessitant un gros masque, et un bon rapport signal/bruit, nécessitant un petit masque. La forme du masque sert aussi à "compresser" les données. Dans tous les traitements, nous avons utilisé un masque Lorentzien qui a la particularité de très bien s'ajuster sur la forme du pic  $\vec{G}$  de la FFT. Une fois le masque appliqué, on réalise une transformée de Fourier inverse ( $FFT^{-1}$ ) pour reconstruire l'image de phase  $P_{\vec{G}}$ .

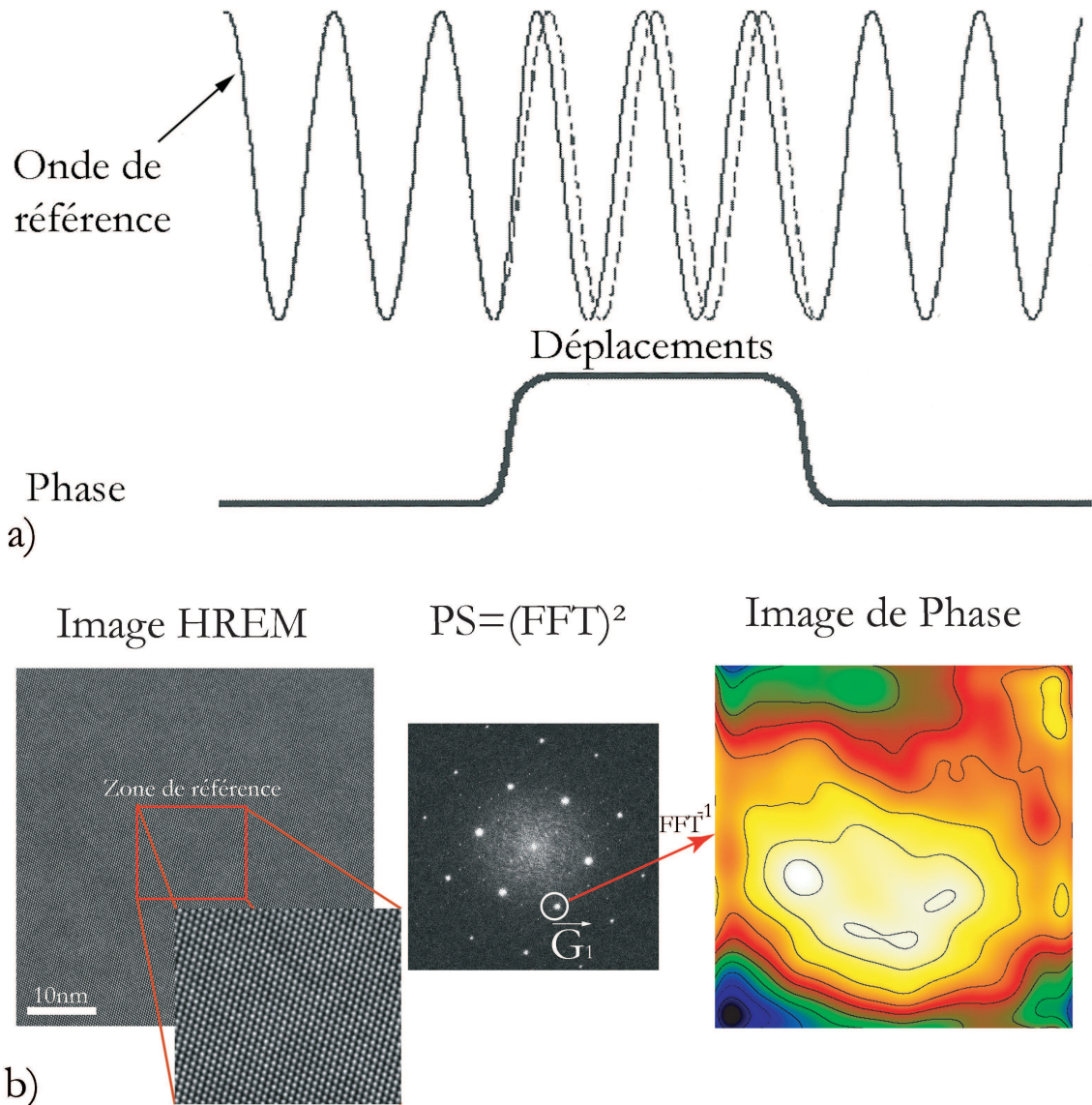


FIG. 3.1 – a) Principe du traitement des phases géométriques à une dimension (onde non distordue : trait plein : référence, distordue : trait pointillé) b) Application du traitement sur une image HREM provenant d'un cristal de silicium pur observé dans l'axe [110], mettant en évidence dans l'image de phase les distorsions géométriques introduites par les projecteurs [60]. L'image de phase est tracée avec ses contours d'égal phase

Afin de déterminer le champ de déplacement  $\vec{u}(\vec{\rho}) = (u_x(\vec{\rho}), u_y(\vec{\rho}))$  dans son ensemble, on

combine les images de phase de deux taches différentes  $\vec{G}_1$  et  $\vec{G}_2$  de la FFT (eq.(3.12)) [59, 61].

$$\vec{u}(\vec{\rho}) = -\frac{1}{2\pi}(P_{\vec{G}_1}(\vec{\rho})\vec{e}_1 + P_{\vec{G}_2}(\vec{\rho})\vec{e}_2) \quad (3.12)$$

où  $\vec{e}_1$  et  $\vec{e}_2$  sont les vecteurs de bases définissant  $\vec{G}_1$  et  $\vec{G}_2$ . La zone de référence est choisie identique pour les deux images afin d'éviter des variations de périodicité. Puis en appliquant les formules d'élasticité classiques, reportées dans l'annexe(D), on peut réaliser une image de chaque composante du tenseur des déformations  $\epsilon$  [59]. Avec cette méthode de traitement, une sensibilité de  $3pm$  sur les déplacements atomiques, et de  $0,3\%$  sur la déformation à  $2nm$  de résolution spatiale a pu être observée par Hÿtch *et al* [1]. Le traitement des phases géométriques calcule une déformation par rapport à une référence qui peut être prise dans un autre matériau considéré comme non déformé. La déformation vraie,  $\epsilon = \frac{a_c^f - a_c^i}{a_c^i}$ , définie par la théorie de l'élasticité linéaire, correspond à la déformation entre le matériau étudié (ici la couche épitaxiée) et le même matériau dans son état non déformé. Les paramètres  $a_c^f$  et  $a_c^i$  sont ceux de la couche déformée et non-déformée respectivement. La déformation mesurée par le traitement GPA est notée  $\epsilon_{ref} = \frac{a_c^f - a_s}{a_s}$  en supposant que la région de référence est prise dans le substrat de paramètre  $a_s$ . La relation entre  $\epsilon_{ref}$  et  $\epsilon$  s'écrit :

$$\epsilon_{ref} = \frac{a_c^i}{a_s}\epsilon - \left(\frac{a_s - a_c^i}{a_s}\right) \quad (3.13)$$

Afin d'assurer la cohérence entre les résultats CBED et HREM, les mesures de déformation s'exprimeront toujours en terme de  $\epsilon$ . Dans le cas contraire on s'efforcera de préciser les notations et le contexte.

Le succès de ce traitement repose sur la qualité de l'image HREM et sur le bon choix de la référence. L'analyse considère que la position des plans atomiques du cristal correspond bien à la position des franges observées dans l'image HREM, et que cette relation reste constante dans toute l'image, i.e, les distorsions du cristal sont fidèlement projetées sur l'image HREM. Il est donc nécessaire d'observer le cristal en axe de zone avec des conditions de défocalisation et d'épaisseur les plus proches des conditions d'imagerie HREM optimales (défocalisation de Scherzer en général, faible épaisseur) [58].

Il faut d'autre part que la référence soit libre de tout déplacement. Elle doit être prise loin de la source de distorsion analysée (interface, dislocation, etc ...). Enfin il est nécessaire que l'image à analyser ne contienne aucune source de distorsions parasites venant s'ajouter au champ de déplacement mesuré  $\vec{u}(\vec{\rho})$ , ou que celles-ci soient identifiées de manière à pouvoir s'en affranchir. Pour cela nous avons développé une technique permettant la suppression des contributions parasites des éléments du microscope. En effet l'image HREM formée dans le plan image de l'objectif est ensuite agrandie par les lentilles projecteurs. Ces éléments d'optique électronique introduisent des distorsions géométriques  $\vec{u}_{proj}(\vec{\rho})$  dans l'image, qui se superposent à la phase géométrique d'une image HREM [60]. Afin de pouvoir retirer ces distorsions, nous les déterminons grâce à une image HREM d'un cristal parfait pour laquelle la phase géométrique s'écrit  $P_{\vec{G}_i,proj} = -\vec{G}_i \cdot \vec{u}_{proj}(\vec{\rho})$ . Un exemple est reporté dans la figure(3.1.b) pour un cristal de silicium observé en axe [110], où la zone de référence a été prise au centre de l'image. L'image de phase  $P_{\vec{G}_i,proj}$  obtenue fait apparaître une évolution de la phase en forme de "colline", dont le maximum se positionne au centre, typique de l'influence des distorsions géométriques des projecteurs [60]. Reprenons maintenant le cas de l'étude d'un champ de distorsion  $\vec{u}(\vec{\rho})$  présent dans l'objet. La phase géométrique  $P_{\vec{G}_i}$  d'une image HREM peut se réécrire en prenant en compte les effets des projecteurs :

$$P_{\vec{G}_i,def+proj}(\vec{\rho}) = -\vec{G}_i \cdot (\vec{u}(\vec{\rho}) + \vec{u}_{proj}(\vec{\rho})) \quad (3.14)$$

Afin d'isoler l'information intéressante contenue dans  $\vec{u}(\vec{\rho})$ , on soustrait à la phase géométrique  $P_{\vec{G}_i,def+proj}$  calculée à partir de l'image HREM de la zone distordue, celle calculée, pour le même

$\vec{G}_i$ , à partir d'une image HREM non distordue ne contenant que la contribution des projecteurs  $P_{\vec{G}_i,proj}$  :

$$P_{\vec{G}_i,def}(\vec{\rho}) = P_{\vec{G}_i,def+proj}(\vec{\rho}) - P_{\vec{G}_i,proj}(\vec{\rho}).$$

## 3.2 Holographie électronique HREM off-axis

Le microscope électronique en transmission est un puissant outil pour caractériser la microstructure et la chimie des matériaux. Il existe en effet une multitude de modes d'imagerie TEM, mais la plupart souffrent d'un défaut majeur provenant du fait que l'image obtenue ne représente qu'une distribution spatiale de l'intensité de l'onde électronique à la sortie de l'objet. Toute l'information provenant de la phase du faisceau électronique qui a traversé l'échantillon est perdue. La technique d'holographie électronique, originalement imaginée par Denis Gabor [62], est basée sur la formation d'une figure d'interférence, ou hologramme, permettant de retrouver la phase électronique. Sachant que la phase du faisceau d'électron à la sortie est sensible à la fois à la composante de l'induction magnétique dans le plan [63, 64] et au potentiel électrostatique dans le matériau, un hologramme électronique peut ainsi donner des informations quantitatives sur la répartition spatiale du champ magnétique et électrostatique à l'intérieur du matériau avec une précision de l'ordre du nanomètre. L'utilisation du canon à émission de champ (FEG) alliant très bonne cohérence et forte luminosité du faisceau, nous permet de réaliser des hologrammes avec des microscopes commerciaux comme le TECNAI 20 FEG. La plupart des résultats ont été obtenus en utilisant la technique dite " off-axis " de l'holographie électronique. En effet, sachant que cette technique peut être réalisée dans les mêmes conditions que la haute résolution (observation en axe de zone, résolution atomique), nous l'avons appliquée pour accéder au potentiel électrostatique moyen  $V^0$  d'une couche épitaxiée [65, 66, 67, 68, 69], sensible à la composition chimique. On l'a aussi utilisée pour détecter la présence de champs électriques locaux introduits, dans une couche piezoélectrique, par les contraintes épitaxiales [70, 71, 72]. En plus des applications classiques évoquées ci-dessus, nous avons également exploité les hologrammes haute résolution pour mesurer la déformation dans les couches épitaxiées.

### 3.2.1 Formation et reconstruction de l'hologramme électronique off-axis

La géométrie optique que l'on utilise pour pouvoir réaliser une expérience d'holographie électronique off-axis dans un TEM est représentée sur la figure(3.2.a). L'objet est illuminé par un faisceau d'électrons très cohérent issu d'un canon à émission de champ (FEG). Historiquement les hologrammes ont été enregistrés sur des négatifs photos, mais aujourd'hui nous utilisons une acquisition directe par l'intermédiaire d'une caméra CCD, placée sous l'écran fluorescent du microscope, qui présente une réponse linéaire et une bonne dynamique. [73]. Pour acquérir un hologramme off-axis, la région intéressante de l'échantillon est traversée par la moitié du faisceau incident, l'autre moitié étant dans le vide comme on l'a schématisé sur la figure(3.2.a). Une tension comprise entre 0V et 200V est appliquée sur le fil du biprisme électrostatique rotatif situé au niveau des diaphragmes d'aire sélectionnée. La tension appliquée au biprisme dévie le faisceau d'électrons qui passe de part et d'autre du fil. Le faisceau d'électrons dit de référence (celui qui traverse le vide, ou une zone amorphe très fine) se superpose au faisceau d'électrons qui a traversé l'échantillon que l'on veut étudier, de telle sorte que les deux faisceaux cohérents interfèrent dans les plans contenus sous le biprisme, formant l'hologramme. Les photos(3.2.b) présentent deux hologrammes de référence (vide + vide) pour différentes tensions de biprisme.

On remarque la présence de grosses franges sur les bords, dites franges de Fresnel, qui se superposent aux franges de l'hologramme et qui proviennent de la diffusion des électrons sur



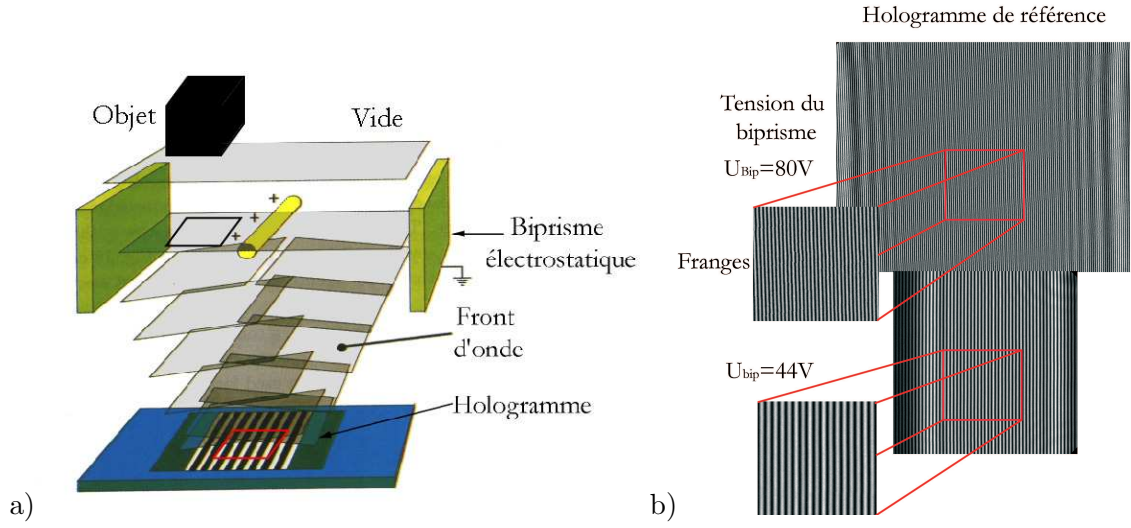


FIG. 3.2 – a) Formation d'un hologramme électronique par interférence entre le front d'onde passant à travers l'objet et celui passant dans le vide, réalisée grâce au biprisme électrostatique placé dans le plan SA du microscope. b) Hologrammes de référence réalisés pour deux tensions de biprisme différentes mettant en évidence l'influence de la tension du biprisme sur la distance interfrange  $s$  et la largeur de l'hologramme  $W$

les bords du biprisme [64]. Elles doivent être impérativement retirées lors du traitement des hologrammes. On remarque aussi que la largeur de l'hologramme (de la zone d'interférence)  $W$ , augmente avec la tension appliquée au fil du biprisme  $U$ . Ce phénomène impose à la source d'avoir une forte cohérence *spatiale* pour que le contraste des franges soit suffisant même à forte tension (forte largeur  $W$ ). La distance  $s$  entre les franges de l'hologramme, dans la zone de superposition, est inversement proportionnelle à la tension  $U$  appliquée sur le fil.

### Formation théorique de l'hologramme

L'intensité dans l'image s'écrit comme le carré du module de la fonction d'onde image définie dans l'équation(3.6) :

$$I(\vec{r}) = \psi_i(\vec{\rho}, z) \times \psi_i^*(\vec{\rho}, z) = |\psi(\vec{\rho}, z) \otimes K(\vec{\rho})|^2 = |A_i(\vec{r})|^2 \quad (3.15)$$

L'intensité d'un hologramme off-axis peut être obtenue en utilisant l'expression précédente à laquelle on ajoute à l'onde image, une onde plane (le vide) de référence de fréquence spatiale  $\vec{q}_c$  correspondant à la rotation du front d'onde de référence créée par le biprisme [64] :

$$\begin{aligned} I_{holo}(\vec{\rho}) &= |\psi(\vec{\rho}, z) \otimes K(\vec{\rho}) + \exp(i\vec{q}_c \cdot \vec{\rho})|^2 \\ &= 1 + A_i^2(\vec{r}) + 2A_i(\vec{r})\cos(\vec{q}_c \cdot \vec{\rho} + \xi_i(\vec{\rho})) \end{aligned} \quad (3.16)$$

L'intensité de l'hologramme est donc la somme de plusieurs termes : l'intensité de la référence et de l'onde image (identique à celle obtenue en conventionnel ou en HREM), avec en plus un système de franges sinusoïdales possédant une phase locale  $\xi_i$  et une amplitude locale  $A_i$  correspondant respectivement à la phase et l'amplitude de l'onde image. Ce sont les franges fines de l'hologramme. A partir de cette figure d'interférence on peut remonter à l'information présente dans la phase, moyennant un traitement adapté décrit dans la suite.

### Reconstruction de la phase et de l'amplitude du faisceau électronique

En pratique la procédure utilisée pour reconstruire un hologramme électronique (c'est-à-dire pour récupérer la phase et l'amplitude de l'onde image) est schématisée sur la figure(3.3). On réalise une première transformée de Fourier de l'hologramme que l'on peut exprimer sous la forme [64] :

$$TF(I_{holo}(\vec{\rho})) = \delta(\vec{q}) + \delta(\vec{q}) \otimes TF(A_i^2(\vec{r})) + \delta(\vec{q} - \vec{q}_c) \otimes TF(A_i(\vec{r})exp(-i\xi_i(\vec{\rho}))) + \delta(\vec{q} + \vec{q}_c) \otimes TF(A_i(\vec{r})exp(i\xi_i(\vec{\rho}))) \quad (3.17)$$

L'équation ci-dessus contient quatre termes : un pic de Dirac à l'origine  $\vec{q} = \vec{0}$  correspondant à la transformée de Fourier de l'intensité uniforme de l'image de référence, un second pic centré sur l'origine  $\vec{q} = \vec{0}$  comprenant la transformée de Fourier de la distribution d'intensité de l'image TEM normale appelé bande centrale, un pic centré sur la fréquence  $\vec{q} = -\vec{q}_c$  comprenant la transformée de Fourier de la fonction d'onde image, un dernier pic centré sur  $\vec{q} = \vec{q}_c$  correspondant à la transformée de Fourier du complexe conjugué de la fonction d'onde image ; les deux derniers correspondent aux bandes latérales. Ces différentes zones sont visibles dans la FFT reportée sur la figure(3.3). La procédure de reconstruction consiste à réaliser un traitement des phases géométriques sur la tache de la bande latérale, reporté dans le paragraphe(3.1.2). On peut ainsi remonter à l'image complexe correspondant à l'onde image  $\psi_i$ . Il est alors possible de remonter séparément à l'amplitude  $A_i$  et à la phase  $\xi_i$  de cette onde.

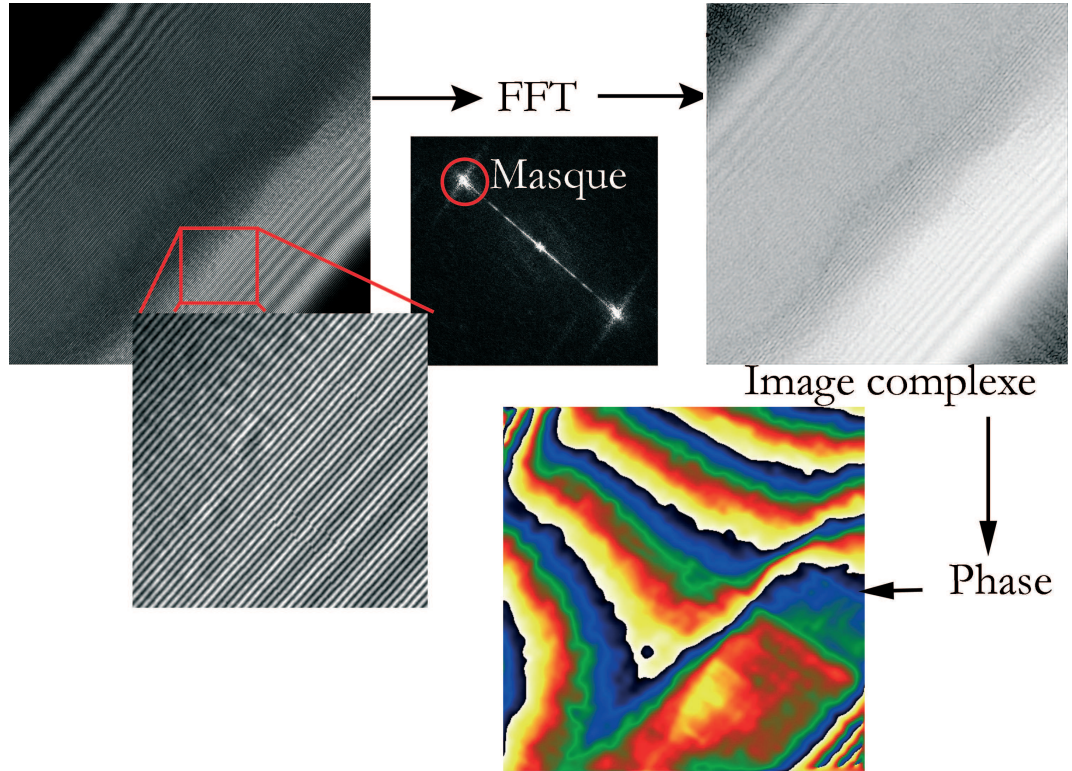


FIG. 3.3 – Reconstruction de la phase de l'onde image à partir d'un traitement des phases géométriques réalisé sur la bande latérale de la FFT de l'hologramme

Le traitement complet de la bande latérale n'est réalisable que si la fréquence  $\vec{q}_c$  choisie est suffisamment large ( $s$  suffisamment petite) pour séparer correctement la bande centrale (dite

d'autocorrélation) de la bande latérale considérée, de manière à ce que le masque n'englobe que la bande latérale. Le masque utilisé est le plus souvent circulaire, mais on ajoute en général des bords " diffusifs " pour minimiser les effets de bords. On utilise pour cela des masques de type Gaussien ou Lorentzien.

### Conditions expérimentales d'illumination en holographie électronique

Une très bonne cohérence nécessite un faisceau électronique le plus parallèle possible. Si on considère la configuration géométrique de l'holographie électronique, on voit qu'il n'est pas forcément nécessaire d'avoir un faisceau d'électrons parfaitement circulaire. Un faisceau très cohérent mais ayant une luminosité suffisante peut être obtenu en utilisant une source électronique FEG avec un système de lentilles condenseur utilisé pour produire une illumination très elliptique permettant d'augmenter la cohérence spatiale perpendiculairement au biprisme (figure(3.4)) [64]. Un bon hologramme est caractérisé par un contraste des franges  $C = \frac{I_{max}-I_{min}}{I_{max}+I_{min}} \geq 15\%$  où  $I_{max}$

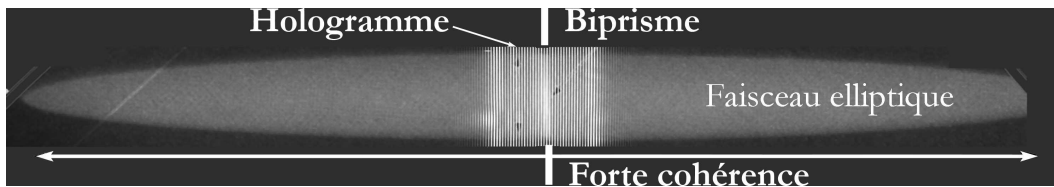


FIG. 3.4 – Condition d'illumination elliptique nécessaire à l'obtention d'un bon hologramme

correspond au maximum d'intensité des franges et  $I_{min}$  au minimum.

### Hologramme de référence

Comme dans le cas de la haute résolution, un hologramme peut être altéré par les distorsions des projecteurs et de la caméra CCD mais aussi par les franges de Fresnel introduites par le biprisme. Ces distorsions sont, par nature, géométriques et invariantes dans le temps ; il est donc très simple de retirer leurs contributions. Un hologramme de référence doit ainsi être obtenu pour chaque hologramme objet, en retirant l'objet du champ d'observation sans changer aucune condition expérimentale sur l'optique du microscope. Une correction est alors possible en réalisant une division des deux images complexes reconstruites à partir de la tache de la bande latérale (échantillon + référence) correspondant aux deux ondes images dans l'espace réel, ou de soustraire les phases associées. Cette procédure est illustrée dans la figure(3.5). On remarque que la différence entre l'image de phase de l'hologramme objet avant et après la correction des distorsions est très importante. L'utilisation d'un hologramme de référence permet aussi un meilleur centrage du masque sur le centre de la bande latérale considérée [64]. Les franges d'interférence de l'hologramme forment normalement une seule forte fréquence spatiale dans l'espace de Fourier, au centre de la bande latérale. Dans la pratique, il arrive que ce centre ne soit pas bien défini (tache très étalée et anisotrope). Ceci pose un sérieux problème lors de la reconstruction de l'hologramme. Par contre, en utilisant un hologramme de référence, la position de la bande latérale peut être déterminée avec une précision de  $\pm 1$  pixel en sélectionnant le pixel de plus forte amplitude. L'utilisation des mêmes coordonnées pour sélectionner la bande latérale des FFTs des hologrammes objet et référence, supprime les phases additionnelles qui peuvent apparaître dans la phase reconstruite si la position de la bande latérale n'est pas correctement déterminée.

Enfin lorsque la phase est calculée numériquement, elle est évaluée modulo  $2\pi$ , ce qui veut dire que des discontinuités de phase, aucunement reliées à une propriété physique de l'objet, peuvent

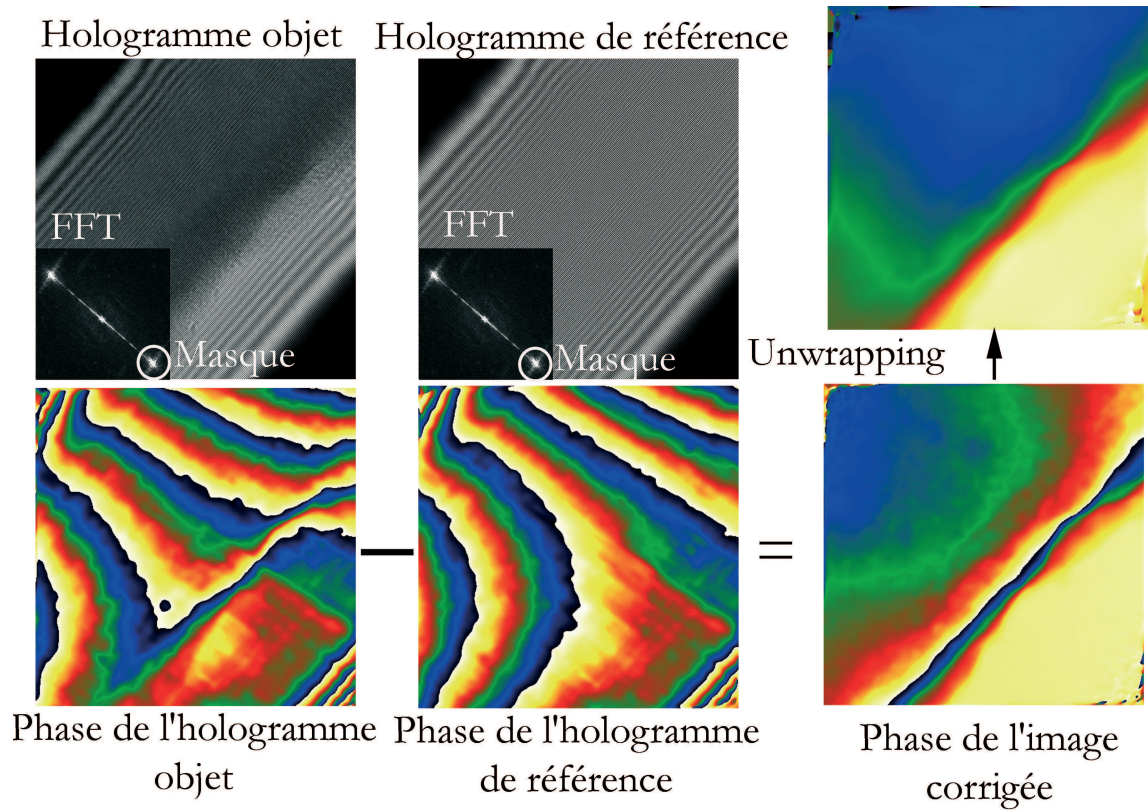


FIG. 3.5 – Processus de correction des distorsions, introduites par l'optique électronique dans la phase de l'hologramme objet, grâce à un hologramme de référence

apparaître lorsque la différence de phase dépasse  $2\pi$  à certains endroits. L'image de phase doit, dans ce cas là, subir un dépliement (unwrapping) permettant de se débarrasser de ces discontinuités. C'est ce qui est reproduit dans l'image(3.5). Pour cela nous avons utilisé des algorithmes correspondant à différentes méthodes de dépliement de phase (type Goldstein, Flynn ou hybride) [74], déjà implantés dans l'environnement Digital Micrograph [75].

### Contribution du potentiel interne à la phase

La phase de l'onde électronique qui passe à travers un échantillon de microscopie électronique en transmission, est sensible à la fois au potentiel électrostatique et à la composante dans le plan de l'induction magnétique présente dans l'échantillon, intégrée le long de la trajectoire électronique. Etant donné que les matériaux étudiés dans cette thèse ne sont pas magnétiques, nous considérerons seulement la partie électrostatique. Si on néglige les effets dynamiques (cas d'un échantillon mince, ou dans des axes de zones faiblement dynamiques), la variation de phase de l'onde électronique à la sortie du matériau, introduite dans l'équation(3.4), peut se réécrire suivant l'expression(3.18) si le potentiel ne varie pas le long de la direction  $z$  :

$$\xi(\vec{\rho}) = C_E \int V(\vec{\rho}, z) dz = C_E V_p(\vec{\rho}) t(\vec{\rho}) \quad (3.18)$$

où  $V_p$  correspond au potentiel projeté électrostatique. La composante  $V_p$  de la phase contient en majorité un terme potentiel électrostatique provenant du potentiel interne de l'échantillon, qui dépend de la composition chimique locale et de la densité de l'échantillon [65, 67, 64], mais aussi des potentiels additionnels pouvant provenir de champ électrique se superposant à

l'échantillon, comme des champs piezoélectriques [70] ou des surfaces de déplétion dans les jonctions PN [76]. L'image de phase obtenue à partir du traitement de Fourier d'un hologramme permettra de tracer une image 2D du potentiel projeté expérimenté par le faisceau d'électrons. La phase peut être mesurée avec une sensibilité de quelques dizaines de  $mrad$  [77]. Si on considère une épaisseur constante, une sensibilité de  $25mV$  sur le potentiel interne peut parfois être obtenue [68].

Au cours de ce travail nous nous sommes intéressés essentiellement à l'holographie HREM présentée au prochain paragraphe.

### 3.2.2 Cas particulier de l'Holographie électronique HREM

Le principe de formation de l'hologramme est exactement le même que celui présenté précédemment. On a superposition des franges atomiques et des franges de l'hologramme comme reporté sur l'image(3.6). Un important changement est observé dans la FFT de l'hologramme où la bande centrale est maintenant constituée par le diffractogramme classique de l'image HREM formé par les différentes fréquences spatiales  $\vec{g}$  associées aux familles de plans en zone. Les bandes latérales sont, quant à elles, constituées par des taches aux fréquences spatiales  $\pm\vec{q}_c + \vec{g}$  correspondant à l'interférence entre les faisceaux diffractés  $\vec{g}$  formant l'image HREM et l'onde de référence (figure(3.6)).

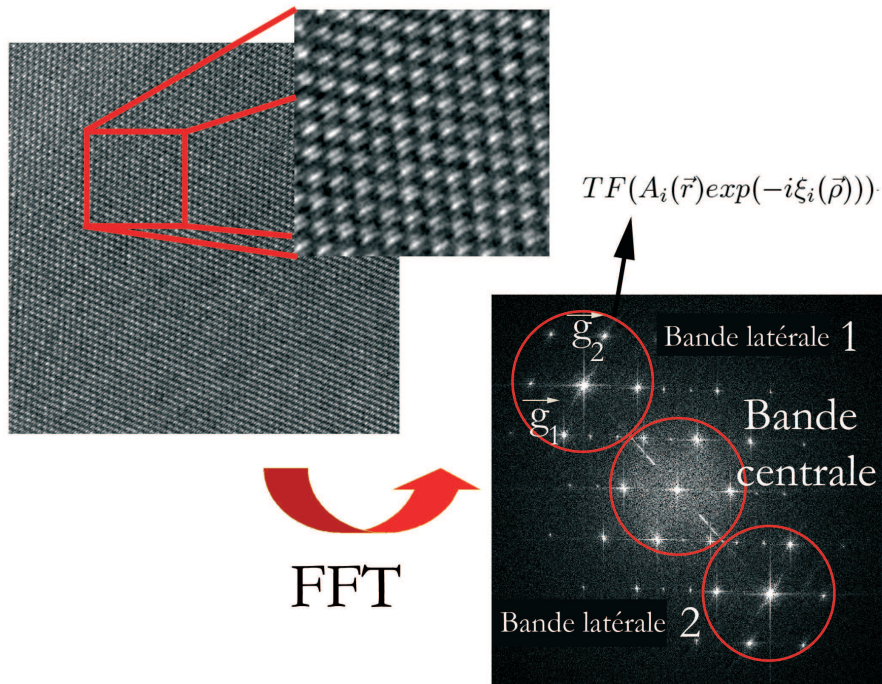


FIG. 3.6 – Hologramme HREM d'un échantillon de Silicium où l'on voit nettement la superposition entre les franges atomiques et les franges de l'hologramme. On distingue dans la FFT la séparation entre la bande centrale et les bandes latérales constituées des fréquences spatiales correspondantes aux faisceaux diffractés  $\vec{g}$  formant l'image HREM

La bande latérale correspond tout simplement à la FFT de la fonction d'onde image formant l'image HREM comme démontré dans l'équation(3.17). On n'est donc pas étonné de trouver une décomposition de la bande latérale en fréquences spatiales  $\vec{g}$ , puisque nous avons

montré dans l'équation(3.1), que la fonction d'onde image complexe peut toujours être développée en série de Fourier sur les faisceaux diffractés à l'origine de l'image HREM. Une division de la FFT de la fonction d'onde image complexe présente dans la bande latérale, par la fonction de transfert permet de retrouver la FFT de la fonction d'onde objet. En réalisant une FFT inverse de l'image ainsi calculée, on reconstruit par ce processus, une image HREM corrigée de toutes les aberrations du microscope. C'est une des principales applications de l'holographie HREM rencontrée dans la littérature [78, 64]. Un traitement original de l'hologramme HREM a pu être effectué par Sheerschmidt *et al* [79] qui, en travaillant sur chacune des taches  $\vec{g}$  constituant la bande latérale a pu, moyennant des calculs de théorie dynamique dans le formalisme des ondes de Bloch 3D, remonter aux coefficients de Fourier du potentiel.

Dans ce genre d'expérience, la principale difficulté provient de la nécessité de pouvoir séparer les taches provenant de la bande centrale de celles provenant de la bande latérale. Cet ajustement se fait expérimentalement en sélectionnant une tension de biprisme appropriée, tout en essayant d'éviter les divers artefacts comme le vignetage introduit par le biprisme, les franges de Fresnel, etc ... pouvant intervenir dans l'image. Tous ces artefacts ont été résumés par H.Lichte *et al* [73].

Au cours de cette thèse, nous avons développé, en collaboration avec M.J. Hÿtch, un traitement des hologrammes HREM basé sur l'analyse GPA des différentes taches  $\vec{g}$  présentes dans la bande latérale, dans une approche identique à celle employée par Sheerschmidt *et al*. On montre que la déformation peut être obtenue à partir de ce traitement combinant ainsi l'information chimique du potentiel interne ou l'information piezoélectrique reliée à l'état de contrainte de la couche à l'information structurale. Ces développements, ainsi que leurs applications aux matériaux étudiés, seront exposés en détail dans la deuxième partie traitant des résultats expérimentaux et théoriques.

### 3.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons résumé les bases de la formation d'une image HREM et discuté de l'importance des conditions expérimentales, notamment des caractéristiques du microscope (aberration sphérique, défocalisation, etc ...). On verra dans la suite comment l'utilisation d'un microscope équipé d'un correcteur d'aberration sphérique permet d'améliorer les conditions d'imagerie. Nous avons également présenté le traitement des images HREM par la méthode des phases géométriques (GPA) qui permet d'accéder à une cartographie bidimensionnelle du champ de déformation de la zone étudiée par rapport à une référence. Ces calculs pourront ensuite être comparés aux résultats obtenus avec le CBED.

Nous nous sommes ensuite intéressés aux hologrammes électroniques dont le traitement consiste à réaliser une analyse GPA des bandes latérales afin de récupérer une cartographie bidimensionnelle de la phase du faisceau d'électrons. Dans le cas d'un matériau non-magnétique, nous avons écrit la relation entre la phase mesurée, potentiel interne du cristal  $V_0$  et l'épaisseur  $t$ . L'intérêt de cette technique provient de la possibilité de relier la valeur de  $V_0$  mesurée, à la composition chimique de la couche. Dans un premier temps nous nous sommes focalisés sur l'holographie HREM qui permet une combinaison astucieuse entre l'analyse structurale apportée par le traitement GPA de la bande centrale et l'analyse chimique, grâce au traitement de la bande latérale. Mais beaucoup d'autres informations peuvent être obtenues par un traitement poussé de la bande latérale.



## Deuxième partie

# Etudes par diffraction électronique en faisceau convergent





## Chapitre 4

# Optimisation des conditions expérimentales

Nous allons commencer par présenter les conditions expérimentales qui ont permis de réaliser des clichés exploitables quantitativement. L'arrivée du GIF (Gatan Image Filter) en milieu de thèse, a permis d'améliorer considérablement la qualité des clichés, ainsi que les résultats qui en découlaient. Nous nous intéresserons aussi au développement d'une technique fiable de détection des lignes, obtenue grâce à un algorithme de Transformée de Hough permettant de déterminer la déformation à partir de la position des fines lignes de HOLZ.

### 4.1 Filtrage élastique

Les divers clichés (CBED, LACBED, etc ...) obtenus lors de cette thèse ont été réalisés essentiellement grâce à un microscope électronique en transmission FEI TECNAI F20 équipé d'un canon à émission de champ de type Shotcky (FEG) fonctionnant à  $200kV$ , d'un correcteur d'aberration sphérique (voir annexe(C)) et d'un GIF. Certains clichés ont été obtenus sur 2 autres microscopes Philips, CM20 et CM30, équipés de canons LaB6 fonctionnant respectivement à  $200kV$  et  $300kV$ . Tous les renseignements techniques sur le fonctionnement de ce type de microscope sont reportés en annexe(B). Les clichés CBED et LACBED sont réalisés à une tension de  $200kV$  (même au CM30), de manière à avoir un nombre de lignes de HOLZ suffisamment important [12]. En effet, plus la tension est basse plus la sphère d'Ewald possède un faible rayon, ce qui autorise plus de diffraction de HOLZ. Les clichés sont réalisés en utilisant le mode nanoprobe des lentilles objectifs de ces microscopes, de manière à travailler avec les sondes électroniques les plus petites et les plus convergentes possibles sur l'échantillon. Le microscope est équipé d'un porte-objet double inclinaison de FEI permettant de s'orienter dans toutes les directions du cristal sur une amplitude de  $\pm 20^\circ$ . Les échantillons cristallins étudiés sont préparés suivant les techniques classiques exposées en annexe(E). Nous discuterons en détail, par la suite, de l'influence du type de préparation sur la façon d'aborder le problème ainsi que sur les résultats expérimentaux obtenus.

Les clichés obtenus au TECNAI sont enregistrés soit par une caméra CCD Multiscan ( $1024 \times 1024$  pixels) de chez Gatan placée sous l'écran électroluminescent du microscope, soit par la caméra CCD Ultrascan du GIF ( $2048 \times 2048$  pixels). Au CM30, on retrouve la même caméra Multiscan de Gatan alors que les images obtenues au CM20 sont capturées sur plaques photo puis numérisées avec un scanner. L'attrait du TECNAI, pour la diffraction électronique en faisceau convergent, provient de la possibilité de filtrer élastiquement grâce au GIF. En effet, lors de la traversée de l'échantillon les électrons vont subir diverses interactions élastiques et inélastiques. Les électrons ayant subi des interactions inélastiques vont créer un fond continu qui

dégrade considérablement la qualité des clichés. Le GIF permet, grâce à un prisme magnétique, de séparer les électrons suivant leur énergie et ainsi de créer un spectre de perte d'énergie des électrons (EELS : Electron Energy Loss Spectroscopy) relié aux interactions électroniques avec l'échantillon (voir figure(4.1))[80]. Ces spectres contiennent beaucoup d'informations [80], mais nous ne nous intéressons qu'aux électrons ayant interagi élastiquement avec l'échantillon, qui sont concentrés dans le pic sans perte. Le GIF possède une fente dans le plan du spectre qui peut être placée sur une zone d'énergie choisie (le pic sans perte dans notre cas), puis reproduit l'image observée avec les seuls électrons qui ont traversé la fente, grâce à l'optique placée derrière le prisme magnétique(voir figure(4.1)). On obtient une image filtrée sur l'énergie sélectionnée par la fente.

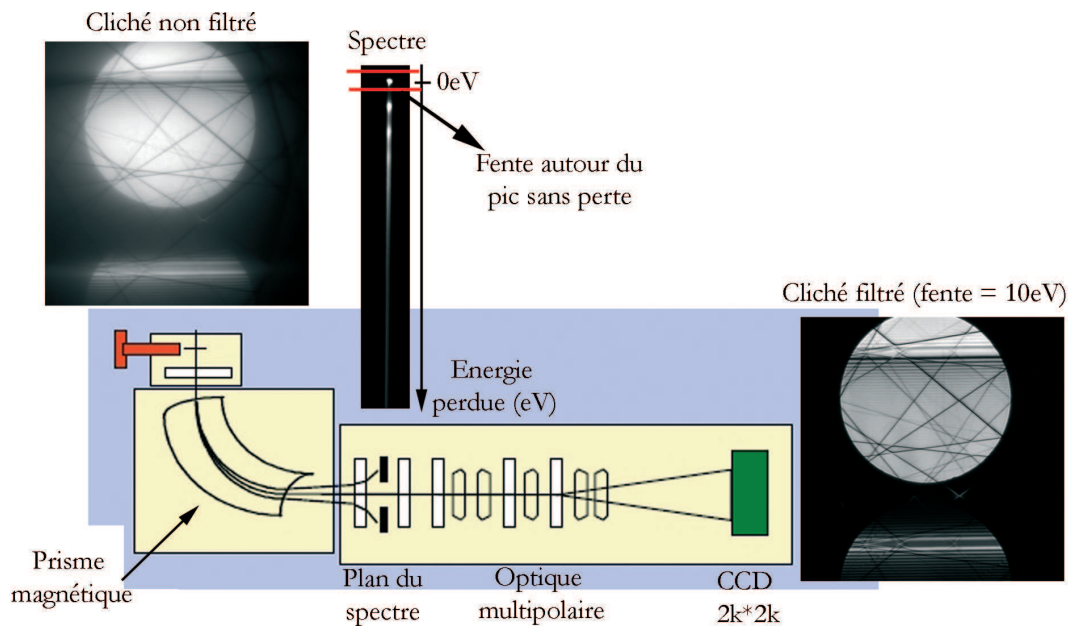


FIG. 4.1 – Filtrage d'un cliché CBED par le GIF. On forme un spectre EELS au niveau du plan de spectre, puis on sélectionne le pic sans perte avec une fente placée dans ce plan. L'optique multipolaire reforme ensuite l'image à partir des électrons sélectionnés. On obtient un cliché CBED filtré élastiquement

Le GIF nous permet ainsi d'augmenter le contraste des fines lignes de HOLZ noyées dans le fond continu, dont la position est très sensible aux variations de paramètres réticulaires. L'amélioration reste même importante pour un cliché LACBED malgré le fort pouvoir filtrant déjà présent dans ce type de cliché. Nous avons ainsi reporté sur les figures(4.2.a) et (4.2.b), les montages mettant en évidence l'effet du filtrage pour un cliché CBED et LACBED pris dans l'axe [130] du silicium. Les lignes fines observées au centre de l'axe de zone du cliché LACBED correspondent au cliché CBED centré sur cette région.

Enfin, nous avons vu précédemment que l'épaisseur des échantillons traversée par les électrons avait une énorme importance sur la finesse des lignes d'un cliché CBED. Les techniques de préparation nécessaires à l'observation au microscope, exposées en annexe(E), permettent la réalisation d'échantillon dont l'épaisseur est comprise entre  $10nm$  et  $600nm$ . Les épaisseurs optimales utilisées pour les différentes expériences de faisceau convergent sont comprises entre  $200nm$  et  $400nm$ .

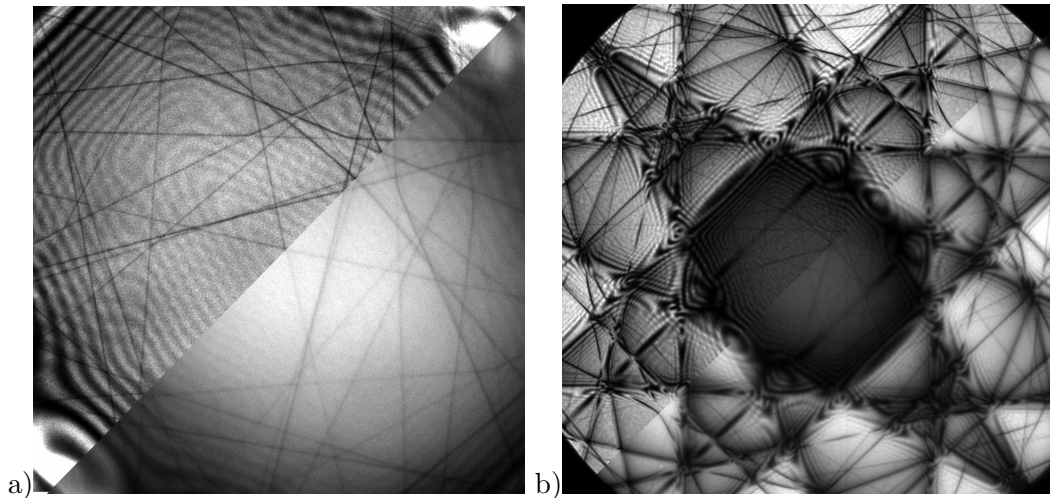


FIG. 4.2 – a) Montage mettant en évidence l'effet du filtrage élastique sur un cliché CBED pris en axe [130] du silicium. L'amélioration est impressionnante lorsque l'on regarde les franges dynamiques qui couvrent toute l'image (droite : non filtré ; gauche : filtré) b) Même montage pour un cliché LACBED où l'apport du GIF reste appréciable, malgré le fort pouvoir filtrant du diaphragme SA.

## 4.2 Apport du correcteur d'aberration sphérique

L'aberration sphérique est un des défauts majeurs des lentilles électromagnétiques utilisées dans le microscope électronique ; mais depuis peu les correcteurs d'aberration sphérique permettent de minimiser voire d'éliminer ce défaut pour l'objectif (voir annexe(C)). Ce correcteur, installé sur le TECNAI au CEMES, apporte d'énormes avantages à la technique de haute résolution, mais possède-t-il des avantages pour la diffraction en faisceau convergent ? Concernant l'amélioration des clichés CBED et notamment le contraste des lignes de HOLZ, aucun changement n'a été observé selon que le correcteur est en fonction ou non. Mais un effet bénéfique est observé lorsque l'on réalise un cliché LACBED.

Nous avons vu que la formation d'un cliché LACBED nécessite de surélever l'échantillon formant ainsi un cliché de points au niveau du plan image de l'objectif. Les taches formées sont très affectées par l'aberration sphérique de l'objectif comme le montre la figure(4.3.a). On observe en effet un halo autour de la tache centrale et des traînées perturbant les taches diffractées. Ces effets empêchent d'utiliser un petit diaphragme SA de pouvoir filtrant plus important qu'un gros diaphragme, car il risque d'introduire des zones sombres dans l'image en coupant le halo ou les traînées diffuses [12]. Le correcteur d'aberration sphérique, en supprimant ces effets (figure(4.3.b)), permet l'utilisation de diaphragmes plus petits, ce qui peut s'avérer d'une grande utilité pour l'étude de petits défauts comme les boucles de dislocations [12, 81].

La suite s'intéresse aux développements réalisés pour permettre la détermination des paramètres de maille et de la tension du microscope à partir des clichés CBED obtenus expérimentalement. Un algorithme basé sur la transformée de Hough a permis une détection et une comparaison systématique entre les clichés expérimentaux et les simulations. On discutera aussi du choix de l'axe de zone utilisé en fonction de son caractère plus ou moins dynamique.

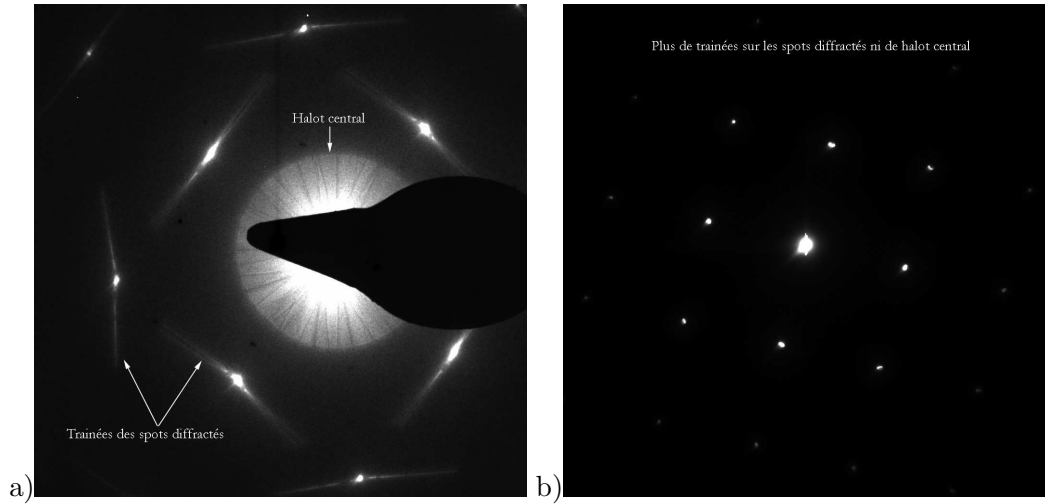


FIG. 4.3 – a) Cliché LACBED dans le plan image, d'un cristal de Silicium en axe  $[001]$  sans correcteur d'aberration sphérique b) même zone avec un correcteur de  $C_s$

### 4.3 Détermination des paramètres de maille d'un cristal et de la tension d'accélération du microscope : principe de la méthode

L'influence de la variation des paramètres réticulaires sur la position des lignes a été mise en évidence dans le paragraphe(2.2.2). Afin d'utiliser cette propriété pour déterminer les paramètres réticulaires d'un cristal quelconque à partir d'un cliché CBED expérimental, nous avons utilisé une méthode simple pour détecter les lignes du cliché expérimental et comparer leurs positions avec celles obtenues grâce aux simulations.

#### 4.3.1 Détection précise de la position des lignes

Dans les clichés expérimentaux, les lignes sont souvent perturbées par divers phénomènes comme l'absorption, les croisements dynamiques, etc ... Les simulations cinématiques quant à elles, fournissent des clichés contenant des lignes droites, parfaites, comme le montre les figures(2.12). Afin de comparer la position des lignes expérimentales à celles des lignes simulées, il est nécessaire de réduire le cliché expérimental à un ensemble de droites qui pourront ainsi être décrites analytiquement. Avec la transformée de Hough, chaque ligne présente dans l'image originale ("espace direct") est transformée en un point dans le plan de Hough [22]. En effet, une ligne dans un espace à deux dimensions peut être décrite par deux paramètres. Si on définit l'angle  $\beta$  et le vecteur  $\vec{r}$  perpendiculaire à la ligne  $l$  (voir figure(4.4.a)), alors celle-ci peut être décrite par l'équation :

$$x\cos\beta + y\sin\beta = |\vec{r}| \quad (4.1)$$

où  $x$  et  $y$  correspondent aux axes cartésiens définis dans le cliché expérimental. La transformée de Hough de la ligne  $l$  décrite par  $\vec{r}$  et  $\beta$  est un point de coordonnée  $\vec{r}$  et  $\beta$  dans l'espace de Hough (voir figure(4.4.d)). La transformation  $H(\vec{r}, \beta)$  est donnée par :

$$H(\vec{r}, \beta) = \sum_{(x,y) \in l} I(x,y) \quad (4.2)$$

où  $I$  est la valeur de l'intensité aux coordonnées  $(x,y)$  dans le cliché expérimental. Le choix des coordonnées est arbitraire puisque seule la position relative entre les lignes est importante.

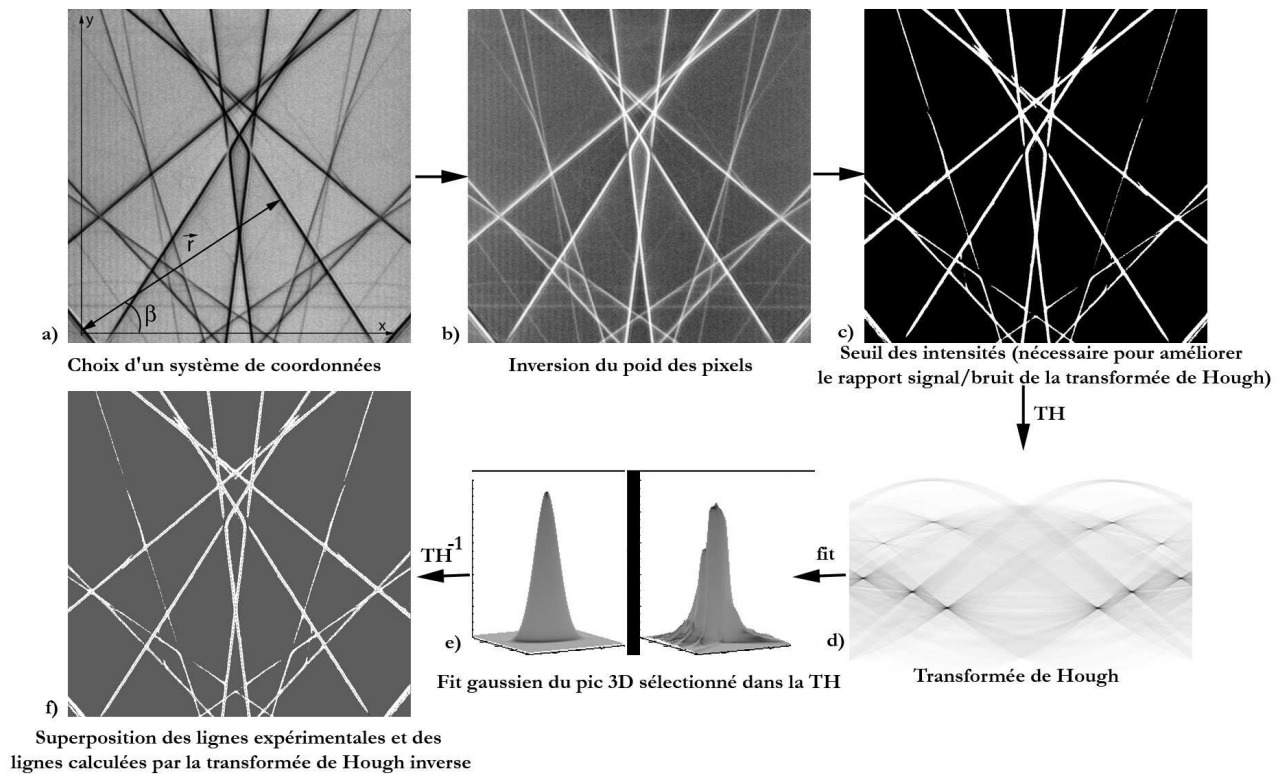


FIG. 4.4 – Processus de détection numérique des lignes expérimentales grâce à la combinaison des transformées de Hough directe et inverse ( $TH$  et  $TH^{-1}$ ) obtenues avec le programme réalisé durant la thèse.

La sommation est discrète sur le nombre fini de pixels présents dans l'image expérimentale enregistrée grâce à une caméra CCD ou digitalisée depuis une photographie. Le résultat de la TH est une image constituée de taches de différentes intensités dans l'espace de Hough. Pour remonter aux paramètres  $\vec{r}$  et  $\beta$  de chaque ligne, il est nécessaire de localiser précisément le centre de chaque tache.

Nous avons pour cela développé un programme sous le langage IDL[82] permettant de calculer la TH d'une image expérimentale, puis de détecter les lignes et déterminer leurs paramètres  $\beta$  et  $\vec{r}$  afin de calculer leurs équations. Pour déterminer correctement le centre de la tache sélectionnée dans l'espace de Hough, il est important d'améliorer le plus possible le rapport signal sur bruit de la transformée de Hough. Pour cela nous réalisons une séquence de traitement de l'image initiale reproduite sur la figure(4.4). Après inversion du poids des pixels du cliché expérimental, on effectue un seuillage de l'image (voir figure(4.4.c)) afin de maximiser le contraste entre les lignes blanches et le fond continu. Ces opérations sont réalisées grâce au logiciel Photoshop[83]. On effectue ensuite la TH de l'image ainsi traitée avec notre programme. On montre que ce traitement améliore grandement le contraste entre le centre des taches de la transformée et le fond continu. On sélectionne ensuite les taches dans l'espace de Hough et leur profil d'intensité est ajusté avec un profil gaussien (voir figure(4.4.e)), le maximum correspondant au centre de la tache donne les valeurs de  $\beta$  et  $\vec{r}$ . L'image contenant les  $n$  lignes reconstruites est obtenue par transformée de Hough inverse (voir figure(4.4.f)). Ainsi à chaque ligne expérimentale on associe une équation affine dans le repère défini initialement, nous permettant de calculer facilement les distances  $d_{exp}$  entre croisements.

### 4.3.2 Comparaison avec des simulations cinématiques : ajustement des moindres carrés

Nous déterminons les paramètres réticulaires du cristal ainsi que la tension du microscope en comparant les distances expérimentales entre croisements de lignes  $d_{exp}$  avec les distances théoriques  $d_{theo}$  entre ces mêmes croisements obtenus à partir de simulations. Comme nous réalisons une simple comparaison géométrique, nous utiliserons en premier lieu des simulations cinématiques réalisées à partir du logiciel Electron diffraction [25]. L'ajustement entre le cliché expérimental et les clichés simulés se fait par une méthode des moindres carrés en minimisant le coefficient  $\chi^2$  :

$$\chi^2 = \sum_i \frac{(d_{theo}^i - c_i d_{exp}^i)^2}{N} \quad (4.3)$$

où  $d^i$  sont les distances entre les croisements,  $c_i$  un facteur de normalisation qui peut être interprété comme la longueur de caméra et  $N$  le nombre total de points. Afin de réaliser l'ajustement, nous avons développé un programme sous IDL [82] qui permet de comparer un cliché expérimental avec un nombre de simulations plus ou moins important suivant la précision recherchée. Le programme trace la variation du coefficient  $\chi^2$  en fonction du paramètre que nous faisons varier dans les simulations. Le meilleur accord correspond à la plus petite valeur de  $\chi^2$ . A titre d'exemple la figure(4.5) expose la méthode utilisée pour mesurer la tension d'accélération du TECNAI avec le cliché CBED d'un échantillon de *GaAs* observé dans l'axe [230]. On sélectionne 6 lignes à détecter par la transformée de Hough (6 taches dans l'espace de Hough), sur le cliché expérimental et les simulations. Celles-ci sont réalisées pour différentes tensions d'accélération allant de  $199kV$  à  $201kV$  avec un pas de  $100V$ . On détermine ici une tension de  $200,4 \pm 0,05kV$  lorsque l'on utilise des simulations cinématiques pour réaliser la comparaison. On apprécie à l'oeil le mouvement des lignes avec la tension dans le petit cercle reporté sur les 5 simulations présentées. En comparant les diagrammes par le biais des distances entre croisements, il n'est pas nécessaire de connaître parfaitement l'orientation du cristal par rapport à la direction incidente du faisceau, i.e. l'axe de zone exact. Un changement d'orientation du cristal modifiera le cliché dans son ensemble, sans affecter la position relative entre les lignes. Le point faible de la méthode provient de l'utilisation des simulations cinématiques qui ne sont pas forcément correctes dans un axe de zone où les effets dynamiques sont importants. On observe en effet, une disparité des mesures suivant l'axe de zone utilisé pour réaliser le cliché CBED.

### 4.3.3 Influence du type d'axe de zone

Nous avons réalisé deux mesures de tension à partir de deux clichés CBED obtenus *le même jour* au TECNAI sur du silicium dans l'axe [130] et [150]. Les simulations sont toujours effectuées dans l'approximation cinématique. La figure(4.6) présente les résultats obtenus. A partir du cliché CBED en axe [130] on obtient un accord optimum pour une tension de  $198,8kV$ . Le cliché pris dans l'axe [150] nous donne un accord pour une tension de  $199,4kV$ . On mesure donc deux valeurs de tension différentes, et l'écart est supérieur à la précision de la méthode. On ne peut donc considérer cette différence comme faisant partie de l'incertitude de mesure.

Comment expliquer cette différence de mesure? Nous allons voir que cela est dû à la précision des simulations cinématiques. Il est en effet important de remarquer que les lignes de HOLZ de l'axe [130] croisent des franges provenant de 8 lignes dynamiques qui entourent cette zone. Ces lignes dynamiques ont une influence sur la position des lignes de HOLZ par l'intermédiaire d'effets dynamiques que la théorie cinématique ne prend pas en compte. L'axe [150] quant à lui ne présente que 2 lignes dynamiques. On peut donc penser que la position des lignes de HOLZ dans l'axe [150] se rapproche plus de leurs positions cinématiques que les lignes observées dans l'axe [130] ce qui explique cette différence de mesure. Mais l'axe [150]

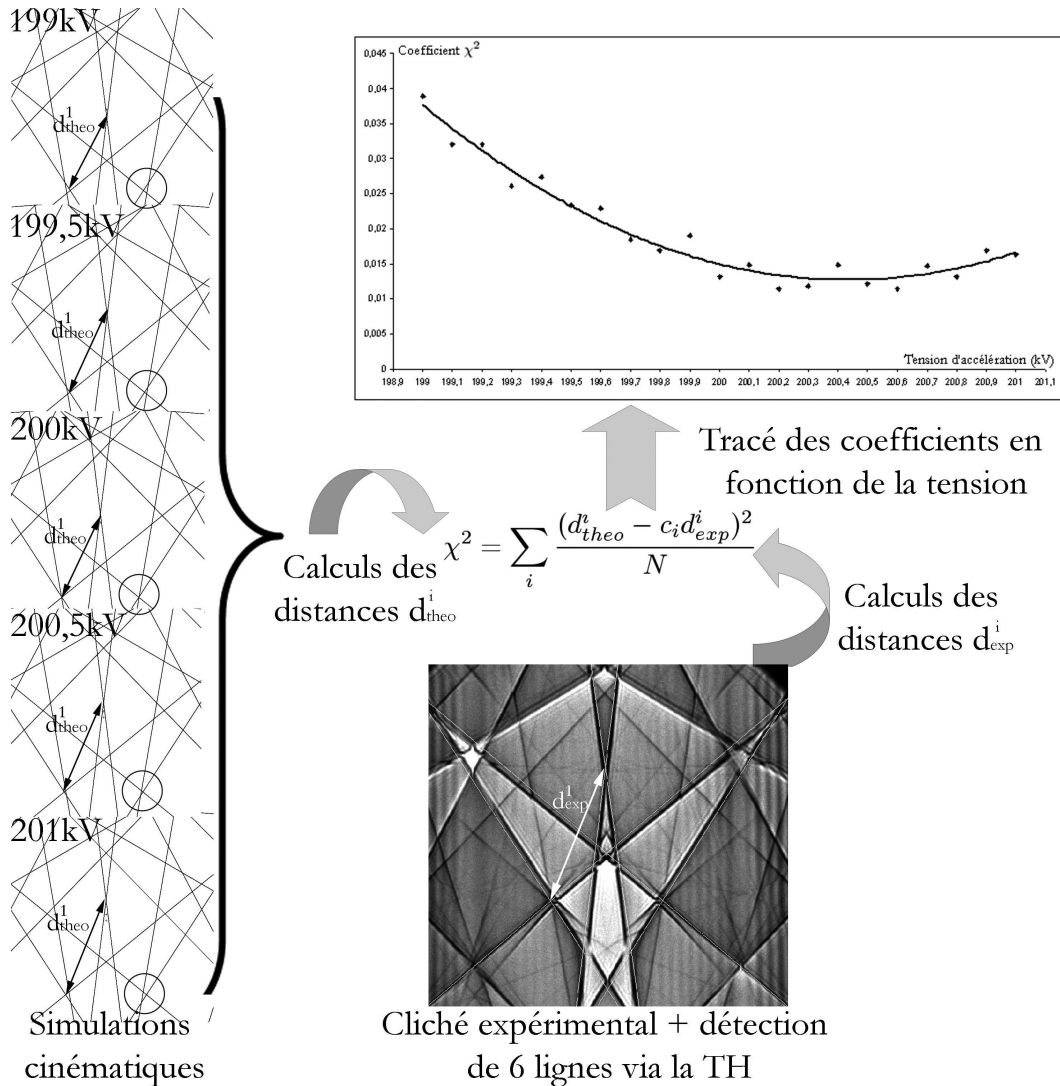


FIG. 4.5 – Détermination de la tension d'accélération du microscope par minimisation du coefficient  $\chi^2$  calculé avec le cliché expérimental et les simulations cinématiques

n'est-il pas tout de même un peu influencé par ces effets ? On ne peut le dire sans comparer les simulations cinématiques et dynamiques de cet axe de zone. Il nous est donc nécessaire d'étudier la formation des clichés CBED avec la **théorie dynamique** afin de mieux comprendre les effets pouvant modifier la position des lignes. Ceci nous amènera à définir les critères de sélection d'un axe de zone permettant de faire des simulations cinématiques. Il est aussi intéressant de noter la différence entre la mesure de la tension présentée sur la (figure(4.5)) et celles obtenues sur la (figure(4.6)). Ceci provient du fait que les clichés CBED utilisés n'ont pas été pris durant la même période. Cela montre qu'il est important de refaire la mesure de la tension pour chaque expérience réalisée.

#### 4.3.4 Comparaison avec des simulations dynamiques

On détermine maintenant la tension d'accélération en comparant les clichés CBED en axe de zone [130] et [150], avec les simulations dynamiques, réalisées pour les mêmes tensions que les simulations cinématiques. L'accord entre l'expérience et les simulations est le même pour les



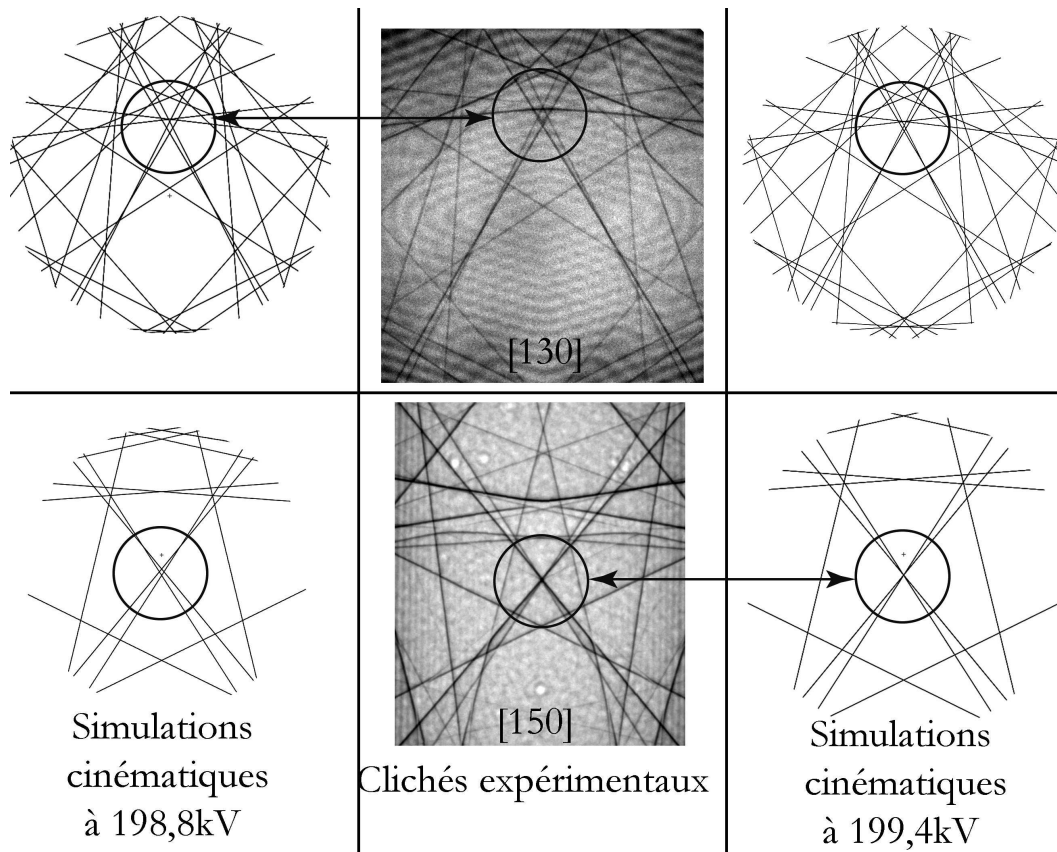


FIG. 4.6 – Détermination de la tension d'accélération du microscope à partir des clichés CBED du silicium observés dans les axes  $[130]$  et  $[150]$ . La comparaison avec les simulations cinématiques permet d'obtenir une tension de  $198,8kV$  avec le cliché en axe  $[130]$  et  $199,4kV$  avec celui observé en axe  $[150]$

deux axes de zone :  $199,7kV$  (voir figure(4.7)).

Ce résultat montre l'influence des interactions dynamiques sur la position des lignes de HOLZ, et la nécessité d'effectuer des simulations dynamiques pour déterminer les paramètres de maille ou la tension à partir de la position des lignes. De plus, on remarque que ce résultat est plus proche de celui trouvé cinématiquement avec l'axe  $[150]$  ( $199,4kV$ ) que de celui obtenu avec l'axe  $[130]$  ( $198,8kV$ ). Ceci provient du nombre supérieur de lignes dynamiques présentes dans l'axe  $[130]$  (8 lignes) comparé à l'axe  $[150]$  (2 lignes). Sachant qu'il faut en moyenne de 2 à 5 heures pour réaliser une simulation dynamique précise, et quelques secondes seulement pour réaliser une simulation cinématique, il est extrêmement intéressant de pouvoir utiliser les simulations cinématiques. Pour cela il faut choisir un axe de zone où les effets dynamiques sont minimisés, mais aussi utiliser des corrections prenant en compte les petites perturbations dynamiques résiduelles.

#### 4.3.5 HOLZ shift et simulations quasi-cinématiques

##### Représentation graphique des solutions de la théorie dynamique : les surfaces de dispersions

On représente en théorie dynamique les ondes de Bloch 3D  $|J\rangle$ , dans l'espace réciproque sous forme de surfaces de dispersion. La surface de dispersion est constituée de  $n$  branches

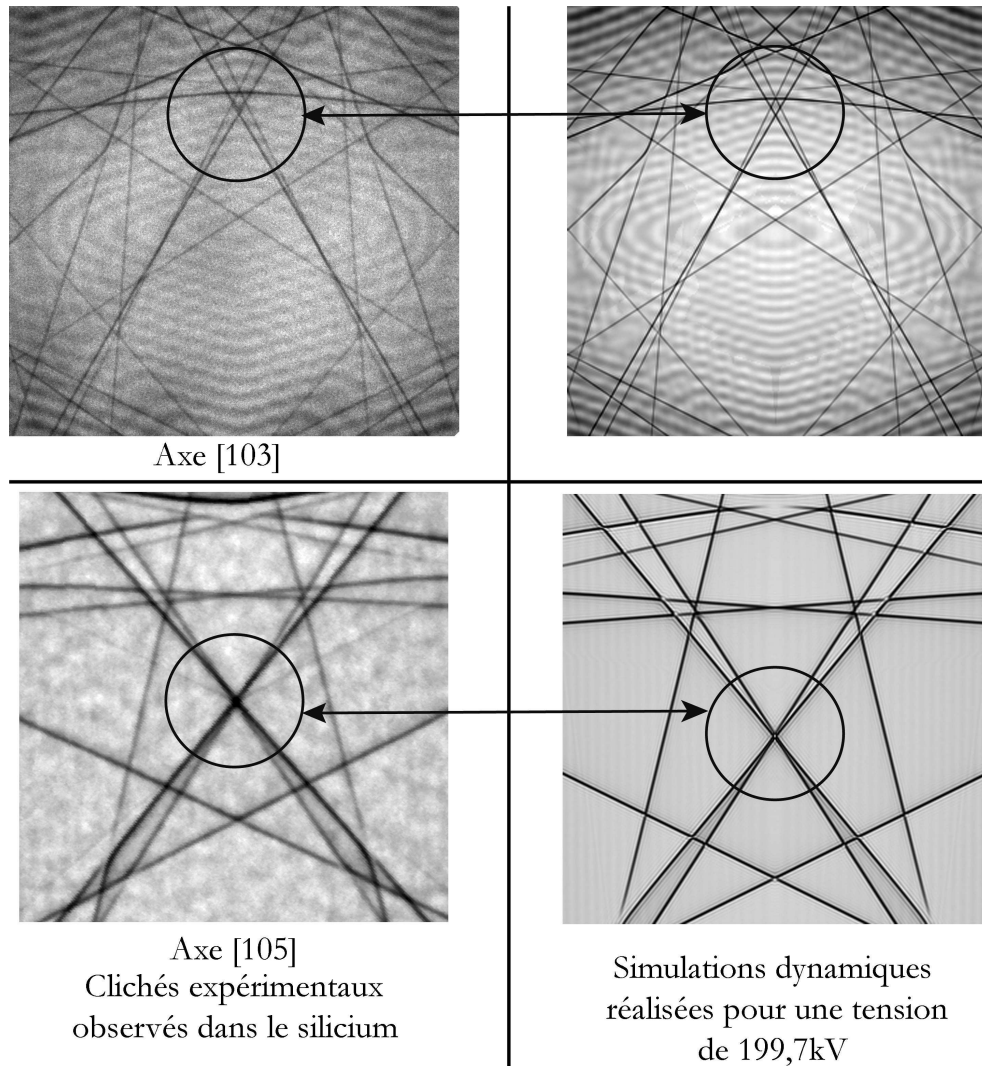


FIG. 4.7 – Détermination de la tension d'accélération du microscope à partir des clichés CBED du silicium observés dans les axes [130] et [150]. La comparaison avec les simulations dynamiques (réalisées avec un programme développé au cours de cette thèse) permet d'obtenir une tension de 199,7kV.

représentant les lieux des vecteurs d'ondes autorisés des  $n$  ondes de Bloch utilisées dans le calcul. C'est l'équivalent en physique du solide, de la sphère de Fermi avec un rayon très grand (faible longueur d'onde des électrons). La surface de dispersion en deux ondes est représentée sur la figure(4.8.a) avec ses deux branches et les taches 0 et  $\vec{g}$  dans le réseau réciproque. Les deux branches de la surface de dispersion tangent les deux sphères cinématiques, représentant les lieux des vecteurs d'onde des ondes planes transmise et diffractée à l'intérieur du cristal, calculées dans l'approximation cinématique. L'intersection entre les sphères cinématiques 0 et  $\vec{g}$  détermine la position exacte de Bragg. C'est en ce point que le lieu des solutions cinématiques (ondes planes : sphères cinématiques) s'éloigne le plus du lieu des solutions dynamiques (ondes de Bloch : branches de la surface de dispersion).

Communément en théorie dynamique, on représente la diffraction des HOLZ par des ondes planes dont les lieux autorisés dans le réseau réciproque sont positionnés sur une sphère cinématique. Ainsi la position de Bragg de la ligne  $\vec{h}$  (position de la ligne  $\vec{h}$  dans le cliché) devrait

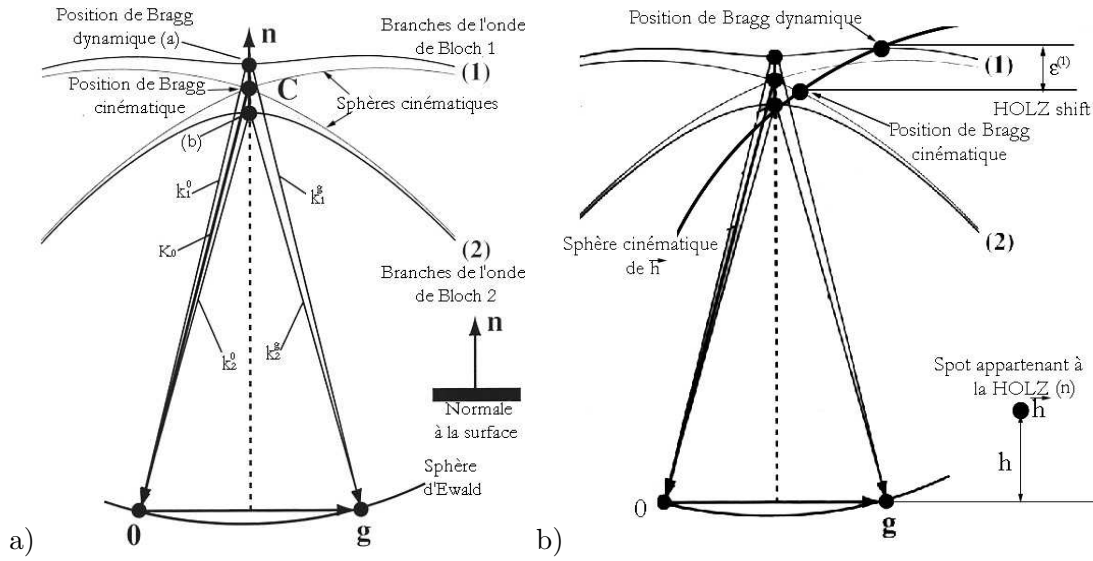


FIG. 4.8 – a) Surfaces de dispersion en condition deux ondes dynamiques 0 et  $\vec{g}$  b) Conditions 3 ondes : 0 et  $\vec{g}$  dynamiques +  $\vec{h}$  cinématique appartenant à la HOLZ  $n$ . Formation d'un décalage dynamique (HOLZ shift)  $\epsilon^{(1)}$  de la position de Bragg de la ligne  $\vec{h}$ , dans le cas où seule la branche (1) de la surface de dispersion est excitée : condition dite quasi-cinématique. Les sphères cinématiques sont construites à partir des vecteurs d'ondes  $\vec{K}$  à l'intérieur du cristal, corrigés de la réfraction (voir paragraphe(2.1.2))

être déterminée par l'intersection de la sphère cinématique de  $\vec{h}$  avec celle du faisceau transmis 0. Elle correspond à la position cinématique utilisée dans les simulations du paragraphe(4.3.2). Mais nous avons montré que cette position est éloignée de sa position réelle à cause des interactions avec les lignes dynamiques. La représentation en surface de dispersion nous offre une manière simple et élégante de schématiser ces interactions. On montre en effet que la position de Bragg de la ligne  $\vec{h}$ , est dans la réalité, décalée de l'intersection des sphères cinématiques à l'intersection entre la sphère cinématique et les branches de la surface de dispersion [45]. Si on se trouve dans un axe de zone où une seule onde de Bloch est excitée (une seule branche de la surface de dispersion est alors considérée), la position "réelle" de la ligne  $\vec{h}$  se trouve décalée de la position cinématique à l'intersection entre la sphère cinématique et cette branche majoritaire : ce décalage, appelé le HOLZ shift, est représenté sur la figure(4.8.b). Ainsi dans ce type d'axe dit quasi-cinématique, il est possible de simuler la position des lignes de HOLZ avec la théorie cinématique en corrigeant les positions cinématiques d'une quantité calculée à partir du HOLZ Shift. Pour cela on commence par déterminer les valeurs propres  $\gamma_1$  de l'onde de Bloch considérée, qui permettent de tracer la branche de la surface de dispersion dans le réseau réciproque [15]. La valeur  $\epsilon^{(1)}$  correspondant au HOLZ shift est alors naturellement déduite pour chacune des familles  $\vec{g}$ . Un calcul analytique est aussi détaillé dans le papier de Lin *et al* [84] qui utilise un traitement en perturbation pour traiter le problème.  $\epsilon^{(1)}$  est alors donnée par :

$$\epsilon^{(1)} \approx -\frac{1}{2k} \sum_{\vec{g} \neq \vec{0}} \frac{|U_{\vec{g}}|^2}{|\vec{g}|^2} + \dots \quad (4.4)$$

On peut décaler les lignes cinématiques pour les amener sur leur position quasi-cinématique en jouant sur la tension d'accélération . Le décalage de tension caractéristique de la correction

dynamique s'écrit [84] :

$$\Delta E \approx \frac{300k^2\epsilon^{(1)}}{(1 + 1,1956 \cdot 10^{-6} E)nh} \quad (4.5)$$

où  $h$  est la distance entre la ZOLZ et le plan de HOLZ contenant  $\vec{h}$ ,  $E$  est l'énergie des électrons incidents en  $eV$ ,  $k$  est le vecteur d'onde des électrons et  $\epsilon^{(1)}$  est défini sur la figure(4.8.b). Toutes les distances  $k$ ,  $\epsilon^{(1)}$  et  $h$  sont exprimées en  $\text{\AA}^{-1}$ . On a donc en main un moyen de calculer en quelques secondes la position des lignes de HOLZ à partir de simulations cinématiques, corrigées des interactions dynamiques. Cependant cette approximation n'est valable que dans les axes où **une seule branche de la surface de dispersion est excitée**. Dans un axe où plusieurs ondes de Bloch sont excitées, plusieurs branches de la surface de dispersion sont à considérer et la position réelle est beaucoup plus compliquée à calculer. Dans ce type d'axe, en général, les disques diffractés contiennent  $n$  lignes d'excès fines très proches, correspondant aux  $n$  conditions d'intersections de la sphère cinématique  $\vec{h}$  avec les  $n$  branches de la surface de dispersion excitées [45]. Afin de pouvoir déterminer correctement la position des lignes de HOLZ avec des simulations quasi-cinématiques, il est donc nécessaire de trouver un axe de zone satisfaisant les conditions évoquées ci-dessus.

#### [230] : un axe de zone quasi-cinématique idéal

Au cours de la thèse, la majorité des clichés CBED ont été pris dans l'axe [230] qui se révèle être un axe quasi-cinématique. Le choix s'est fait au regard de sa position vis à vis de l'axe principal [110] qui correspond à la direction d'amincissement principale. Il se situe dans la bande (004), i.e. entre les lignes dynamiques de type (004) (les lignes (002) étant interdites dans le *Si* et autorisées dans le *GaAs*), et fait un angle de  $11,3^\circ$  avec l'axe [110] ; en section transverse, le faisceau orienté suivant cet axe reste ainsi parallèle à l'interface puisque la direction de croissance est [001]. Afin de choisir l'axe le plus quasi-cinématique possible nous avons sélectionné des axes différents situés dans cette bande ([105],[104],[230],[130], etc ...) et nous avons comparé, pour chacun d'eux, la position des lignes expérimentales avec la position des lignes simulées en théorie cinématique, quasi-cinématique et dynamique. Les simulations sont réalisées pour une tension préalablement mesurée en utilisant des simulations dynamiques, comme présenté dans le paragraphe(4.3.4). Les axes pour lesquels la position des lignes simulées en théorie dynamique et quasi-cinématique est la même correspondent à ceux recherchés. La comparaison se fait par l'intermédiaire des divers coefficients d'ajustement  $\chi^2$  calculés entre le cliché expérimental et chacune des simulations. On montre que la direction [230] correspond à l'axe dont les coefficients  $\chi^2$  pour la simulation dynamique et quasi-cinématique sont les mêmes. Sur la figure(4.9), on présente les résultats obtenus pour l'axe [230] et l'axe [130].

Dans la suite nous nous intéresserons à l'application de ces développements pour mesurer les déformations dans les couches épitaxiées préparées pour l'observation au microscope électronique en transmission.

#### 4.3.6 Applications aux couches épitaxiées

Il existe deux types principaux d'échantillons TEM pour les couches épitaxiées : les échantillons de type section transverse (CS) et les échantillons de type vue plane (VP). La réalisation pratique de ces échantillons est exposée dans l'annexe(E). Le choix de l'une ou l'autre de ces préparations va dépendre de ce qu'on cherche à observer et de la méthode utilisée pour résoudre le problème.

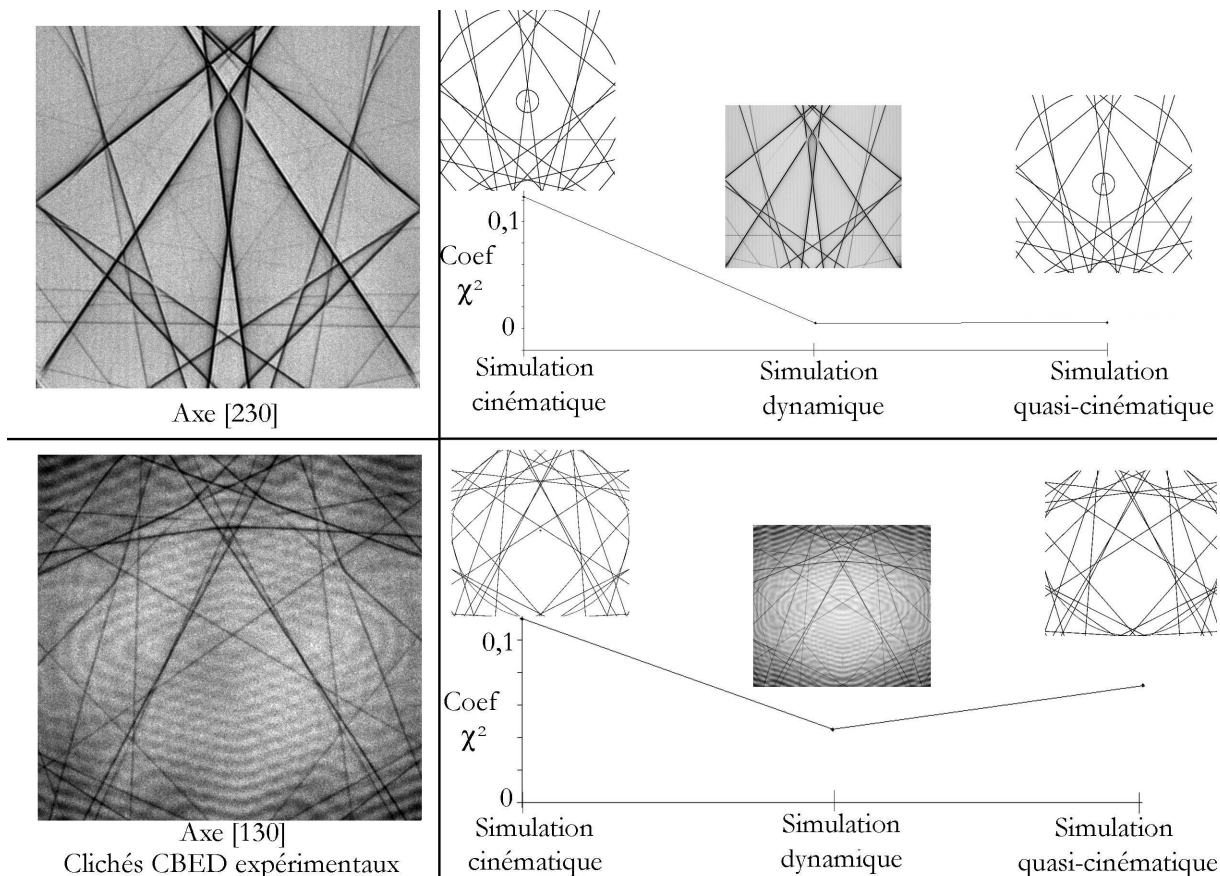


FIG. 4.9 – Validation de l'hypothèse quasi-cinématique pour l'axe de zone [230]. Comparaison avec l'axe [130] très dynamique.

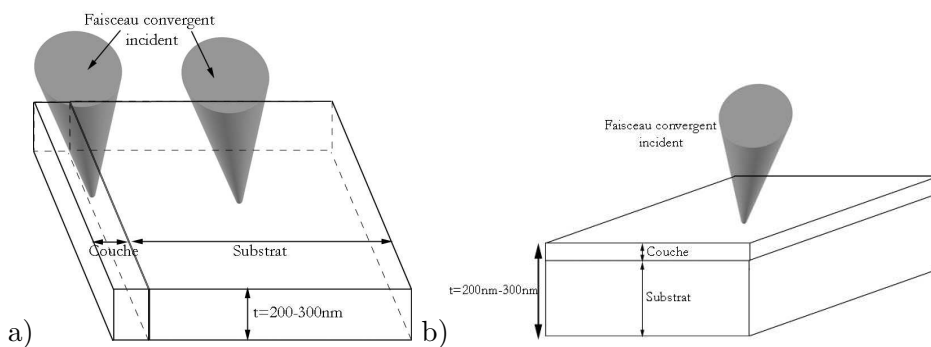


FIG. 4.10 – a) Préparation de type section transverse permettant l'observation indépendante du cliché CBED de la couche et du substrat. b) Préparation de type vue plane où le cliché CBED sera une combinaison des informations de la couche et du substrat.

#### Cas des échantillons préparés en section transverse

Afin de pouvoir appliquer la méthode exposée précédemment pour mesurer la déformation dans la couche, il est nécessaire de pouvoir observer la couche épitaxiée seule pour obtenir un cliché CBED libre de toutes contributions du substrat. Il est donc important d'amincir l'échantillon perpendiculairement à l'interface comme présenté sur la figure(4.10.a). Ainsi les

électrons pourront traverser la couche et le substrat séparément. Cette préparation correspond à la technique de section transverse. Dans ce cas, on prend un cliché CBED de la couche épitaxiée et un cliché du substrat *théoriquement* non déformé. En analysant la position des lignes du cliché obtenu dans le substrat, dont le paramètre réticulaire est connu, on détermine la tension d'accélération du microscope. Puis on détermine les paramètres cristallins  $a, b, c, \alpha, \beta, \gamma$  de la couche. Il est évidemment impossible de mesurer les 6 paramètres indépendamment, avec la seule position des lignes d'un cliché CBED. Il est donc nécessaire de faire des hypothèses sur la symétrie du cristal épitaxié et, par conséquent, sur la symétrie du champ de déformation. Dans la suite, les mesures de déformation ne seront jamais dissociées des hypothèses dans lesquelles elles sont effectuées : déformation uniaxiale ou biaxiale, élasticité linéaire, etc ...

### Cas des échantillons préparés en vue plane

La préparation en vue plane consiste à amincir l'échantillon par le substrat, parallèlement à l'interface, de telle sorte que les électrons traverseront à la fois la couche et le substrat. Le cliché CBED obtenu comprendra donc la contribution de la couche et du substrat (voir figure(4.10.b)). En théorie les clichés CBED ainsi observés sont formés par la superposition du cliché CBED de la couche et du substrat [85]. Aussi, en première approximation, pour chaque réflexion  $\vec{g}$  on aura une ligne provenant de la couche et une ligne provenant du substrat. Dans le cas d'une épitaxie pseudomorphe, ces deux lignes sont séparées par un angle  $\Delta\theta$  (équation(4.6)) calculé dans un premier temps par D.Cherns *et al* [85], puis par A.Armigliato *et al* [9, 86]. Cette séparation a pour origine la rotation relative entre les plans  $\vec{g}$  de la couche et du substrat introduite par la déformation. Elle est donnée par :

$$\Delta\theta = \frac{(1 + \nu)}{(1 - \nu)} \frac{f}{2} \sin(2\theta) \quad (4.6)$$

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

Cette rotation reste toujours identique tant que l'épitaxie est pseudomorphe ; aussi bien dans le cas où la couche se trouve complètement contrainte et le substrat libre, que dans le cas où la contrainte se répartit dans la couche et dans le substrat [9]. L'application de la formule de Cherns 4.6) permet donc, en théorie, de déterminer la déformation  $f$  en mesurant l'écart  $\Delta\theta$  entre des lignes de HOLZ dédoublées dans les clichés CBED d'une couche épitaxiée préparée en vue plane [85, 9, 86].



## Chapitre 5

# Observations en section transverse de couches épitaxiées : effet de la relaxation par les surfaces libres

### 5.1 Résultats expérimentaux

Toutes les caractéristiques des matériaux étudiés sont données dans le chapitre(1) et ne seront, par conséquent, pas rappelées dans la suite. Nous définissons  $t$  comme l'épaisseur traversée par le faisceau d'électrons et  $d$  comme l'épaisseur de la couche déposée. Les différentes mesures d'épaisseur utilisées dans la description des expériences qui vont suivre, ont été faites grâce à la ligne dynamique (004) du silicium (ou du *GaAs*) en utilisant la méthode de Kelly et Allen [24].

Les clichés CBED, présentés dans la suite, ont été réalisés au TECNAI, en mode nanoprobe, avec une taille de sonde de  $\approx 1nm$  (spot size 6) et un filtrage en énergie autour du pic sans perte avec une fente de largeur  $10eV$ . L'axe de zone des clichés est [230] pour les raisons évoquées au paragraphe(4.9).

#### 5.1.1 Couches épitaxiées de semiconducteur de type *IV* avec $t \gg d$

##### Cas du $Si_{0,8}Ge_{0,2}(27nm)/Si$ : préparation FIB

Afin de pouvoir étudier l'échantillon en fonction de l'épaisseur traversée par le faisceau d'électrons, il a été découpé par FIB avec trois épaisseurs différentes  $200nm$ ,  $300nm$  et  $400nm$  dont la géométrie est schématisée sur la figure(5.1). La direction d'amincissement correspond à l'axe de zone [110] du cristal. La préparation a été réalisée sur un FIB Micron (Canon LMIS Gallium de  $10keV$ ) appartenant à ST crolles par Laurent CLEMENT en suivant la technique Hbar détaillée dans l'annexe(E).

Les résultats des différentes expériences de CBED dans la couche et le substrat, pour des épaisseurs de  $300nm$  et  $400nm$ , sont reportées sur la figure(5.2).

En premier lieu, on remarque que, quelle que soit l'épaisseur, aucune ligne n'apparaît dans le cliché pris sur la couche de sorte que l'on ne peut mesurer les paramètres réticulaires. En revanche, sur les clichés obtenus dans le substrat on observe des lignes, mais elles n'ont pas l'aspect habituel. En effet leur profil est plus complexe. En particulier les clichés affichent une évolution du profil des lignes cinématiques de HOLZ au fur et à mesure que  $x_s$ , la profondeur sous l'interface, diminue. Loin de l'interface les lignes de défaut ont un profil d'intensité classique, c'est-à-dire avec un minimum principal, puis ce profil évolue en multipliant ces minima au fur et à mesure que  $x_s$  diminue créant ainsi un élargissement global de la ligne. On peut noter plusieurs



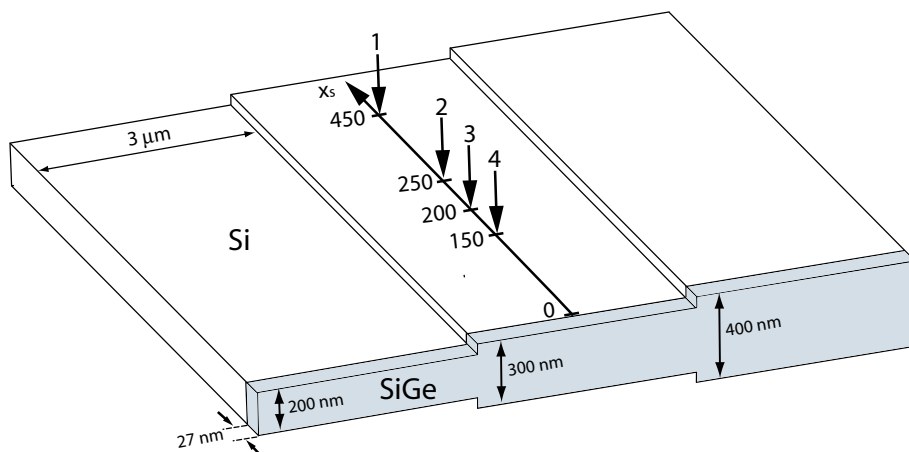


FIG. 5.1 – Géométrie de la préparation FIB de la couche d'épaisseur  $d = 27\text{nm}$ , de  $\text{Si}_{0,8}\text{Ge}_{0,2}/\text{Si}$ . Les positions 1, 2, 3 et 4 correspondent à 4 régions sondées par le faisceau. Les clichés associés sont reportés sur la figure(5.2).

remarques sur cette évolution :

1. D'une part chaque ligne est affectée de manière différente par cet effet. On peut ainsi apprécier la différence d'évolution du profil entre les lignes  $(5, \bar{3}, 9)$ ,  $(\bar{7}, 5, 9)$  et  $(\bar{14}, 10, 0)$  en fonction de  $x_s$ . Les deux premières ne possèdent pas le même nombre de franges pour des profondeurs  $x_s$  identiques, alors que la dernière n'est jamais affectée quelque soit  $x_s$ . La largeur de la ligne  $d_{\bar{g}}$  est donc différente pour chacune d'entre elles.
2. Appelons  $x_{def}$  la profondeur à laquelle les lignes de HOLZ commencent à être affectées. On remarque que, plus l'épaisseur traversée  $t$  est importante et plus  $x_{def}$  est importante. Par corollaire, pour une même profondeur,  $x_1 = 250\text{nm}$  par exemple, le cliché CBED obtenu dans la région où  $t = 300\text{nm}$  semble moins perturbé que celui obtenu pour  $t = 400\text{nm}$ .
3. On peut classer l'évolution du profil des lignes, lorsque  $x_s \rightarrow 0$  en deux zones. D'une part cela commence par une rocking curve classique mais asymétrique (pour des  $x_s$  grands). Puis on a apparition de plusieurs minima mais les profils redeviennent symétriques. Cette classification est observée quelle que soit la profondeur  $x_s$  sous l'interface et l'épaisseur  $t$ .

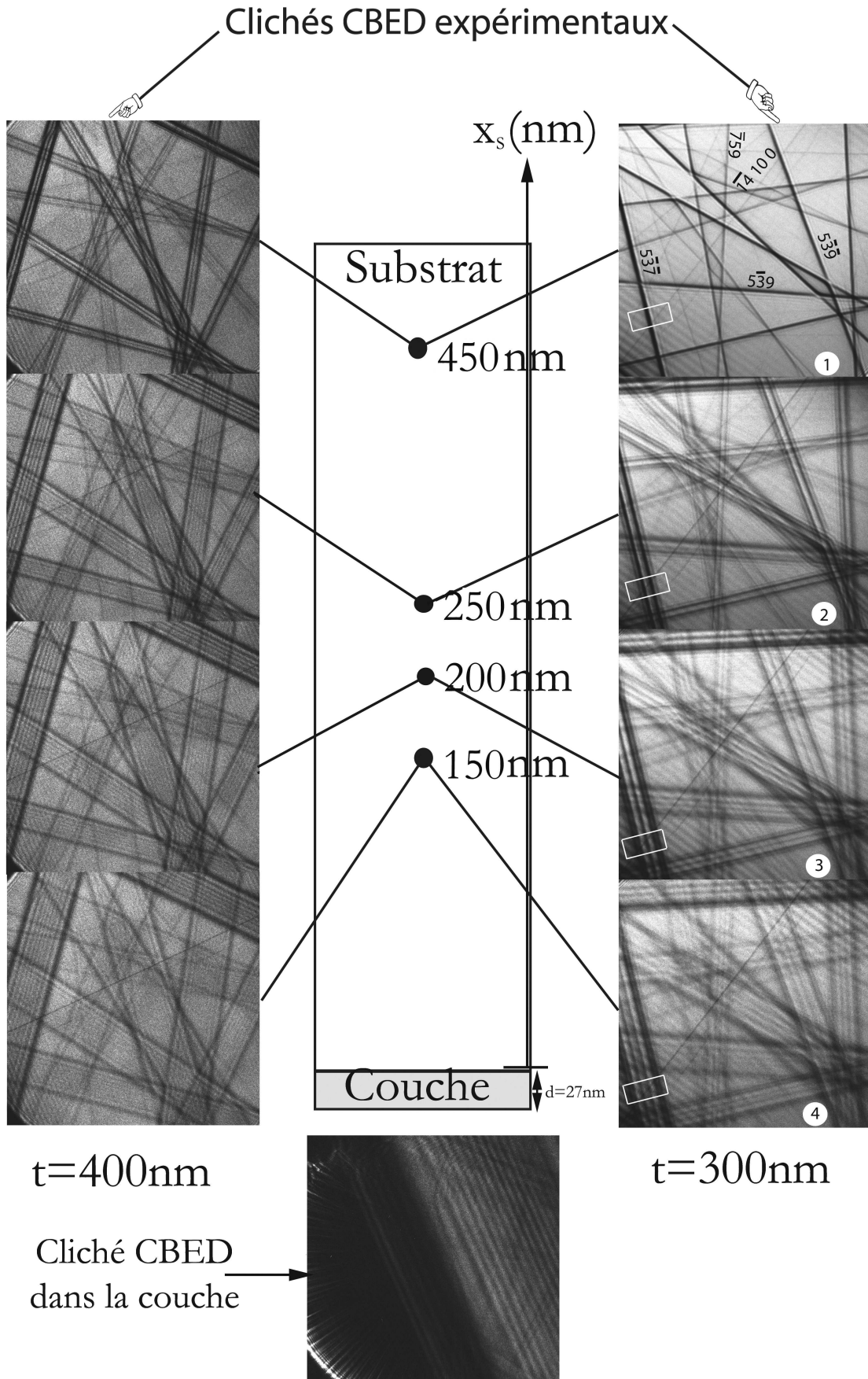


FIG. 5.2 – Montage mettant en évidence l'évolution des clichés CBED observés dans le substrat de Silicium, en fonction de la distance sous l'interface  $x_s$  pour deux régions d'épaisseur constante  $t = 300\text{nm}$  et  $t = 400\text{nm}$  préparées par FIB. 77

Le montage photographique de la figure(5.3.a) montre l'évolution de la ligne  $(5, \bar{3}, \bar{7})$  en fonction de  $x_s$  pour  $t = 300nm$ . On observe ainsi une variation de l'intensité des extrema de la rocking curve au fur et à mesure que la profondeur  $x_s$  diminue. De manière classique, et comme nous l'avons décrit dans le chapitre(2), le profil d'une ligne de défaut cinématique est constitué d'un minimum principal très important en position de Bragg et de plusieurs minima et maxima secondaires faibles en général invisibles. Dans notre cas, il semble qu'il y ait une évolution de l'intensité de ces minima, et maxima qui, suivant la profondeur  $x_s$  du faisceau évoluent en changeant leur intensité (un minimum central devient un maximum par exemple). La période des oscillations, liée à l'épaisseur traversée, reste constante, seules les amplitudes évoluent.

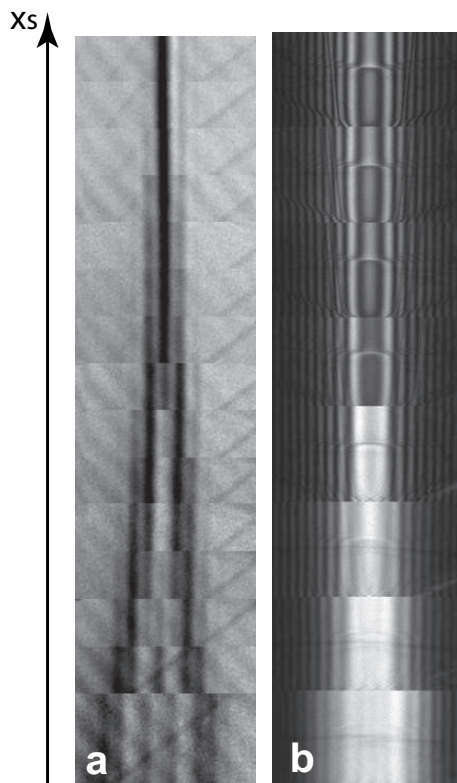


FIG. 5.3 – Evolution du profil des lignes en fonction de  $x_s$  pour une épaisseur  $t = 300nm$ . a) Ligne de défaut  $(5, \bar{3}, \bar{7})$  cinématique. Le montage est formé d'extraits obtenus pour des  $x_s$  différents (carrés blancs représentés sur la figure (5.2)). b) ligne d'excès  $(004)$  dynamique.

On tient ici un premier résultat important : ces effets correspondent à l'évolution des extrema d'UNE seule ligne et non d'un dédoublement, triplement, etc ... de lignes de défaut [87] ce que cela semble être en apparence. Ainsi, et contrairement à une ligne de défaut classique, on ne peut pas interpréter chaque ligne noire observée en terme de famille de plan diffractant (distances interréticulaires, etc ...). Utiliser la position relative des lignes de HOLZ pour mesurer la déformation tel que cela avait été envisagé précédemment, s'avère donc plus difficile que prévu. Le profil des lignes dynamiques est affecté de la même manière. On observe ainsi sur la figure(5.3.b) l'évolution, en fonction de  $x_s$ , de l'intensité des extrema de la ligne  $(004)$  pour une épaisseur  $t = 300nm$ . On montre ici une ligne d'excès puisque les lignes de défauts dynamiques sont toujours asymétriques à cause de l'absorption anormale.

Damien Jacob *et al* [88] ont montré que l'utilisation de source d'ions pour la préparation d'échantillons, pouvaient induire des artefacts sur le profil des lignes, en particulier une asymétrie des lignes dynamiques. Afin d'être sûr que l'effet observé ne provient pas de l'amincissement FIB, qui

utilise un faisceau d'ions focalisé, nous avons réalisé les mêmes expériences sur des échantillons préparés par la technique du tripode qui est un amincissement mécanique intégral.

### Cas du $Si_{0,7}Ge_{0,3}(27nm)/Si$ : préparation Tripode

Nous n'avons malheureusement pas pu disposer de la même couche épitaxiée que pour l'échantillon préparé au FIB : l'épaisseur de couche déposée est la même mais la composition en germanium est à présent de  $x = 30\%$  au lieu de  $x = 20\%$ . L'échantillon de section transverse [110] a été aminci en biais sur la polisseuse tripode afin d'obtenir des plages d'épaisseur constante le long de la direction  $x_s$ . Les conditions d'observation sont les mêmes que celles présentées précédemment. La géométrie de l'échantillon ainsi que les clichés CBED obtenus sont reportés sur la figure(5.4). On retrouve les mêmes effets sur la modification du profil des lignes cinématiques et dynamiques que pour la préparation FIB. On se place dans une zone où l'épaisseur mesurée vaut approximativement  $t = 300nm$ . Dans ce cas, on remarque que la profondeur  $x_{def}$ , à laquelle apparaissent les modifications, est plus importante que dans le cas de la préparation FIB. On mesure  $x_{def} = 470nm$  pour une concentration de 30% et  $x_{def} = 450nm$  pour 20%. De même, si on se place à une même distance  $x_s$  sous l'interface, les lignes de HOLZ observées dans  $Si_{0,7}Ge_{0,3}/Si$  seront plus perturbées (plus de franges, plus larges) que dans le cas des couches  $Si_{0,8}Ge_{0,2}/Si$ .

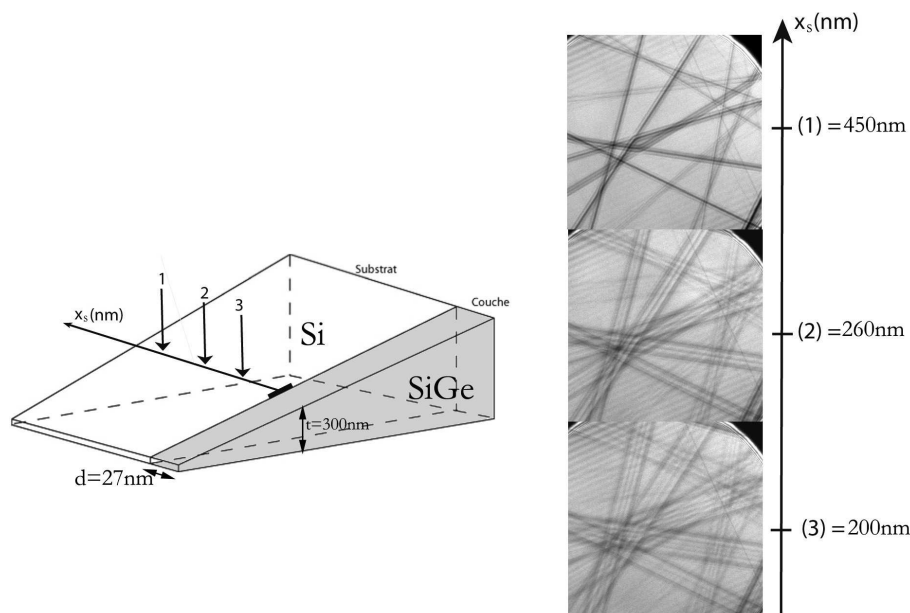


FIG. 5.4 – Schéma montrant la géométrie tripode de l'échantillon observé. Les clichés CBED observés pour différentes profondeurs  $x_s$  et dans une zone d'épaisseur  $t = 300nm$  y sont aussi reportés.

En résumé cet effet dépend de :

1. L'état de déformation de la couche épitaxiée
2. L'épaisseur traversée par le faisceau d'électrons
3. L'indice  $\vec{g}$  de la ligne

Il est de plus indépendant de la préparation de l'échantillon utilisée. Afin de compléter ces observations, nous allons étudier cet effet sur des matériaux différents.

### 5.1.2 Couches épitaxiées de semiconducteur de Type III – V avec $t \gg d$

Nous avons choisi d'observer la couche de  $10nm$  de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As/GaAs$  qui présente un misfit et une épaisseur de couche du même ordre de grandeur que les exemples précédents. Elle a été préparée par attaque ionique en section transverse suivant l'axe  $[110]$ . La zone observée possède une épaisseur comprise autour de  $t = 400nm$  et les clichés CBED obtenus dans l'axe  $[230]$  du substrat de  $GaAs$  semblent être perturbés de manière identique à ceux présentés pour les couches épitaxiées de  $SiGe/Si$ . De plus, ici aussi, aucune ligne n'est observée dans les clichés pris dans la couche de  $GaInAs$ . Les résultats obtenus sont reportés dans la figure(5.5)

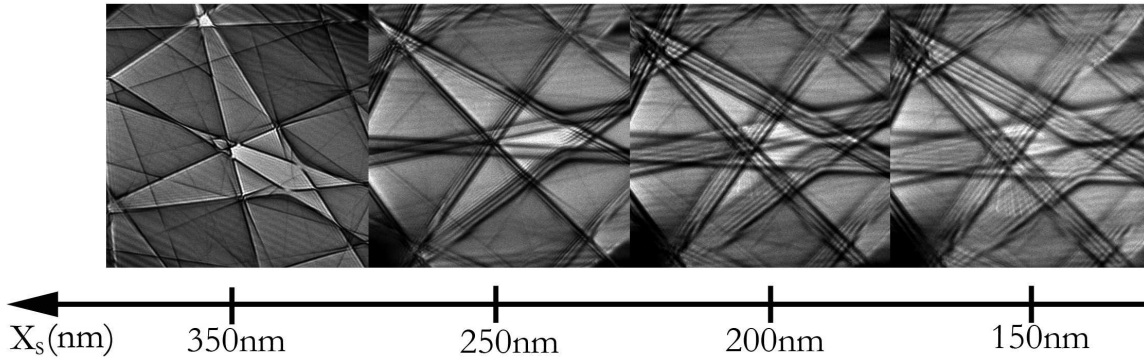


FIG. 5.5 – Evolution du cliché CBED  $[230]$  obtenu dans le substrat de  $GaAs$  en fonction de la profondeur sous l'interface  $x_s$  pour une épaisseur comprise autour de  $t = 400nm$ .

Comme précédemment, l'effet dépend de l'épaisseur traversée  $t$ , du désaccord paramétrique (ici défini par la concentration en Indium) et de l'indice  $\vec{g}$ . Ce phénomène ne dépend donc pas du matériau utilisé, mais de la configuration du système qui, dans les deux cas, est une couche cristalline épitaxiée sur un substrat cristallin, puis aminci suivant une direction préférentielle pour être transparente aux électrons.

Dans les deux cas évoqués ci-dessus, l'épaisseur de la couche déposée  $d$  était toujours beaucoup plus petite que l'épaisseur traversée par le faisceau d'électrons. Nous avons montré qu'il était impossible d'observer des lignes de défauts non perturbées dans les diagrammes obtenus dans la couche. Des lignes de défauts non perturbées ont pu être observées dans des couches d'épaisseur  $d$  suffisamment grande ( $d \approx t$ ).

### 5.1.3 Couches épitaxiées de semiconducteur de Type III – V avec $t \approx d$

L'échantillon constitué d'une couche d'épaisseur  $d = 100nm$  de  $Ga_{0,97}In_{0,03}As/GaAs$  a été préparé en section transverse par attaque ionique suivant l'axe  $[110]$ . Pour avoir des couches de telles épaisseurs sans qu'elles relaxent plastiquement, il est nécessaire d'avoir un désaccord paramétrique très faible (concentration en Indium de 3% dans la couche). La première zone observée a une épaisseur  $t = 100nm$ , plus faible que dans les expériences précédentes. La figure(5.6) rassemble les clichés CBED obtenus dans le substrat de  $GaAs$  ainsi que dans la couche de  $GaInAs$  pour deux épaisseurs  $t = 100nm$  et  $t = 200nm$ , où, si on se place assez loin de l'interface, des lignes non perturbées peuvent être observées.

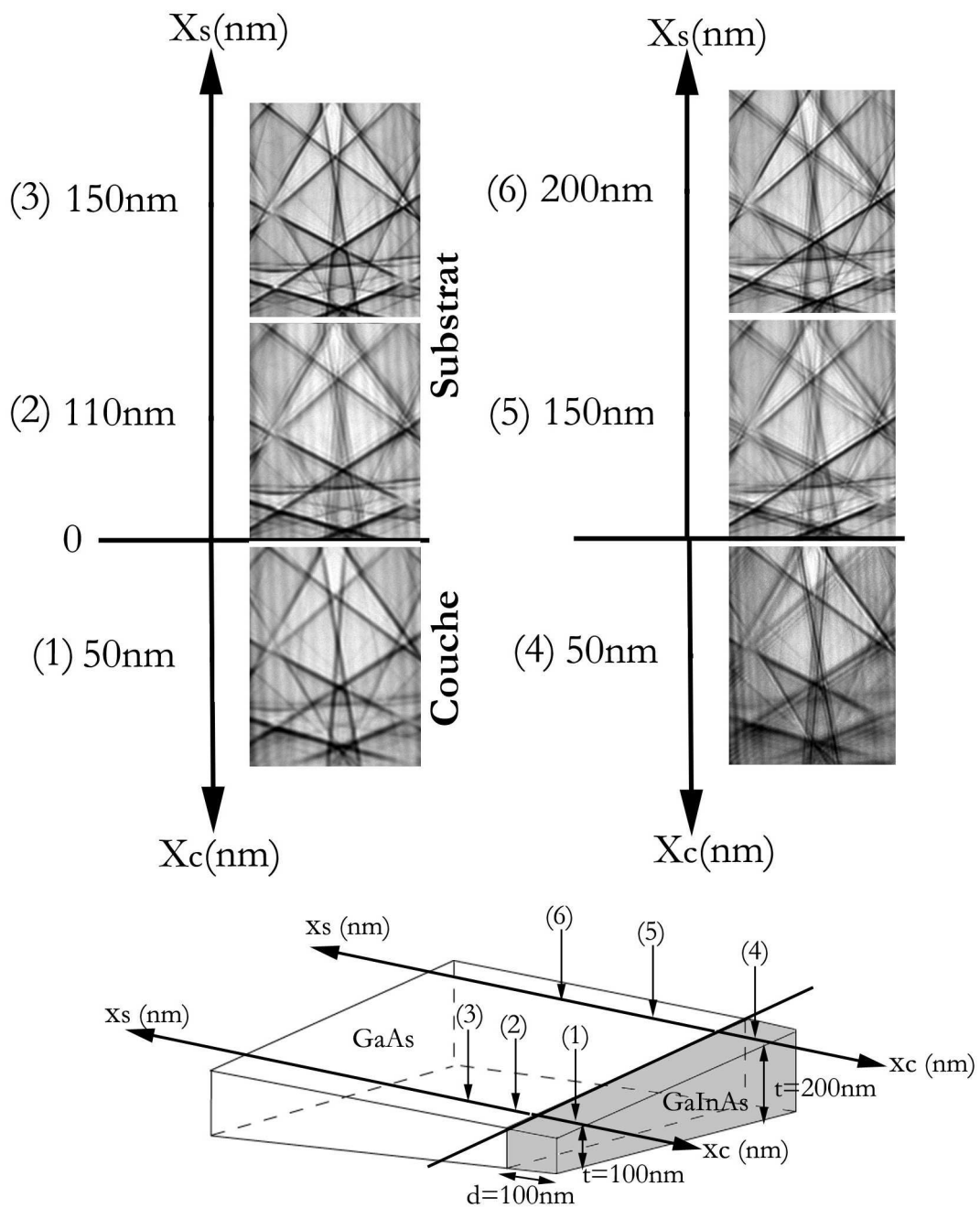


FIG. 5.6 – Evolution des clichés CBED en fonction de  $x_s$  et  $x_c$  pour deux régions d'épaisseur comprise autour de  $t = 100nm$  et  $t = 200nm$  respectivement. On peut ainsi observer un cliché non perturbé dans la couche si  $t \approx d$

On note toujours  $x_s$  la distance sous l'interface dans le substrat, et  $x_c$  la distance au dessus de l'interface dans la couche. La géométrie de l'échantillon reportée sur le schéma de la figure(5.6) est une représentation d'un échantillon préparé par attaque ionique. Dans ce cas, en effet, l'épaisseur varie le long de l'interface, mais aussi perpendiculairement car l'attaque n'est pas aussi bien contrôlée que dans les attaques FIB ou avec la polisseuse tripode. Cependant la différence d'épaisseur traversée entre les différents pointés reste peu importante grâce à un angle d'attaque ionique faible. Pour une première approche qualitative, on peut donc négliger cette variation d'épaisseur.

Quand l'épaisseur  $t$  augmente on observe une augmentation de la profondeur  $x_{def}$  dans le substrat. Définissons  $x_{couche}$  comme la distance  $x_c$  pour laquelle le cliché CBED dans la couche cesse d'être perturbé. Comme pour le substrat, on observe une augmentation de  $x_{couche}$  lorsque  $t$  augmente. Après une étude systématique de plusieurs zones de différentes épaisseurs comprises entre  $t = 70nm$  et  $t = 200nm$ , nous n'avons pu observer des lignes dans la couche que lorsque  $d \approx t$ . Lorsque l'épaisseur  $t$  est très fine (70 nm) les lignes de HOLZ sont très larges, lorsque l'épaisseur est au contraire très grande, les lignes sont dédoublées sur toute l'épaisseur de la couche. Les résultats expérimentaux obtenus dans la zone où  $t = 200nm$  sont aussi reportés dans la figure(5.6).

#### 5.1.4 Discussion

Au cours de ce paragraphe nous avons montré l'évolution du profil d'intensité des lignes d'un cliché CBED lorsque l'on balaye la sonde dans le substrat en direction de l'interface. Cet effet semble être identique à celui précédemment observé par C.T.Chou *et al* [89] en LACBED sur des puits de *GaAs/GaInAs/GaAs* et S.Krämer *et al* [22] en CBED sur des interconnexions d'aluminium. Dans les deux cas les auteurs interprétaient l'effet comme provenant d'une relaxation élastique de la contrainte épitaxiale par les surfaces libres, agissant le long de la direction d'amincissement de l'échantillon. Des calculs de l'état de déformation de la couche épitaxiée amincie ainsi que des simulations de théorie dynamique ont permis à C.T.Chou *et al* de simuler qualitativement les profils perturbés des lignes de HOLZ. Un désaccord quantitatif restait tout de même important, ne permettant pas de remonter à l'état de déformation de la couche étudiée. Récemment Clément *et al* [87] ont réalisé la même étude sur un système constitué d'une couche amorphe de *NiSi* déposée sur du *Si* utilisé dans des transistors. Comme précédemment un effet important de la relaxation par les surfaces libres a pu être mis en évidence. Les simulations par éléments finis (FEM = Finite Element Modeling) ont été utilisées pour modéliser l'état de déformation du système. De plus l'introduction du champ de déplacement calculé par FEM dans une équation de théorie cinématique, leur a permis de simuler avec un bon accord quantitatif le profil de la ligne considérée. Cela a permis de valider l'utilisation des modélisations par éléments finis pour calculer l'état de déformation d'un système aminci pour la microscopie.

Afin de modéliser l'état de déformation de nos échantillons épitaxiés, nous avons réalisé des simulations FEM et couplé cette analyse à des calculs de théorie dynamique. On montre dans la suite, que l'effet de la relaxation élastique de la contrainte par les surfaces libres est aussi très présent dans nos échantillons. Contrairement aux résultats de Clément *et al* [87], aucun accord quantitatif n'est obtenu grâce à la théorie dynamique utilisée dans le formalisme des ondes de Bloch 3D. Le système que l'on étudie est très différent puisqu'on considère l'épitaxie entre deux cristaux au lieu du dépôt d'un amorphe sur un cristal comme présenté dans [87]. Pour interpréter nos résultats nous avons combiné les simulations par éléments finis de nos échantillons amincis à des simulations dynamiques basées sur une nouvelle formulation que nous présenterons dans la suite.

## 5.2 Modélisation de l'état de déformation des couches épitaxiées par éléments finis

Les différents systèmes étudiés ont été modélisés par éléments finis à l'aide du logiciel COMSOL Multiphysics couplé au logiciel Matlab.

Nous avons effectué des modélisations 3D du champ de déplacement des structures observées en CBED, en prenant en compte une géométrie aussi proche que possible de la réalité. Les divers paramètres entrant dans le calcul sont reportés en annexe(D) (changement de repère, tenseur des modules, etc ...). La précision des calculs dépend évidemment de la finesse du maillage utilisé qui est jugée optimale lorsque les résultats donnés par le calcul convergent. Les simulations ont d'abord été effectuées pour le système préparé par FIB dont la géométrie est mieux contrôlée. La géométrie considérée pour le calcul est représentée sur la figure(5.7). Elle est constituée par un barreau fin dans une direction correspondant à la direction d'amincissement  $[110]$ . Les directions notées  $Z'$ ,  $Y'$  et  $X_s$  correspondent respectivement à la direction d'amincissement  $[110]$  (d'épaisseur  $t$ ), la direction du barreau et la profondeur sous l'interface déjà définie. La largeur est très fine selon  $Z'$  et infinie selon  $Y'$ . Les différentes faces sont  $B_1$ ,  $B_2$  perpendiculaires à  $[110]$ ,  $B_4$ ,  $B_5$  perpendiculaires à  $[\bar{1}10]$  et  $B_6$ ,  $B_3$  perpendiculaires à  $[00\bar{1}]$ . Les indices  $c$  et  $s$  réfèrent respectivement à la couche et au substrat. Afin de simuler les conditions aux limites imposées par le barreau considéré comme infini dans la direction  $Y'$ , les faces  $B_{5c}$ ,  $B_{5s}$ ,  $B_{4c}$  et  $B_{4s}$  sont bloquées. En d'autre terme, aucun déplacement dans la direction  $Y'$  n'est autorisé pour ces faces. Pour simuler une épaisseur de substrat infini dans la direction  $x_s$  la face  $B_3$  est aussi bloquée dans cette direction. Par contre, tous les déplacements sont autorisés sur les faces  $B_1$ ,  $B_2$  et  $B_6$  pour le substrat et la couche, les surfaces étant considérées comme libres.

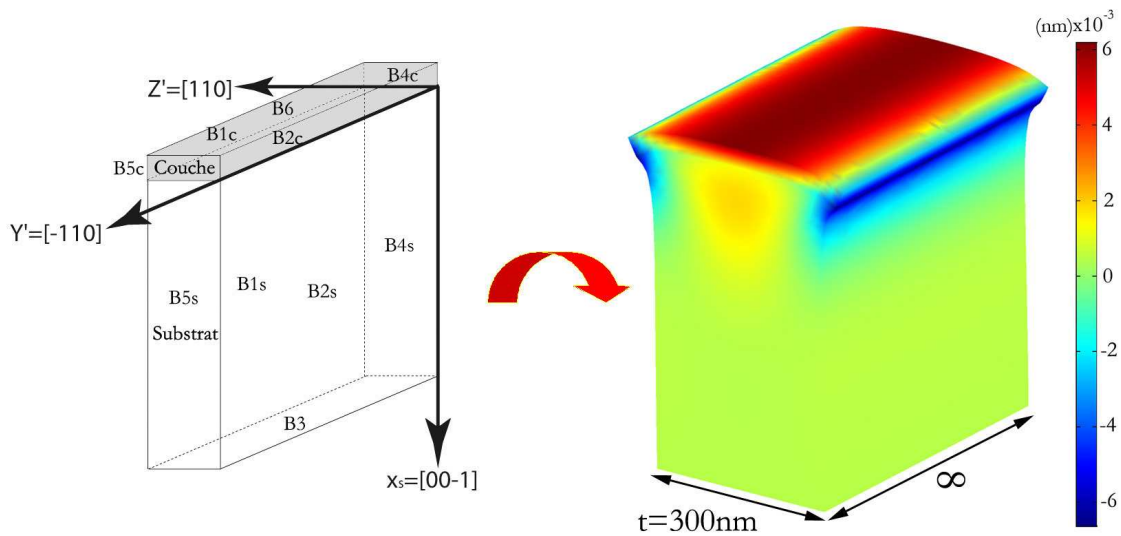


FIG. 5.7 – Géométrie utilisée pour la simulation par éléments finis du champ de déplacement de notre système. La cartographie 3D de la composante  $u_x$  du champ de déplacement  $\vec{u}$  est reportée sur la partie droite de la figure ( $\times 50$ ).

La cartographie 3D de la composante  $u_x$  du déplacement  $\vec{u}$  calculé pour chaque noeud du maillage est reportée dans la figure(5.7). On peut déjà faire les commentaires suivants :

1. Comparé au modèle théorique présenté au chapitre(1), une importante modification du champ de déplacement le long de  $Z'$  est observée pour la couche et le substrat près de



l'interface

2. Une symétrie évidente du champ de déformation est observée suivant la direction  $Y'$  provenant des conditions aux limites infinies imposées sur les faces  $B5$  et  $B4$

La couche contrainte se relaxe par les surfaces  $B1$ ,  $B2$  rendues libres par l'amincissement et  $B6$  considérée toujours libre. C'est un résultat très important puisque cela signifie que l'état de déformation que l'on cherche à mesurer est modifié par le processus de préparation de l'objet. Afin d'augmenter la précision des calculs réalisés, nous devons affiner le maillage. Un tel processus est très consommateur de mémoire RAM et de temps de calcul lorsqu'on calcule une structure 3D. Pour remédier à ce problème on peut se servir de la symétrie du champ de déplacement observée suivant  $Y'$ . Il nous suffit donc de simuler en 2D une coupe dans le plan  $Z'x_s$  et on possèdera une connaissance complète du système 3D. C'est le principe des simulations dites "plane strain", dont le développement théorique est reporté dans l'annexe(D), qui permettent d'aboutir à des résultats plus précis en un temps de calcul très court.

La figure(5.8) présente les résultats obtenus sur la couche de  $Si_{0,8}Ge_{0,2}(27nm)/Si$  pour les deux régions d'épaisseur 300 et 400nm.

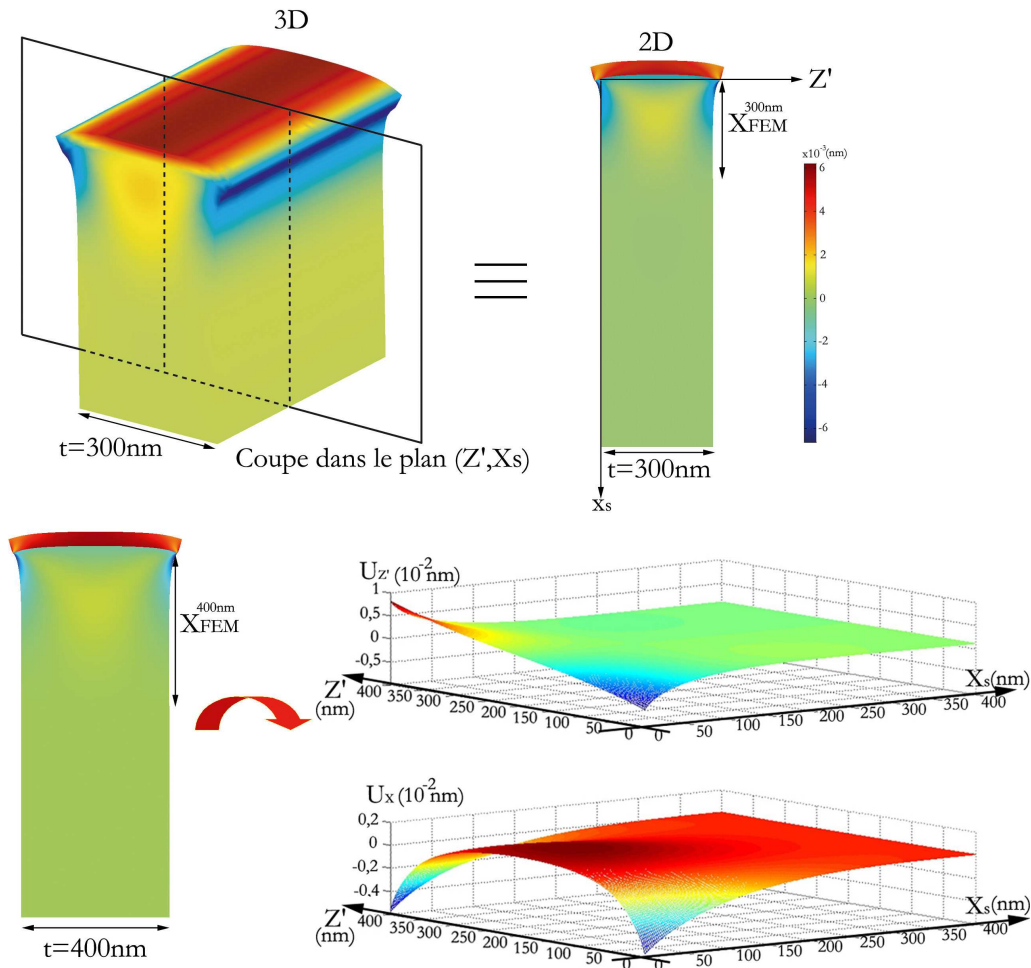


FIG. 5.8 – Simulation 2D des composantes  $u_x$  du champ de déplacement  $\vec{u}$  dans le plan  $(Z', x_s)$  d'une couche de  $Si_{0,8}Ge_{0,2}(27nm)/Si$  pour une épaisseur de 300nm et 400nm (figures :  $\times 50$ ). Les profils des composantes  $u_{Z'}$  le long de  $Z'$  et  $u_x$  le long de  $x_s$  sont donnés dans le substrat en fonction de  $Z'$  et  $x_s$  pour une épaisseur de 400nm.

On peut ainsi mettre en évidence la propagation d'un champ de déplacement dans le substrat. Les valeurs  $u_{Z'}$  et  $u_x$  associées à ce champ sont reportées sur le graphique 3D pour la zone d'épaisseur  $t = 400nm$ . Les profils ainsi calculés produisent des variations importantes des déplacements le long de la direction  $Z'$  avec notamment une symétrie paire pour les déplacements  $u_x$  (que l'on peut apprécier sur les cartographies 2D) et impaire pour  $u_{Z'}$ . On peut aussi se rendre compte de l'évolution des profils en fonction de la profondeur sous l'interface  $x_s$ . Au voisinage de l'interface on observe de plus fortes variations des déplacements que loin de l'interface. Enfin, si on appelle  $X_{FEM}^{300nm}$  et  $X_{FEM}^{400nm}$  la profondeur sous l'interface pour laquelle le substrat d'épaisseur  $t = 300nm$  et  $t = 400nm$  commence à être déformé par le processus de relaxation, on remarque sur les simulations 2D de la figure(5.8) que  $X_{FEM}^{400nm} > X_{FEM}^{300nm}$ .

Des résultats analogues sont obtenus pour le cas des couches de  $Si_{0,7}Ge_{0,3}/Si$  et  $Ga_{0,8}In_{0,2}As/GaAs$  toujours amincies dans la direction [110]. Bien entendu les valeurs absolues des déplacements  $u_{Z'}$  et  $u_x$  pour un point donné  $(Z', x_s)$  diffèrent entre les trois systèmes puisqu'ils ne possèdent pas le même désaccord paramétrique. Il est important de noter que le processus de relaxation reste toujours le même quel que soit le système (matériau, misfit, épaisseur de couche  $d$ , épaisseur  $t$ , etc ...) introduisant ainsi des champs de déplacements variables dans le substrat en fonction de  $Z'$  et de  $x_s$ .

Dans les figures(5.7) et (5.8) on ne montre que la cartographie 2D (ou 3D) de la composante symétrique  $u_x$  qui sera, dans la suite, la seule à avoir réellement de l'intérêt pour les simulations. La cartographie de la composante  $u_{Z'}$  est dissymétrique et les valeurs sont données dans la courbe de la figure(5.8).

Afin de compléter ces modélisations, nous allons nous intéresser en détail au dernier cas étudié expérimentalement qui concerne les couches de  $Ga_{0,97}In_{0,03}As(100nm)/GaAs$  pour lesquelles  $t \approx d$ .

La cartographie 2D du déplacement  $u_x$  pour les deux épaisseurs  $t = 100$  et  $200nm$ , est reportée sur la figure(5.9). Les déplacements représentés ont été multipliés par un facteur 200 pour le cas où  $t = 100nm$  et 50 pour  $t = 200nm$ , afin de bien mettre en évidence l'effet produit par la relaxation. On observe dans la couche une énorme différence entre les deux cas. En effet le champ de déplacement  $u_x$  semble beaucoup plus inhomogène le long de  $Z'$  dans l'échantillon d'épaisseur  $200nm$  que dans celle d'épaisseur  $100nm$ . Cette tendance est confirmée par le tracé des composantes  $u_{Z'}$  et  $u_x$  du champ de déplacement dans la direction  $Z'$  prise dans le haut de la couche et reportée sur la figure(5.9). On observe en effet que l'intensité des déplacements moyens  $u_x$  et  $u_{Z'}$  le long de  $Z'$  reste pratiquement identique dans les deux cas, mais que leur variation le long de  $Z'$  autour de cette moyenne est beaucoup plus forte dans le cas d'épaisseur  $200nm$ .

## Résumé

Les résultats FEM présentés dans le paragraphe précédent, montrent l'effet de l'aminçissement des échantillons sur l'état de déformation des couches épitaxiées. Nous retiendrons en particulier que la relaxation par les surfaces libres engendre une hétérogénéité de l'état de déformation dans l'échantillon suivant la direction de propagation des électrons : hétérogénéités d'autant plus forte que l'on s'approche de l'interface film/substrat. Un parallèle peut ainsi être réalisé avec les observations CBED. En effet tout comme l'amplitude des variations de la déformation calculée, la perturbation des lignes, détaillées au paragraphe(5), est d'autant plus importante que l'on se rapproche de l'interface.

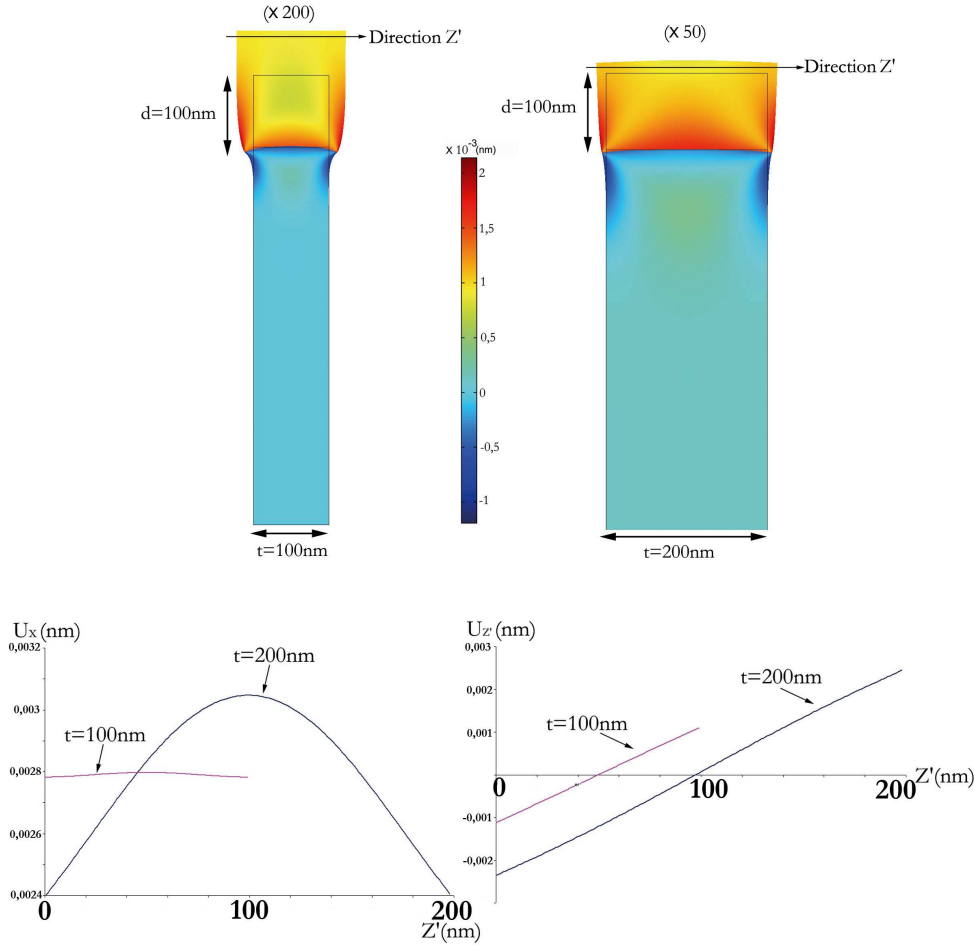


FIG. 5.9 – Simulation 2D des composantes  $u_x$  du champ de déplacement  $\vec{u}$  dans le plan  $(Zl, x_s)$  d'une couche de  $Ga_{0,97}In_{0,03}As(100nm)/GaAs$  pour une épaisseur de  $100nm$  et  $200nm$ . Le profil des composantes  $u_{Zl}$  et  $u_x$  le long de  $Zl$  sont donnés dans la couche à  $90nm$  de l'interface (direction  $Zl$ ).

### 5.3 Simulations dynamiques des effets de relaxation : limite de l'approche classique

L'effet d'un champ de déplacement  $\vec{u}(\vec{r})$  sur les faisceaux diffractés, détaillé dans le paragraphe (2.3.6), correspond à l'application d'un déphasage de type  $e^{-i2\pi\vec{g}\cdot\vec{u}(\vec{r})}$  sur chacune des composantes  $C_{\vec{g}}^j$  des ondes de Bloch 3D. Toutes les expériences ont été réalisées dans l'axe de zone [230], alors que la direction d'amincissement  $Zl$  correspond à l'axe [110]. Dans la suite l'axe de propagation des électrons noté  $z$  diffère donc quelque peu de la direction d'amincissement ( $z \neq Zl$ ).

On découpe le cristal perpendiculairement à  $z$  en  $n$  tranches d'épaisseur  $\delta z_i$  ( $i = 1, n$ ). Pour chacune des  $n$  tranches, on calcule la matrice  $\mathcal{S}_n^{def}$  grâce au champ de déplacement  $\vec{u}(\vec{r})$  obtenu par FEM. La matrice finale  $\mathcal{S}^{def}$  est obtenue grâce à l'équation(2.32). L'intensité transmise  $w_{\vec{\chi}} \times w_{\vec{\chi}}^*$  est calculée pour chacune des valeurs du rayon du cercle de Laue  $\vec{\chi}$  correspondant aux différentes orientations du faisceau incident dans le cône incident.

Les simulations portent sur la ligne (5,  $\bar{3}$ , 7) observée dans le substrat de silicium de l'échantillon  $Si_{0,8}Ge_{0,2}(27nm)/Si$  préparé par FIB. La figure(5.10) présente la comparaison entre le

profil expérimental de la ligne  $(5, \bar{3}, 7)$  et la simulation effectuée dans le formalisme de la théorie dynamique classique, pour une profondeur sous l'interface  $x_s = 166nm$  dans les trois régions d'épaisseur 200, 300 et 400nm.

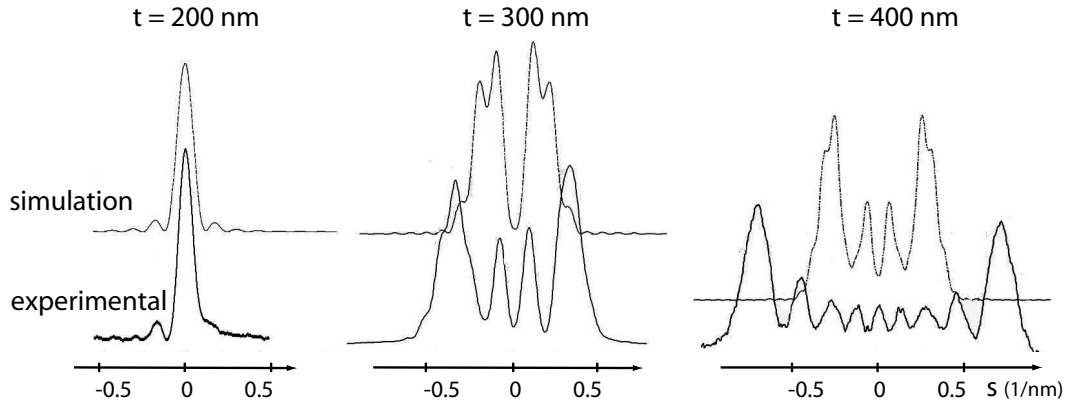


FIG. 5.10 – Comparaison entre les profils expérimentaux et simulés de la ligne d'excès  $(5, \bar{3}, 7)$  pris dans le substrat de silicium. Les simulations sont réalisées dans le cadre de la théorie dynamique des ondes de Bloch 3D.

Les simulations mettent bien en évidence un changement du profil de la ligne qui, comme pour les profils expérimentaux, est d'autant plus important que l'épaisseur traversée augmente. Par contre, la position des maxima (et des minima) de l'intensité diffractée calculée ne correspondent pas à ceux obtenus expérimentalement en particulier pour les épaisseurs de 300nm et 400nm.

La principale approximation considérée dans ces calculs est la prise en compte du champ de déplacement  $\vec{u}(\vec{r})$  par un simple déphasage des coefficients des ondes de Bloch 3D. Une telle approximation pourrait être inappropriée dans la situation qui nous concerne où le champ de déplacement est très inhomogène suivant la direction de propagation  $z$ . Ceci expliquerait le désaccord entre les profils expérimentaux et simulés [90].

Afin de pallier ce problème nous nous sommes attachés à développer une nouvelle approche basée sur la théorie des perturbations dépendantes du temps déjà introduites pour expliquer le traitement multislice (paragraphe (2.3.7)). Ce formalisme diffère du multislice par la base utilisée pour calculer l'opérateur évolution. Ce traitement reste très original et n'avait jamais été utilisé pour la simulation de clichés CBED. La simulation des diagrammes CBED d'un cristal parfait dans ce formalisme fait l'objet du prochain paragraphe. L'introduction du champ de déplacement inhomogène se fera naturellement dans la suite.

## 5.4 Proposition d'une nouvelle approche basée sur les perturbations dépendantes du temps

### 5.4.1 Cas du cristal parfait : perturbation des états de diffraction des ZOLZ par le potentiel des HOLZ

Nous savons que l'opérateur évolution d'un système perturbé peut être développé en série de perturbations comme présenté dans l'équation(2.33). Tout le travail consiste à définir l'opérateur d'évolution du système non perturbé  $\mathcal{U}^{(0)}(z, 0)$ . Dans l'approche Multislice présentée au paragraphe(2.3.7) il correspond au terme cinétique de l'hamiltonien et on considère le potentiel cristallin (ZOLZ + HOLZ) comme une perturbation. Dans le cas de la diffraction électronique

en faisceau convergent, il a été montré qu'on ne pouvait en aucun cas considérer le potentiel des ZOLZ comme une perturbation au regard des épaisseurs mises en jeu pour la formation des clichés [45, 52]. Le traitement multislice tel qu'il a été présenté n'est donc pas adapté à la simulation de clichés CBED. Néanmoins un traitement dérivé du multislice a été très récemment développé par Chuvelin et Kaiser [91] et appliqué au CBED.

Dans notre approche on considère  $H^0(\vec{\rho})$  défini par les équations (2.16) et (2.15) comme le terme non perturbé. Il correspond à la diffraction des ZOLZ. La base propre utilisée n'est donc plus celle des ondes planes comme dans le cas du multislice, mais celle des ondes de Bloch bidimensionnelles  $|j\rangle$  propres à  $H^0(\vec{\rho})$ . L'opérateur évolution non perturbé  $\mathcal{U}^{(0)}(z, 0)$  est alors donné par l'équation(2.19). Le terme d'ordre  $m$  du développement en série de Born de l'opérateur évolution est donné par l'équation(2.34).

Le potentiel perturbatif  $U^{perturbation}$  n'englobe alors que le potentiel des HOLZ pour le cristal parfait. Les éléments  $\mathcal{U}^{(m)}(z, 0)$  peuvent être traités à partir de la formule générale(2.35). Dans notre cas la perturbation s'écrit  $\frac{U^{(n)HOLZ}(\vec{\rho}, \tau)}{2k_z}$  et le terme d'ordre  $m$  de la série est donné par :

$$\mathcal{U}^{(m)}(z, 0) = -i \int_0^z d\tau \mathcal{U}^{(0)}(z, \tau) \frac{U^{(n)HOLZ}(\vec{\rho}, \tau)}{2k_z} \mathcal{U}^{(m-1)}(\tau, 0) \quad (5.1)$$

Puisque l'hamiltonien des ZOLZ fait partie d'un ensemble complet d'observables qui commutent (ECOC voir [17]), les fonctions propres de  $H^{(0)}(\vec{\rho}) : |j\rangle$  forment une base discrète orthonormée. On peut donc utiliser la relation de fermeture définie dans cette base :

$$\sum_j |j\rangle\langle j| = 1$$

et l'insérer dans l'équation (5.1) entre les opérateurs d'évolution et le terme perturbateur. On obtient :

$$\mathcal{U}^{(m)}(z, 0) = -i \int_0^z d\tau \sum_{j, j'} \mathcal{U}^{(0)}(z, \tau) |j\rangle\langle j| \frac{U^{(n)HOLZ}(\vec{\rho}, \tau)}{2k_z} |j'\rangle\langle j'| \mathcal{U}^{(m-1)}(\tau, 0) \quad (5.2)$$

L'élément de matrice du potentiel  $\langle j | U^{(n)HOLZ}(\vec{\rho}, \tau) | j' \rangle$  représente la probabilité de transition entre les ondes de Bloch due au terme  $U^{(n)HOLZ}$ . On comprend ainsi mieux la signification de cette perturbation : le potentiel des HOLZ réalise un "mélange" entre les ondes de Bloch *bidimensionnelles* introduites par la diffraction des ZOLZ, au cours de la propagation du faisceau dans le cristal *tridimensionnel*.

Le terme d'ordre  $m$  de la série devient vite très complexe lorsque l'on s'intéresse à des ordres  $m$  élevés. De plus, dans le cas des perturbations par les HOLZ le terme du premier ordre est en général largement suffisant pour interpréter la plupart des effets introduits [92]. On développe ainsi le terme à l'ordre 1 donné par :

$$\mathcal{U}^{(1)}(z, 0) = -i \int_0^z d\tau \sum_{j, j'} \mathcal{U}^{(0)}(z, \tau) |j\rangle\langle j| \frac{U^{(n)HOLZ}(\vec{\rho}, \tau)}{2k_z} |j'\rangle\langle j'| \mathcal{U}^{(0)}(\tau, 0) \quad (5.3)$$

Sachant que l'opérateur d'évolution caractéristique de la diffraction des ZOLZ est donné par l'équation(2.19) on peut facilement réécrire le terme du premier ordre de la série comme suit :

$$\mathcal{U}^{(1)}(z, 0) = -i \int_0^z d\tau \sum_{j, j'} e^{-i\gamma_j(z-\tau)} |j\rangle\langle j| \frac{U^{(n)HOLZ}(\vec{\rho}, \tau)}{2k_z} |j'\rangle\langle j'| e^{-i\gamma_{j'}\tau} \quad (5.4)$$

Le terme perturbateur  $U^{(n)HOLZ}(\vec{\rho}, \tau)$  peut se développer de la même manière que le potentiel des ZOLZ donné par l'équation(2.24). On peut ainsi écrire :

$$U^{(n)HOLZ}(\vec{\rho}, \tau) = \sum_{\vec{G}, \vec{q}} |\vec{q}\rangle \langle \vec{q}| U^{(n)HOLZ}(\vec{\rho}, \tau) |\vec{q} + \vec{G}\rangle \langle \vec{q} + \vec{G}| = \sum_{n \neq 0} e^{-ing_z \tau} \sum_{\vec{G}, \vec{q}} |\vec{q}\rangle U_{\vec{g}}^{(n)} \langle \vec{q} + \vec{G}| \quad (5.5)$$

Après substitution de (5.5) dans (5.4) on obtient :

$$\mathcal{U}^{(1)}(z, 0) = -i \int_0^z d\tau \frac{1}{2k_z} \sum_{j, j'} |j\rangle e^{-i\gamma_j(z-\tau)} \sum_{n \neq 0} e^{-ing_z \tau} \sum_{\vec{q}, \vec{G}} \langle j|\vec{q}\rangle U_{\vec{g}}^{(n)} \langle \vec{q} + \vec{G}|j'\rangle e^{-i\gamma_{j'}\tau} \langle j'| \quad (5.6)$$

qui représente la perturbation au premier ordre, par le potentiel des HOLZ, dans le cas d'une configuration générale de diffraction N ondes.

Nous avons donc maintenant tous les outils nécessaires pour simuler le disque transmis (ou un disque diffracté) du diagramme CBED. L'intensité transmise par le cristal est défini par une expression de type (2.13). On peut donc écrire :

$$I_0 = |\langle 0 | \mathcal{U}(z, 0) | 0 \rangle|^2 = |\langle 0 | \mathcal{U}^{(0)}(z, 0) | 0 \rangle + \langle 0 | \mathcal{U}^{(1)}(z, 0) | 0 \rangle|^2 \quad (5.7)$$

### 5.4.2 Validation du traitement perturbatif du potentiel des HOLZ : comparaison avec le traitement classique des ondes de Bloch 3D

Afin de valider cette théorie nous avons développé un programme (Fortran 90) permettant de simuler un diagramme CBED et de le comparer à l'expérience. Pour cela on considère chaque pixel de l'image comme une direction incidente différente du faisceau électronique, chacune étant caractérisée par un vecteur  $\vec{\chi}$ . Ainsi pour chaque  $\vec{\chi}$  un hamiltonien de type (2.6) peut être écrit et l'intensité transmise associée calculée grâce à (5.7). Pour chaque pixel de l'image on diagonalise la matrice des ZOLZ afin de déterminer les valeurs et les vecteurs propres correspondant respectivement à l'énergie et aux composantes de l'onde de Bloch bidimensionnelle. Puis l'opérateur évolution est calculé en incorporant les HOLZ grâce aux développements en série de perturbation limité à l'ordre 1. L'intensité transmise ainsi calculée est ensuite convertie en niveau de gris et affectée au pixel. L'image CBED du disque transmis est obtenue en effectuant une boucle sur tout les  $\vec{\chi}$  correspondant au cône du faisceau électronique incident .

Afin de tester la validité de notre traitement nous avons comparé les simulations du faisceau central d'un diagramme CBED calculé par notre programme et par le logiciel JEMS [26]. Ce dernier logiciel traite la diffraction du faisceau électronique par le cristal en utilisant la base propre traditionnelle des ondes de Bloch tridimensionnelles [2, 15, 14] de l'hamiltonien stationnaire donné dans l'équation séculaire (2.2). Un exemple montrant les deux simulations et le cliché expérimental est reporté dans la figure (5.11). On remarque le très bon accord des simulations entre elles et avec le cliché expérimental, ce qui valide notre approche pour un cristal parfait. Nous allons maintenant décrire la démarche proposée pour introduire une déformation inhomogène le long de la trajectoire électronique.

### 5.4.3 Cas d'un cristal soumis à un champ de déplacement $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$ : introduction d'un nouveau potentiel perturbateur

Lorsque le cristal subit un champ de déplacement homogène le long de la trajectoire électronique le traitement du terme perturbateur correspond à celui présenté pour un cristal parfait.

La situation définie par des cristaux soumis à un champ de déplacement inhomogène le long de la direction du faisceau d'électrons  $z$  est différent. C'est le cas de la couche et du substrat observés

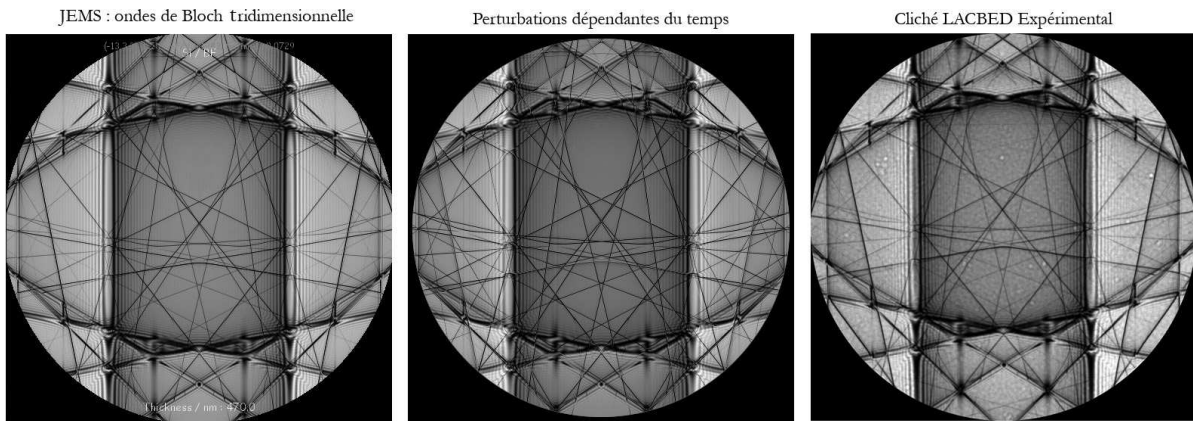


FIG. 5.11 – Simulations de l'axe de zone [105] observé dans un cristal de silicium parfait. Les simulations sont réalisées dans le cadre classique des ondes de Bloch 3D avec le logiciel JEMS [52] et des perturbations dépendantes du temps (les HOLZ étant le potentiel perturbatif).

dans les systèmes épitaxiés subissant une relaxation élastique de la contrainte par les surfaces libres (voir paragraphe(5.2)). Nous avons montré au paragraphe(5.3) que la théorie dynamique classique utilisant les ondes de Bloch 3D ne pouvait pas reproduire quantitativement le profil des lignes observé expérimentalement dans ce type de cristaux. En effet cette approche ne peut rendre compte de la variation du potentiel suivant  $z$ . En revanche dans notre approche nous n'introduisons pas la périodicité dans la direction  $z$  puisqu'on ne considère que des ondes de Bloch 2D. De plus la variable  $z$  jouant le rôle du temps, la perturbation introduite au cours de la propagation peut prendre n'importe quelle forme. Ce traitement va nous permettre de décrire quantitativement les effets observés lors de l'étude de sections transverses de couches épitaxiées. Dans la suite nous commençons par présenter l'expression du nouveau potentiel perturbatif avant de le valider sur un cas connu puis de l'appliquer à la simulation des clichés CBED observés.

### Expression du nouveau potentiel perturbatif

Soit un cristal dont la position des atomes  $\vec{r}_i'$  après déformation peut s'écrire en fonction de la position avant déformation  $\vec{r}_i$  et du champ de déplacement  $\vec{u}$  :

$$\vec{r}_i' = \vec{r}_i + \vec{u} \quad (5.8)$$

Le potentiel cristallin du cristal déformé va s'écrire :

$$\begin{aligned} V(\vec{r}, \vec{r}_i') &= \sum_{\vec{r}_i} f(|\vec{r} - \vec{r}_i'|) = \sum_{\vec{r}_i} f(|\vec{r} - \vec{r}_i - \vec{u}|) = \sum_{\vec{r}_i} f(|\vec{r} - \vec{u} - \vec{r}_i|) \\ &= \sum_{\vec{r}_i} f(|\vec{r}' - \vec{r}_i|) = V(\vec{r}', \vec{r}_i) \end{aligned} \quad (5.9)$$

Ainsi, appliquer un déplacement  $\vec{u}$  aux positions atomiques revient à effectuer un changement de variable du potentiel de  $\vec{r}$  à  $\vec{r}' = \vec{r} - \vec{u}$ . Le potentiel cristallin de la forme(2.7) s'écrit alors :

$$U(\vec{r}) = \sum_{\vec{g}} U_{\vec{g}} \exp(i\vec{g} \cdot \vec{r}') = \sum_{\vec{g}} U_{\vec{g}} \exp(-i\vec{g} \cdot \vec{u}) \exp(i\vec{g} \cdot \vec{r}) \quad (5.10)$$

On peut exprimer le potentiel(5.10) en l'écrivant comme la somme du potentiel d'un cristal parfait et d'un terme perturbateur, formé par la différence entre le potentiel après et avant

déformation :

$$\begin{aligned}
 U(\vec{r}) &= \sum_{\vec{g}} U_{\vec{g}} \exp(i\vec{g} \cdot \vec{r}) + \sum_{\vec{g}} U_{\vec{g}} \exp(i\vec{g} \cdot \vec{r}t) - \sum_{\vec{g}} U_{\vec{g}} \exp(i\vec{g} \cdot \vec{r}) \\
 &= \sum_{\vec{g}} U_{\vec{g}} \exp(i\vec{g} \cdot \vec{r}) + \sum_{\vec{g}} U_{\vec{g}} \exp(i\vec{g} \cdot \vec{r})(\exp(-i\vec{g} \cdot \vec{u}) - 1) \\
 &= U(\vec{r}) + U^{def}(\vec{r}, \vec{u})
 \end{aligned} \tag{5.11}$$

On sépare ensuite, dans le potentiel  $U(\vec{r})$ , les parties indépendantes et dépendantes de  $z$ , faisant ainsi apparaître le terme perturbateur  $U^{pert}$  dépendant du temps  $z$  contenant la contribution des HOLZ (indépendant de la déformation) et celles des déplacements  $\vec{u}(z)$  exprimés pour les HOLZ et la ZOLZ.

$$\begin{aligned}
 U(\vec{r}) &= U^{(0)}(\vec{\rho}) + \sum_{n \neq 0} \exp(-ing_z z) U^{(n)}(\vec{\rho}) + \sum_n \exp(-ing_z z) \sum_{\vec{G}} U_{(\vec{G}, -ng_z)}^{(n)} \exp(i\vec{G} \cdot \vec{\rho}) (\exp(-i\vec{g} \cdot \vec{u}) - 1) \\
 &= U^{(0)}(\vec{\rho}) + U^{pert}(\vec{\rho}, z)
 \end{aligned} \tag{5.12}$$

On aborde le problème de la même façon, et avec les mêmes outils, que ceux décrits au paragraphe (5.4.1), le terme potentiel  $U^{pert}(\vec{\rho}, z)$  étant inséré dans la composante d'ordre  $m$  de la série de perturbation de l'opérateur évolution définie par l'équation(2.34). Comme pour le traitement des HOLZ le terme d'ordre  $m$  devient vite très complexe pour des valeurs de  $m$  élevées. Pour les phénomènes qui nous intéressent, le développement au premier ordre s'avère suffisant :

$$\begin{aligned}
 \mathcal{U}^{(1)}(z, 0) &= -i \int_0^z d\tau \sum_{j, j'} \mathcal{U}^{(0)}(z, \tau) |j\rangle \langle j| \frac{U^{pert}(\vec{\rho}, \tau)}{2k_z} |j'\rangle \langle j'| \mathcal{U}^{(0)}(\tau, 0) \\
 &= -i \int_0^z d\tau \sum_{j, j'} \mathcal{U}^{(0)}(z, \tau) |j\rangle \langle j| \frac{(U^{(n)HOLZ}(\vec{\rho}, \tau) + U^{def}(\vec{\rho}, \tau))}{2k_z} |j'\rangle \langle j'| \mathcal{U}^{(0)}(\tau, 0)
 \end{aligned} \tag{5.13}$$

### Calcul de la perturbation et de l'intensité diffractée

L'intégrale (5.13) peut être décomposée en somme de deux intégrales : la première introduisant la perturbation par les HOLZ est donnée par l'équation(5.6) et la deuxième s'écrit :

$$\mathcal{U}^{(1)def}(z, 0) = -i \int_0^z d\tau \sum_{j, j'} \mathcal{U}^{(0)}(z, \tau) |j\rangle \langle j| \frac{U^{def}(\vec{\rho}, \tau)}{2k_z} |j'\rangle \langle j'| \mathcal{U}^{(0)}(\tau, 0) \tag{5.14}$$

De plus nous pouvons toujours exprimer un opérateur avec la formule(2.24). Si on applique la transformation de  $U_{\vec{g}}^{(n)}(e^{i\vec{g} \cdot \vec{u}} - 1)$  en  $U_{\vec{g}}^{(n)}$  dans le potentiel  $U^{def}(\vec{\rho}, \tau)$  on se retrouve dans la même situation que l'équation(5.5) et on peut écrire :

$$U^{def}(\vec{\rho}, \tau) = \sum_{\vec{q}, \vec{q}'} |\vec{q}\rangle \langle \vec{q}| U^{def}(\vec{\rho}, \tau) |\vec{q}'\rangle \langle \vec{q}'| = \sum_n e^{-ing_z \tau} \sum_{\vec{G}, \vec{q}} |\vec{q}\rangle U_{\vec{g}}^{(n)} (e^{-i\vec{g} \cdot \vec{u}} - 1) \langle \vec{q} + \vec{G} | \tag{5.15}$$

On insère maintenant ce terme dans l'équation(5.14) on obtient :

$$\mathcal{U}^{(1)def}(z, 0) = -i \int_0^z d\tau \frac{1}{2k_z} \mathcal{U}^{(0)}(z, \tau) |j\rangle \sum_{n \neq 0} e^{-ing_z \tau} \sum_{\vec{q}, \vec{G}} \langle j | \vec{q} \rangle U_{\vec{g}}^{(n)} (e^{-i\vec{g} \cdot \vec{u}} - 1) \langle \vec{q} + \vec{G} | j' \rangle \langle j' | \mathcal{U}^{(0)}(\tau, 0) \tag{5.16}$$



Sachant que l'opérateur évolution non perturbé est décrit par la diffraction des ZOLZ (paragraphe (2.3.5)),  $\mathcal{U}^{(0)}(z, 0)$  est défini par l'équation(2.19). On l'insère enfin dans l'équation(5.16). La perturbation totale au premier ordre  $\mathcal{U}^{(1)}(z, 0)$  est donc formée par la somme entre le terme défini par l'équation(5.6) et celui défini précédemment avec l'équation(5.16). L'intensité du faisceau transmis par le cristal plongé dans un champ de déplacement  $\vec{u}$  s'écrit toujours sous la forme :

$$I_0 = | \langle 0 | \mathcal{U}^{(0)}(z, 0) | 0 \rangle + \langle 0 | \mathcal{U}^{(1)}(z, 0) | 0 \rangle |^2 \quad (5.17)$$

On est maintenant en possession d'un formalisme complet pour simuler le cliché CBED formé après interaction du faisceau d'électrons avec un cristal subissant un champ de déplacement  $\vec{u}$  inhomogène dans la direction de propagation du faisceau. Pour cela on utilise le même algorithme que celui défini au paragraphe(5.4.2) pour la simulation dynamique des diagrammes CBED obtenus pour un cristal "parfait".

Nous avons commencé par valider notre traitement en l'appliquant à l'interaction d'une ligne de dislocation  $\vec{L}$  de vecteur de Burgers  $\vec{b}$  avec une ligne de HOLZ  $\vec{g}$  observé en LACBED. Les règles de Cherns et Preston [93] peuvent ainsi être retrouvées.

#### 5.4.4 Validation du modèle : cas d'une dislocation

Le champ de déplacement  $\vec{u}$  à une distance  $\vec{r}$  du coeur d'une dislocation quelconque peut s'écrire [89] :

$$\vec{u} = \frac{1}{2\pi} \left( \vec{b}\phi + b_e \frac{\sin(2\Phi)}{4(1-\nu)} + \vec{b} \wedge \vec{L} \left[ \frac{1-2\nu}{2(1-\nu)} \ln(r) + \frac{\cos(2\Phi)}{4(1-\nu)} \right] \right) \quad (5.18)$$

où  $b_e$  correspond à la composante coin du vecteur de Burgers,  $\nu$  représente le coefficient de Poisson,  $\Phi$  est un angle défini par  $\Phi = \phi - \gamma$  avec  $\gamma$  l'angle entre le plan de glissement de la dislocation et la surface de l'échantillon et  $\phi$  l'angle entre la surface de l'échantillon et la position  $\vec{r}$ . Toutes ces constantes sont reportées sur la figure(5.12.a).

En 1986 Cherns *et al* [93] ont observé qu'à l'intersection d'une ligne de dislocation de vecteur de Burgers  $\vec{b}$  avec une ligne de défaut  $\vec{g}$  d'un cliché LACBED, le champ de déformation de la dislocation distord la ligne et lui donne un aspect tout à fait typique (voir figure(5.12.b)). La ligne de défaut subit à la fois une rotation et une séparation en un système de franges dont le nombre  $n$  d'interfranges est directement reliée au vecteur de Burgers par la relation :

$$\vec{g} \cdot \vec{b} = n \quad (5.19)$$

Pour un même nombre de franges, deux arrangements différents des systèmes de franges sont observés (figure(5.12).b). Ils sont l'image l'un de l'autre dans un miroir, et correspondent à des valeurs positives ou négatives de  $n$ . Les règles de Cherns et Preston [93, 12], données sur la figure(5.12.b), permettent d'identifier le signe de  $n$ . Ces règles font intervenir le sens du vecteur  $\vec{s}$ .

Nous avons simulé deux dislocations définies par des vecteurs de Burgers  $\vec{b}_1 = \frac{1}{2}[0, 1, \bar{1}]$  et  $\vec{b}_2 = \frac{1}{2}[0, \bar{1}, 1]$ , une ligne  $\vec{L} = [1, 0, 0]$ , un plan de glissement de type (1, 1, 0) correspondant au plan de surface et  $z_d = \frac{t}{2}$ . L'influence de chacune d'elles est simulée sur deux lignes de HOLZ :  $\vec{g}_1 = (1, 3, \bar{3})$  et  $\vec{g}_2 = (2, \bar{6}, 4)$ . Les résultats sont reportés sur la figure(5.13). On retrouve ainsi les règles de Cherns et Preston ce qui valide notre approche perturbative de la déformation dans la formation du cliché CBED.

#### 5.4.5 Application aux couches épitaxiées

En utilisant l'approche perturbative précédemment développée, on a simulé la ligne (5,  $\bar{3}$ , 7) dans les mêmes conditions que celles exposées au paragraphe(5.3). Les simulations sont toujours

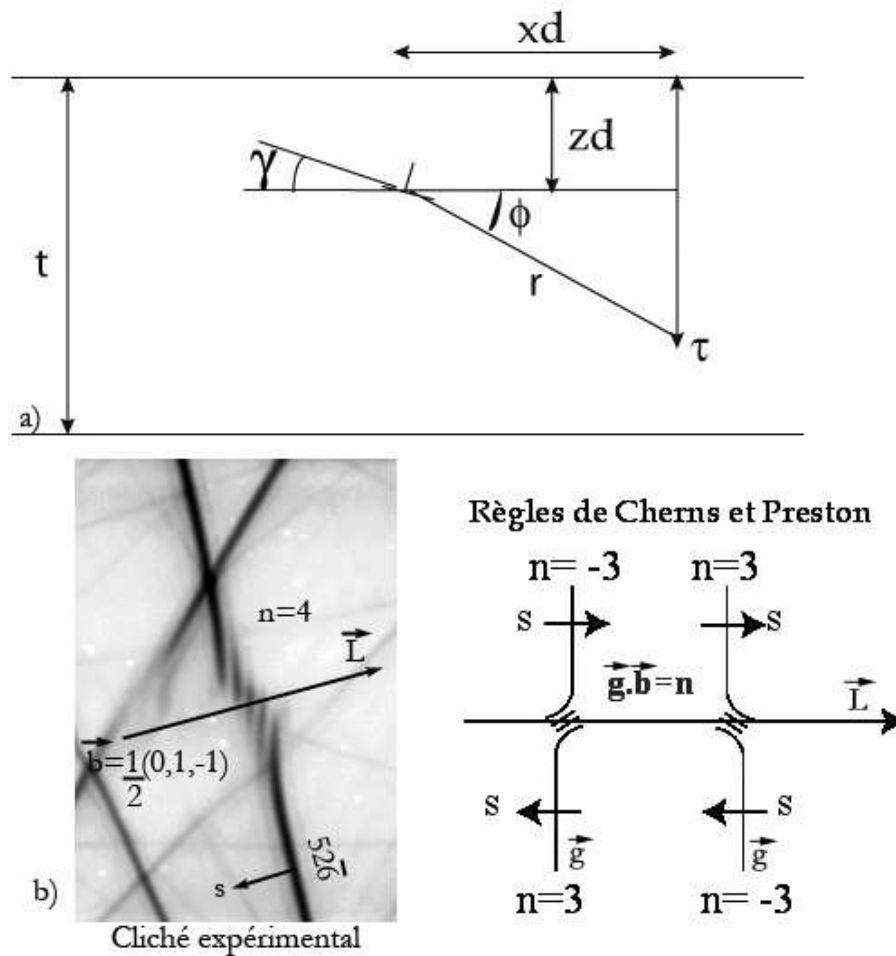


FIG. 5.12 – a) Coupe bidimensionnelle dans un plan perpendiculaire à la dislocation mettant en évidence les diverses constantes utilisées dans l'expression du champ de déplacement. b) Cliché expérimental LACBED montrant l'effet d'une dislocation sur une ligne de défaut observé dans le Silicium. On reporte aussi les Règles de Cherns et Preston [12].

réalisées en N-ondes en prenant en compte les réflexions présentes dans l'image. Les comparaisons avec les profils expérimentaux sont reportés sur la figure(5.14).

Contrairement aux simulations de théorie dynamique classique du paragraphe(5.3), un très bon accord entre les profils expérimentaux et simulés est obtenu pour chaque épaisseur de l'échantillon. On est maintenant capable de reproduire quantitativement tous les effets décrits au paragraphe(5). La figure (5.15) présente les simulations des clichés CBED observés dans l'axe [230] et dans la zone d'épaisseur  $t = 300nm$ , pour les mêmes distances  $x_s$  que les clichés expérimentaux de la figure (5.2).

On observe ainsi un très bon accord entre les images expérimentales et simulées. En particulier, l'évolution du contraste en fonction de la profondeur sous l'interface  $x_s$  est bien reproduite pour chacune des lignes. Remarquons notamment que la ligne  $(\bar{1}4, 10, 0)$  reste inchangée pour toutes les valeurs de  $x_s$ .

Cependant un désaccord est parfois observé entre certaines images expérimentales et les simulations. Ceci se produit en particulier lorsque des lignes équivalentes ont des profils différents dans le même diagramme. C'est le cas des lignes  $(5\bar{3}9)$  et  $(5\bar{3}\bar{9})$  sur le cliché CBED 3 de la figure(5.2) obtenu pour  $t = 300nm$  et  $x_s = 200nm$ . La simulation associée de la figure(5.15) ne reproduit

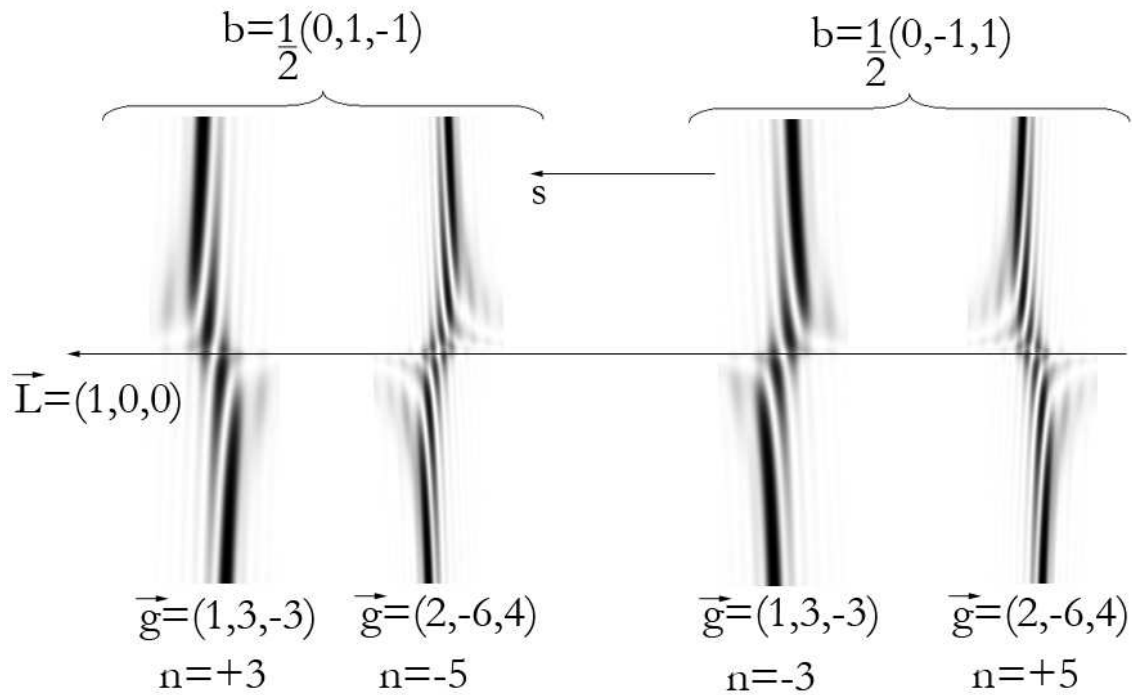


FIG. 5.13 – Simulations dans le formalisme des perturbations dépendantes du temps (paragraphe(5.4.3)) de l'intersection d'une dislocation de vecteur de Burger  $\vec{b}$  avec une ligne de défaut  $\vec{g}$  en LACBED. On retrouve bien les règles de Cherns et Preston reportées dans la figure (5.12.b).

pas la différence observée. Ce défaut n'est pas systématique, on remarque en effet que cette même famille n'est plus affectée par ce problème pour  $x_s = 260nm$  et  $t = 300nm$  dans les clichés de la figure(5.4). Les origines possibles de cet effet sont nombreuses (variation d'épaisseur dans la direction  $x_s$  de l'échantillon préparé, effet de l'attache du barreau au reste de la structure, etc ...), ce qui complique son interprétation. D'une manière générale, de telles dissymétries seront considérées comme des artefacts imputables à la très grande sensibilité de la technique.

Les simulations montrent que seule la composante  $u_x$  du champ de déplacement est responsable de l'évolution des profils de lignes, la composante  $u_z$  n'ayant aucune influence notable [90]. De plus la symétrie du profil des lignes dépend de la symétrie du champ de déplacement  $u_x(z)$ . Si celui-ci est symétrique, ce qui est le cas pour les résultats développés dans cette partie, alors le profil de la ligne sera symétrique. Par réciprocity, l'observation de l'asymétrie prononcée d'une ligne pourra être interprétée en terme d'asymétrie du champ de déplacement  $u_x$ .

### 5.4.6 Conclusion

Au cours des trois paragraphes précédents, nous avons traité la simulation des phénomènes observés expérimentalement. On a ainsi montré que le phénomène de relaxation élastique de la contrainte par les surfaces libres tel que nous l'avons présenté au paragraphe(5.2) était bien à l'origine de l'effet de modification du profil des lignes. Ce phénomène est introduit par le champ de déplacement inhomogène le long de la trajectoire des électrons créé par la relaxation. Cela introduit donc une brisure de symétrie dans cette direction interdisant l'utilisation de solutions

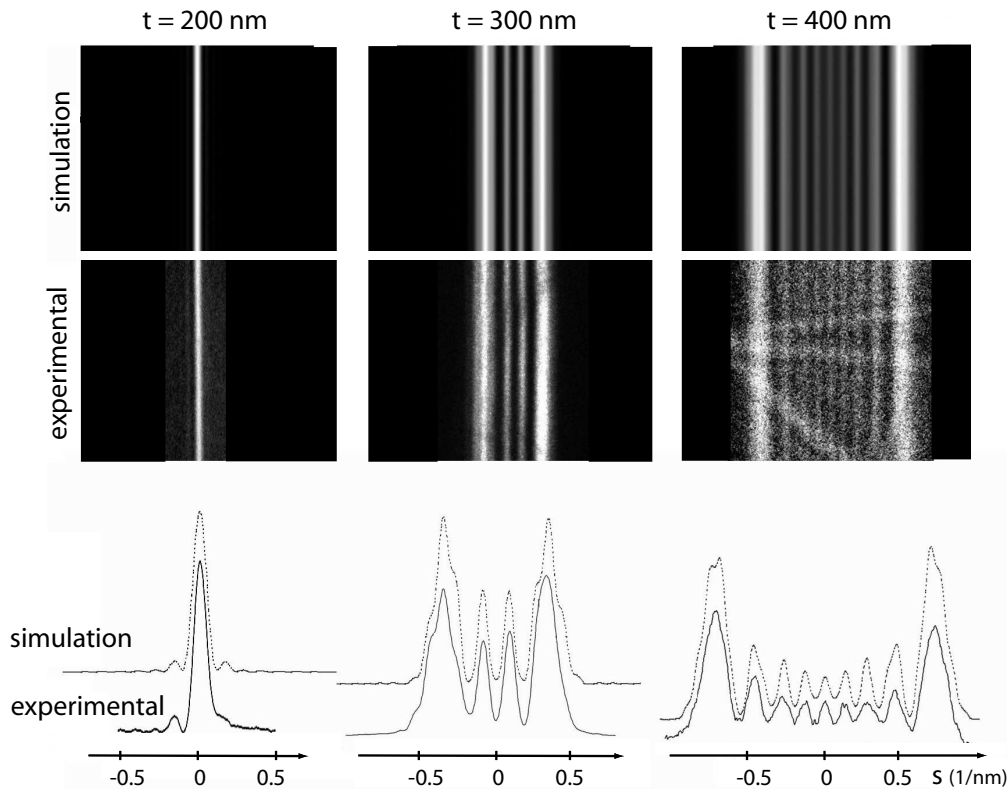


FIG. 5.14 – Comparaison entre les profils expérimentaux et simulés de la ligne d'excès  $(5, \bar{3}, 7)$  pris dans le substrat de silicium. Les simulation sont réalisées dans le cadre de la théorie des perturbations dépendantes du temps. Notez le très bon accord entre les deux profils.

en ondes de Bloch 3D pour l'équation de Schrödinger stationnaire. On a en effet pu se rendre compte des limites de l'approche classique (utilisant les ondes de Bloch 3D) pour simuler quantitativement les profils des lignes. Pour pallier ce problème un nouveau formalisme basé sur la théorie des perturbations dépendantes du temps a été proposé. Il a permis de simuler quantitativement les clichés CBED observés en utilisant les champs de déplacements calculés par éléments finis. On a pu ainsi retrouver théoriquement toutes les propriétés du phénomène (effet de l'épaisseur, du  $\vec{g}$ , de la concentration de la couche, etc ...), reportées au paragraphe (5).

Au cours de notre travail, nous avons cherché à comprendre la différence fondamentale entre l'approche que nous proposons (que l'on appellera dans la suite approche **TDDT** : Time Dependant Dynamical Theory ou Théorie Dynamique Dépendante du Temps) et celle développée en théorie dynamique classique. En particulier, nous avons tenté de donner une interprétation physique de la TDDT en utilisant la théorie des Chemins de Feynman (voir annexe(A)). En résumé, on montre que là où la théorie dynamique traite la propagation des électrons dans un cristal déformé par un simple changement de probabilité des chemins calculés à partir du cristal parfait, la TDDT calcule des nouveaux chemins qui, si le cristal est très déformé, diffèrent de ceux présents dans le cas non-déformé.

Ainsi suivant le type d'échantillon et quels que soient les épaisseurs ( $t$  et  $d$ ), la concentration et le misfit, nous pouvons utiliser différentes méthodes permettant de déterminer la déformation de la couche. En particulier la démarche sera différente suivant que le champ de déplacement est homogène ou non le long de la trajectoire électronique.

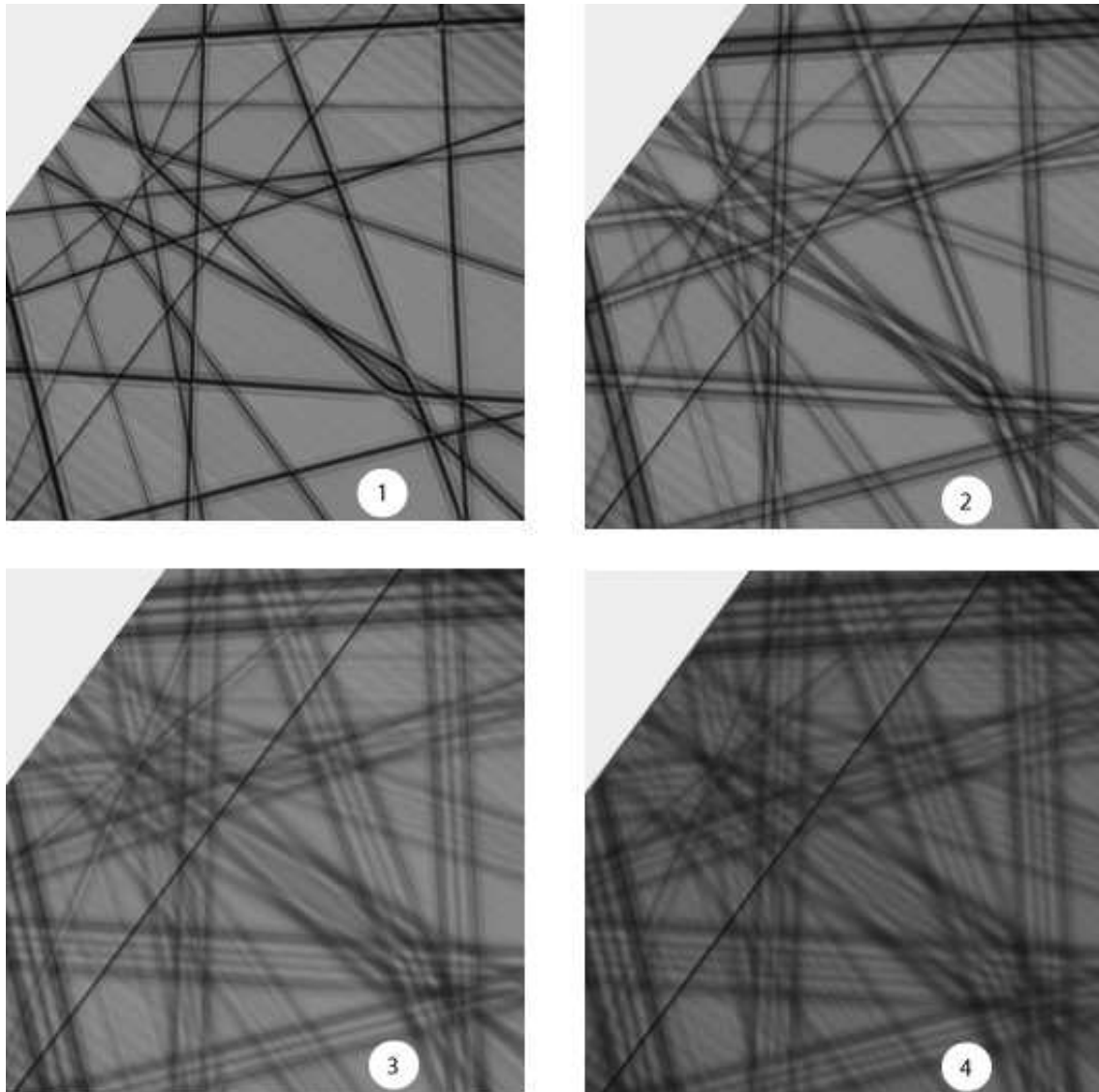


FIG. 5.15 – Montage mettant en évidence l'évolution des clichés CBED simulés avec le nouveau formalisme, observés dans le substrat de Silicium, en fonction de la distance sous l'interface  $x_s$  pour  $t = 300nm$ . Les numéros 1, 2, 3 et 4 rappellent les clichés expérimentaux de la figure(5.2).

## 5.5 Description des différentes approches pour l'étude de la déformation épitaxiale en section transverse

### 5.5.1 Cas où le champ de déplacement est inhomogène le long de la trajectoire électronique

On réalise ici une comparaison entre les clichés CBED expérimentaux et simulés obtenus pour une épaisseur  $t$  donnée et à une profondeur  $x_s$  dans le substrat. Les simulations sont obtenues à partir d'une combinaison de calculs éléments finis et de théorie dynamique dans le nouveau formalisme. Le seul paramètre d'entrée libre lors de la simulation correspond à la déformation  $f$  définie au chapitre(1.1.1) et introduite dans le calcul FEM. On peut ainsi remonter à la déformation présente dans la couche avant amincissement. Le principe de la mesure peut être détaillée comme suit :

1. Un cliché CBED dans le substrat est obtenu pour une épaisseur  $t$  et une profondeur  $x_s$  mesurée lors de l'expérience. Le cliché ne doit pas être trop perturbé pour qu'on puisse encore voir des profils de lignes !
2. On calcule la simulation par éléments finis du champ de déplacement correspondant à l'échantillon observé (3D ou plane strain suivant le cas) pour la zone caractérisée par les paramètres  $(t, x_s)$  en fonction de  $z$ , la direction du faisceau d'électrons.
3. Le cliché CBED correspondant à ce champ de déplacement est ensuite calculé pour le couple  $(t, x_s)$  selon la méthode développée.
4. Cette série d'opérations est répétée pour différentes valeurs de la déformation introduites dans le calcul par éléments finis, et on compare les clichés simulés avec le cliché expérimental pour un couple  $(t, x_s)$ . La simulation la plus proche permet de valider un modèle élément fini auquel correspond la déformation recherchée.
5. Afin d'obtenir plus de précision, on peut reprendre cette démarche pour plusieurs couples  $(t, x_s)$ .

A titre d'exemple, le montage(5.16) présente le détail des étapes de la mesure sur une couche de  $Si_{0,8}Ge_{0,2}/Si$  préparée au FIB avec  $t = 200nm$ . Il montre un cliché obtenu dans l'axe  $[230]$  pour  $x_s = 130nm$ . Les simulations FEM correspondant à cette géométrie sont ensuite réalisées pour trois valeurs de déformation  $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = f$ . On tire de ces calculs le champ de déplacement  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$  dans la direction considérée, ce qui permet de réaliser les simulations dynamiques pour chacune des valeurs de  $f$ . On compare alors le profil de plusieurs lignes expérimentales avec les simulations. La simulation qui donne le meilleur accord nous donne ainsi accès à la valeur de  $f$  correspondant à la déformation présente dans la couche avant amincissement.

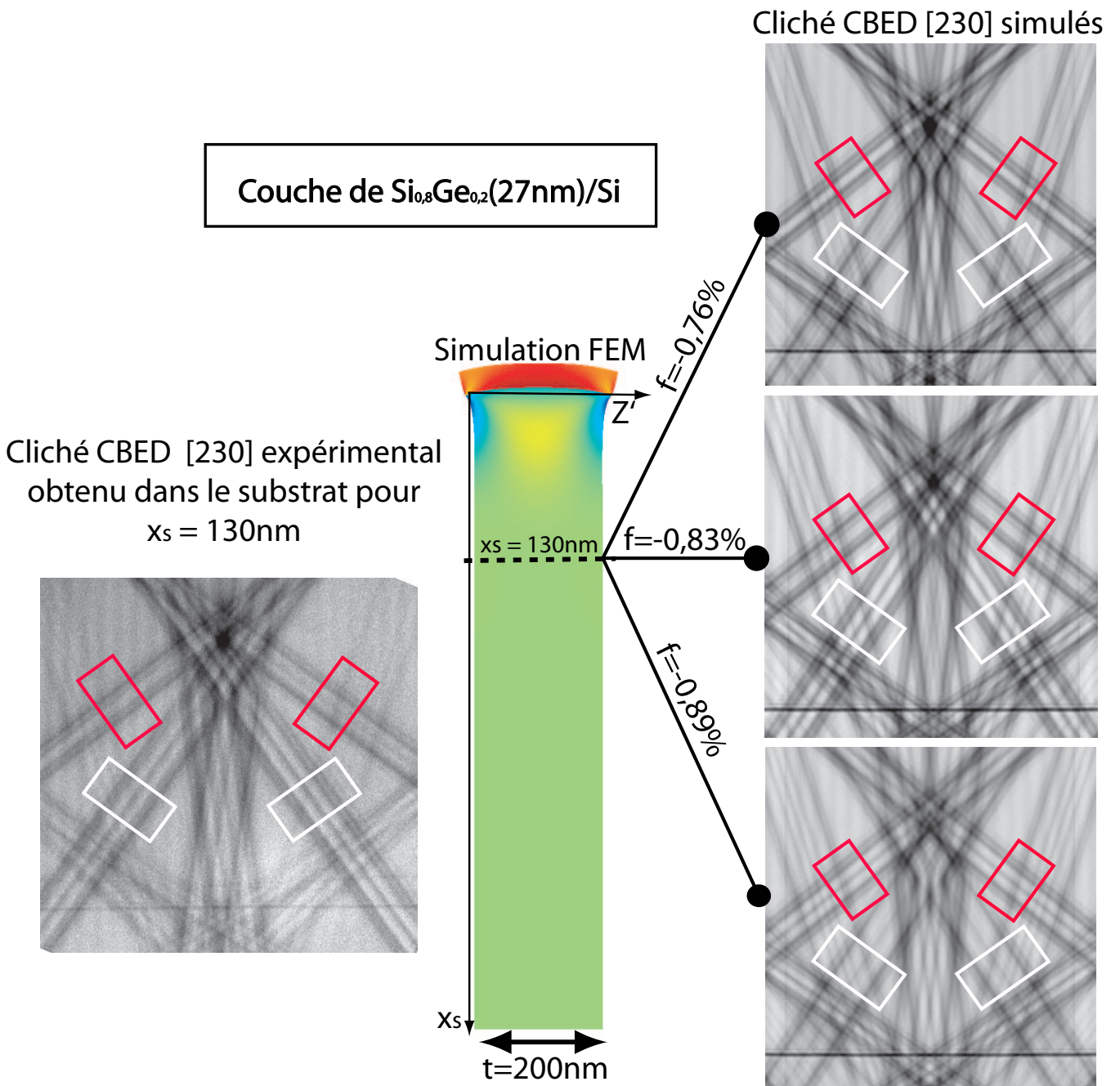


FIG. 5.16 – Principe de détermination de la déformation  $f$  présente dans la couche avant amincissement à partir de la comparaison de la forme des lignes expérimentales et simulées. Exemple de la couche de  $Si_{0,8}Ge_{0,2}(27nm)/Si$  préparée par FIB avec une épaisseur  $t = 200nm$ . La comparaison est réalisée à partir du profil des 4 lignes encadrées.

Dans ce cas on mesure une déformation de  $f = -0,83\% \pm 0,06\%$ . Avec les valeurs de  $f$  choisies pour les simulations nous nous sommes limités à une précision relative de 8%, mais un ajustement plus précis entre les profils simulés et expérimentaux a permis d'obtenir une précision de 5% sur cette même mesure. En considérant la couche en épitaxie pseudomorphe, cette valeur de  $f$  nous permet de déterminer une concentration en germanium  $x_{Ge} = 20\% \pm 0,5\%$  conforme à ce qui est annoncé.

On peut donc déterminer l'état de déformation de la couche avant amincissement à partir des effets induits dans le substrat par la relaxation élastique de la contrainte contenue dans la couche, celle-ci étant introduite lors de la préparation de l'échantillon. C'est donc une détermination indirecte. Un bon contrôle de la géométrie de l'échantillon est essentiel pour permettre sa modélisation par éléments finis. C'est le cas dans les techniques de préparation FIB ou tripode.

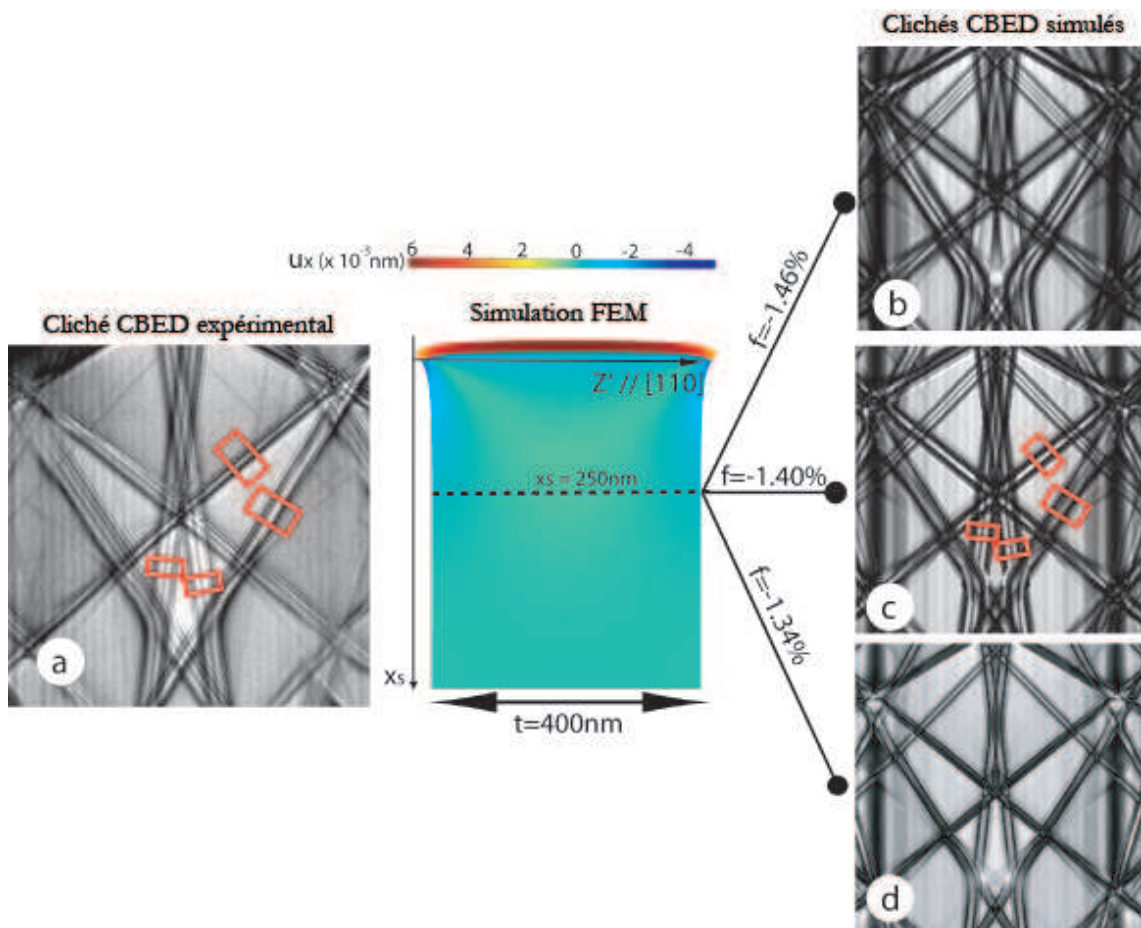


FIG. 5.17 – Détermination, par la méthode développée, de l'état de déformation (et donc la concentration en Indium  $x$ ) de la couche en surface de  $Ga_{1-x}In_xAs(10nm)/GaAs$  préparée en section transverse.

Cette opération a pu être réalisée sur les différents échantillons observés. Ainsi la figure(5.17) présente le processus appliqué à la couche de  $Ga_{1-x}In_xAs(10nm)/GaAs$ . Le tableau(5.18) présente un résumé des résultats obtenus et utilisés dans la suite de notre travail.



variables	$Ga_{1-x}In_xAs(10nm)/GaAs$	$Si_{1-x}Ge_x(27nm)/Si$	$Si_{1-x}Ge_x(27nm)/Si$
f(%)	$-1,4\% \pm 0,05\%$	$-0,83\% \pm 0,06\%$	$-1,2\% \pm 0,06\%$
x(%)	$20\% \pm 0,5\%$	$20\% \pm 0,5\%$	$30\% \pm 0,5\%$

FIG. 5.18 – Détermination de l'état de déformation de la couche de  $Ga_{1-x}In_xAs(10nm)/GaAs$  et des deux couches de  $Si_{1-x}Ge_x(27nm)/Si$  étudiées expérimentalement au cours de ce chapitre.

### 5.5.2 Cas où le champ de déplacement est homogène le long de la trajectoire électronique

Dans ce cas la déformation peut être obtenue à partir de la position relative des lignes de HOLZ. Deux situations ont pu être étudiées :

1. Le cas de la couche de  $Ga_{0,97}In_{0,03}As(100nm)/GaAs$  évoqué au paragraphe(5.1.3)
2. Le cas de la tricouche de  $Si/Ge/Si_{0,5}Ge_{0,5}$ . Dans ce cas particulier la relaxation élastique de la couche de germanium en compression sur le substrat de SiGe est bloqué par la couche de silicium épitaxiée en tension sur le germanium. Les relaxations élastiques de la couche en tension et de celle en compression étant opposées, les deux processus se compensent. On peut ainsi obtenir un champ de déplacement homogène à l'intérieur des couches.

#### Cas de la couche de $Ga_{0,97}In_{0,03}As(100nm)/GaAs$

Nous allons déterminer la déformation de la couche en comparant le cliché expérimental obtenu avec des simulations quasi-cinématiques comme présenté au paragraphe (4.3). On considère dans ce cas la couche complètement relaxée dans la direction [110] correspondant à la direction d'amincissement de la section transverse. En effet, nous avons montré au paragraphe(5.2) qu'en raison de la relaxation élastique, la couche de  $GaInAs$  reprenait le paramètre du massif dans la direction d'amincissement [110] ce qui permet d'obtenir un champ de déplacement homogène le long de  $Zl$ . En raison des symétries de l'état de déformation on impose ( $a, b$ =paramètre dans le plan d'épitaxie,  $c$  le paramètre hors plan) :

$$a = b \quad \alpha = \beta = 90^\circ \quad (5.20)$$

Le seul paramètre ajustable est donc le paramètre dans le plan  $a$  puisque  $c$  et  $\gamma$  sont obtenus grâce aux formules de l'élasticité linéaire en considérant une relaxation uniaxiale totale dans la direction [110] (voir annexe(D)). La couche est toujours considérée en épitaxie pseudomorphe. Dans une première étape on détermine la tension d'accélération du microscope, comme indiqué précédemment, grâce à un cliché CBED pris dans l'axe [230] du  $GaAs$  considéré non déformé. Les résultats sont reportés dans la figure(5.19). On mesure ainsi une tension de  $U = 200,3kV \pm 0,1kV$ .

En utilisant cette tension, on réalise dans un deuxième temps une mesure des paramètres réticulaires du cristal à partir du cliché expérimental obtenu dans la couche et de différentes simulations faites pour diverses valeurs du paramètre  $a$ . Les résultats sont reportés sur la figure(5.20).

Le meilleur ajustement est obtenu pour  $a = b = 5,6568 \pm 0,002\text{Å}$ ,  $c = 5,6691 \pm 0,002\text{Å}$ ,  $\alpha = \beta = 90 \pm 0,01^\circ$  et  $\gamma = 90,09 \pm 0,01^\circ$ . Les incertitudes données sont calculées à partir de la largeur des lignes expérimentales utilisées pour déterminer les distances entre croisements. Les simulations par éléments finis effectuées pour différentes concentration en Indium, montrent que le paramètre ainsi mesuré dans la couche relaxée correspond à une concentration en indium de  $x_{In} = 2,2\% \pm 0,6\%$

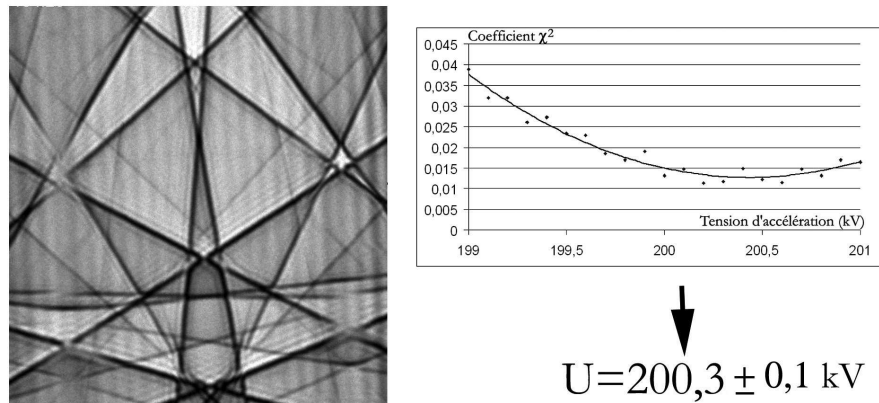


FIG. 5.19 – Analyse du cliché CBED [230] du  $GaAs$  permettant de déterminer la tension d'accélération du microscope.

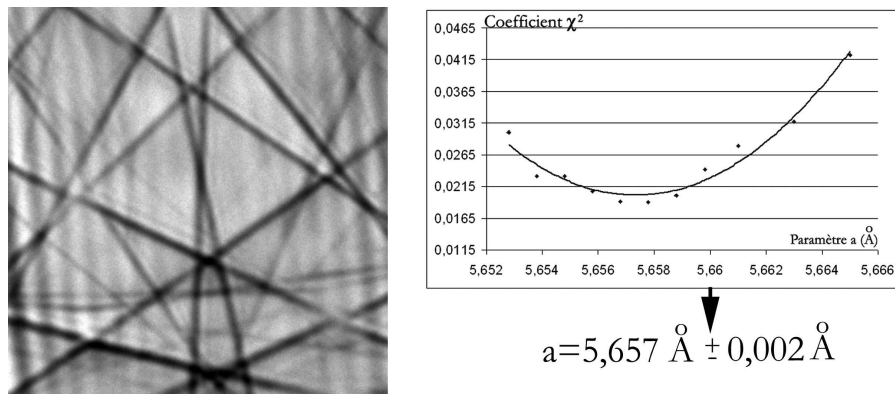


FIG. 5.20 – Analyse du cliché CBED [230] de la couche de  $Ga_{0,97}In_{0,03}As$  permettant de déterminer le paramètre dans le plan  $a$  de la couche en considérant celle-ci complètement relaxée uniaxialement dans la direction [110].

### Cas de la tricouche $Si/Ge/SiGe$

Les caractéristiques de cet échantillon sont reportées dans le paragraphe(1.2). Comme précédemment, l'expérience consiste à observer l'évolution des clichés CBED observés dans l'axe [230] en partant du substrat de  $SiGe$  loin de l'interface et en déplaçant la sonde perpendiculairement à l'interface jusqu'à atteindre la couche de silicium. L'épaisseur de la zone analysée est voisine de  $300nm$ . Les résultats expérimentaux ainsi que la simulation par éléments finis sont reportés sur l'image(5.21).

On observe une évolution du profil des lignes de HOLZ du cliché CBED appartenant au substrat de  $SiGe$  (clichés 1, 2) caractéristique de la présence d'un champ de déplacement inhomogène le long de la trajectoire des électrons  $z$ . L'origine de cet effet est toujours attribué à la relaxation élastique de la contrainte le long de la direction d'amincissement  $Zl$ . On remarque tout de même, que l'effet est ici nettement moins important que dans le cas des couches de  $Si_{0,8}Ge_{0,2}/Si$  étudié au paragraphe(5), où les lignes du substrat étaient nettement plus perturbées que dans ce cas, pour une épaisseur et une profondeur sous l'interface similaires. On observe notamment des lignes dans la couche de germanium, bien que celles-ci soient très épaisses (cliché 4). A contrario, les lignes dans le silicium sont extrêmement perturbées si bien qu'il nous est

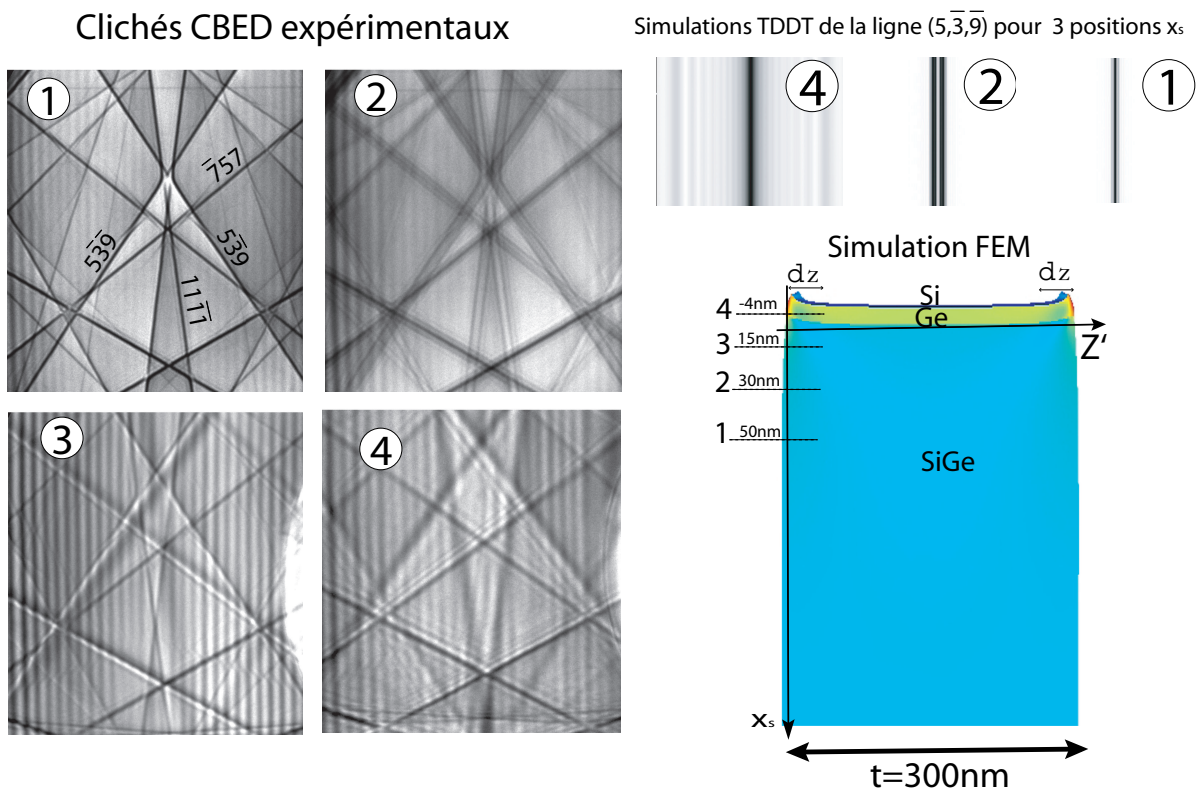


FIG. 5.21 – Pointés CBED obtenus dans le substrat de *SiGe* et dans la couche de *Ge*. La simulation élément fini du système ainsi que les simulations dynamiques de la ligne  $(5, \bar{3}, 9)$  pour trois positions  $x_s$  y sont aussi reportées

impossible de déterminer leurs positions. Enfin, lorsqu'on se trouve très proche de l'interface *SiGe/Ge*, des lignes peuvent être observées dans le substrat (cliché 3). Une évolution très rapide mais continue de la position de ces lignes peut même être observée au niveau de l'interface. Cette évolution pourrait être due à la variation continue de la concentration en germanium dans le substrat de *SiGe*, associée par exemple à un phénomène de ségrégation.

Nous avons réalisé une modélisation FEM de notre système ainsi que des simulations de la ligne  $(5, \bar{3}, 9)$  en TDDT. On obtient un bon accord avec les observations expérimentales, en particulier, on remarque que la ligne simulée dans la couche germanium (position 4) est plus large que celle dans le substrat, comme observé dans le cliché expérimental (à épaisseur constante  $t = 300nm$ ). Cet effet provient vraisemblablement des bords extrêmes de l'échantillon qui sont relaxés élastiquement sur de faibles profondeurs, typiquement  $dz = 20nm$  pour  $t = 300nm$ , comme le montre la figure (5.21). La ligne observée est due au champ de déplacement homogène dans le reste du cristal. Ces deux zones sont très bien visualisées sur la simulation par éléments finis de la figure (5.21). La présence de la couche de silicium en tension sur le germanium réalise bien l'effet voulu, puisque le phénomène de relaxation est beaucoup moins important comme l'attestent les observations expérimentales ainsi que les simulations FEM et dynamiques. Nous avons donc pu mesurer directement la déformation à partir de la position des lignes de HOLZ observées dans la couche et dans le substrat. On détermine en premier lieu la tension d'accélération avec le cliché CBED [230] obtenu dans un cristal de silicium parfait :  $U = 200, 2kV \pm 0, 1kV$ . Dans un second temps on détermine la concentration en germanium présente dans le substrat de *SiGe* théoriquement située autour de 50%. Le substrat est bien entendu considéré comme non contraint si bien que la concentration en germanium reste le seul paramètre permettant d'ajuster la position des

lignes. Les résultats sont reportés sur la figure(5.22) :  $\%Ge = 48\% \pm 0,5\%$ .

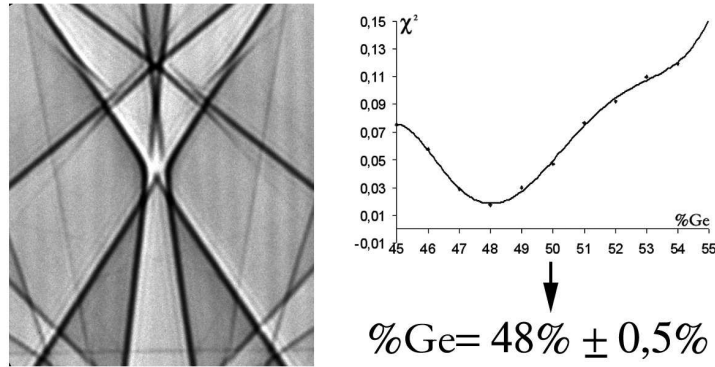


FIG. 5.22 – Détermination de la concentration en Germanium du substrat à partir de la position relative des lignes de HOLZ obtenue dans un cliché CBED suffisamment loin de l'interface.

Le même traitement est réalisé sur le cliché CBED obtenu à partir de la couche de germanium. On fait l'hypothèse que la couche reste en compression biaxiale sur le substrat de  $SiGe$ , ce qui est une hypothèse compatible avec la modélisation FEM. Le seul paramètre ajustable est le paramètre dans le plan d'épitaxie  $a = b$  puisque  $c$  est obtenu à partir des relations d'élasticité linéaire et  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ . A partir du cliché 4 on mesure le paramètre dans le plan  $a_{Ge} = 5,58 \pm 0,02\text{\AA}$ . L'incertitude est ici beaucoup plus importante que pour le cas de la couche de  $Ga_{0,97}In_{0,03}As$  en raison de la largeur des lignes. Le paramètre dans le plan du substrat de  $Si_{0,52}Ge_{0,48}$  vaut  $a_{SiGe} = 5,54\text{\AA}$  ce qui dans l'hypothèse d'une épitaxie pseudomorphe n'est plus compatible avec la mesure réalisée dans la couche de Germanium. Cela sous entend donc, une augmentation de la concentration en germanium à l'interface. Ainsi, en considérant que l'épitaxie est pseudomorphe, la concentration en germanium correspondant à un substrat non déformé de paramètre  $a_{SiGe} = 5,58 \pm 0,02\text{\AA}$  vaut  $67\% \pm 9\%$ . Or, expérimentalement, nous avons observé une variation de la position des lignes du cliché CBED du substrat très proche de l'interface  $SiGe/Ge$  (cliché 3 de la figure(5.21)). On peut associer ce mouvement à une variation de la concentration en germanium. A partir du cliché 3 obtenu dans le substrat le plus proche de l'interface  $SiGe/Ge$ , on peut déterminer la concentration en germanium de cette région en faisant l'hypothèse qu'aucune déformation n'est présente. On mesure alors une concentration de  $58\% \pm 2\%$  ce qui, au regard des incertitudes considérées peut expliquer la mesure faite dans la couche de germanium.

L'hypothèse consistant à négliger la relaxation élastique et ainsi à considérer une couche en contrainte pseudomorphe biaxiale sur un substrat non déformé, semble donc être validée aux vues des incertitudes de mesure. La présence d'un effet de ségrégation du germanium en surface du substrat pourrait expliquer l'augmentation du paramètre dans le plan d'interface.

## 5.6 Conclusion des résultats obtenus dans le cas des sections transverses

Les résultats obtenus en section transverse ont permis de mettre en évidence l'effet de la relaxation par les surfaces libres sur le profil des lignes d'un cliché CBED observé dans la couche mais aussi dans le substrat. Ce phénomène crée un champ de déplacement inhomogène le long de la trajectoire électronique à l'origine d'une modification de l'interaction électron-cristal que nous avons pu simuler par l'approche TDDT. On a ainsi tiré avantage de ce phénomène très

sensible pour résoudre notre problématique initiale. Une nouvelle méthode nous a donc permis de remonter indirectement à la déformation présente dans la couche avant amincissement. Toutefois, le traitement classique basé sur l'analyse de la position relative des lignes de HOLZ a pu être appliqué dans des cas particuliers comme les échantillons où  $t \leq d$  et les systèmes pour lesquels la relaxation élastique est minimisée (tricouche de *Si/Ge/SiGe*).

Au paragraphe(4.3.6) nous avons montré que le CBED pouvait aussi s'appliquer en vue plane, permettant de remonter à la déformation présente dans la couche épitaxiée. La suite présente les résultats associés, obtenus au cours de ce travail.

## Chapitre 6

# Observations en vue plane de couches épitaxiées : effet de la courbure

Nous avons déjà abordé la mesure des déformations dans les couches épitaxiées observées en vue plane par CBED. La méthode, proposée par Cherns *et al* [85] consiste à relier l'écart entre une ligne provenant de la couche et une ligne provenant du substrat à l'état de déformation. Elle est en général appliquée à des superréseaux [94, 95, 96, 97, 98] ou à des couches épaisses dont l'épaisseur  $d$  reste comparable à l'épaisseur du substrat [85, 86, 99, 9]. Le cas que nous étudions est différent, puisque l'on considère des couches en surface dont l'épaisseur  $d = 10nm$  est très petite comparée à l'épaisseur du substrat. Jacob *et al* ont réalisé des études préliminaires des couches fines en surface [88] et encapsulées formant ainsi un puits quantique [100]. Ils ont montré que l'on n'observait généralement pas les deux lignes distinctes. Les expériences ont été réalisées sur des échantillons de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$  préparées suivant différentes techniques : attaque chimique, attaque ionique et tripode. Des puits quantiques de  $GaAs/Ga_{0,88}In_{0,12}As(10nm)/GaAs$  on aussi été observés dans le cadre d'une collaboration avec Damien Jacob. Comme pour les observations des sections transverses, toutes les expériences sont obtenues sur le TECNAI F20 en mode nanoprobe avec un filtrage en énergie élastique réalisée par une fente de  $10eV$ .

### 6.1 Résultats expérimentaux

#### 6.1.1 Echantillons de $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$ préparés par attaque ionique et chimique

Les objets étudiés ont été préparés par attaque chimique en utilisant un mélange bromométhanol, et attaque ionique à froid. Les échantillons obtenus ont tout d'abord été observés en microscopie conventionnelle afin de vérifier l'absence de défauts (dislocations, fautes d'empilements, etc ...). Les échantillons en vue plane présentent alors des morphologies particulières : dans les zones fines observables au MET (bord du trou), l'échantillon se clive en lamelles présentant une forte courbure. Cette courbure, relève d'un processus de relaxation élastique que nous avons déjà décrit dans le chapitre(1). Sur ces échantillons, notre étude par CBED a été menée en parallèle avec les études de mesure de la courbure par MET effectuées par Martiane Cabié dans le cadre de sa thèse [5]. Les images MEB et MET reportées dans la figure(6.1) sont empruntées au travail de M.Cabié et reproduites ici afin de mettre en évidence la géométrie particulière des lamelles observées.

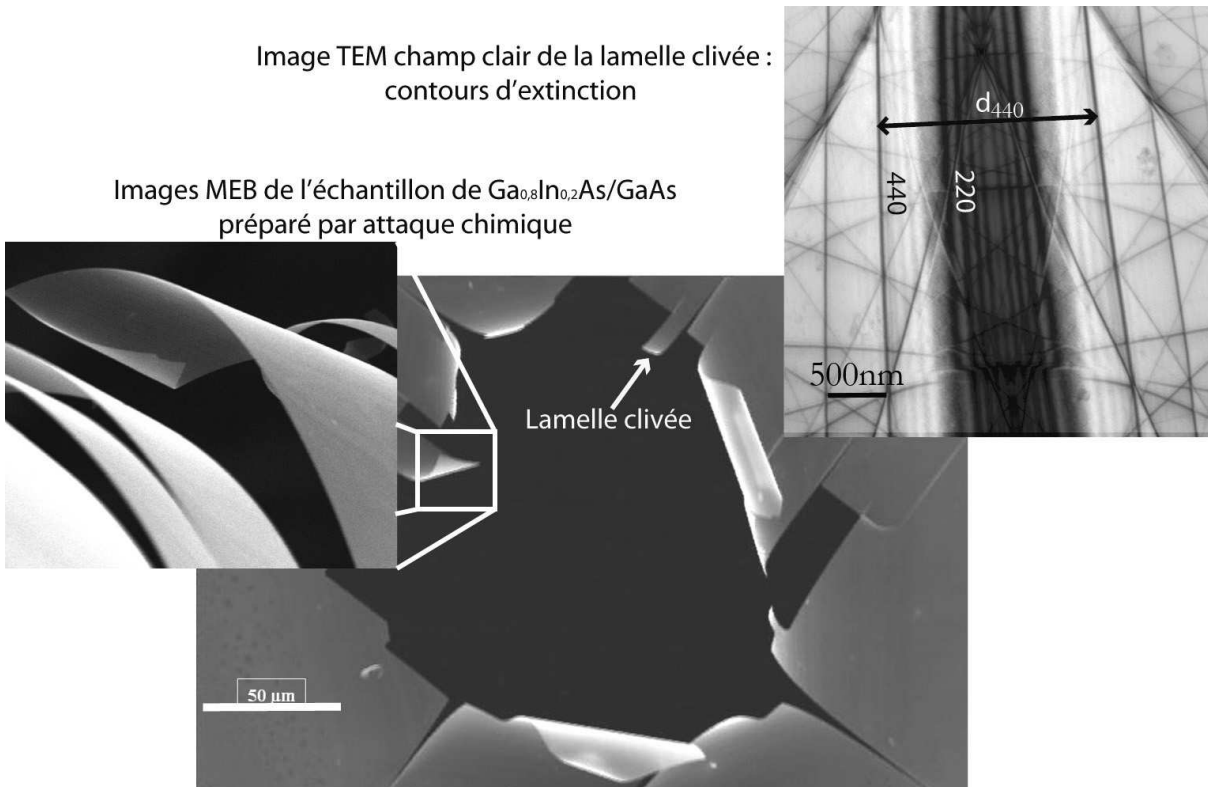


FIG. 6.1 – Images MEB de l'échantillon de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As/GaAs$  préparé par attaque chimique mettant en évidence la présence de lamelles clivées et courbées dans les zones observables en MET. Les images, prises par Martiane CABIE, correspondent à un échantillon pour lequel  $d = 25nm$ ; les mêmes observations sont réalisées pour  $d = 10nm$ . La présence de la courbure est confirmée par les importants contours d'extinctions observés en imagerie champ clair.

Les observations CBED et LACBED ont été réalisées selon plusieurs axes de zone et pour différentes épaisseurs  $t$ , sur une lamelle clivée. Le montage de la figure (6.2) présente les différentes images obtenues.

On va s'intéresser à l'évolution du profil des lignes en fonction de l'axe de zone utilisé. Les clichés LACBED 1, 2, 3 de la figure (6.2) correspondent respectivement aux axes de zone [203], [102] et [105] dont l'angle par rapport à l'axe de zone principal [001] va en décroissant. Les clichés 4 et 5 sont des diagrammes CBED obtenus au voisinage de l'axe [203] pour deux épaisseurs différentes. On peut résumer les observations comme suit :

1. axe de zone [203] : les profils de lignes cinématiques sont très perturbés. On peut ainsi observer un élargissement associé à une structure fine constituée de plusieurs franges. Chaque ligne semble être affectée de manière différente, certaines lignes possèdent 2 minima alors que d'autres en possèdent 3 dans la même zone de l'échantillon. L'élargissement  $d_{\bar{g}}$  associé est donc différent pour chacune des lignes. Les lignes dynamiques sont aussi très affectées, leurs profils constitués de séries de franges ne sont pas comparable à une rocking curve observée dans un cristal parfait.
2. axe de zone [102] : les mêmes observations peuvent être faites pour cette orientation. La principale différence provient des lignes cinématiques dont la perturbation est moins importante que dans l'axe de zone [203]. Les lignes dynamiques restent toujours très perturbées.
3. axe de zone [105] : les lignes cinématiques ne sont quasiment pas perturbées et présentent un profil classique constitué d'un seul minima principal. On observe ainsi de fines lignes de

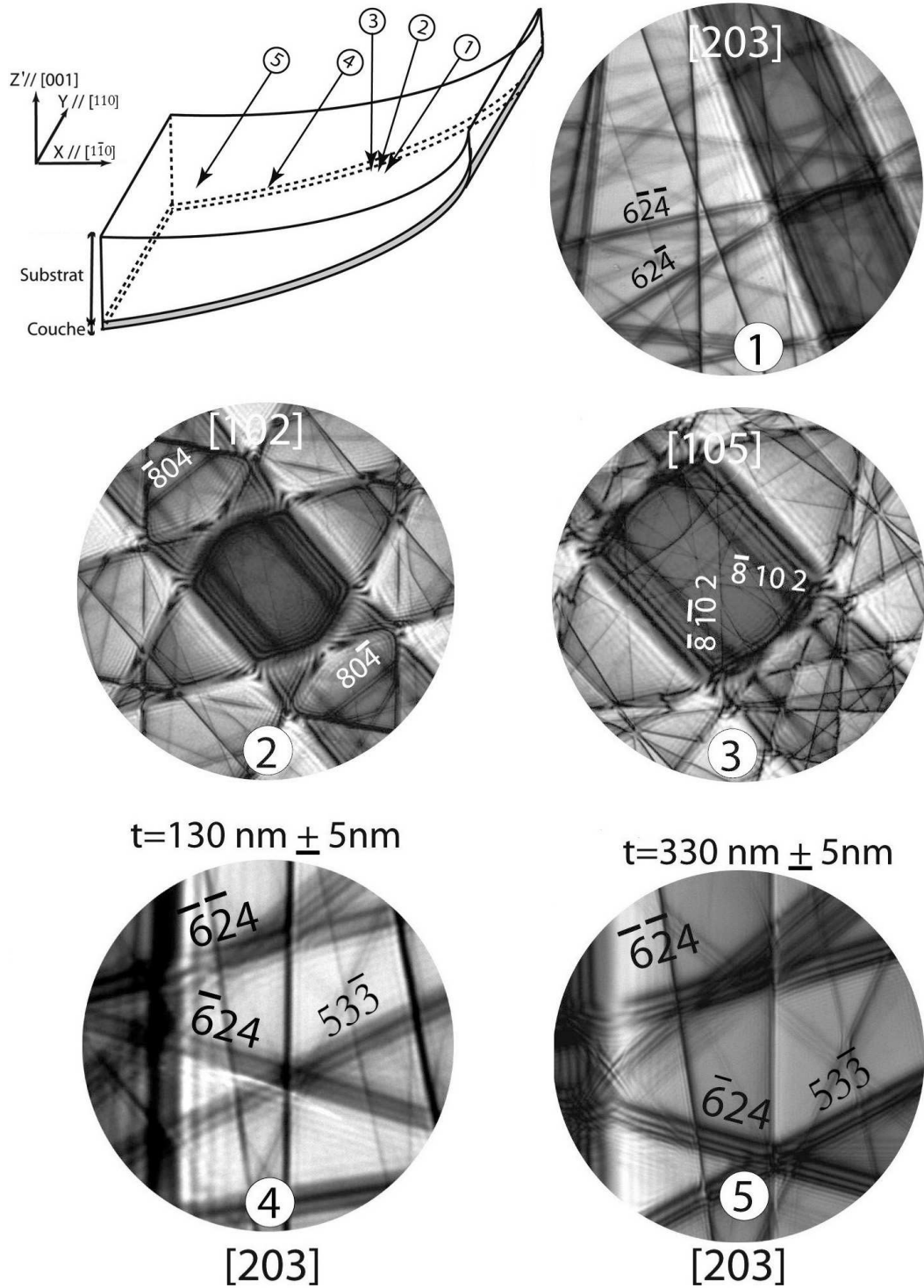


FIG. 6.2 – Résultats expérimentaux obtenus lors des observations LACBED et CBED à partir des échantillons de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$  préparés par attaque chimique et ionique. Les clichés 1, 2, et 3 correspondent à des clichés LACBED observés dans les axes de zones  $[203]$ ,  $[102]$  et  $[105]$  respectivement. Les images 4 et 5 correspondent à des clichés CBED observés proche l'axe  $[203]$  pour deux épaisseurs  $t$  différentes.



HOLZ au centre de l'axe de zone, par exemple les deux lignes ( $\bar{8}\bar{1}02$ ) et ( $\bar{8}102$ ) reportées sur la figure. Les mêmes observations peuvent être faites sur les lignes dynamiques.

Le profil des lignes cinématiques et dynamiques observées dans les clichés LACBED semble donc d'autant plus perturbé qu'elles appartiennent à des axes éloignés de l'axe principal [001]. Typiquement l'axe de zone [105] se situe à  $\alpha = 11^\circ$  de l'axe [001], [102] à  $\alpha = 26^\circ$  et [203] à  $\alpha = 34^\circ$ . Un parallèle peut être réalisé avec la perturbation des profils observée dans les clichés CBED obtenus dans les échantillons préparés en section transversale. Dans les deux cas la perturbation se traduit par une modification importante du profil des lignes. Nous avons montré que dans le cas des sections transversales, on observe une variation du poids respectif des minima et maxima de la rocking curve de chacune des lignes en fonction de la profondeur sous l'interface  $x_s$  et de l'épaisseur  $t$ . Ici aussi, ce type d'effet peut être observé. Ainsi, sur la figure(6.2) les clichés CBED n°4 et 5 correspondent à l'orientation [203] et à deux épaisseurs différentes. On observe en particulier une évolution du profil des lignes ( $6\bar{2}4$ ) et ( $\bar{6}24$ ) qui passe de 2 minima pour  $t = 130nm$  à 3 minima pour  $t = 330nm$ .

Ces observations montrent donc une évolution du profil (élargissement  $d_{\vec{g}}$  et nombres de minima) des lignes cinématiques, et des lignes dynamiques, en fonction de l'indice  $\vec{g}$  et l'épaisseur  $t$ . Cet effet ne peut être assimilé à une superposition de lignes provenant de la couche et du substrat comme proposée par Cherns *et al* [85]. En utilisant le modèle de Cherns, les dédoublements de lignes devraient être un ordre de grandeur plus grands que ceux observés dans notre cas et les distances entre lignes indépendantes de l'épaisseur de l'échantillon. D'une manière générale, les dédoublements du modèle de Cherns n'ont pu être observés que pour des épaisseurs  $d$  de couches comparables aux épaisseurs de substrat traversées par le faisceau d'électrons. L'épaisseur de la couche étant alors suffisante pour former une ligne. Dans notre cas l'épaisseur  $d = 10nm$  de la couche de *GaInAs* ne permet pas la formation d'une ligne propre à la couche, comparé au  $320nm$  de substrat dans le cas où l'épaisseur traversée  $t = 330nm$ . La formation du cliché CBED de ce type d'échantillon semble donc être due à l'interaction du faisceau avec le substrat. La mesure de la déformation selon la formule de Cherns n'est donc pas applicable aux échantillons que nous observons.

Dans le paragraphe(5.4.3), nous avons montré que la modification du profil des lignes en section transversale provenait d'une variation continue des déplacements  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$  dans la direction  $z$  du faisceau d'électrons. Les clichés décrits dans cette partie peuvent être interprétés en ces termes. Ainsi se pose la question de l'origine possible d'une variation des déplacements  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$  dans la direction de propagation  $z$  des électrons suffisamment importante pour créer les effets de la figure(6.2). Les observations MEB et MET conventionnelles présentées dans la figure(6.1), nous ont permis de mettre en évidence la présence d'une courbure introduite après le clivage de certaines lamelles fines. C'est cette courbure qui est à l'origine d'une variation des contraintes le long de la direction de propagation du faisceau  $z$  [101, 5].

### 6.1.2 Echantillons de $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$ préparés par attaque mécanique : le tripode

Afin de mettre en évidence le rôle de la courbure dans les résultats précédents, nous les comparons à ceux obtenus dans le cas d'un polissage mécanique par tripode. En effet, dans ce cas l'échantillon ne se clive pas et ne présente pas de courbure importante. L'amincissement est réalisé à partir d'un bord de l'échantillon massif en suivant une géométrie de type biseau jusqu'à obtenir des zones transparentes aux électrons. On s'arrête en général lorsque le bord atteint une épaisseur de l'ordre de  $100nm$ , puisqu'il n'est pas nécessaire d'amincir plus pour les observations CBED. L'intérêt de cette technique de préparation est qu'elle ne nécessite pas de percer un trou comme dans le cas des attaques chimique et ionique. Les observations MET conventionnelles réalisées sur les échantillons tripodes ainsi que les résultats CBED et LACBED obtenus dans

les mêmes conditions que celles décrites dans le paragraphe précédent, sont reportés dans la figure(6.3).

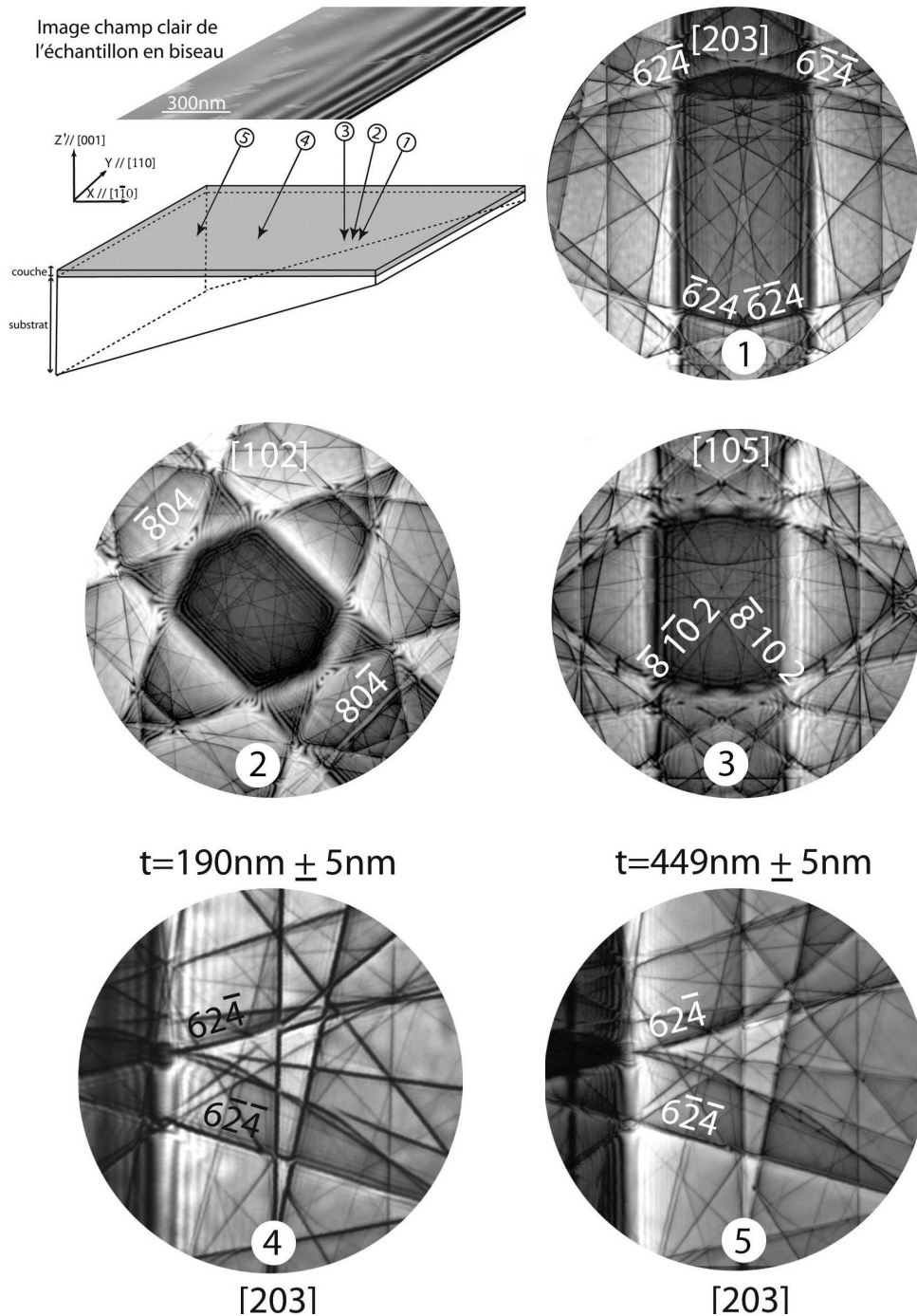


FIG. 6.3 – Résultats expérimentaux obtenus lors des observations conventionnelles, LACBED et CBED à partir des échantillons de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10\text{nm})/GaAs$  préparés par tripode. Les clichés 1, 2, et 3 correspondent à des clichés LACBED observés dans les axes de zones [203], [102] et [105] respectivement. Les images 4 et 5 correspondent à des clichés CBED observés proche l'axe [203] pour deux épaisseurs  $t$ .

L'image champ clair met en évidence des franges d'égalles épaisseurs (220) caractéristiques

d'une variation d'épaisseur  $t$  continue depuis le bord du biseau. Ces franges restent parfaitement parallèles au bord de l'échantillon et aucun contour d'extinction n'est observé. Aucune courbure importante n'est donc présente dans les zones étudiées. En effet, puisqu'aucun clivage n'est introduit par la préparation, les zones fines observées restent solidaire du reste de l'échantillon ce qui empêche la formation de courbure introduite par les phénomènes de relaxation élastique. Les clichés LACBED obtenus selon les axes de zone [203], [102] et [105] et pour différentes épaisseurs montrent ainsi des lignes fines présentant un profil non perturbé comme dans les cristaux parfaits. Les dédoublements des lignes cinématiques prévus par le modèle Cherns ne sont jamais observés, l'apport de la couche d'épaisseur  $d = 10nm$  étant négligeable par rapport à celui du substrat. Les lignes cinématiques peuvent donc être considérées comme parfaites et provenant de la diffraction du faisceau électronique par le substrat principalement. On a vérifié que la position des lignes de HOLZ dans l'axe [203] correspondait à celles du substrat de GaAs de paramètre  $a = 5,653\text{\AA}$ .

Le profil des lignes dynamiques montre une légère asymétrie comme on peut le voir sur l'exemple des lignes  $(\bar{5}\bar{1}1)$  et  $(51\bar{1})$  de la figure(6.4) observées selon une orientation proche de l'axe de zone [105] pour une épaisseur  $t = 140nm \pm 5nm$ .

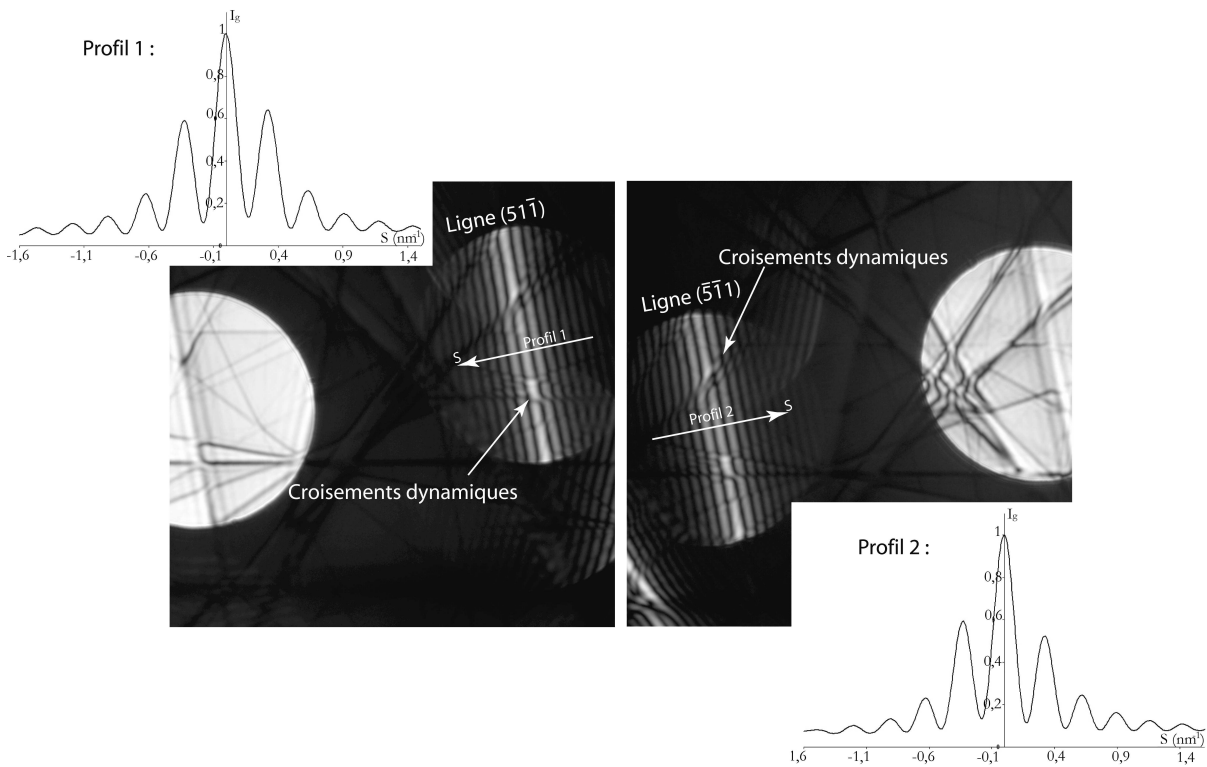


FIG. 6.4 – Clichés CBED et profils asymétriques des lignes dynamiques  $(51\bar{1})$  et  $(\bar{5}\bar{1}1)$  observés dans les échantillons de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$  préparés par tripode pour une épaisseur  $t = 140nm \pm 5nm$ .

Pour étudier cet effet nous avons observé des lignes d'excès afin de ne pas être perturbés par l'assymétrie classique des lignes de défauts provenant de l'absorption anormale [2, 51, 12]. On peut noter les remarques suivantes :

1. l'assymétrie affecte la plupart des lignes dynamiques mais de manière différente suivant l'indice  $\vec{g}$
2. L'effet est identique pour les lignes  $\vec{g}$  et  $-\vec{g}$  mais de sens opposé selon la direction positive

des erreurs d'excitations  $s$ .

Dans le cas d'un cristal parfait les lignes d'excès dynamiques sont symétriques comme présenté dans le paragraphe(2.3.1). Ceci est toujours le cas en condition deux ondes mais les effets dynamiques N-ondes provenant d'autres lignes peuvent introduire une asymétrie prononcée de la ligne d'excès dans la zone située au niveau du croisement dynamique. Les profils doivent donc être tracés en évitant au maximum les régions de croisements (indiquées sur la figure(6.4) si l'on souhaite réaliser une comparaison avec des simulations 2 ondes. Dans le cas contraire, l'analyse nécessitera des simulations dynamiques N-ondes prenant en compte les différents croisements. Notons qu'une analyse quantitative nécessitera toujours une approche N-Ondes car les zones en parfaites conditions deux ondes sont expérimentalement très difficiles à trouver.

Pour résumer, les clichés CBED et LACBED obtenus à partir des échantillons préparés par tripode correspondent aux images observées dans les cristaux parfait hormis une légère assymétrie des lignes d'excès dynamiques. Le dédoublement prévu par le modèle de Cherns n'a jamais été observé.

### 6.1.3 Puits quantiques de $GaAs(100nm)/Ga_{0,88}In_{0,12}As(10nm)/GaAs$ préparés par tripode

Cette étude s'inscrit dans le cadre d'une collaboration avec Damien Jacob [100]. Les observations préliminaires effectuées en MET conventionnelle ne révèlent pas la présence de défauts cristallins ni de courbure. En CBED, pour des épaisseurs voisines de  $t = 200nm$ , on observe un dédoublement des lignes fines cinématiques dont l'écartement  $d_{\vec{g}}$  dépend de la ligne  $\vec{g}$ . Cet effet est observé quel que soit l'axe de zone utilisé. Le cliché CBED 1, reporté dans la figure (6.5), est obtenu au voisinage de l'axe de zone [105] pour une épaisseur mesurée de  $t = 250nm$ . On peut aussi remarquer que sur toutes les lignes, le dédoublement n'est pas symétrique. Ainsi les lignes cinématiques  $(12\bar{2}\bar{2})$  et  $(104\bar{2})$  sont dédoublées mais ne possèdent pas le même écartement  $d_{\vec{g}}$ , la ligne  $(41\bar{2}0)$  n'est pas affectée par le phénomène puisqu'elle présente un seul minimum principal. Les profils de lignes dynamiques semblent très perturbés et ne correspondent pas à des rocking curve classiques.

Si on diminue l'épaisseur traversée  $t$ , les lignes cinématiques retrouvent un profil contenant un seul minimum lorsque  $t \approx 100nm$ . Dans ce cas, les lignes dynamiques mettent en évidence un profil asymétrique prononcé comme présenté dans le cliché CBED 2 de la figure(6.5). Ainsi, comme reporté sur le schéma associé, ce cas peut être assimilé à celui de la couche en surface étudiée dans le paragraphe(6.1.2) où les lignes cinématiques observées étaient parfaites mais les lignes dynamiques présentaient des profils légèrement asymétriques.

Inversement si on augmente l'épaisseur traversée, le dédoublement des lignes cinématiques se resserre ( $d_{\vec{g}}$  diminue) jusqu'à disparaître, laissant la place à un profil classique contenant un minimum principal. C'est ce que l'on observe sur la figure(6.6) dans le cas de la ligne  $(80\bar{4})$  observée proche de l'axe de zone [102].

L'évolution avec l'épaisseur des dédoublements observés dans ce type d'échantillon est donc très différente de celle observée dans les couches en surface préparées par attaque chimique et ionique. Dans ce dernier cas le profil pouvait, suivant l'épaisseur, contenir 3, 4 ou plus minima dont le nombre augmentait avec l'épaisseur.

Dans les puits enterrés quelle que soit l'épaisseur, les lignes cinématiques observées ne contiennent pas plus de deux minima. L'origine de ce dédoublement a été interprétée par Jacob *et al* en faisant un parallèle avec les dédoublements observés sur les lignes provenant d'un cristal contenant une faute d'empilement [12]. Le dédoublement n'a donc pas pour origine une ligne provenant de la couche et l'autre provenant du substrat comme évoqué dans le modèle de Cherns, mais provient de la diffraction d'une famille de plans  $\vec{g}$  dans le substrat avant et après la couche. Les faisceaux diffractés se trouvent déphasés par la couche d'une quantité  $\vec{g} \cdot \vec{u}_{ref}$  et se recombinent

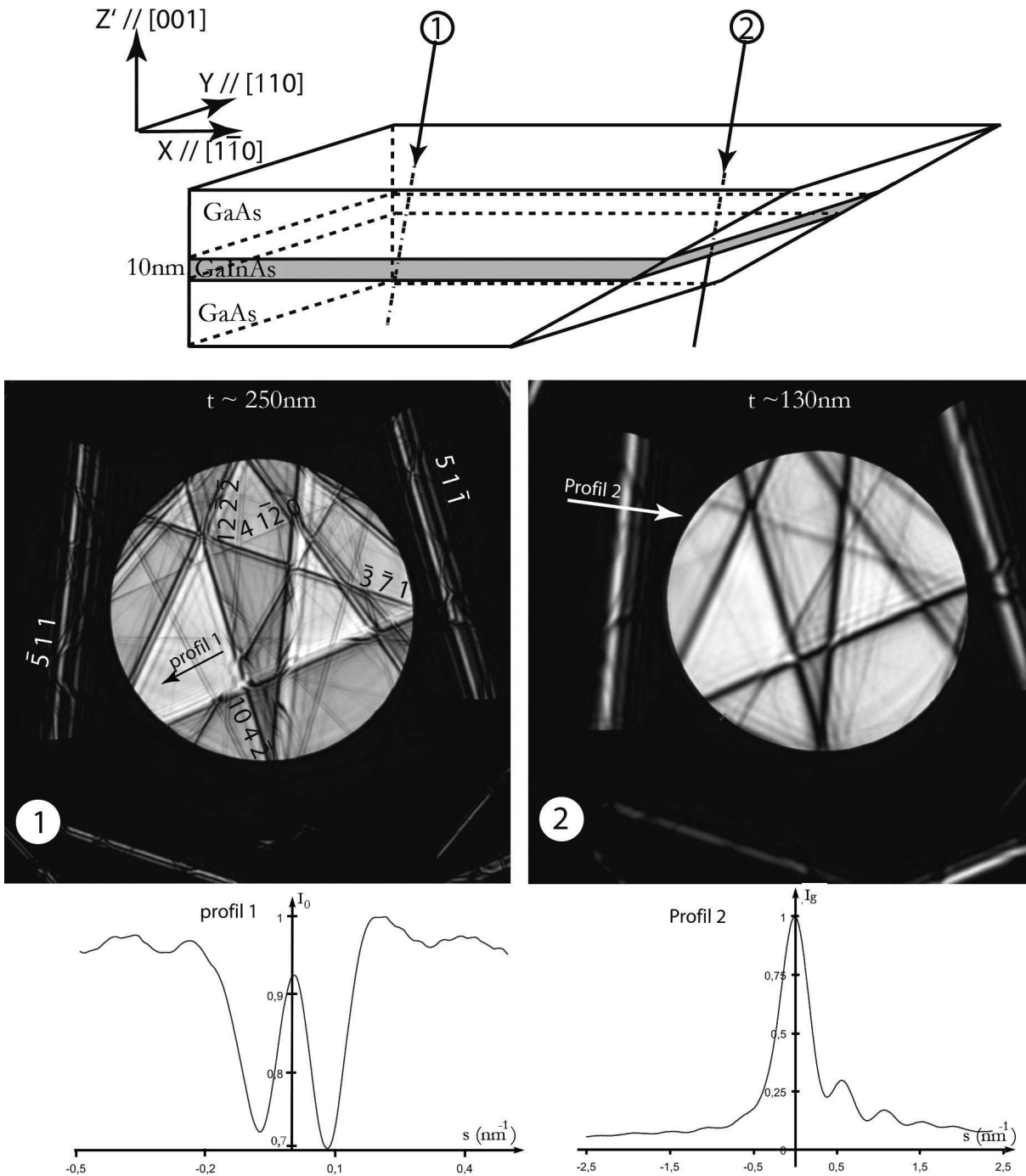


FIG. 6.5 – Clichés CBED observés dans les puits de  $GaAs(100nm)/Ga_{0,88}In_{0,12}As(10nm)/GaAs$  pour deux épaisseurs  $t$  différentes. Dans un cas un dédoublement des lignes cinématiques est observé. Dans l'autre cas, une asymétrie prononcée des lignes dynamiques est mise en évidence.

à la sortie de l'échantillon pour former la ligne dédoublée. Ce dédoublement nous donne ainsi accès à une mesure du champ de déplacement de la couche par rapport au substrat  $\vec{u}_{ref}$  défini au chapitre(3.1.2) lors de la présentation de la méthode GPA.

Les phénomènes de modification du profil des lignes cinématiques observés dans les couches en surface courbées et dans les puits enterrés, bien que similaires en apparence, ont donc des origines et des évolutions (épaisseur,  $\vec{g}$ , axe de zone, etc ...) totalement différentes. J'insiste sur

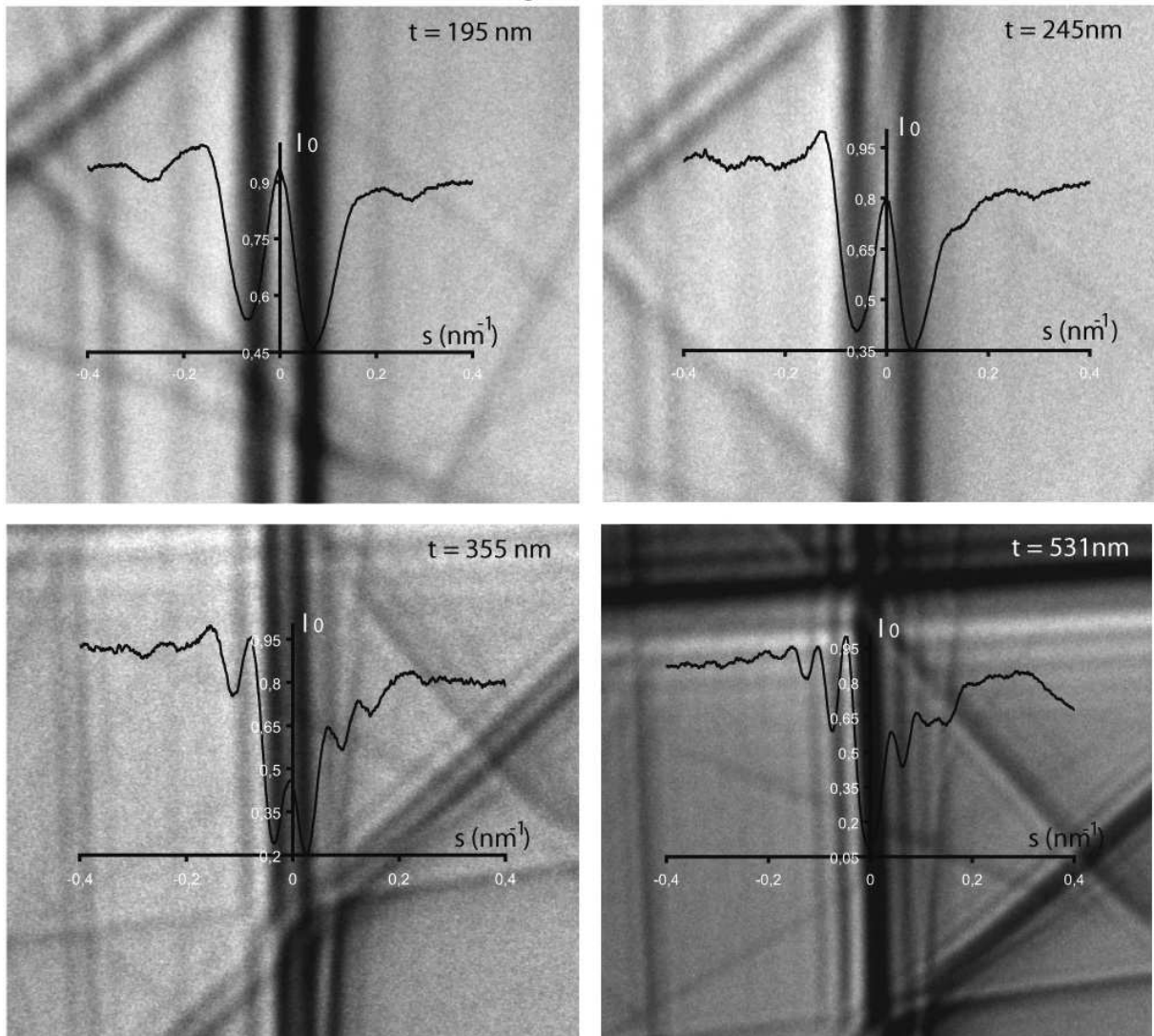
Ligne  $(80\bar{4})$ 

FIG. 6.6 – Cliché CBED des puits de  $GaAs(100nm)/Ga_{0,88}In_{0,12}As(10nm)/GaAs$  mettant en évidence l'évolution du dédoublement de la ligne  $(80\bar{4})$  en fonction de l'épaisseur  $t$ .

le fait qu'il n'est pas possible de réaliser un parallèle entre ces différents effets.

Pour terminer, une origine possible de l'asymétrie des lignes dynamiques a été proposée par Jacob *et al* [88]. Ils ont montré que cet effet pouvait être aussi dû à un déphasage par la couche en surface de type  $\vec{g} \cdot \vec{u}_{ref}$ , du faisceau électronique diffracté par le substrat. Les lignes cinématiques ne sont pas alors assez sensibles pour être affectées. Afin de bien se fixer les idées, nous allons maintenant nous attarder quelques lignes sur une analyse de cette situation. On peut considérer deux cas différents :

1. La couche épitaxiée est enterrée entre deux substrats
2. La couche épitaxiée est placée en surface d'un substrat

En séparant la situation de cette manière, je m'autorise un parallèle avec l'effet de la perturbation observée lors de l'intersection d'une dislocation avec une ligne de HOLZ et présenté dans le paragraphe(5.4.4). Cet effet peut être interprété comme un déphasage entre les faisceaux diffractés avant et après la dislocation, le déphasage étant introduit par le champ de déplacement

de la dislocation [102, 12]. Dans ce cas, le contraste de la ligne va dépendre de la profondeur, noté  $z_d$  dans la figure(5.12), de la dislocation dans le matériau. Le meilleur contraste est obtenu lorsque la dislocation se situe au milieu du matériau  $z_d = \frac{t}{2}$ , et diminue lorsque  $z_d$  diminue jusqu'à disparaître lorsqu'elle se situe en surface.

Dans le puit, comme dans le cas des dislocations, lorsque la couche est enterrée on observe un dédoublement des lignes cinématiques, qui disparaît lorsque la couche est en surface. Les lignes cinématiques ayant alors leur apparence classique. Dans ce cas le déphasage introduit par les déplacements  $\vec{u}_{ref}$  de la couche en surface affecte seulement les lignes dynamiques plus sensibles. Les deux situations évoquées correspondent aux expériences des paragraphe(6.1.3) et (6.1.2) respectivement.

Ces deux cas peuvent être observés si le substrat se présente comme un cristal parfait vis à vis du faisceau électronique. Mais dans le cas des couches en surfaces préparées par attaque chimique ou ionique le substrat est fortement déformé et l'on observe alors des profils de lignes comprenant plusieurs minima suivant l'épaisseur, l'indice  $\vec{g}$ , etc ... (cf paragraphe(6.1.1)). L'effet du déphasage introduit par la couche sur les faisceaux électroniques traversant la structure est alors totalement insignifiant comparé aux modifications introduites par  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$ .

## 6.2 Analyse quantitative des phénomènes observés en vue plane

Comme dans le cas de l'analyse des résultats obtenus sur les couches préparées en section transverse, la combinaison entre les simulations de l'état mécanique par FEM et les simulations dynamiques des clichés CBED associés, reste la solution choisie pour interpréter quantitativement les résultats expérimentaux. Les simulations des clichés CBED ont été effectuées dans le cadre de la théorie TDDT développée pour l'analyse des sections transverses (cf paragraphe(5.4)).

### 6.2.1 Cas des couches en surface de $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$ préparées par attaque ionique et chimique

#### Modélisation par FEM de l'état mécanique d'une lamelle clivée

Les observations CBED et LACBED présentées précédemment ont toutes été obtenues à partir d'une lamelle clivée dont les dimensions ont été mesurées et sont reportées sur la figure(6.7). Les modélisations FEM ont été réalisées en 3D, la géométrie en lamelle clivée ne permettant pas l'utilisation de simulation 2D. Tous les calculs obtenus dans cette partie sont réalisés dans le formalisme des grands déplacements, même si les travaux de Cabié *et al* montrent que l'approximation des petits déplacements peut parfois s'appliquer sur ce type de lamelle [6]. Les directions  $X$ ,  $Y$  et  $Z'$  définies dans le calcul, et reportées dans la figure(6.7) correspondent aux axes  $[1\bar{1}0]$ ,  $[110]$  et  $[001]$  du cristal respectivement.

Les différentes notations des faces de la géométrie sont reportées sur la figure :  $B_1$ ,  $B_2$  perpendiculaires à  $Y$ ,  $B_3$ ,  $B_5$  perpendiculaires à  $X$  et  $B_4$ ,  $B_6$  perpendiculaires à  $Z'$ . Les indices  $c$  et  $s$  se réfèrent respectivement à la couche et au substrat. Afin de simuler l'état mécanique d'une lamelle clivée, nous avons défini des conditions aux limites seulement sur les faces  $B_{5c}$  et  $B_{5s}$  que l'on considère comme fixées au reste du matériau massif. En d'autres termes, aucun déplacement n'est autorisé pour ces faces. Les autres faces sont considérées comme libres, c'est-à-dire qu'on autorise les déplacements de ces faces dans les trois directions. La cartographie 3D du champ de déformation  $\epsilon_{z/z'}$  ainsi calculée, est reportée sur la figure(6.7). On observe bien la présence d'une courbure importante de la lamelle, la modification de la structure observée sur le résultat du calcul est tracée à l'échelle des effets réels ( $\times 1$ ).

A partir de ces calculs on obtient les champs de déplacements  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$  en fonction de  $z$  qui corres-

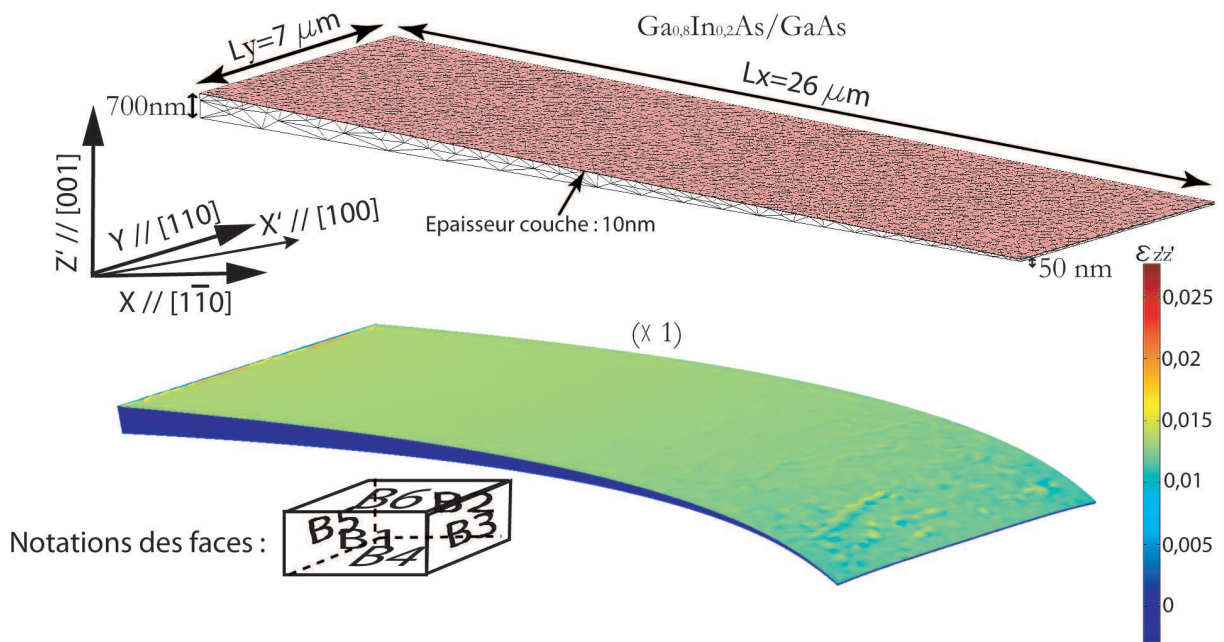


FIG. 6.7 – Géométrie utilisée et simulation FEM 3D du champ de déformation  $\epsilon_{z/z'}$  de l'échantillon de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$  préparé par attaque chimique ou ionique.

pond à la direction du faisceau électronique selon les axes de zone étudiés expérimentalement. Les données sont ensuite insérées dans les simulations dynamiques que nous présenterons dans la suite. Plus le nombre de valeurs de  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$  calculées le long de la direction de propagation sera important et plus le calcul dynamique se rapprochera de la réalité. En d'autres termes, il est nécessaire de réaliser un maillage suffisamment fin dans cette direction. Or, la géométrie de la structure 3D est beaucoup trop grosse. Lorsque les calculs sont réalisés avec un maillage suffisamment fin, la mémoire reste toujours insuffisante même pour les meilleurs ordinateurs à notre disposition. Aussi, nous avons adopté une option permettant d'affiner le maillage dans la zone d'intérêt considérée, les calculs réalisés sur le reste de la structure gardent le maillage grossier. Le maillage est donc affiné de manière suffisante sur une fine tranche correspondant au plan  $(X'', z)$ , reporté dans la figure(6.8), contenant l'axe de zone défini comme la direction  $z$ .

La figure (6.8) présente une répartition bidimensionnelle, dans le plan  $(X'', z)$ , du champ de déplacement  $u_{z'}$  rencontré par le faisceau d'électrons pour les différents axes de zone utilisés dans les expériences et pour une même zone d'épaisseur  $t = 200nm$ . Ce type de coupes peut bien sûr être réalisé pour les autres composantes du champ de déplacement  $u_x$  et  $u_y$ . Pour tous les axes de zones, on détecte la présence d'un champ de déplacement dont la variation devient de plus en plus importante lorsqu'on s'éloigne de l'axe de zone principal  $[001]$ . Ainsi la variation est plus faible dans la coupe correspondant à l'axe de zone  $z = [105]$  situé à  $\alpha = 11^\circ$  de l'axe  $[001]$  que dans la coupe réalisée pour  $z = [203]$  situé à  $\alpha = 34^\circ$  de  $[001]$ .

Ces observations sont à mettre en parallèle avec les résultats expérimentaux présentés dans le paragraphe (6.1.1) où les perturbations présentes sur les lignes des différents clichés CBED étaient d'autant plus importantes qu'elles appartenaient à un axe de zone éloigné de  $[001]$ . D'autre part nous avons montré qu'une variation du champ de déplacement présent dans le cristal le long de la direction de propagation du faisceau était à l'origine d'un changement radical du profil des lignes observées et ce d'autant plus que cette variation est importante. Les simulations FEM permettent d'interpréter les observations CBED présentés au paragraphe(6.1.1). Ainsi selon l'axe



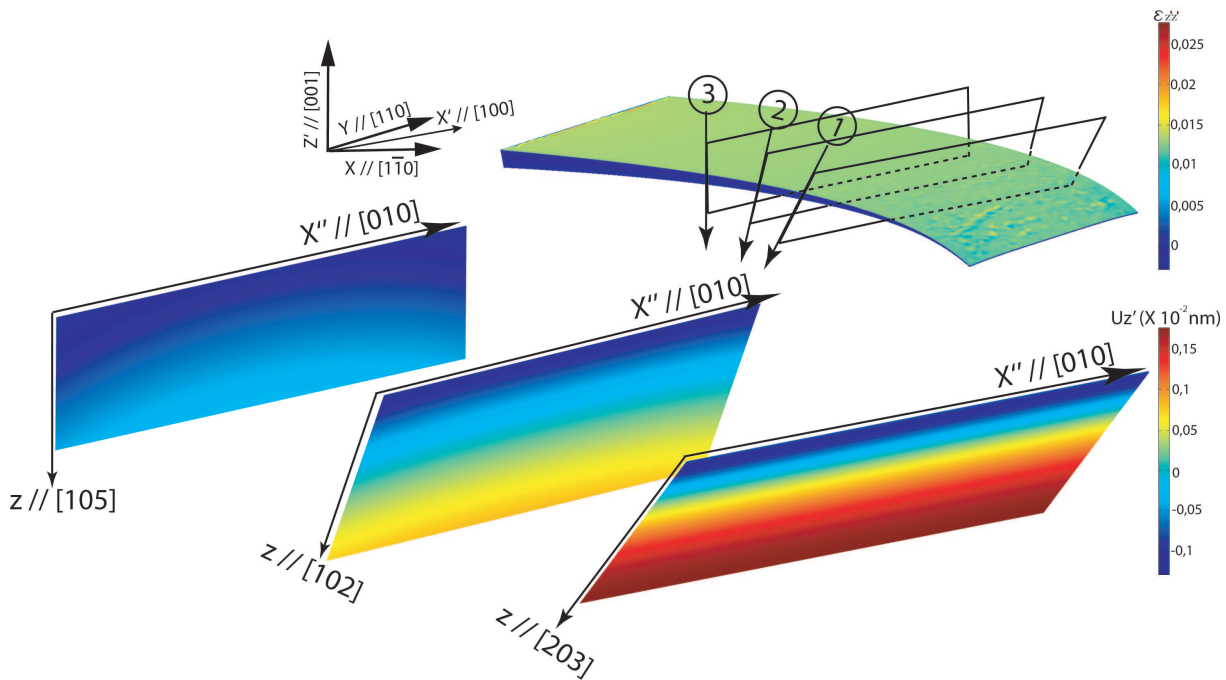


FIG. 6.8 – Cartographie 2D du champ de déplacement  $u_{z_i}$  calculé par FEM pour les différents axes de zones  $z$  étudiés expérimentalement : [105], [102] et [203]. Les coupes sont réalisées sur la même zone de l'échantillon d'épaisseur  $t = 200nm$ .

[203] le champ de déplacement calculé est beaucoup plus inhomogène que selon l'axe [105] et peut ainsi être à l'origine de la modification du profil des lignes expérimentales. Afin de réaliser une interprétation quantitative de ces effets, qui pourraient ainsi être utilisés pour remonter au champ de déformation présent dans la couche comme cela a pu être fait avec les sections transverses, on a réalisé des simulations dynamiques des différents clichés CBED correspondant aux conditions expérimentales évoquées précédemment. C'est l'objet du prochain paragraphe.

### Simulation dynamique des clichés CBED observés sur la lamelle clivée

Les conditions utilisées dans les simulations TDDT (épaisseur  $t$ , tension, etc ...) sont les mêmes que celles décrites lors de la présentation des résultats expérimentaux et reportés sur la figure(6.2). Le champ de déplacement  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$  calculé par FEM est introduit dans le programme de simulation dynamique permettant de modéliser les différents clichés CBED étudiés expérimentalement. Les résultats sont reportés sur la figure(6.9) et sont à comparer aux clichés expérimentaux de la figure(6.2).

On considère tout d'abord l'évolution des contrastes présents dans les différents clichés CBED en fonction de l'axe de zone considéré. Ainsi, comme lors de l'étude expérimentale, les lignes cinématiques et dynamiques se trouvent d'autant plus perturbées qu'elles appartiennent à un axe éloigné de [001]. On remarque en effet que les lignes simulées dans l'axe [203] sont très perturbées alors que celles obtenues dans l'axe [105] possèdent un profil classique non perturbé constitué d'un seul minima dans le cas des lignes cinématiques. L'accord avec les expériences semble donc assez bon.

Les simulations reproduisent bien l'évolution avec l'épaisseur des profils de lignes cinématiques mais les profils ne correspondent pas tous parfaitement à ceux observés expérimentalement, malgré les précautions prises pour réaliser des simulations les plus proches possibles des conditions

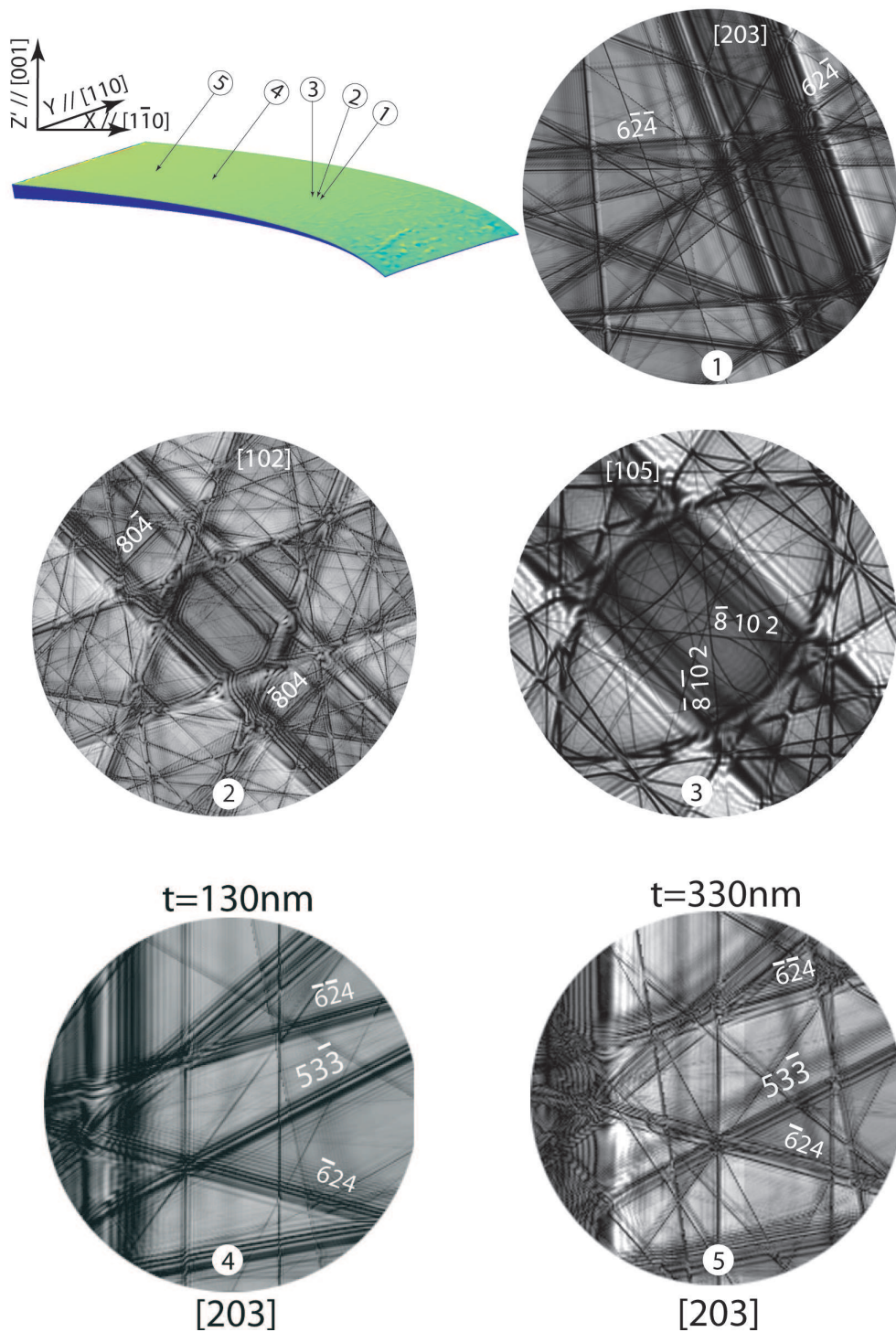


FIG. 6.9 – Simulations dynamiques TDDT réalisées en utilisant les champs de déplacements  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$  calculés par FEM pour l'échantillon de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$  préparées par attaque chimique ou ionique. Les conditions expérimentales (axes de zone, épaisseurs, etc ...) sont les mêmes que celles décrites dans la figure (6.2) associée.

expérimentales (épaisseur, dimensions de la plaque, position de la sonde, etc ...). On peut ainsi remarquer que pour une épaisseur de  $t = 130nm$  la ligne (533) contient deux minima clairement séparés ce qui n'est pas le cas dans l'image expérimentale de la figure(6.2). En revanche, on

reproduit les trois minimas observés sur cette ligne pour une épaisseur de  $330\text{nm}$ . Ce type de simulations se base sur des champs de déplacements inhomogènes calculés par FEM dont les résultats sont très dépendants de la géométrie utilisée, conditions aux limites etc ... Ainsi la reproduction parfaite de tous les contrastes observés dans ce type de cliché CBED passe par un contrôle tout aussi parfait de la géométrie de l'échantillon aminci, comme cela avait été fait pour les préparations en section transverse grâce au FIB. Une mauvaise reproduction de certains contrastes dans les clichés CBED simulés peut provenir d'une mauvaise connaissance de la géométrie réelle de l'échantillon. Dans notre cas, les simulations ne prennent pas en compte un écart très probable à la variation linéaire de l'épaisseur de la lamelle le long de la direction  $x$  ou des variations d'épaisseur le long de  $y$ . Les attaques chimiques ne sont en effet pas assez performantes pour réaliser un échantillon aussi parfait que celui du modèle FEM. La technique du CBED étant très sensible, ce genre de phénomènes peut tout à fait être à l'origine d'un écart entre les profils simulés et expérimentaux de certaines lignes. La préparation FIB pourrait, dans ce cas, s'avérer être une solution très attractive. Malgré tout, des mesures de déformation peuvent être obtenues à partir des simulations TDDT de ce genre d'effets. Nous le présenterons avec les autres méthodes possibles déduites au cours de ce travail dans le paragraphe(6.3).

### 6.2.2 Cas des couches en surface de $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10\text{nm})/GaAs$ préparées par attaque mécanique tripode

#### Modélisation de l'état mécanique de la structure par FEM

La géométrie de l'échantillon est reportée dans la figure(6.10). L'angle du biseau a pu être déterminé expérimentalement grâce à des mesures d'épaisseur réalisées par CBED et aux franges d'égales épaisseurs (220) présentées dans la figure(6.3). Les axes  $X$ ,  $Y$  et  $Z'$  définis dans la figure(6.10) correspondent aux mêmes axes que dans le cas des échantillons préparés par attaque chimique.

Puisque la lamelle observée n'est pas clivée, on considère la structure attachée au reste du matériau ce qui se répercute directement sur les conditions aux limites. On peut les résumer comme suit :

- pas de déplacements dans la direction  $Y$  pour les faces  $B_{1c,s}$  et  $B_{2c,s}$ , l'échantillon étant supposé infini dans cette direction.
- Les faces  $B_{5c}$  et  $B_{5s}$  sont toujours considérées bloquées afin de simuler l'attache de la structure au reste du matériau.
- Les autres faces restent libres.

la cartographie 3D ( $\times 1$ ) du champ de déformation  $\epsilon_{z/z'}$  est reportée dans la figure (6.10). Aucune courbure n'est observée dans ce type d'échantillon, contrairement aux lamelles clivées présentes dans les préparations chimiques et ioniques de la figure(6.7).

L'hypothèse que nous avons évoquée pour expliquer cette différence partait de l'idée que les lamelles clivées ne présentant qu'une face d'ancrage, subissaient ainsi une relaxation élastique de la contrainte par courbure, ce qui n'est plus le cas avec l'échantillon tripode. Les calculs FEM confirment cette hypothèse et amènent même d'autres informations. On remarque que, d'une manière générale, la géométrie des régions étudiées diffère également par l'angle de biseau, beaucoup plus grand dans le cas tripode. Ainsi le biseau mesuré de la lamelle clivée vaut approximativement  $\alpha = 1,5^\circ$ , alors que celui mesuré à partir de la lamelle tripode vaut en moyenne  $\alpha = 20^\circ$ . Si on simule la même géométrie de l'échantillon tripode mais en considérant les faces  $B_{1c,s}$  et  $B_{2c,s}$  comme libres, on observe une légère courbure mais beaucoup moins importante que dans le cas de la lamelle clivée. L'angle de biseau, tout comme les surfaces libres, a une influence sur la présence, ou non, de courbure dans la structure.

Afin de pouvoir réaliser les simulations dynamiques des clichés CBED, nous devons obtenir le

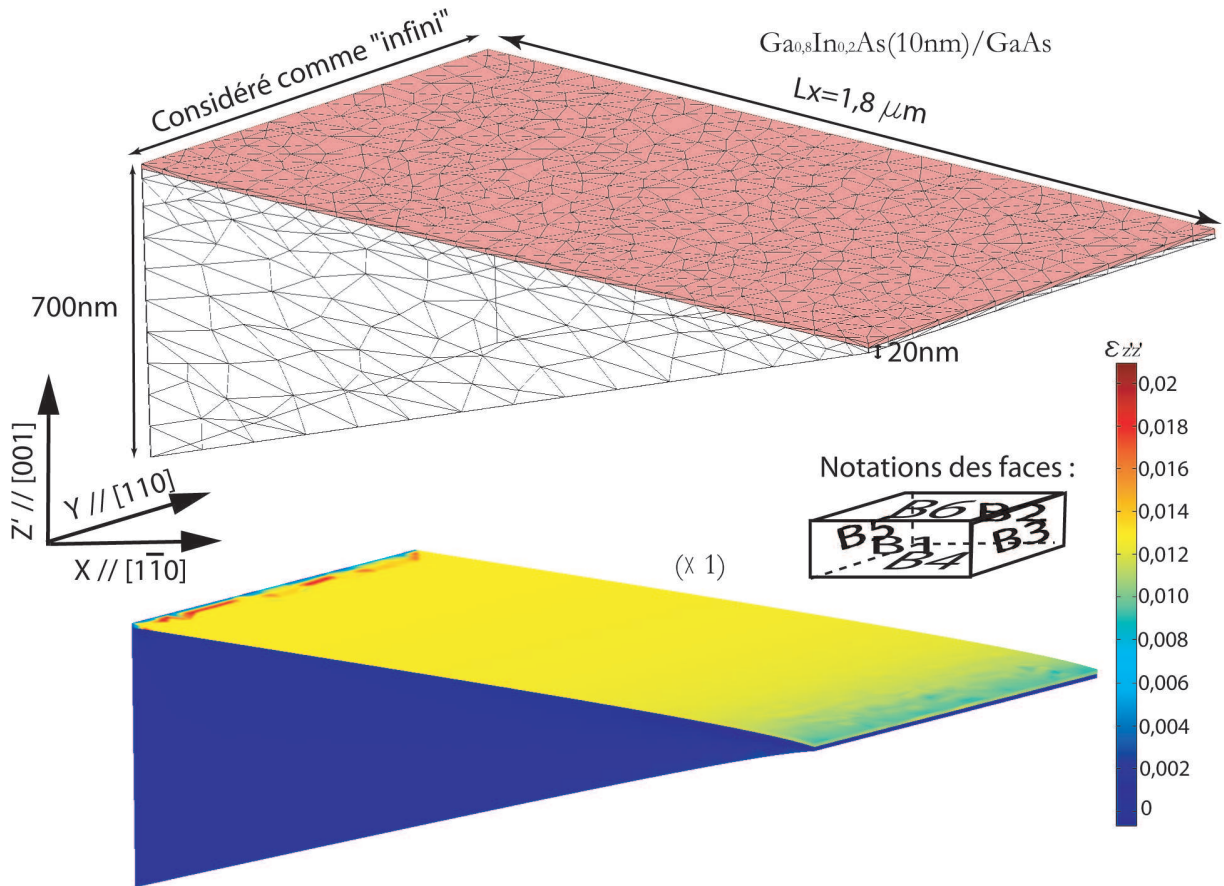


FIG. 6.10 – Géométrie utilisée et simulation FEM 3D du champ de déformation  $\epsilon_{z/z}$  de l'échantillon de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$  préparé par tripode.

champ de déplacement  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$  pour les directions  $z$  correspondant aux axes étudiés expérimentalement. Le même processus d'affinage du maillage dans le plan  $(X//, z)$  que celui présenté au paragraphe (6.2.1), est effectué pour cette structure. La figure (6.11) présente les résultats obtenus et reporte la cartographie bidimensionnelle du champ de déplacement  $u_{z/}$ , rencontré par le faisceau électronique pour les 3 axes de zones étudiés  $z = [105], [102], [203]$  et pour une épaisseur  $t = 200nm$ .

Si on compare avec les résultats présentés dans la figure(6.8), on remarque que la composante  $u_{z/}$  calculée reste beaucoup plus faible dans le cas des échantillons tripodes de la figure(6.11) quel que soit l'axe de zone. De plus, dans une même coupe, aucune variation importante du champ de déplacement n'est détectée y compris dans l'axe de zone  $[203]$ , contrairement aux échantillons chimiques et ioniques. On peut ainsi interpréter qualitativement les résultats expérimentaux du paragraphe(6.1.2) qui présente des clichés CBED non perturbés correspondant à ceux observés à partir d'un cristal parfait, provenant dans ce cas du substrat de  $GaAs$ . On a aussi pu observer des lignes d'excès dynamiques asymétriques dont l'interprétation nécessite l'utilisation de simulations.

### Simulation dynamique des clichés CBED observés

La figure(6.12) présente les différentes simulations TDDT obtenues en utilisant le champ de déplacement  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$  calculé par FEM.

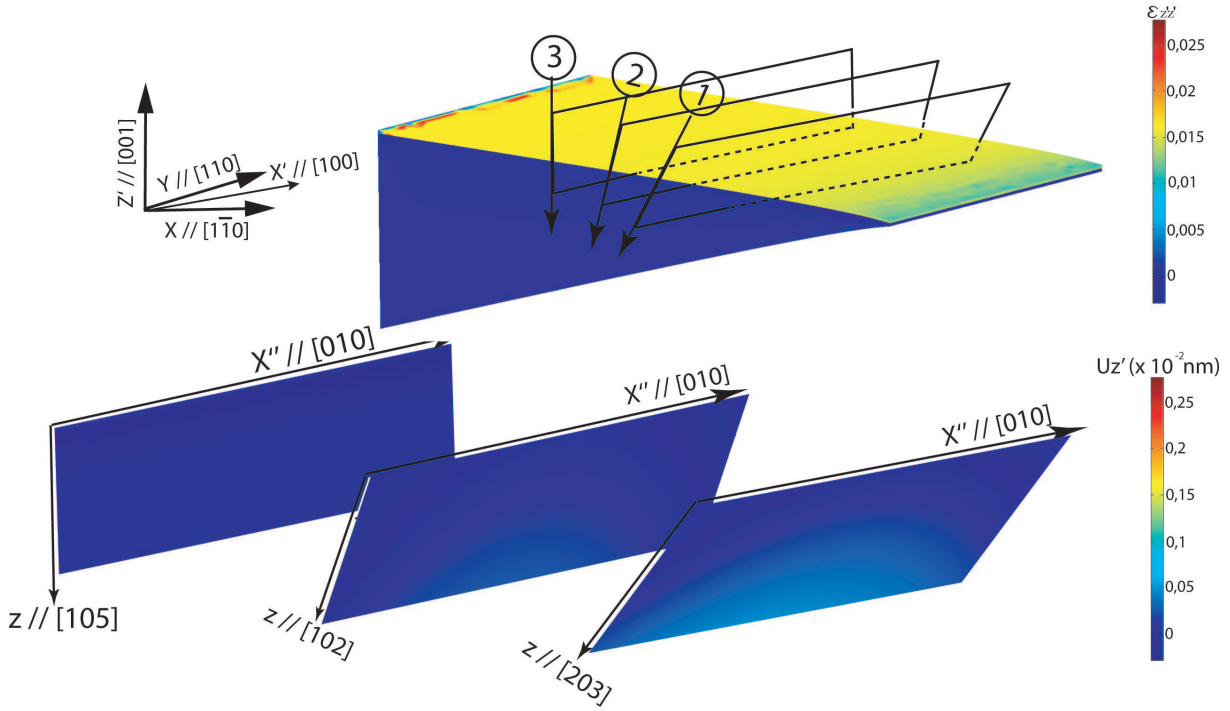


FIG. 6.11 – Cartographie 2D du champ de déplacement  $u_z$  calculé par FEM pour les différents axes de zones  $z$  étudiés expérimentalement :  $[105]$ ,  $[102]$  et  $[203]$ .

On note un bon accord avec les clichés expérimentaux reproduits dans la figure(6.3). En fait les simulations dynamiques sont très proches de celles obtenues sur des cristaux non déformés. En d'autres termes, la courbure introduite par la relaxation élastique du système préparé par tripode n'est pas suffisante pour introduire un champ inhomogène  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$  significatif dans le substrat à l'inverse des cas obtenus à partir des lamelles clivées.

Les simulations de l'asymétrie des lignes dynamiques réalisées par Jacob *et al* correspondent à une approche en 2 ondes [88] que nous avons commencé par appliquer. Afin de réaliser une analyse quantitative plus poussée, nous avons aussi réalisé des simulations N ondes TDDT qui semblent plus appropriées. Nous avons pour cela introduit le champ de déplacement  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$  calculé par FEM dans le programme de simulation TDDT qui permet aussi de tracer le profil de la ligne en fonction de l'écart à l'angle de Bragg  $s$  en choisissant le nombre d'ondes prises en compte dans le calcul. Dans les deux cas évoqués, l'asymétrie observée sur les lignes  $(\bar{5}\bar{1}1)$  et  $(51\bar{1})$  pour une épaisseur introduite de  $t = 140nm$  est parfaitement reproduite. La comparaison des profils simulés en 2-ondes, N-ondes (7 faisceaux dans ce cas) et expérimentaux, sont reportés dans la figure(6.13). Le choix de simulations N-ondes reste plus correct car l'effet d'asymétrie observé est très fin et peut donc être facilement perturbé par des interactions dynamiques provenant d'autres lignes.

L'accord obtenu reste malgré tout moyen, puisque l'asymétrie calculée est plus importante que celle observée expérimentalement. Le rapport entre les pics peut varier avec la concentration en indium, i.e. l'état de déformation de la couche. Les profils calculés présentés dans la figure(6.13) ont été réalisés à partir d'un champ de déplacement  $\vec{u}$  calculé par FEM provenant d'une couche contrainte de concentration en indium  $x = 20\%$ . Si on fait varier la concentration en indium dans les modèles FEM, on change les valeurs du champ de déplacement ainsi calculé. Les simulations N-ondes obtenues pour 3 concentrations en Indium différentes  $x = 10\%$ ,  $15\%$  et  $20\%$  sont reportées sur la figure(6.14). On observe une petite variation du rapport d'asymétrie

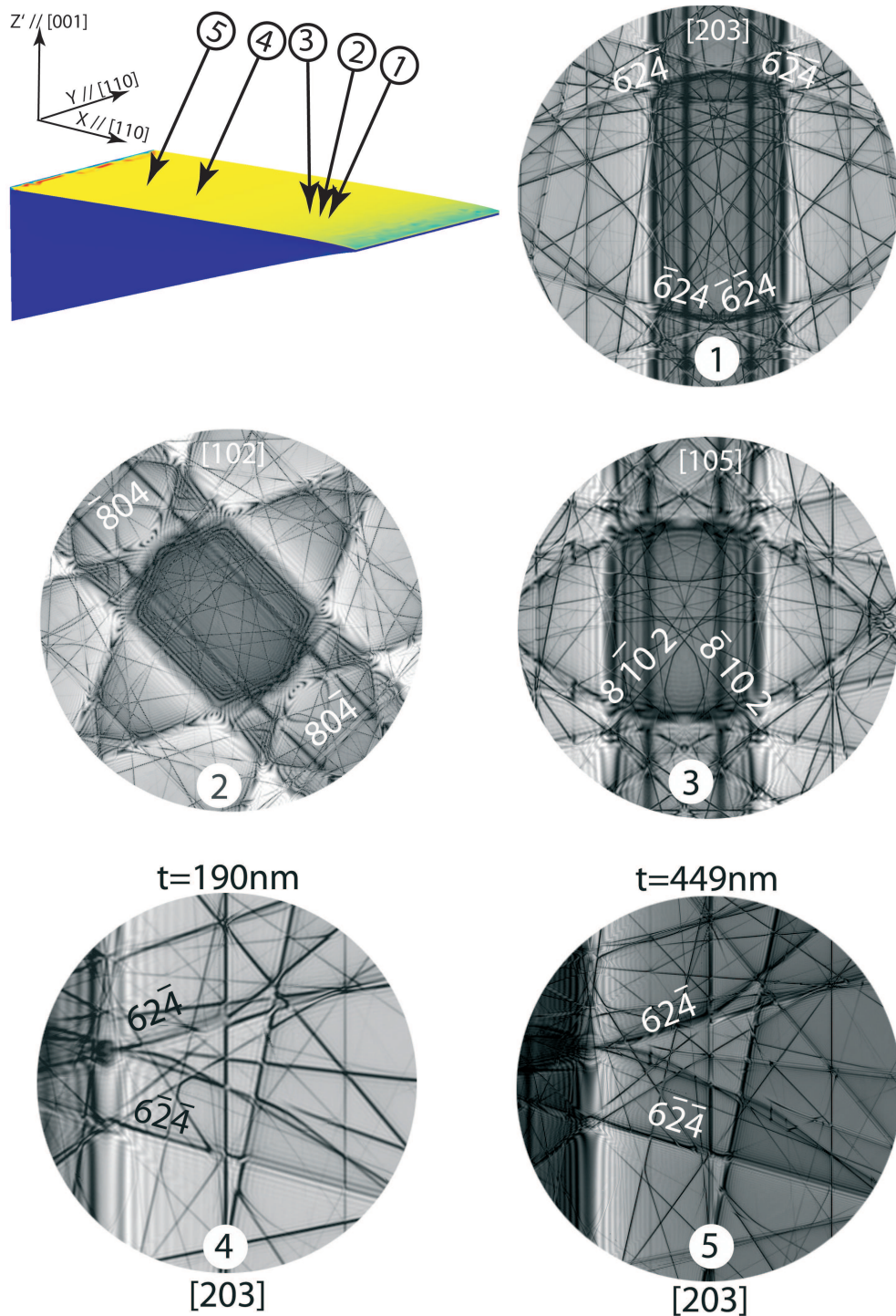


FIG. 6.12 – Simulations dynamiques TDDT réalisées en utilisant les champs de déplacements  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$  calculés par FEM pour l'échantillon de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$  préparés par tripode. Les conditions expérimentales (axes de zone, épaisseurs, etc ...) sont les mêmes que celles décrites dans la figure(6.3) associée.

entre les maxima pour des  $s$  positifs et négatifs. Cette différence est d'autant plus faible que l'écart  $s$  augmente. Cet effet reste très faible comparé aux fortes variations de concentration en indium utilisées. Ce n'est donc pas un phénomène très sensible à la concentration. Le meilleur

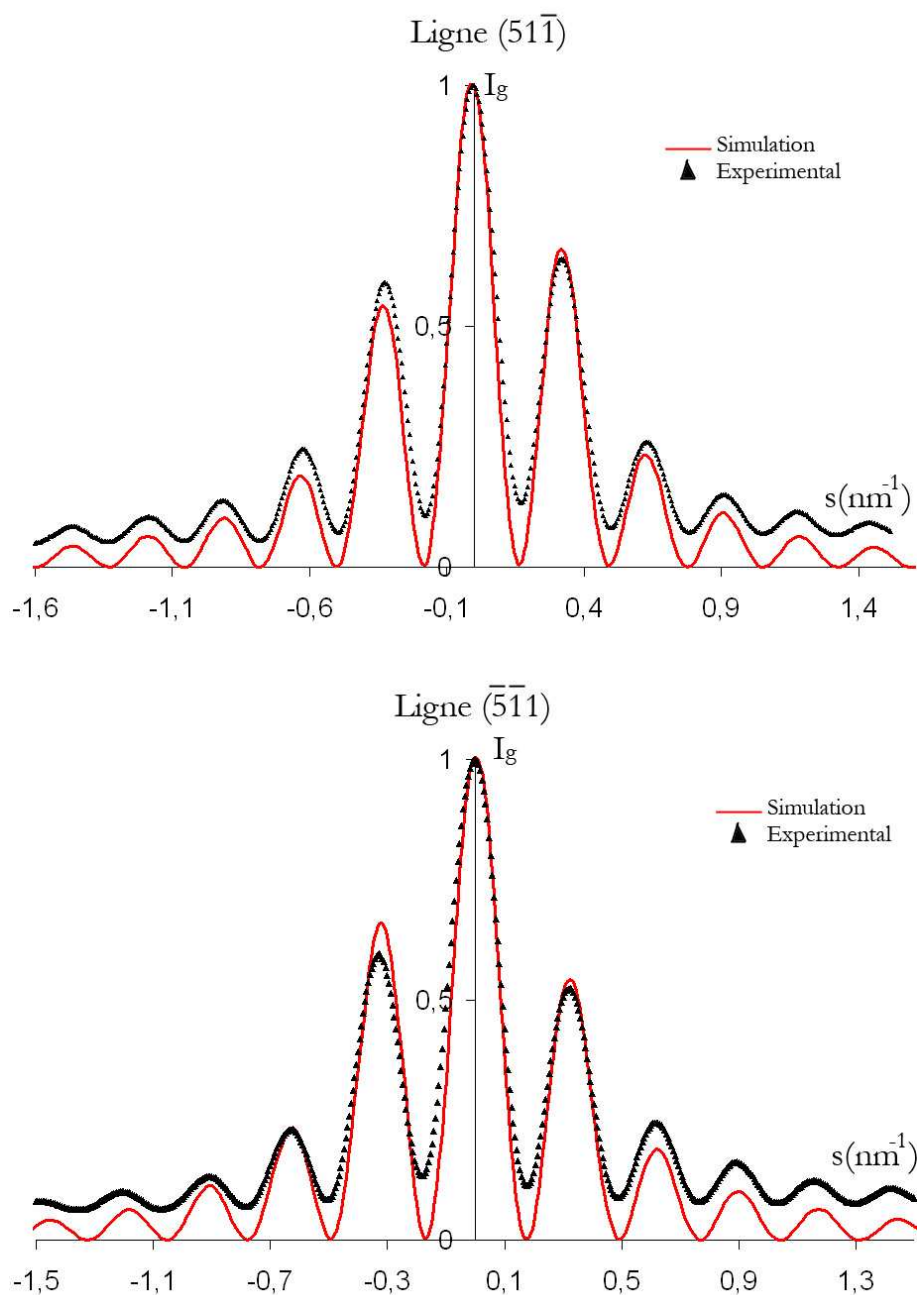


FIG. 6.13 – Comparaison entre les profils expérimentaux et simulés TDDT des lignes d'excès dynamiques  $(51\bar{1})$  (en haut) et  $(\bar{5}1\bar{1})$  (en bas) observés dans les échantillons de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$  préparés par tripode.

accord avec l'image expérimentale est obtenu pour une concentration comprise entre 8% et 10% ce qui est très éloigné de la valeur mesurée de 20% réalisée au paragraphe(5.5.1).

Les résultats apportés par l'analyse quantitative de l'asymétrie observée sur la ligne  $(\bar{5}1\bar{1})$  ne correspondent donc pas à ceux calculés à partir des clichés CBED obtenus en section transverse. Nous avons montré que l'influence d'une variation de concentration en indium sur l'asymétrie des profils de lignes observée en vue plane était très faible. Des effets d'asymétrie de même ordre de grandeur peuvent être obtenus pour de légères différences de géométrie entre

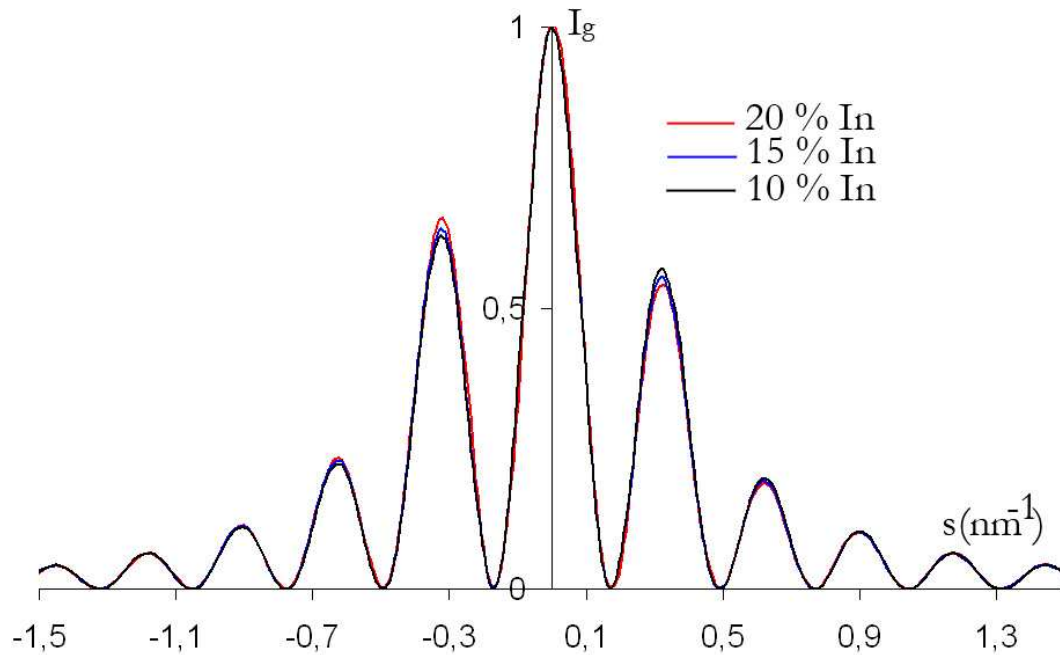


FIG. 6.14 – Simulations N-Ondes (7 faisceaux) TDDT du profil de la ligne d'excès dynamique ( $\bar{5}\bar{1}\bar{1}$ ) calculée pour le cas de l'échantillon de  $Ga_{1-x}In_xAs(10nm)/GaAs$  contenant différentes concentration en Indium  $x$ .

l'échantillon réel et le modèle introduit dans les éléments finis, dues par exemple à des variations d'épaisseur dans la direction  $Y$ , à un écart à l'angle de  $20^\circ$  du biseau observé près du trou, etc ...Ceci peut expliquer les différences entre les simulations et l'expérience de la figure(6.13).

Il paraît ainsi difficile dans ces conditions, d'utiliser cet effet d'asymétrie du profil des lignes dynamiques pour remonter à l'état de déformation de la couche en surface (et donc à la concentration en indium), en raison du manque important de sensibilité du phénomène.

### 6.2.3 Cas des puits quantiques de $GaAs(100nm)/Ga_{0,8}In_{0,1}As(10nm)/GaAs$ préparés par attaque mécanique tripode

#### Modélisation FEM de l'état mécanique de l'échantillon observé

La géométrie du modèle ainsi que les résultats du calcul sont reportées dans la figure(6.15). L'angle choisi pour le biseau a pu être déterminé expérimentalement grâce à des mesures d'épaisseurs réalisées par CBED. Les axes  $X$ ,  $Y$  et  $Z'$  correspondent aux mêmes axes que dans le cas des échantillons préparés par attaque chimique et tripode.

Les conditions aux limites imposées sur les différentes faces sont identiques à celles utilisées pour le cas de la modélisation de la couche en surface préparée par tripode. Pas de déplacement suivant  $Y$  pour les faces  $B_1$  et  $B_2$ . Aucun déplacement n'est autorisé sur la face  $B_5$ . On simule ainsi l'attache de la zone analysée au reste de la structure. La figure(6.15) présente la cartographie 3D du champ de déformation  $\epsilon_{z'z'}$  calculé.

Les modélisations FEM montrent qu'aucune courbure n'est présente dans les zones où la couche de  $GaInAs$  se trouve encastrée entre les deux couches de  $GaAs$  d'épaisseurs égales. C'est dans ce type de zone, d'épaisseur  $t \approx 200nm$ , que les lignes cinématiques observées expérimentalement se trouvaient clairement dédoublées (voir figure (6.5)). Le dédoublement observé n'est donc pas dû à la présence d'inhomogénéités dans le champ de déplacement puisqu'on n'observe pas d'effet de relaxation élastique par les surfaces. On peut donc considérer que son origine provient seulement



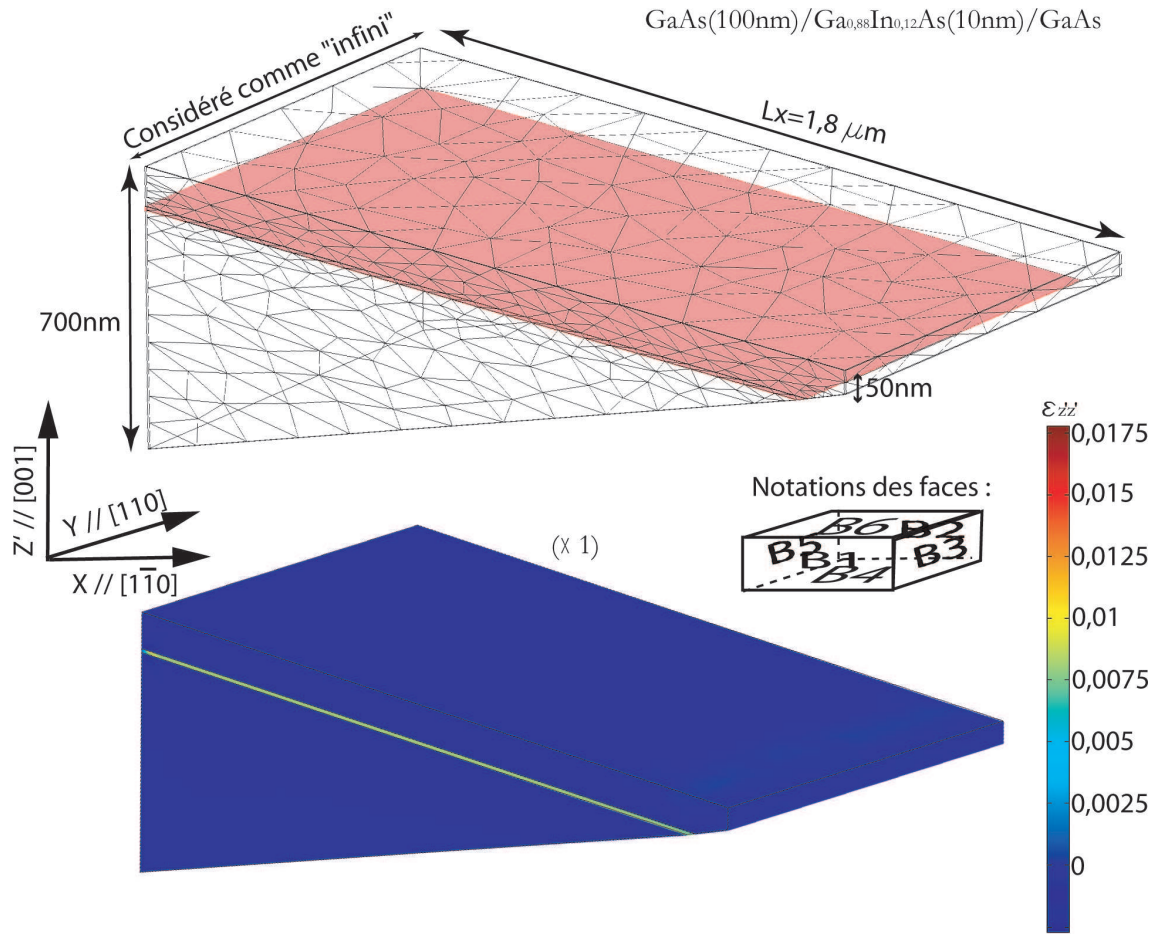


FIG. 6.15 – Géométrie utilisée et simulation FEM 3D du champ de déformation  $\epsilon_{zz}$  du puit de  $GaAs(100nm)/Ga_{0,88}In_{0,12}As(10nm)/GaAs$ .

du déphasage  $\vec{g} \cdot \vec{u}_{ref}$  introduit par la couche, comme cela avait été prévu par Jacob *et al* [100]. Dans les zones d'épaisseur comprise autour de  $t = 100nm$  où la couche peut être considérée en surface, on retrouve les résultats obtenus précédemment dans le paragraphe(6.2.2).

### Simulation dynamique des clichés CBED observés

Nous avons comparé les simulations obtenus par 2 méthodes : les calculs dynamiques TDDT réalisées à partir des déplacements calculés par les simulations FEM et d'autre part les calculs TDDT obtenus avec le modèle des déplacements développés par Jacob *et al* [100]. Dans ce dernier cas, les cristaux de  $GaAs$  sont considérés comme parfaits, seul les déplacements  $\vec{u}_{ref}$ , par rapport aux substrats, localisés dans la couche sont pris en compte lors du calcul. Les deux approches donnent exactement les mêmes résultats dans tous les cas étudiés (lignes, épaisseur, concentration en indium, etc ...). Dans ce type de région, aucun effet de relaxation par les surfaces ne vient donc perturber le profils des lignes des diagrammes CBED. La figure(6.16) présente les résultats des simulations de clichés CBED obtenus dans un axe proche de [105] des échantillons de  $GaAs(100nm)/Ga_{1-x}In_xAs(10nm)/GaAs$  pour différentes épaisseurs,  $t = 195nm$ ,  $355nm$  et  $531nm$ . Ces simulations sont à comparer avec les images expérimentales de la figure(6.5). On

compare aussi le profil expérimental de la ligne  $(80\bar{4})$  présente dans l'axe  $[102]$  (figure(6.6)) avec les profils calculés en TDDT 2 ondes ou en N ondes (7 faisceaux dans ce cas) pour  $x = 12\%$ ,  $15\%$  et  $t = 195nm$ . L'approche 2 ondes étant celle utilisée par Jacob *et al* dans leurs calculs [100].

Les dédoublements sont très bien observés dans les simulations réalisées pour  $t = 195nm$ . Tout comme dans les images expérimentales, l'écartement  $d_{\bar{g}}$  du dédoublement n'affecte pas de la même façon chaque ligne. L'asymétrie du dédoublement est bien reproduite par les simulations 2 ondes et N ondes comme le montre le tracé des profils. On remarque que les simulations N-ondes permettent de reproduire beaucoup plus fidèlement le profil de la ligne que les simulations 2 ondes. C'est un des avantages de notre méthode de simulations, puisque la théorie initiale présentée par Jacob *et al* ne permettait pas une extension au cas N-ondes. Or les simulations N ondes sont essentielles pour réaliser une analyse quantitative valable. En effet, si on change la concentration en indium  $x$ , ce qui modifie l'état de contrainte de la couche de *GaInAs*, on remarque sur les images simulées pour  $t = 195nm$ , que l'asymétrie de chaque ligne évolue ainsi que la distance  $d_{\bar{g}}$  très légèrement. Cet effet est mis en évidence sur le profil de la ligne  $(80\bar{4})$  où une asymétrie beaucoup plus importante ainsi qu'un écartement légèrement différent sont obtenus pour une concentration en indium de  $15\%$ . On peut donc utiliser ces effets pour remonter à l'état de déformation présent dans la couche, et donc à la concentration en indium. Dans le cas du profil de la ligne  $(80\bar{4})$  on remarque que les simulations effectuées pour  $x = 12\%$  reproduisent beaucoup mieux le profil expérimental que celles obtenues pour  $x = 15\%$ . Dans le cas de l'exemple étudié, le meilleur accord a été, de fait, obtenu pour une concentration  $x = 12\% \pm 1\%$ . Enfin les simulations reproduisent parfaitement l'évolution du dédoublement avec l'épaisseur  $t$ . Ainsi le dédoublement de chacune des lignes est beaucoup plus fin pour  $t = 355nm$  et inexistant pour  $t = 531nm$ , comme présenté expérimentalement dans la figure(6.6).

Lorsque l'épaisseur  $t$  est voisine de  $100nm$ , les profils de lignes sont identiques à ceux observés pour une couche en surface préparée par tripode : il n'y a plus de dédoublements observés et on détecte une asymétrie du profil des lignes d'excès dynamiques. Les simulations reproduisent ces observations, mais l'asymétrie des profils simulés pour  $x = 12\%$  est beaucoup moins importante que celle observée expérimentalement. Comme dans le cas des couches en surface préparées par tripode, cet effet est très peu sensible à l'état de contrainte présent dans la couche et se trouve très vite affecté par des inhomogénéités du champ de déplacement  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$  dû à la relaxation par courbure. Les parties étudiées dans ce cas sont en effet très près du trou et ce genre d'effet pourrait expliquer l'importante asymétrie observée expérimentalement. Comme dans le cas des résultats présentés dans le paragraphe(6.2.2), ces effets restent inexploitable sans un contrôle parfait de la géométrie de l'échantillon étudié.

### **6.3 Exemples d'application à la mesure de la déformation de couches épitaxiales en vue plane**

Nous venons de montrer l'influence des phénomènes de relaxation élastique sur le profil des différentes lignes présentes dans les clichés CBED étudiés. Nous savons rendre compte des phénomènes grâce à des simulations FEM associées à des simulations dynamiques TDDT. Comme dans le cas des sections transverses du paragraphe(5.5), des mesures de déformation peuvent être développées en fonction des différentes situations suivantes :

1. Cas d'une couche en surface courbée (préparation chimique et ionique). Dans ce cas un champ de déplacement inhomogène le long de la trajectoire électronique  $z$  est présent dans le substrat et produit un changement dans le profil des lignes observées. On peut remonter à la déformation initiale  $f$  de la couche en travaillant sur la simulation du profil des différentes lignes. Une combinaison de simulations FEM et de théorie dynamique TDDT

Clichés CBED simulés : proche de l'axe [105]

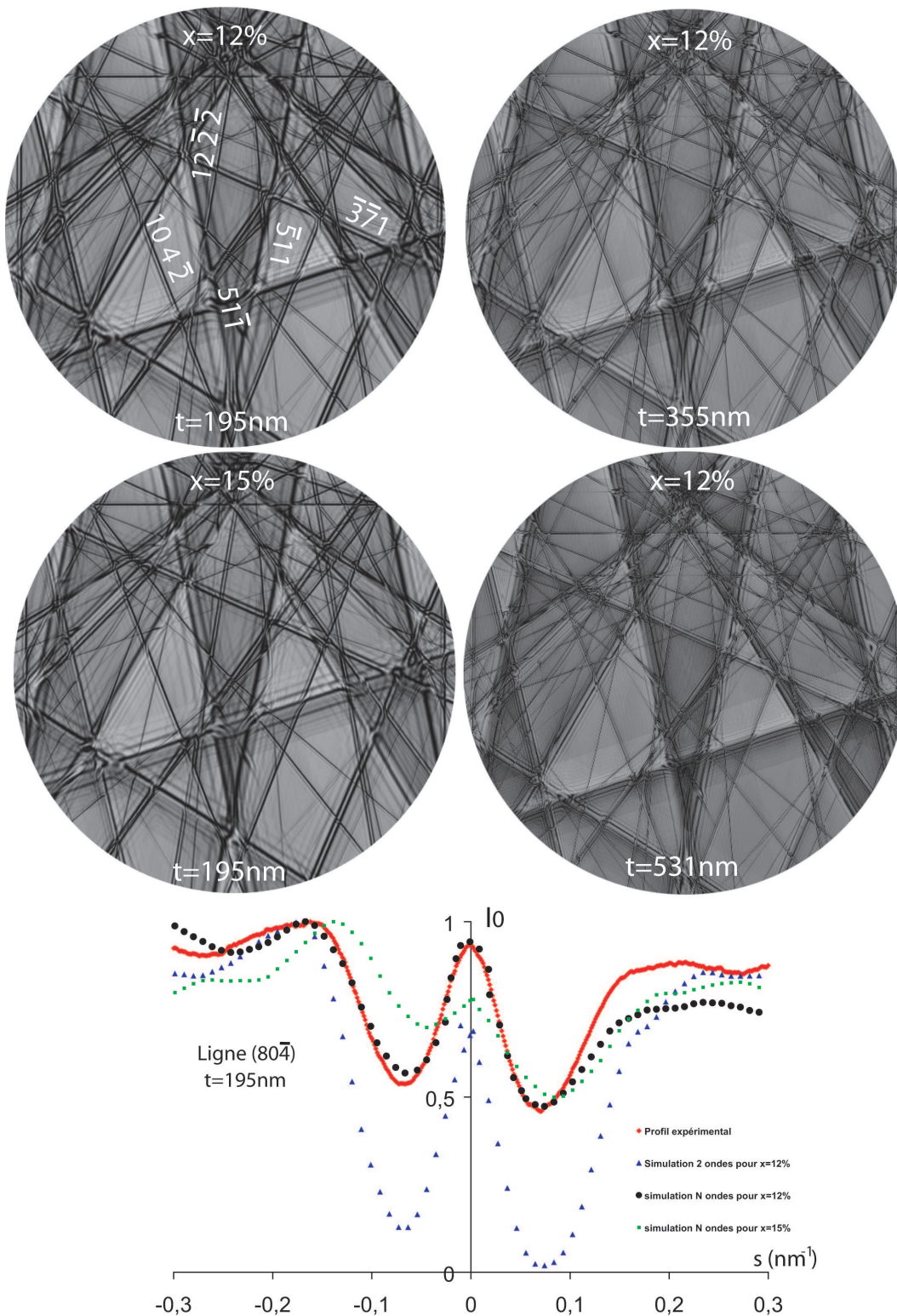


FIG. 6.16 – Simulations dynamiques TDDT des clichés CBED dans un axe de zone proche de  $[105]$  calculées pour les puits de  $GaAs(100\text{nm})/Ga_{1-x}In_xAs(10\text{nm})/GaAs$  avec différentes épaisseurs  $t$  et concentration en Indium  $x$ .

est alors nécessaire. Le principe est reporté sur la figure (6.17) appliquée pour l'exemple à la couche de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$ .

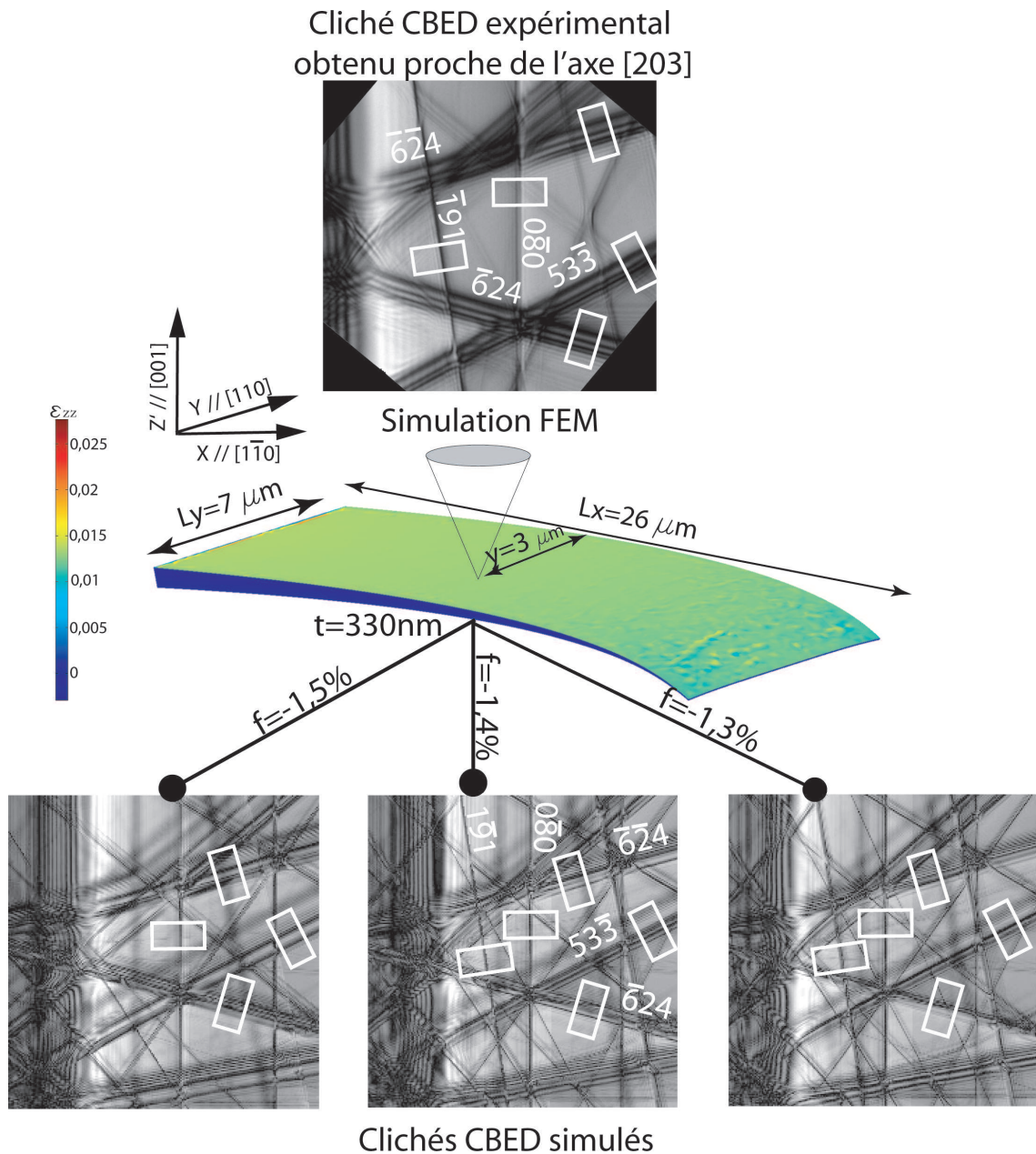


FIG. 6.17 – Principe de la nouvelle méthode permettant de remonter à l'état de déformation présent dans la couche en surface préparée par vue plane en utilisant les profils perturbés des différentes lignes de HOLZ. Une combinaison de simulations FEM et dynamiques TDDT est alors nécessaire.

Avec cette méthode une bonne précision n'est possible que si une connaissance approfondie de la géométrie de l'échantillon est obtenue. Les dimensions  $L_x$ ,  $L_y$  ainsi que la position  $y$  et l'épaisseur  $t$  de la zone analysée doivent être déterminées préalablement comme cela est reporté sur la figure(6.17). En connaissant ces valeurs on peut effectuer la simulation FEM de la distribution de la déformation dans l'échantillon étudié, et obtenir ainsi les déplacements  $\vec{u}(\vec{\rho}, z)$  le long du trajet des électrons de la zone analysée pour une déformation initiale donnée  $f$ . On simule le cliché CBED correspondant à cette déformation

$f$  et on compare les contrastes expérimentaux et simulés de différentes lignes. Cette opération est répétée pour différentes valeurs de  $f$ , puis on sélectionne celles qui donnent le meilleur accord entre les profils expérimentaux et simulés. On remonte ainsi à la déformation  $f$  initialement présente dans la couche avant amincissement comme dans le cas des sections transverses. Dans l'exemple de la figure (6.17), le meilleur accord est obtenu pour une valeur de  $f = -1,4\% \pm 0,1\%$  correspondant à une concentration en indium voisine de 20% comme cela a pu précédemment être mesuré en section transverse dans le paragraphe(5.5.1).

Si les caractéristiques géométriques de la lame ne sont pas correctement déterminées, les simulations FEM peuvent être trop éloignées de la réalité et donner de mauvais résultats. Pour cela une préparation FIB permettant de contrôler de manière très précise la géométrie de la lame est une méthode à envisager. Ce type de préparation a pu être réalisée par Martiane Cabié lors de sa thèse [5].

2. Cas d'une couche en surface plane (préparation tripode). La couche introduit un déphasage des faisceaux diffractés et est à l'origine d'une légère asymétrie de profil de certaines lignes d'excès dynamiques. On peut tenter de remonter à la déformation en travaillant sur la simulation de ce type de profils, comme cela a pu être fait au paragraphe(6.2.2). L'effet est malheureusement très peu sensible à l'état de déformation et se trouve donc facilement perturbé par des artefacts. Encore une fois, une précision suffisante ne peut être obtenue que grâce à un très bon contrôle de la géométrie de l'échantillon lors de la préparation. Ici aussi, une préparation FIB peut être une solution pour réaliser une préparation permettant ce type de mesure, bien que les artefacts du FIB (implantation d'ions) pourraient être à l'origine d'effets similaires sur les lignes dynamiques [88]. Nous restons par conséquent très sceptique sur la possibilité d'appliquer cette méthode pour des mesures précises de la déformation sur ce type d'échantillon.
3. Cas d'un puits (couche enterrée : préparation tripode). Le puits introduit un déphasage des faisceaux diffractés par les cristaux de  $GaAs$  placés de part et d'autre de la couche, qui se traduit par un dédoublement des lignes cinématiques. Cet effet varie de manière sensible avec l'épaisseur et l'état de déformation présent dans la couche. Le dédoublement est maximal lorsque les épaisseurs respectives du substrat et de la "cap layer" de  $GaAs$  sont à peu près égales. Cet effet peut être facilement simulé puisque l'échantillon n'est pas relaxé élastiquement. Des simulations N ondes sont tout de même conseillées pour reproduire le plus fidèlement possible les observations expérimentales, notamment l'asymétrie des profils. On peut ainsi remonter de manière aisée à l'état de déformation de la couche. C'est ce que nous avons fait pour le cas  $GaAs(100nm)/Ga_{1-x}In_xAs(10nm)/GaAs$  pour lequel une concentration de  $x = 12\% \pm 1\%$  a pu être déterminée.

## 6.4 Conclusion des résultats obtenus dans le cas des vues planes

Nous sommes partis du modèle du bicristal de Cherns développé au paragraphe(4.3.6) où les clichés CBED observés en vue plane étaient interprétés comme une superposition des conditions de diffraction provenant de la couche et du substrat. Nous avons commencé par montrer, qu'en raison de la très faible épaisseur  $d$  de la couche déposée comparée à l'épaisseur de substrat traversée, aucune ligne provenant de la diffraction de la couche seule ne pouvait être observée. De plus le modèle de Cherns ne prend pas en compte les processus de relaxation élastique pouvant intervenir lors de l'amincissement de l'objet.

Nos observations expérimentales nous ont permis de mettre en évidence un nouvel effet dans les couches en surface préparées par vue plane. Cet effet, lié à la relaxation des contraintes de la couche, dépend des méthodes de préparations employées. Ainsi les préparations basées

sur l'utilisation d'attaque chimique ou ionique permettent à l'objet de relaxer élastiquement la contrainte présente dans la couche en introduisant une courbure générale de la lame à l'origine du champ de déplacement inhomogène présent dans le substrat. Cet effet intervient en raison du faible angle de biseau de la structure et un clivage en lamelle des parties fines observables au microscope électronique. Le champ de déplacement inhomogène est à l'origine d'une modification des profils expérimentaux des lignes cinématiques et dynamiques. Cet effet dépend de l'épaisseur, de l'axe de zone étudié, de la géométrie de l'échantillon et de l'état de contrainte de la couche. Les lignes cinématiques peuvent parfois contenir 2, 3, etc ... minima, mais on ne peut en aucun cas interpréter ces contrastes dans le cadre du modèle de Cherns. Nous avons tiré parti de cet effet pour remonter à l'état de déformation de la couche en surface en réalisant les simulations dynamiques TDDT des clichés CBED à partir des champs de déplacements calculé par FEM. Cette méthode reste lourde et difficile à mettre en oeuvre en raison du nombre de simulations à réaliser pour obtenir une bonne précision et de la difficulté à contrôler la géométrie étudiée. Des petits écarts avec les simulations FEM peuvent alors induire des différences entre les profils simulés et expérimentaux. Nous avons par conséquent, cherché d'autres types de préparations d'échantillons qui permettraient de minimiser l'effet de relaxation élastique de la lame par courbure.

Avec des angles de biseau beaucoup plus importants sans clivage de la lame, la préparation mécanique par tripode nous a permis d'obtenir des échantillons non courbés. Dans ce cas les effets de modification de profils des lignes cinématiques, observés dans les lamelles courbées, ne sont plus présents. Les contrastes obtenus dans les clichés CBED ainsi formés correspondent à ceux d'un cristal parfait (le substrat dans ce cas). Nous avons aussi mis en évidence une asymétrie des lignes d'excès dynamiques qui est due à un déphasage  $\vec{g} \cdot \vec{u}_{ref}$ , provenant de la couche, sur les faisceaux électroniques diffractés par le substrat. Cet effet est malheureusement trop peu sensible pour pouvoir être exploité en vue de remonter au champ de déformation de la couche en surface. Par contre lorsque la couche est recouverte (le puits par exemple), le déphasage produit est introduit entre les faisceaux diffractés avant et après la couche. On observe alors un dédoublement des lignes cinématiques dont le profil est asymétrique. Ce nouvel effet, à ne surtout pas confondre avec la modification du profil des lignes cinématiques observée dans les échantillons préparés par voie chimique et ionique, est très sensible à l'état de déformation de la couche et à l'épaisseur. Il n'est, de plus, en aucun cas affecté par un champ de déplacement inhomogène le long de la direction des électrons ce qui permet ainsi de réaliser des simulations de manière beaucoup plus aisée. On peut ainsi envisager d'utiliser la théorie dynamique classique (ondes de Bloch 3D) à 2 ou N ondes.

Dans tous les cas étudiés expérimentalement et théoriquement, nous avons pu tirer parti des effets observés pour remonter à l'information voulue. Cependant, des échantillons de géométrie mieux contrôlée auraient permis un meilleur accord. La préparation FIB de ce type d'objet pourrait être une perspective pour ce travail. Dans tous les cas, les dédoublements prévus par Cherns n'ont jamais pu être observés. Une analyse d'échantillons où l'épaisseur de la couche déposée  $d$  serait de l'ordre de l'épaisseur du substrat, devrait permettre de retrouver le modèle de Cherns si l'échantillon n'est pas affecté par les processus de relaxation élastique. On pense par exemple aux échantillons de  $Ga_{0,97}In_{0,03}As(100nm)/GaAs$  étudiés en section transverse, que l'on pourrait préparer par tripode.



## Troisième partie

# Apport de la HREM et de l'Holographie électronique pour les mesures de déformation





## Chapitre 7

# HREM avec un correcteur d'aberration sphérique

### 7.1 Conditions expérimentales

Toutes les expériences de HREM et d'holographie ont été réalisées sur le TECNAI fonctionnant à  $200kV$  dans le mode microprobe de la lentille super-twin, équipé d'un FEG ( $\Delta E = 0,6eV$ ) et d'un correcteur d'aberration sphérique. Les images sont capturées par une caméra CCD  $1k \times 1k$ . Le principe du correcteur d'aberration sphérique, basé sur l'utilisation d'hexapoles introduisant un  $C_3 < 0$ , est détaillé dans l'annexe (C). On y met notamment en évidence son influence sur la résolution du microscope et sur l'atténuation de défauts classiques comme la délocalisation du contraste. Ces améliorations ont très tôt été discutées dans la littérature [103, 104].

Au cours de notre travail nous nous sommes intéressés aux nouvelles conditions d'imagerie apportées par la présence du correcteur. Ces conditions diffèrent énormément de celles fournies par un microscope électronique en transmission non corrigé et décrites au chapitre (3). En effet le contraste des images HREM "classiques" est dominé par le contraste de phase. Comme on l'a vu au chapitre (3), la fonction de transfert de contraste de phase (PCTF)  $\sin(\chi(\omega))$  est déterminée principalement par les valeurs de  $C_3 = C_s$  et de  $C_1$  pour une tension donnée ( $\chi(\omega)$  étant le terme de phase introduit par le microscope, cf. annexe(C)). Le  $C_3$  étant déterminé par les caractéristiques physiques de l'objectif, l'opérateur optimise les conditions de défocalisation  $C_1$  de façon à ce que la plus grande plage de fréquences spatiales soit transmise avec un minimum d'atténuation. Ce sont les conditions de Scherzer qui relient  $C_1$  et  $C_3$  par la relation [105] :

$$C_{1Sch} = -\sqrt{\frac{4}{3}C_3\lambda} \quad (7.1)$$

Si on reprend cette définition, la PCTF d'un microscope avec  $C_3 = 0$  et  $C_1 = C_{1Sch} = 0$  est nulle si bien que l'image n'est plus caractérisée par un contraste de phase mais par un contraste d'amplitude pur :  $\sin(\chi(\omega)) = 0$ ,  $\cos(\chi(\omega)) = 1$  [106].

Tant que l'épaisseur traversée par le faisceau d'électrons n'excède pas la distance d'extinction  $\xi_{\vec{g}}$  la plus faible parmi les  $\vec{g}$  participant à l'image, la distribution d'intensité à la sortie de l'échantillon provient du phénomène de channeling [106, 107, 108]. Les électrons sont alors fortement localisés au niveau des potentiels attractifs constituant les colonnes atomiques. Dans une image caractérisée par un contraste d'amplitude, les colonnes atomiques apparaissent alors en blanc (excès d'électrons), tandis qu'elles sont noires pour un objet fin imagé en contraste de phase.

Pour retrouver un contraste de phase on peut changer la focalisation  $C_1$  pour que la PCTF

redevienne non nulle. Dans ce cas, la correction du  $C_3$  permet d'étendre énormément la PCTF à des fréquences spatiales très grandes, en minimisant les oscillations responsables des inversions de contraste comme présenté dans l'annexe (C).

La PCTF peut aussi être étendue aux autres termes d'aberrations afin de déterminer de nouvelles conditions d'imageries. La principale aberration géométrique limitante devient maintenant l'aberration sphérique d'ordre 5,  $C_5$ . La PCTF peut se réécrire :

$$\sin \left( \left( \operatorname{Re} \left( \frac{1}{2} \omega \omega^* C_1 + \frac{1}{4} (\omega \omega^*)^2 C_3 + \frac{1}{6} (\omega \omega^*)^3 C_5 \right) \right) \right) \quad (7.2)$$

Puisque les valeurs de  $C_1$  et de  $C_3$  sont maintenant ajustables par l'opérateur, on peut trouver des conditions expérimentales permettant de compenser l'effet de  $C_5$  afin d'obtenir un contraste de phase optimal ( $\sin(\chi(\omega)) = 1$ ). On retrouve l'idée, à un ordre supérieur, qui consistait à compenser les effets de l'aberration sphérique  $C_3$  en jouant avec  $C_1$  ; la défocalisation optimale étant donnée par les conditions de Scherzer. Dans notre cas les conditions optimales de Scherzer deviennent alors [109] :

$$C_3 \approx -3,2 \sqrt[3]{\lambda C_5^2} \quad \text{et} \quad C_1 = 2 \sqrt[3]{\lambda^2 C_5} \quad (7.3)$$

Dans le cas de notre microscope, le coefficient  $C_5 = 8mm$ . Ce coefficient correspond à la valeur de la lentille objectif Super-Twin ajoutée à celle des hexapoles du correcteur. Les conditions de Scherzer sont donc données par ( $C_3 = -17\mu m$ ,  $C_1 = 7nm$ ). Ainsi on remarque que les conditions optimales d'imagerie sont données pour un coefficient d'aberration sphérique négatif et une faible surfocalisation.

Afin d'optimiser nos conditions d'imagerie, nous avons, en collaboration avec M.J. Hÿtch, calculé la distribution de phase  $\chi(\omega)$  pour différentes conditions expérimentales [110]. Le même calcul est effectué automatiquement lors des alignements du correcteur (voir annexe (C)).

Si on néglige la contribution de  $C_5$ , la plage angulaire maximale sur laquelle  $\chi(\omega)$  varie faiblement (on choisit comme critère  $\chi(\omega) < \frac{\pi}{4}$ ) est obtenue pour  $C_3 = 0$  et  $C_1 = 0$ , l'angle maximal étant  $\omega_{max} = 20mrad$ . Elle est représentée par le cercle noir sur la figure(7.1.a). On peut considérer que l'on est en contraste d'amplitude,  $\chi(\omega)$  étant suffisamment faible sur toute cette plage.

Pour retrouver un contraste de phase on peut défocaliser légèrement ( $C_1 = -2nm$  dans ce cas) jusqu'à obtenir des valeurs plus importantes de la phase ( $\chi(\omega) > \frac{\pi}{4}$ ) sur une grande plage  $\omega$ . Notons que le contraste de phase dans ce cas n'est pas optimal. De plus la plage libre de tous sauts de phase diminue très rapidement (16mrad dans ce cas) avec la défocalisation (cf. figure(7.1.b)).

Si maintenant on introduit l'effet du  $C_5$ , on retrouve bien la symétrie cylindrique dans l'évolution de la phase avec une diminution du rayon de  $20mrad$  dans le cas précédent, jusqu'à  $18mrad$  (cf. figure(7.1.c)). La phase restant très faible, l'image est toujours gouvernée par un contraste d'amplitude. De plus il est important de noter que la phase  $\chi(\omega)$  dans le cercle noir ne présente aucune grosse variation :  $\vec{\nabla} \chi(\omega) = \vec{0}$  et  $\chi(\omega) = 0$ . Ceci explique pourquoi, dans ces conditions, la délocalisation ne vient jamais affecter l'image HREM sur les fréquences spatiales contenues dans cette plage.

Enfin, intéressons-nous aux conditions de Scherzer définies précédemment pour compenser  $C_5$ . Dans ce cas la phase devient optimale  $\sin(\chi(\omega)) = 1$  et varie faiblement sur une plage  $\omega$  beaucoup plus importante ( $\omega_{max} = 25 mrad$  : cf. figure(7.1.d)). L'image est donc gouvernée par un contraste de phase. Par contre, le gradient  $\vec{\nabla} \chi(\omega)$  devient important pour certaines fréquences spatiales. De la délocalisation apparaîtra pour ces fréquences et sera gênante lors de l'étude d'objet non-périodiques, comme les interfaces des couches épitaxiées étudiées.

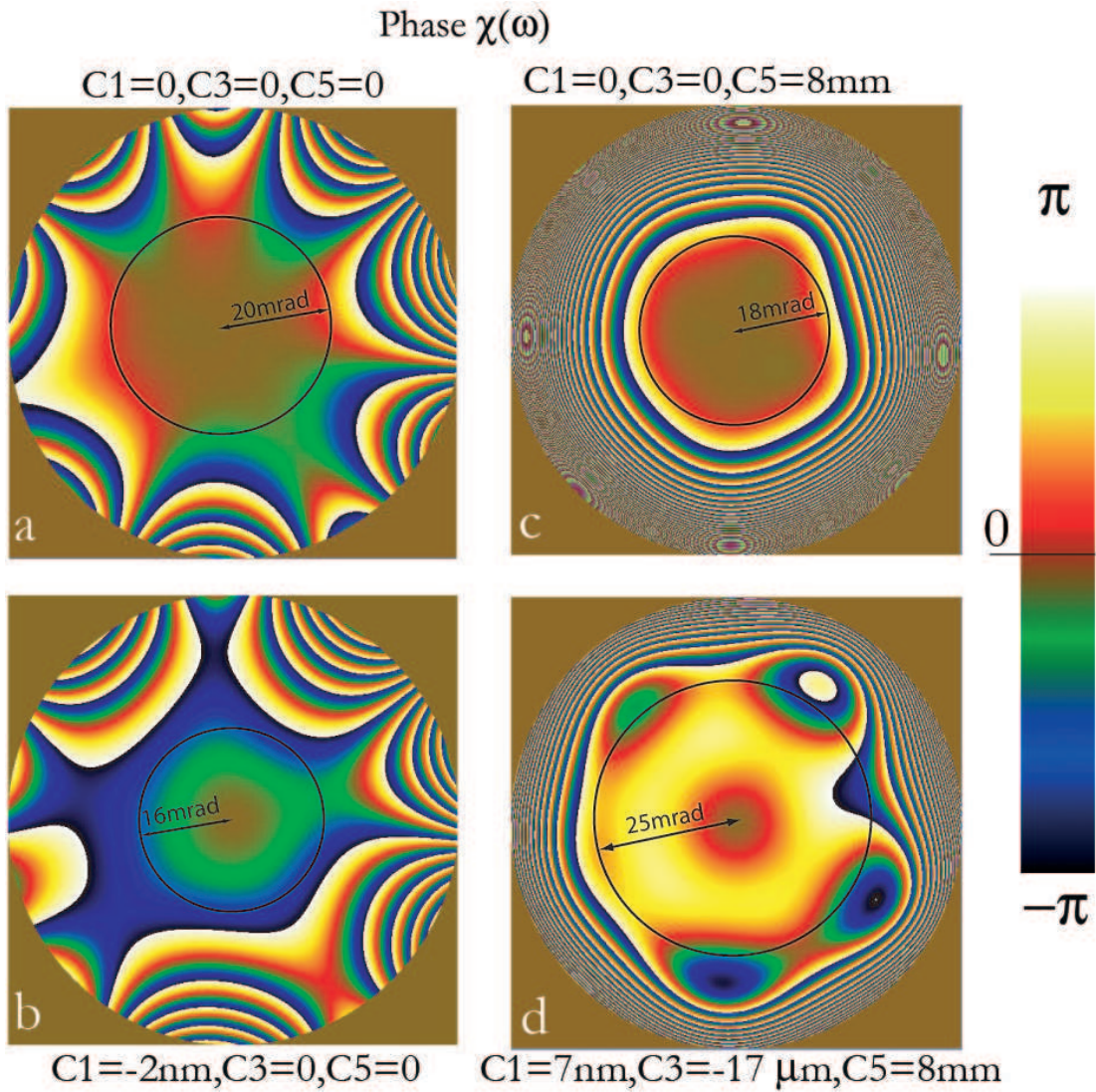


FIG. 7.1 – Phase  $\chi(\omega)$  calculée pour différentes conditions de  $C_1$ ,  $C_3$  et  $C_5$ . Les autres coefficients (détaillés en annexe C) sont :  $A_1 = 1nm$ ,  $A_2 = 16,1nm$ ,  $B_2 = 3nm$ ,  $A_3 = 1\mu m$ ,  $S_3 = 275nm$

Au cours de ce travail, nous nous sommes efforcés de privilégier le contraste d'amplitude défini par des conditions voisines de  $C_1 = 0, C_3 = 0, C_5 = 8mm$ . En effet, Chang *et al* ont montré que l'effet du  $C_5$  ne devenait important que dans le cas de très hautes résolutions, de l'ordre de 0,7 Angström pour des microscopes fonctionnant à 200kV [111].

## 7.2 Cartographie du champ de contrainte des couches épitaxiées : apport de la correction du $C_s$

La microscopie à haute résolution nous a permis d'étudier le champ de déformation des couches épitaxiées grâce à la méthode GPA. La présence du correcteur est à l'origine d'une amélioration de la précision de mesure du traitement. C'est le sujet des prochains paragraphes.

### 7.2.1 Amélioration de la précision du traitement GPA

Bien que la précision sur la détermination du champ de déplacement soit déjà très bonne, de l'ordre de  $3\text{pm}$  [1], le traitement GPA des images HREM peut être encore amélioré. En particulier, la déformation est obtenue par différenciation des déplacements (voir chapitre(3)), une opération qui amplifie le bruit de l'image [112]. Malgré cela, nous recherchons une précision spatiale toujours plus importante associée à une bonne fiabilité de mesure et à un grand champ de vue. La correction des distorsions associées au projecteur et à la caméra CCD permet déjà d'atteindre des champs de vues plus importants dans l'image analysée. La précision et la résolution peuvent être améliorées en augmentant le rapport signal sur bruit (S/N), tandis que la fiabilité de mesure est apportée en minimisant les artefacts d'images. La correction de l'aberration sphérique permet d'atteindre tout ces buts et amène même d'autres avantages.

Nous utilisons ici un cristal de silicium orienté  $[1\bar{1}0]$  préparé par tripode comme matériau test. Les images réalisées dans les conditions du paragraphe(7.1) ainsi que le traitement GPA sont reportés sur la figure(7.2).

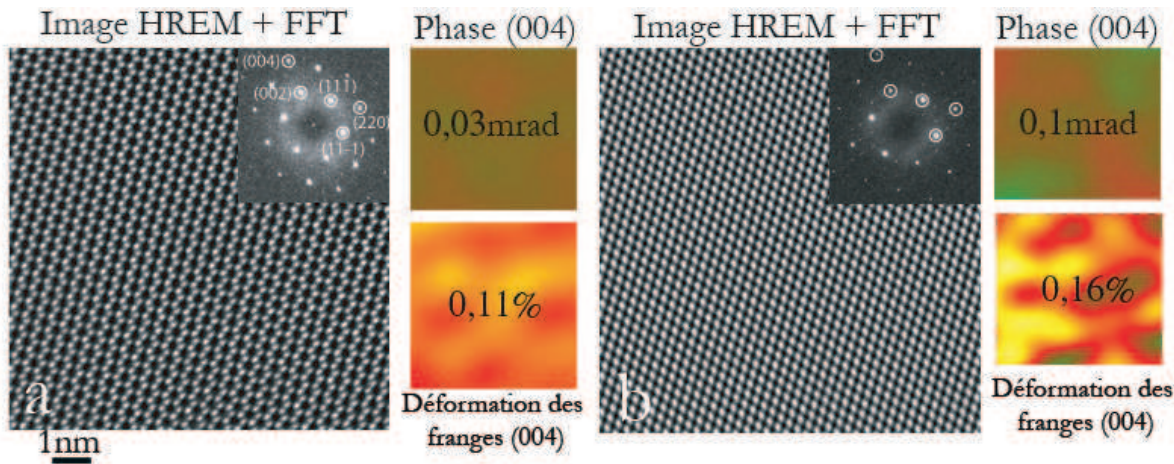


FIG. 7.2 – Analyse GPA de deux images HREM corrigées du  $C_s$  d'un échantillon de silicium observé dans l'axe  $[1\bar{1}0]$ . On y associe les images de phase des taches (004) ainsi que l'image des déformations des plans associés. Sur chacune des images on a noté la précision obtenue à partir du calcul de l'écart type. Les taches analysées sont :  $(111)$ ,  $(11\bar{1})$ ,  $(004)$ ,  $(002)$  et  $(220)$ .

La précision de mesure est intimement liée à la résolution spatiale : moyenner dans l'espace réel augmente la précision mais diminue la résolution spatiale. Les mesures sont par conséquent comparées en utilisant deux résolutions spatiales différentes de  $1\text{nm}$  et  $2\text{nm}$ , définies par le rayon du masque utilisé dans l'espace de Fourier pour effectuer le traitement GPA ( $1\text{nm}^{-1}$  et  $0,5\text{nm}^{-1}$  respectivement). L'amplitude et la phase de 5 familles de plans  $g(hkl)$  ( $(111)$ ,  $(11\bar{1})$ ,  $(004)$ ,  $(002)$ ,  $(220)$ ), leur déformation par rapport à une référence donnée par les paramètres du silicium parfait, ainsi que le champ de déformation total calculé à partir des taches  $(111)$  et  $(11\bar{1})$  ont été mesurées sur plusieurs images obtenues pour différentes conditions proches de  $C_3 = 0, C_1 = 0$ . Les résultats reportés sur la figure (7.2) présentent deux images HREM ainsi que la FFT et les taches analysées (masque de  $0,5\text{nm}^{-1}$  dans ce cas). Les deux images ne sont pas prises sur la même zone et avec les mêmes conditions. Dans l'image (a), on observe ainsi parfaitement les "dumbbells" du silicium ce qui n'est plus le cas dans l'image (b). Les images de phase ainsi que l'image de la déformation des franges (004) y sont aussi présentées pour les deux clichés HREM en considérant une résolution spatiale de  $2\text{nm}$ . La précision donnée sur les traitements est déterminée à partir de l'écart type de l'image considérée (image de phase,

Frange (hkl)	$d_{hkl}$	Pr à 1nm	Pr à 2nm	déformation	Pr à 1nm	Pr à 2nm
(111)	0,314nm	0,29%	0,12%	$\epsilon_{xx}$	0,25%	0,10%
(11 $\bar{1}$ )	0,314nm	0,23%	0,09%	$\epsilon_{yy}$	0,33%	0,15%
(002)	0,272nm	0,48%	0,16%	$\epsilon_{xy}$	0,21%	0,08%
(220)	0,192nm	0,35%	0,12%	$\delta_{xy}$	0,20%	0,08%
(004)	0,136nm	0,42%	0,15%	$\omega_{xy}$	0,13°	0,06°

FIG. 7.3 – Précision (notée Pr) sur la mesure de la déformation des franges ( $hkl$ ) et sur la détermination du tenseur 2D  $\epsilon$  pour des résolutions spatiales de 1nm et 2nm.  $\delta_{xy}$  représente la dilatation moyenne  $\frac{\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}}{2}$ .

déformation, etc ...). Ces analyses ont été répétées sur plusieurs images HREM. La moyenne des différentes mesures est reportée dans le tableau(7.3).

Dans les images HREM non corrigées, les franges (111) donnent toujours les meilleurs résultats. Les fréquences spatiales élevées possèdent en effet une très mauvaise précision : typiquement 2,1% pour les (004) et 0,3% pour les (111) calculées pour 2nm de résolution spatiale à partir d'images du même échantillon de silicium prises au CM30.

Dans notre cas, on remarque que la précision reste bien meilleure pour toutes les franges même pour des fréquences spatiales élevées. Le cas particulier de l'image (a) de la figure (7.2) est intéressant puisqu'on remarque que la précision obtenue à partir de la déformation des franges (004) est même meilleure que celle obtenue avec les franges (111) : 0,11% pour (004) et 0,13% pour (111) à 2nm de résolution spatiale. Cette particularité n'est pas retrouvée dans l'image(b) où les précisions, malgré tout excellentes, sont 0,16% pour (004) et 0,12% pour (111). Nous attribuons cette différence à la présence des "dumbbells" du silicium dans l'image(a) qui améliore le rapport S/N obtenue avec la tache (004) [113].

La correction de l'aberration sphérique permet d'atteindre une précision de 0,1% sur la mesure des composantes du tenseur de déformation, pour une résolution spatiale de 2nm. Cette précision est bien supérieure à tout ce qui peut être obtenu à partir d'images HREM prises sur un microscope conventionnel [114]. Des expériences associées nous suggèrent que l'augmentation du rapport S/N observée est apportée par l'amélioration du contraste des images corrigées plutôt que par une diminution du bruit. Sur de telles images, on peut effectuer des traitements de Fourier sur des fréquences spatiales élevées (plus que 0,13nm) ce qui permet par la suite de travailler avec un choix d'axes de zone plus important. Le prochain paragraphe présente les mesures effectuées sur les échantillons de  $SiGe/Si$  précédemment étudiés par CBED dans le chapitre(5).

### 7.2.2 Application à l'étude des couches de $SiGe/Si$ : comparaison avec les résultats CBED

La couche analysée correspond à  $Si_{0,3}Ge_{0,7}(27nm)/Si$  préparé par tripode en section transverse et observée dans l'axe  $[1\bar{1}0]$ . La géométrie a précédemment été décrite dans la figure(5.4). L'image obtenue ainsi que le traitement GPA associé sont reportés dans la figure(7.4). Les distorsions introduites par les projecteurs et la caméra CCD sont retirées grâce à l'image d'un échantillon de silicium non déformé obtenues dans les mêmes conditions (cf. paragraphe(3.1.2)).

La résolution de l'image étant suffisante, on s'intéresse à l'analyse du déplacement des franges (004) permettant d'accéder à la déformation hors plan  $\epsilon_{ref}^{xx}$  par rapport à une référence prise dans le substrat loin de l'interface. Les notations ont été préalablement définies au chapitre(3.1.2). On mesure une déformation moyenne dans la couche de  $\epsilon_{ref}^{xx} = 1,7\% \pm 0,11\%$

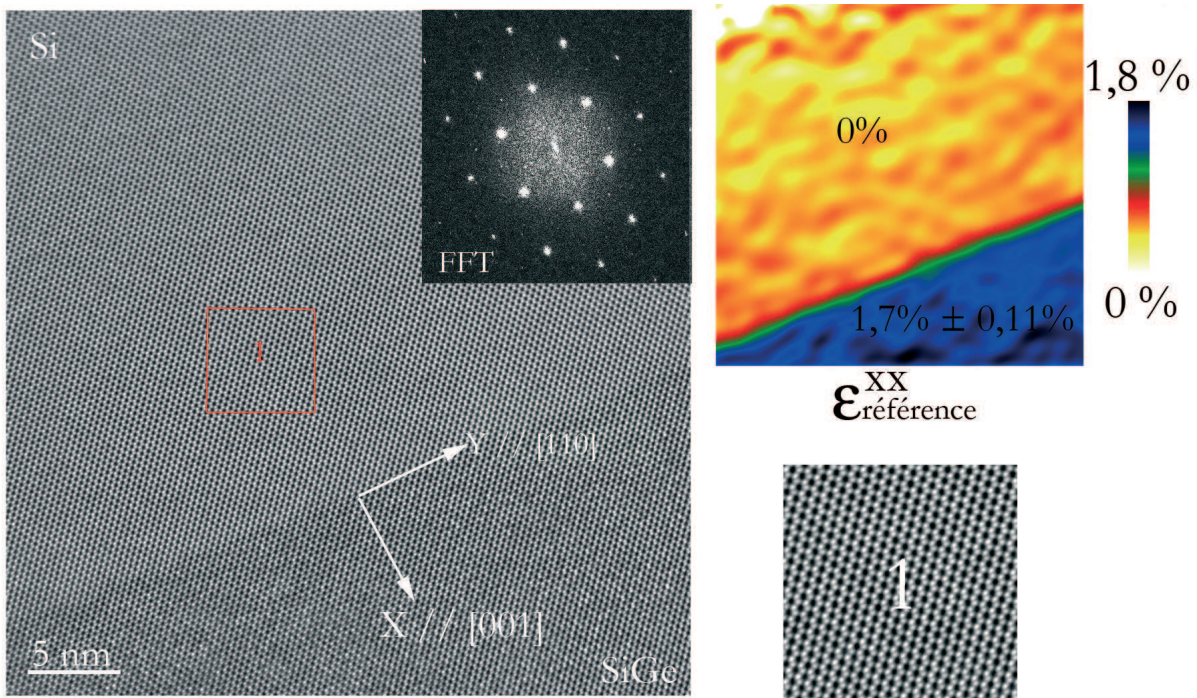


FIG. 7.4 – Image HREM d'un échantillon de  $Si_{0,3}Ge_{0,7}(27nm)/Si$  observé selon  $[1\bar{1}0]$ . On a représenté la déformation des franges (004) par rapport à une référence prise dans le substrat pour une résolution spatiale de  $2nm$ .

pour une résolution spatiale de  $2nm$ . Sachant que le désaccord paramétrique entre les deux matériaux est de  $f = -1,2\%$ , la déformation hors plan dans la couche est donc de  $\epsilon_{xx} = 0,5\% \pm 0,11\%$  (cf. formule(3.13)). Si l'on considère une déformation biaxiale pseudomorphe, la déformation théorique attendue est de  $\epsilon_{ref}^{xx} = 2,1\%$  et  $\epsilon_{xx} = 0,9\%$ . Une telle différence entre la mesure et la théorie peut s'expliquer par la présence de relaxation élastique dans la direction d'amincissement  $[1\bar{1}0]$ . En effet, grâce aux expériences de CBED présentées au chapitre(5), nous avons pu mettre en évidence ce phénomène sur les couches de  $SiGe/Si$  et  $GaInAs/GaAs$ . En particulier, nous avons montré que pour des épaisseurs  $t$  traversées suffisamment faibles (typiquement  $t \leq d$ ), la couche épitaxiée pouvait retrouver son paramètre massif dans la direction d'amincissement. La couche subit donc une relaxation uniaxiale totale dans cette direction. Dans le cas de la haute résolution, les épaisseurs traversées restent en effet très faibles. Sachant que les conditions d'imagerie, en particulier  $A_1, C_1, C_3$ , etc ..., sont calculées de manière très précises par le correcteur, nous avons estimé l'épaisseur  $t$  à partir des images de silicium simulées par multislice avec le logiciel JEMS [26]. Les coefficients introduits ainsi que le résultat des simulations sont reportés sur la figure(7.5). L'épaisseur déterminée est voisine de  $t = 10nm$ .

A partir de cette épaisseur, des simulations FEM 2D ont été réalisées dans les mêmes conditions que celles introduites au chapitre(5.2). Les résultats sont aussi reportés sur la figure(7.5). La couche apparaît relaxée uniaxialement et le substrat semble être partiellement relaxé jusqu'à une profondeur de  $x_s = 10nm$  sous l'interface. La zone de référence utilisée pour calculer l'image des déformations  $\epsilon_{ref}^{xx}$  étant située autour de  $x_s = 20nm$ , on peut la considérer comme non affectée par le processus de relaxation élastique. A partir des déplacements calculés par les simulations FEM, on a déterminé la déformation  $\epsilon^{xx} = 0,44\%$ , ce qui est en accord avec la valeur donnée par l'analyse GPA.

Comme en CBED, les mesures quantitatives de déformation réalisées à partir d'images HREM

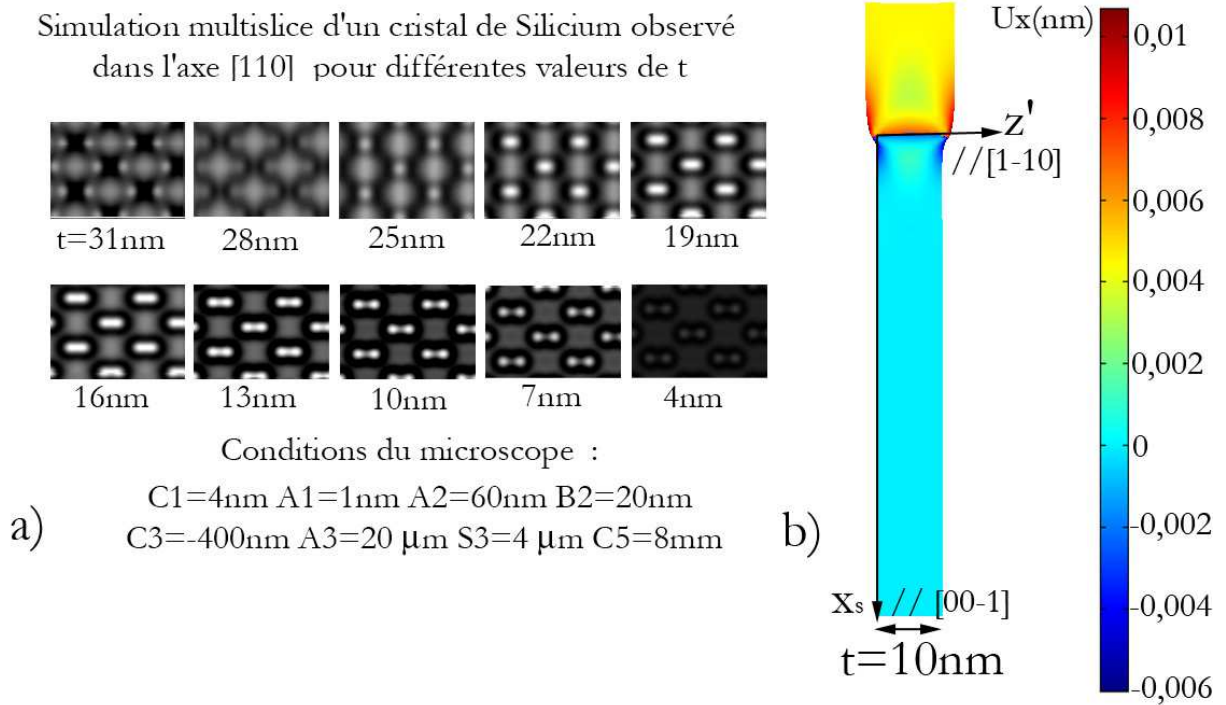


FIG. 7.5 – a) Simulations multislices réalisées pour un cristal de silicium observé dans l'axe  $[1\bar{1}0]$  avec différentes épaisseurs traversées  $t$ . On ne retrouve les dumbells que pour des épaisseurs proches de  $t = 10\text{nm}$ . b) Simulation FEM 2D de la composante  $u_x$  du champ de déplacement  $\vec{u}$  présent dans la couche épitaxiée de  $Si_{0,7}Ge_{0,3}/Si$  pour  $t = 10\text{nm}$  ( $\times 50$ ).

semblent donc très affectées par la relaxation introduite lors de l'amincissement. La principale différence entre les deux techniques provient des épaisseurs  $t$  mises en jeu lors de l'observation. Dans le cas de la haute résolution  $t$  doit être très faible si bien qu'une grosse partie de la couche se trouve totalement relaxée dans la direction  $[1\bar{1}0]$ , ce qui n'était pas le cas en CBED. L'image HREM n'est donc pas ou peu affectée par la relaxation de surface.

### 7.3 Contraste chimique observé dans une image HREM $C_s$ -corrigée ?

Nous avons montré que la correction de l'aberration sphérique offre de nouvelles possibilités intéressantes pour la caractérisation de couches épitaxiées à l'échelle atomique. En plus de ces précieux avantages, Jia *et al* [115] ont démontré la possibilité de distinguer dans une image HREM corrigée des atomes légers comme l'oxygène. Une variation de la composition chimique locale engendrant un gradient de déformation, nous avons cherché à exploiter un contraste chimique dans les images HREM corrigée du  $C_s$ .

La figure (7.6) présente un agrandissement d'une zone de la couche et du substrat observée dans l'image HREM de la figure (7.4). De manière très surprenante, on note une différence dans les fluctuations du contraste observé dans les deux zones. Alors que le contraste des dumbells observés dans le substrat de silicium semble constant dans toute l'image, un nombre aléatoirement positionné de points brillants est observé dans la couche de  $SiGe$ . Afin de quantifier cette différence, nous avons réalisé un histogramme des intensités relatives observées dans chacune des deux régions. Pour cela on recherche le maximum d'intensité  $I_{point}$  de chaque point blanc dans



## Détail de l'image HREM

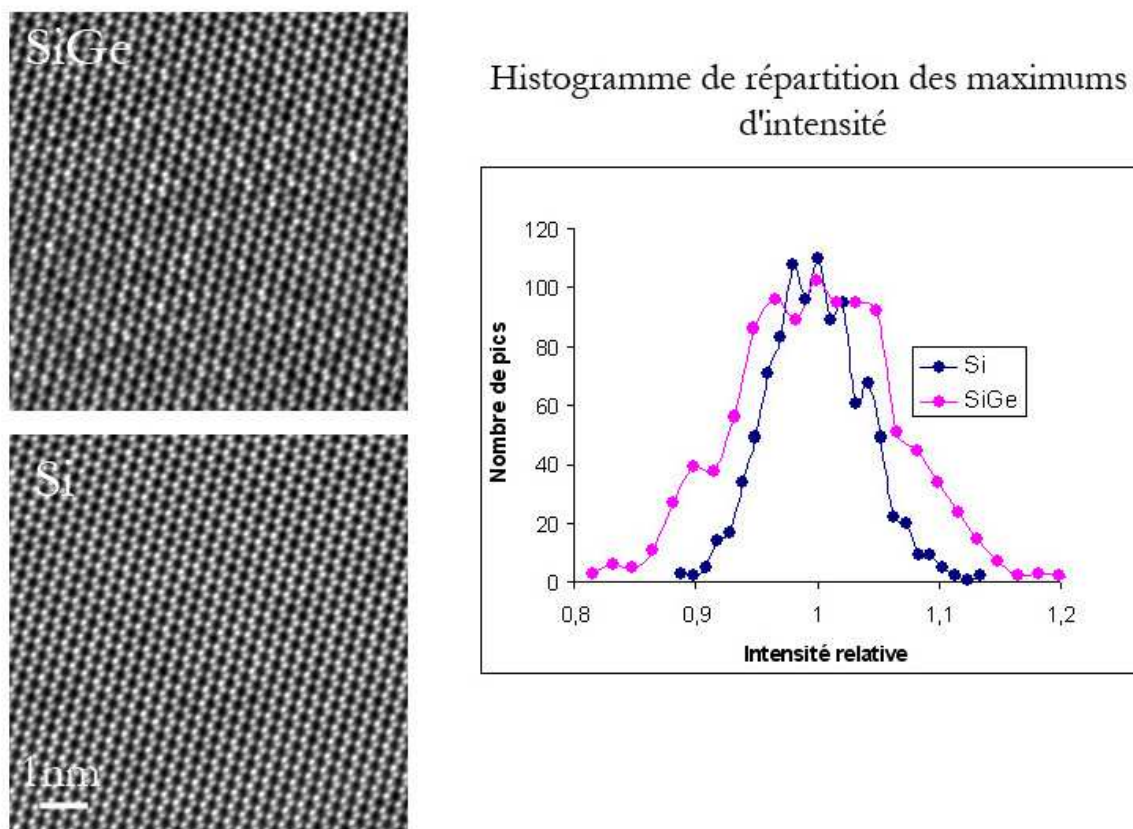


FIG. 7.6 – Détail de la couche et du substrat observé dans l'image HREM de la figure(7.4). Histogramme mettant en évidence une différence de 70% sur les fluctuations d'intensité observées dans la couche et dans le substrat.

l'image et on le divise par l'intensité moyenne  $I_{moy}$  de la région considérée pour obtenir l'intensité relative de chaque point :  $I_{rel} = \frac{I_{point}}{I_{moy}}$ . L'histogramme trace le nombre de points blancs ayant la même intensité  $I_{rel}$ . Ce petit calcul montre une différence de 70% sur la largeur à mi-hauteur entre les fluctuations observées dans la couche et dans le substrat. Les images expérimentales ont ensuite été comparées à des images simulées.

Afin de modéliser le cristal, on superpose  $n$  tranches de fine épaisseur dans la direction d'observation  $z$ . Chacune des tranches est modélisée par une supermaille avec une répartition binomiale de 30% d'atomes de germanium placés au hasard. Ainsi, lors du calcul multislice chaque tranche traversée ne contiendra pas la même répartition d'atomes de germanium et on reproduit la répartition chimique au hasard des atomes de germanium dans la couche de  $Si_{0,7}Ge_{0,3}$ , quelle que soit l'épaisseur de la couche simulée [116]. Les conditions d'imagerie utilisées ainsi que l'épaisseur traversée  $t$  sont reportées sur la figure (7.5). Les simulations de la couche et du substrat sont présentées dans la figure (7.7).

Ces premières simulations reproduisent la différence de contraste entre les colonnes atomiques des dumbbells observées dans la couche de  $Si_{0,7}Ge_{0,3}$ , ce qui suggère bien la présence d'un contraste chimique dans l'image HREM de la figure(7.6). Toutefois, comme dans toute analyse d'images HREM, il faut être prudent car d'autres interprétations peuvent être possibles. Ainsi, le calcul ne prend pas en compte les distorsions introduites par l'atome de germanium inséré

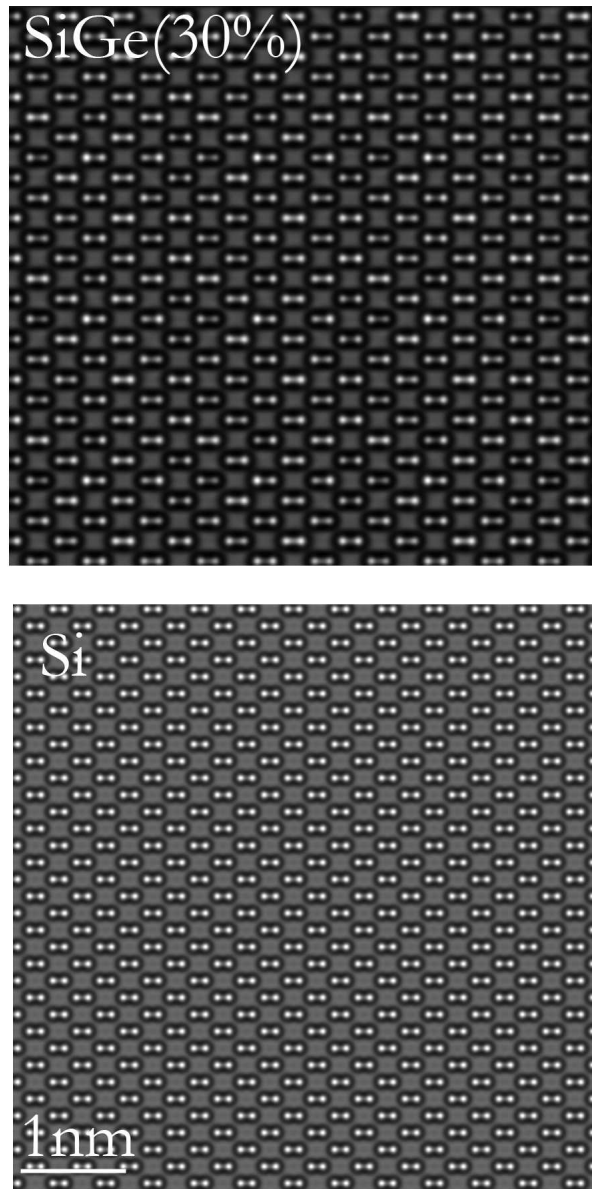


FIG. 7.7 – Simulations multislice réalisées avec le logiciel JEMS, des images HREM de la couche de SiGe contenant 30% de Germanium et du substrat orientés dans la direction  $[1\bar{1}0]$ .

dans la colonne de silicium. Les simulations de la couche ayant été réalisées avec le paramètre du  $Si_{0,7}Ge_{0,3}$ . Enfin le contraste pourrait aussi être interprété par la présence de lacunes dans les colonnes ou même de rugosité de surface [116]. Dans le cadre de ce travail, nous nous sommes limités à cette première analyse, sa poursuite nécessitant de traiter un ensemble d'images. En particulier, il faudra réaliser le même traitement sur les simulations.

## 7.4 Discussion

Nous avons développé dans cette partie l'apport du correcteur d'aberration sphérique sur les conditions d'acquisition ainsi que le traitement des images HREM. Ainsi les conditions utilisées dans nos observations, caractérisées par  $C_1 \approx 0$  et  $C_3 \approx 0$ , sont à l'origine d'un contraste

d'amplitude des colonnes atomiques et d'une augmentation du rapport S/N associé aux différentes séries de franges formant l'image. Nous avons montré que l'on pouvait alors sensiblement améliorer la précision du traitement GPA des images HREM. Ces différentes améliorations nous ont permis de déterminer le champ de déformation d'une couche de  $Si_{0,7}Ge_{0,3}(27nm)/Si$  déjà étudiée par CBED. On observe notamment un effet de relaxation élastique de la contrainte épitaxiale par les surfaces libres le long de la direction  $[1\bar{1}0]$  déjà décrit lors des observations CBED. En couplant ces observations à des simulations FEM, nous avons montré qu'en raison des épaisseurs  $t$  utilisées en HREM, la couche subit une relaxation uniaxiale totale dans cette direction. Enfin, nous avons suggéré la possibilité d'exploiter un contraste chimique dans les images HREM, ce qui pourrait s'avérer utile pour interpréter des variations locales de la déformation aux interfaces.

## Chapitre 8

# Applications de l'holographie électronique

### 8.1 Combinaison des informations structurales et chimiques : cas des couches $SiGe/Si$

L'holographie électronique HREM offre la possibilité de combiner une analyse GPA de la bande centrale pour remonter au champ de déformation de manière classique, à celle réalisée sur la tache (000) de la bande latérale porteuse de l'information chimique contenue dans le potentiel  $V_0$  [65, 66, 68, 64]. A titre d'exemple nous avons appliqué cette démarche à l'échantillon  $Si_{0,7}Ge_{0,3}/Si$  déjà étudié au paragraphe (7.2.2) en HREM et (5.1.1) en CBED. Les principales étapes sont illustrées sur la figure (8.1). Les conditions d'imagerie (microscope et orientation de l'échantillon) sont les mêmes que dans la partie précédente, la tension du biprisme est voisine de  $U = 160V$ . Une illumination elliptique est utilisée pour optimiser la cohérence dans la direction perpendiculaire à l'interface (cf. chapitre (3.2)) et l'axe du biprisme est placé perpendiculairement à l'axe du porte objet pour minimiser l'influence des vibrations [63]. De plus, l'axe du fil n'est pas parfaitement orienté parallèlement à l'interface afin d'éviter une superposition de la fréquence  $\vec{q}_c$  de la bande latérale avec une des fréquences spatiales lointaines de la bande centrale comme  $\vec{g}_{004}$ .

On détermine le champ de déformation  $\epsilon$  à partir d'une analyse combinée des taches (111) et ( $\bar{1}\bar{1}1$ ) de la bande centrale. On retire les distorsions des projecteurs, de la caméra CCD et du biprisme en utilisant un échantillon de silicium non déformé pour l'analyse des taches de la bande centrale et un hologramme de référence pour les analyses réalisées sur la tache (000) de la bande latérale.

Le traitement de la tache (000) de la bande latérale permet de remonter à la phase du faisceau d'électrons transmis qui peut simplement s'écrire sous la forme :  $C_E V_0 t$ . On calcule la phase par rapport à une référence prise dans le substrat de silicium dont on connaît le potentiel  $V_{0Si} = 12V \pm 0,1V$  [63, 65]. L'image de phase ainsi obtenue est reportée dans la figure(8.1) où l'on observe clairement un saut de phase à l'interface caractéristique du changement de matériau. Afin de relier ce saut à une information chimique, il est nécessaire de prendre plusieurs précautions. En effet, l'épaisseur traversée  $t$  influence beaucoup l'évolution de la phase. Ainsi, afin d'éviter une différence d'épaisseur entre les zones analysées dans le substrat et dans la couche, celles-ci sont prises très proches de l'interface (zones ref et 1 reportées sur la figure(8.1)). On ne s'occupe donc que du saut, sans regarder l'évolution de la phase dans le reste de la couche et du substrat. On considère, par conséquent,  $t$  comme constant entre la zone de référence dont la phase s'écrit  $P_{000ref} = C_E V_{0Si} t$  et la couche de SiGe à l'interface  $P_{000couche} = C_E V_{0SiGe} t$ . Le saut de phase observé correspond donc à l'expression :

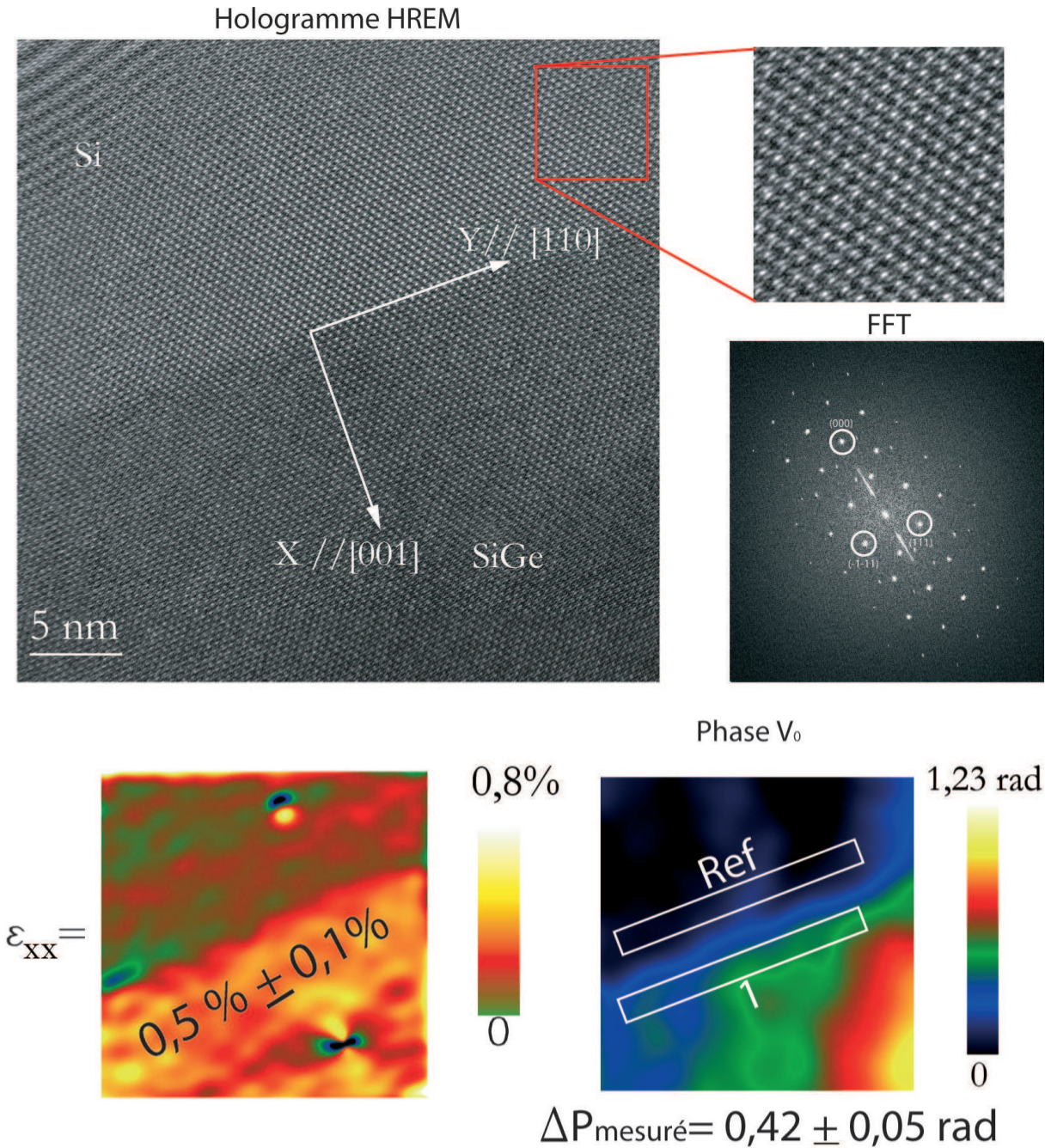


FIG. 8.1 – Hologramme HREM d'une couche de  $Si_{0,7}Ge_{0,3}(27nm)/Si$  observée dans l'axe  $[1\bar{1}0]$  et préparée par tripode. On y associe la FFT ainsi que l'image de phase réalisée à partir de la tache (000) de la bande latérale et le tenseur  $\epsilon$  calculé grâce à l'analyse combinée des taches (111) et  $(\bar{1}\bar{1}1)$ .

$$P_{000\text{couche}} - P_{000\text{ref}} = C_{Et}(V_{0SiGe} - V_{0Si}) = \Delta P \quad (8.1)$$

En théorie,  $\Delta P$  dépend uniquement du saut de potentiel entre la couche et le substrat et de l'épaisseur  $t$ . La géométrie en biseau de l'échantillon tripode a précédemment été décrite dans la figure(5.4). Une variation linéaire de l'épaisseur de type  $t = \alpha y$  est donc observée à

partir du bord de l'échantillon ( $y$  étant l'axe perpendiculaire à  $x_s$ ). Afin de déterminer la pente  $\alpha$  du biseau nous avons réalisé des pointés CBED en différents points le long de l'axe  $y$  pour des distances  $x_s$  dans le substrat de silicium prises au-delà de la zone de perturbation introduite par la relaxation élastique. Les mesures d'épaisseur sont réalisées à partir de la ligne dynamique (004) en utilisant la méthode de Kelly et Allen [24]. On trouve un angle de biseau  $\beta = 25^\circ$  ce qui permet de calculer l'épaisseur  $t$  de la zone analysée se situant à  $y = 100nm$  du bord :  $t \approx 47nm \pm 3nm$ . Cette épaisseur reste très importante pour des observations haute résolution. Grâce au correcteur, les images obtenues demeurent cependant exploitables pour une analyse GPA.

On mesure un saut de phase de  $0,42 \pm 0,05rad$  pour une résolution spatiale de  $2nm$ . On remonte par la suite au potentiel  $V_{0SiGe}$  présent dans la couche  $V_{0SiGe} = 13,2 \pm 0,3V$  pour une résolution spatiale de  $2nm$ . La détermination du potentiel interne par holographie électronique a été très étudiée dans la littérature [63, 73, 65, 117, 66, 118]. L'influence des effets dynamiques sur la détermination du potentiel  $V_0$  y est largement exposée. On montre ainsi que la phase peut évoluer de manière non linéaire pour des hologrammes observés dans certains axes de zone. Cet effet devient très important lorsque l'épaisseur  $t$  se rapproche de la distance d'extinction  $\xi_g$  la plus faible des faisceaux participant à l'image. Ainsi Gadjarziska-Josifovska *et al* [65] ont montré qu'une correction dynamique devait être prise en compte lors des simulations du potentiel  $V_0$ . Nous avons donc effectué les simulations multislice des hologrammes grâce au logiciel JEMS [26] permettant ainsi une prise en compte des effets dynamiques. Pour cela, on commence par décrire le système couche (SiGe)-substrat(Si) par une supermaille. Les sites atomiques ont un taux d'occupation de  $x$  en germanium et  $(1-x)$  en silicium. Par ailleurs, le paramètre cristallin est pris égal à celui du silicium. Le calcul complet de l'hologramme HREM est ensuite obtenu pour différentes concentrations en germanium. Les différentes valeurs des coefficients d'aberration du microscope introduites dans le calcul étant données par le correcteur, on peut valider l'épaisseur mesurée  $t \approx 47nm$  en comparant le contraste simulé avec l'image expérimentale. Le résultat des simulations ainsi que les différentes conditions utilisées sont reportés dans la figure(8.2). Afin de calculer le saut de phase ainsi que le potentiel, on effectue un traitement GPA de la tache (000) de la bande latérale calculée à partir des simulations multislices, la zone de référence étant toujours prise dans le substrat de silicium. Les images de phase ainsi calculées sont présentées sur la figure(8.2) et peuvent être directement comparées à l'image de phase expérimentale de la figure(8.1) et traduites en terme de concentration de germanium. On estime ainsi la concentration en germanium à  $Ge = 34\% \pm 5\%$  pour une résolution spatiale de  $2nm$ . L'incertitude sur la concentration provient des erreurs de mesure estimées à  $(0,05rad)$  pour la phase et  $(3nm)$  pour l'épaisseur.

L'avantage, ici, est de pouvoir coupler ce résultat à la détermination du champ de déformation 2D  $\epsilon_{ref}$  calculé grâce au traitement GPA des taches (111) et ( $\bar{1}\bar{1}1$ ) de la bande centrale par rapport à une référence prise dans le silicium loin de l'interface. En connaissant le désaccord paramétrique  $f$ , on remonte au tenseur des déformations réel du matériau  $\epsilon$  présenté dans la suite. Une détermination de la déformation à partir des franges (004) donne dans ce cas une très mauvaise précision en raison du faible rapport S/N associé à cette tache. Les résultats obtenus pour une résolution spatiale de  $2nm$  sont présentés dans la figure(8.1). On mesure une déformation hors plan  $\epsilon_{xx} = 0,5\% \pm 0,1\%$  avec  $2nm$  de résolution spatiale, au lieu des  $0,9\%$  attendus dans l'hypothèse d'une croissance pseudomorphe sous contrainte biaxiale et pour une concentration de  $Ge = 30\%$ . Cette différence est une fois de plus explicable grâce à la relaxation élastique de la contrainte épitaxiale par les surfaces libres. Les simulations FEM 2D introduites au paragraphe(7.2.2) et présentées dans la figure(7.5) permettent de calculer une déformation hors plan  $\epsilon_{xx} = 0,47\%$  pour une concentration en germanium de  $30\%$ . On retrouve donc les mêmes conclusions que celles obtenues lors de l'analyse de la tache (004) présentée au paragraphe(7.2.2). L'avantage est ici apporté par l'information chimique directement traitée sur

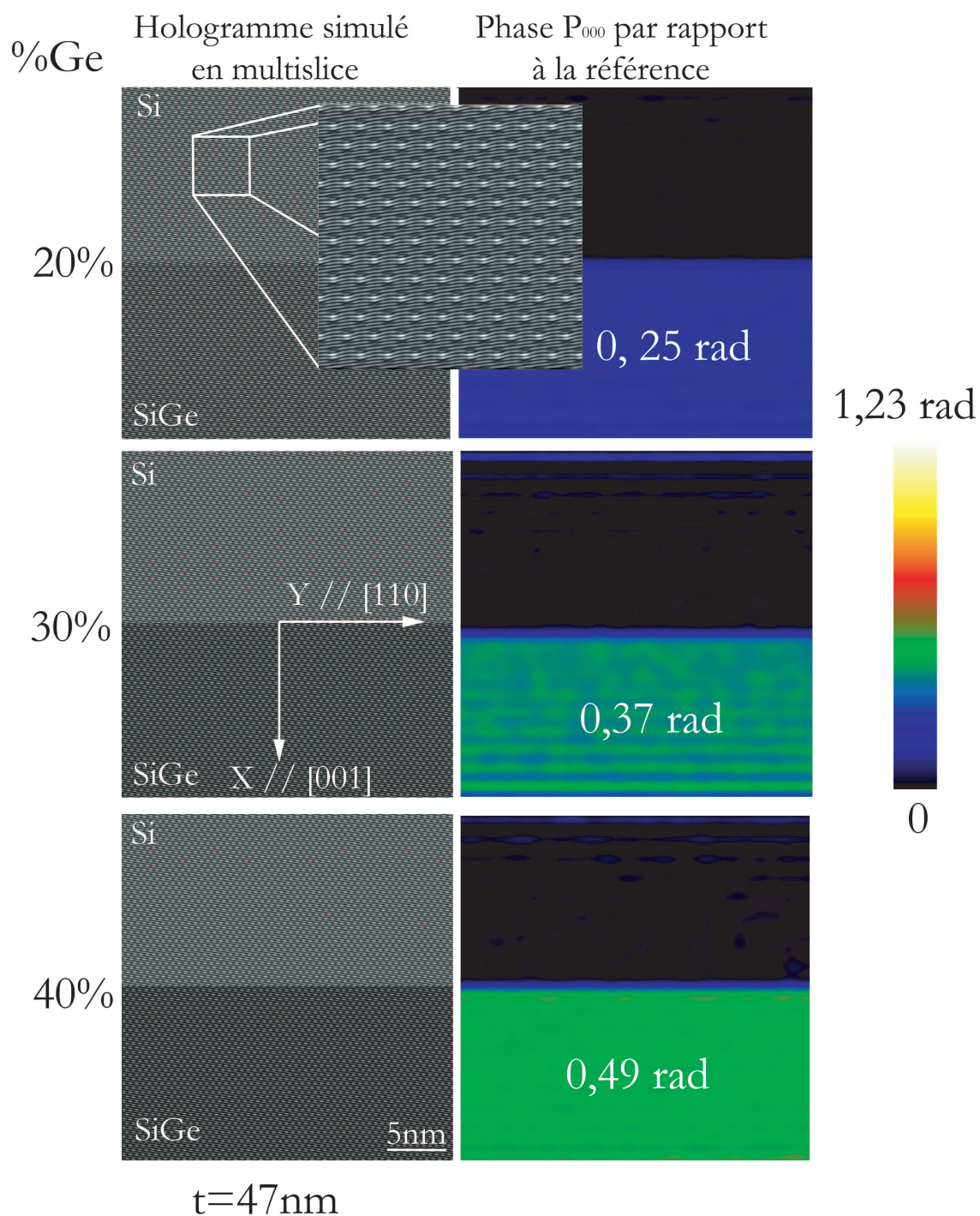


FIG. 8.2 – Simulations multislices, en fonction de la concentration en germanium, des hologrammes HREM du système de la figure(8.1). Les conditions d'imagerie utilisées sont :  $A_1 = 2 \text{ nm}$   $C_1 = 6 \text{ nm}$   $B_2 = 20 \text{ nm}$   $C_3 = -600 \text{ nm}$   $A_2 = 60 \text{ nm}$   $A_3 = 20 \mu\text{m}$   $S_3 = 4 \mu\text{m}$   $C_5 = 8 \text{ mm}$ . On reporte les images de phases obtenues après le traitement GPA de la tache (000) de la bande latérale avec une zone de référence prise dans le substrat de Silicium. Le saut de phase ainsi calculé  $\Delta P_{mesur}$  est inscrit sur chacune des images correspondantes.

la même zone d'analyse. Celle-ci reste, pour le moment, localisée à l'interface ce qui ne permet pas de distinguer d'éventuels gradients de concentration avec la profondeur sous l'interface. Une mesure du champ de déformation peut être effectuée avec une meilleure précision grâce à un traitement GPA des taches contenues dans les bandes latérales de l'hologramme HREM d'un cristal centrosymétrique. La bande latérale devenant dans ce cas beaucoup plus séduisante que la bande centrale puisqu'elle combine à la fois les informations chimiques et structurales. Le développement théorique et l'application de ce nouveau traitement de la bande latérale sont le sujet du prochain paragraphe.

## 8.2 Traitement des taches de la bande latérale d'un hologramme HREM d'un cristal centrosymétrique

Nous allons ici nous concentrer sur le traitement des taches de la bande latérale d'un hologramme HREM. Chaque tache  $\vec{g}$  est porteuse de l'information relative au potentiel  $U_{\vec{g}}$  multiplié par l'épaisseur [79]. Dans un premier temps, nous allons démontrer la présence de la phase géométrique de type  $\vec{g} \cdot \vec{u}$  dans la phase de chacune des taches  $\vec{g}$  de la bande latérale. Dans le cas de cristaux centrosymétriques cette information peut être récupérée après avoir retiré les termes provenant du potentiel  $U_{\vec{g}}$ . Le principe de ce traitement sera développé sur l'exemple d'un échantillon de  $Si_{0,7}Ge_{0,3}(27nm)/Si$  étudié au paragraphe précédent.

### 8.2.1 Introduction théorique

On ne s'intéresse ici qu'au cas de cristaux centrosymétriques pour lesquels  $U_{-\vec{g}} = U_{\vec{g}}$ . Le développement est réalisé dans le cadre du formalisme quantique unifié de la théorie dynamique présenté dans le paragraphe(2.3.3). Dans ce cadre la fonction d'onde à la sortie du cristal peut s'écrire :

$$|\psi\rangle = \phi_q |\vec{q}\rangle \quad \text{avec} \quad \phi_q = \langle \vec{q} | \mathcal{U}(z, 0) | 0 \rangle \quad (8.2)$$

En holographie HREM, comme en HREM, nous ne considérerons que les termes provenant de la ZOLZ dans le potentiel  $U^0(\vec{\rho}) = \sum_g U_g e^{i\vec{g} \cdot \vec{\rho}}$ , l'influence des HOLZ étant négligeable [15]. Dans ces conditions, l'hamiltonien du système s'écrit :

$$2k_z H = -\nabla_{x,y}^2 - \chi^2 - U^0(\vec{\rho}) \quad (8.3)$$

Puisque l'hamiltonien est indépendant du temps  $z$ , on peut écrire l'opérateur évolution sous la forme intégrée :

$$\mathcal{U} = e^{-i \int H dz} \quad (8.4)$$

**Cas d'un cristal parfait** On commence par effectuer un développement polynomial de l'opérateur évolution du type :

$$\mathcal{U}(z, 0) = e^{-i \int H dz} = e^{-iHt} = 1 - iHt + \frac{H^2 t^2}{2!} + \dots \quad (8.5)$$

Cette opération est connue sous le nom de développement polynomial de la méthode matricielle de Sturkey [35]. En raison des faibles épaisseurs mises en jeu, on se contentera du premier ordre de ce développement :

$$\mathcal{U}(z, 0) = 1 - iHt \quad (8.6)$$



On peut ainsi réécrire le terme  $\phi_{\vec{q}}$

$$\begin{aligned}\phi_{\vec{q}} &= \langle \vec{q}|0\rangle - it\langle \vec{q}|H|0\rangle = \langle \vec{q}|0\rangle + it\langle \vec{q}|\frac{\nabla_{x,y}^2 + \chi^2}{2k_z}|0\rangle - it\langle \vec{q}|\frac{U^0(\vec{\rho})}{2k_z}|0\rangle \\ &= \langle \vec{q}|0\rangle + it\frac{-q^2 + \chi^2}{2k_z}\langle \vec{q}|0\rangle - it\frac{U_{\vec{q}-\vec{\chi}}}{2k_z}\end{aligned}\quad (8.7)$$

Sachant que  $U_{\vec{q}-\vec{\chi}} = U_{\vec{g}}$ , la fonction d'onde à la sortie de l'échantillon devient :

$$|\psi\rangle = \sum_{\vec{q}} \phi_{\vec{q}}|\vec{q}\rangle = \sum_{\vec{q}} \left( \langle \vec{q}|0\rangle + it\frac{-q^2 + \chi^2}{2k_z}\langle \vec{q}|0\rangle - it\frac{U_{\vec{g}}}{2k_z} \right) |\vec{q}\rangle = -it \sum_{\vec{q}} \frac{U_{\vec{g}}}{2k_z} |\vec{q}\rangle + |0\rangle \quad (8.8)$$

On projette dans l'espace réel en multipliant par le bra  $\langle \vec{\rho}|$  et on obtient la fonction d'onde classique suivante :

$$\psi(\vec{\rho}) = \sum_{\vec{q}} -it\frac{U_{\vec{q}}}{2k_z} e^{i\vec{q}\cdot\vec{\rho}} + \psi_0 \quad (8.9)$$

Afin de calculer l'intensité de l'hologramme, on superpose l'onde sortante de l'échantillon avec l'onde porteuse de l'hologramme. La fréquence spatiale  $\vec{q}_c$  de cette onde est directement reliée à la rotation relative entre les deux fronts d'ondes créées après le biprisme (voir chapitre(3.2)). L'intensité de l'hologramme s'écrit donc :

$$\begin{aligned}I_{holo} &= \left| \sum_{\vec{q}} -it\frac{U_{\vec{g}}}{2k_z} e^{i\vec{q}\cdot\vec{\rho}} + \psi_0 + e^{i\vec{q}_c\cdot\vec{\rho}} \right|^2 \\ &= \left( \sum_{\vec{q}} -it\frac{U_{\vec{g}}}{2k_z} e^{i\vec{q}\cdot\vec{\rho}} + \psi_0 + e^{i\vec{q}_c\cdot\vec{\rho}} \right) \cdot \left( \sum_{\vec{q}} it\frac{U_{\vec{g}}^*}{2k_z} e^{-i\vec{q}\cdot\vec{\rho}} + \psi_0^* + e^{-i\vec{q}_c\cdot\vec{\rho}} \right) \\ &= (B + \psi_0 + e^{i\vec{q}_c\cdot\vec{\rho}}) \cdot (A + \psi_0^* + e^{-i\vec{q}_c\cdot\vec{\rho}})\end{aligned}\quad (8.10)$$

Dans l'expression ci-dessus, on a identifié la fonction d'onde dans l'image à la fonction d'onde à la sortie de l'objet. On considère donc  $\chi(\omega) = 0$ , vérifiée dans notre cas grâce au correcteur d'aberration sphérique et aux conditions utilisées décrites au chapitre(7.1). L'équation(8.10) peut se développer comme suit :

$$I_{holo} = AB + A\psi_0 + Ae^{i\vec{q}_c\cdot\vec{\rho}} + B\psi_0^* + \psi_0\psi_0^* + \psi_0^*e^{i\vec{q}_c\cdot\vec{\rho}} + Be^{-i\vec{q}_c\cdot\vec{\rho}} + e^{-i\vec{q}_c\cdot\vec{\rho}}\psi_0 + 1 \quad (8.11)$$

On réalise ensuite la transformée de Fourier et on isole une des bandes latérales :

$$\begin{aligned}TF(Ae^{i\vec{q}_c\cdot\vec{\rho}}) &= TF\left(\sum_{\vec{q}} it\frac{U_{\vec{g}}^*}{2k_z} e^{i(\vec{q}_c-\vec{q})\cdot\vec{\rho}}\right) = \sum_{\vec{q}} TF\left(it\frac{U_{\vec{g}}^*}{2k_z}\right) \otimes \delta(\vec{k} - (\vec{q}_c - \vec{q})) \\ TF(Be^{-i\vec{q}_c\cdot\vec{\rho}}) &= TF\left(\sum_{\vec{q}} -it\frac{U_{\vec{g}}}{2k_z} e^{i(\vec{q}-\vec{q}_c)\cdot\vec{\rho}}\right) = \sum_{\vec{q}} TF\left(-it\frac{U_{\vec{g}}}{2k_z}\right) \otimes \delta(\vec{k} - (\vec{q} - \vec{q}_c))\end{aligned}\quad (8.12)$$

La transformée de Fourier de l'intensité de l'hologramme fait donc apparaître dans les bandes latérales, les FFT des coefficients complexes du potentiel cristallin (normaux et conjugués)  $\vec{g}$  convolués à une fonction de Dirac centrée sur  $(\vec{q}_c - \vec{q})$ . Si on sélectionne une tache et que l'on réalise une FFT inverse on peut ainsi tracer une image complexe des coefficients  $U_{\vec{g}}$ . Dans le cas d'un microscope non corrigé, le raisonnement reste le même en ajoutant simplement la phase  $\chi(\vec{g})$  à la phase de chaque  $U_{\vec{g}}$  contenue dans chacune des taches  $\vec{g}$  de la bande latérale.

**Cristal soumis à un champ de déplacement  $\vec{u}(\vec{\rho})$**  Dans le cas d'un cristal soumis à un champ de déplacement  $\vec{u}(\vec{\rho})$  considéré comme constant le long de l'axe  $z$ , le nouveau potentiel  $U(\vec{\rho})$  peut s'écrire (voir chapitre(5.4.3)) :

$$U(\vec{\rho}) = U^0(\vec{\rho}) + \sum_{\vec{g}} U_{\vec{g}} e^{i\vec{g}\cdot\vec{\rho}} (e^{-i\vec{g}\cdot\vec{u}} - 1) = U^0(\vec{\rho}) + U^{def}(\vec{\rho}, \vec{u}) \quad (8.13)$$

On définit alors un nouvel hamiltonien :

$$2k_z H = -\nabla_{x,y}^2 - \chi^2 + U^{(0)}(\vec{\rho}) + \sum_{\vec{g}} U_{\vec{g}} e^{i\vec{g}\cdot\vec{\rho}} (e^{-i\vec{g}\cdot\vec{u}} - 1) \quad (8.14)$$

Dans le cadre de l'approximation établie précédemment, on réécrit l'opérateur évolution comme suit :

$$\mathcal{U}(z, 0) = e^{-iHt} = e^{-i(H_0 + \frac{U^{def}}{2k_z})t} = 1 - i(H_0 + \frac{U^{def}}{2k_z})t \quad (8.15)$$

ce qui nous permet de réécrire :

$$\phi_{\vec{q}} = \langle \vec{q} | \mathcal{U} | 0 \rangle = \langle \vec{q} | 0 \rangle - it \frac{q^2 - \chi^2}{2k_z} \langle \vec{q} | 0 \rangle - it \langle \vec{q} | \frac{U^{(0)}}{2k_z} | 0 \rangle - it \langle \vec{q} | \frac{U^{def}}{2k_z} | 0 \rangle \quad (8.16)$$

que l'on simplifie :

$$\phi_{\vec{q}} = \langle \vec{q} | 0 \rangle - it \frac{U_{\vec{g}}}{2k_z} - it \frac{U_{\vec{g}}(e^{-i\vec{g}\cdot\vec{u}} - 1)}{2k_z} \quad (8.17)$$

puis on réécrit la fonction d'onde de sortie :

$$|\psi\rangle = \sum_{\vec{q}} \left( -it \frac{U_{\vec{g}}}{2k_z} - it \frac{U_{\vec{g}}(e^{-i\vec{g}\cdot\vec{u}} - 1)}{2k_z} \right) |\vec{q}\rangle + |0\rangle \quad (8.18)$$

que l'on peut projeter sur la base de l'espace réel :

$$\psi(\vec{\rho}) = \sum_{\vec{q}} \left( -it \frac{U_{\vec{g}}}{2k_z} - it \frac{U_{\vec{g}}(e^{-i\vec{g}\cdot\vec{u}} - 1)}{2k_z} \right) e^{i\vec{q}\cdot\vec{\rho}} + \psi_0 \quad (8.19)$$

En simplifiant les termes, la fonction d'onde à la sortie peut se réécrire :

$$\psi(\vec{\rho}) = \sum_{\vec{q}} \left( -it \frac{U_{\vec{g}} e^{-i\vec{g}\cdot\vec{u}}}{2k_z} \right) e^{i\vec{q}\cdot\vec{\rho}} + \psi_0 \quad (8.20)$$

La FFT de l'intensité de l'hologramme permet de calculer les termes présents dans la bande latérale comme suit :

$$\begin{aligned} & TF \left( \sum_{\vec{q}} \left( -it \frac{U_{\vec{g}} e^{-i\vec{g}\cdot\vec{u}}}{2k_z} \right) e^{i(\vec{q}-\vec{q}_c)\cdot\vec{\rho}} \right) \\ &= \sum_{\vec{q}} TF \left( -it \frac{U_{\vec{g}} e^{-i\vec{g}\cdot\vec{u}}}{2k_z} \right) \otimes \delta(\vec{k} - (\vec{q} - \vec{q}_c)) \\ & TF \left( \sum_{\vec{q}} \left( it \frac{U_{\vec{g}}^* e^{i\vec{g}\cdot\vec{u}}}{2k_z} \right) e^{i(\vec{q}_c - \vec{q})\cdot\vec{\rho}} \right) \\ &= \sum_{\vec{q}} TF \left( it \frac{U_{\vec{g}}^* e^{i\vec{g}\cdot\vec{u}}}{2k_z} \right) \otimes \delta(\vec{k} - (\vec{q}_c - \vec{q})) \end{aligned} \quad (8.21)$$

Ici encore le transfert du microscope est considéré comme optimal ( $\chi(\omega) = 0$  sur la plage de fréquences spatiales considérées). Si l'épaisseur reste faible, la phase ainsi reconstruite à partir des taches de la bande latérale nous donne directement accès à la phase géométrique provenant de la fréquence spatiale sélectionnée. Une contribution parasite de la phase du coefficient de Fourier du potentiel  $U_{\vec{g}}$  vient tout de même se rajouter. Il est donc nécessaire de travailler sur deux taches symétriques pour supprimer la contribution du potentiel et isoler la phase géométrique qui nous intéresse. Dans le cas d'un microscope non corrigé, on ajoute la phase  $\chi(\vec{g})$  à la phase contenue dans chacune des taches. En travaillant sur deux taches symétriques on supprime également cette contribution, la fonction  $\chi(\omega)$  étant paire.

Ce traitement appliqué aux couches centrosymétriques de  $Si_{0,7}Ge_{0,3}(27nm)/Si$  nous a permis de remonter au champ de déformation avec une précision plus importante que celle apportée par le traitement classique réalisé sur la bande centrale. C'est l'objet du prochain paragraphe.

### 8.2.2 Application à la détermination du champ de déformation d'une couche de $Si_{0,7}Ge_{0,3}(27nm)/Si$

On effectue un traitement GPA sur deux fréquences spatiales opposées  $\vec{g}$  et  $-\vec{g}$ . La première contient un terme provenant de la phase de  $U_{\vec{g}}$  ajoutée à la phase géométrique :  $P_{total\vec{g}} = P_{U_{\vec{g}}} + P_{go} = P_{U_{\vec{g}}} - \vec{g} \cdot \vec{u}$ . La seconde peut ainsi être écrite  $P_{total-\vec{g}} = P_{U_{-\vec{g}}} + \vec{g} \cdot \vec{u}$ . Dans le cas d'un cristal centrosymétrique ( $P_{U_{-\vec{g}}} = P_{U_{\vec{g}}}$ ), la soustraction des phases  $P_{total\vec{g}} - P_{total-\vec{g}}$  permet de remonter à la phase géométrique  $-2\vec{g} \cdot \vec{u}$ . Dans le cas d'un microscope non corrigé et limité par l'aberration sphérique ( $C_3$  et  $C_5$ ), les termes de phases additionnels  $\chi(\vec{g})$  disparaissent aussi lors de la soustraction car  $C_3$  et  $C_5$  possèdent une symétrie cylindrique ce qui implique  $\chi(\vec{g}) = \chi(-\vec{g})$ . Nous avons effectué ce traitement sur un hologramme HREM de l'échantillon  $Si_{0,7}Ge_{0,3}(27nm)/Si$  introduit au paragraphe(8.1), sur les deux paires de taches  $((111),(\bar{1}\bar{1}\bar{1}))$  et  $(\bar{1}\bar{1}\bar{1}), (111))$  de la bande latérale. On remonte ainsi à la phase géométrique des taches  $\vec{g}_1 = (111)$  et  $\vec{g}_2 = (\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ . L'association des deux images de phases ainsi calculées permet par la suite de déterminer le champ de déformation  $\epsilon_{ref}$  par rapport à une référence prise dans le substrat loin de l'interface. En connaissant le désaccord paramétrique  $f$ , on peut calculer le tenseur de déformation  $\epsilon$  de la couche. Le traitement ainsi que les résultats obtenus sont reportés sur la figure(8.3).

On mesure une composante hors plan  $\epsilon_{xx} = 0,5\% \pm 0,1\%$  grâce au traitement réalisé sur la bande centrale, et  $\epsilon_{xx} = 0,49\% \pm 0,05\%$  à partir du traitement réalisé sur la bande latérale. Dans les deux cas la résolution spatiale vaut  $2nm$ . La précision est donc beaucoup plus importante lorsqu'on utilise les taches de la bande latérale. Cette particularité est systématique pour la plupart des hologrammes HREM réalisés lors de cette thèse. Un problème survient dans certains hologrammes provenant de la coupure par le biprisme de certaines fréquences  $\vec{g}$  de la bande latérale [78]. Ce défaut introduit des sauts de phases parasites qui peuvent fausser la mesure. Dans notre cas, la zone de perturbation reste petite et localisée en surface de la couche ce qui ne perturbe pas nos mesures. Ce genre d'artefacts peut être évité en augmentant la tension du biprisme, mais cela nécessite d'autant plus de cohérence.

### 8.2.3 Discussion

L'holographie Haute résolution offre l'important avantage de pouvoir combiner des informations structurales et chimiques. Les premières peuvent être obtenues grâce aux taches de la bande centrale de la même façon que pour une image HREM classique. Les secondes peuvent être déduites grâce à l'analyse GPA de la tache (000) centrée sur la bande latérale, à condition de connaître l'épaisseur de la zone analysée. On remonte à l'information chimique finale grâce aux simulations multislices prenant en compte les effets dynamiques. Mais une analyse plus approfondie des différentes taches permet d'obtenir une information structurale plus précise que

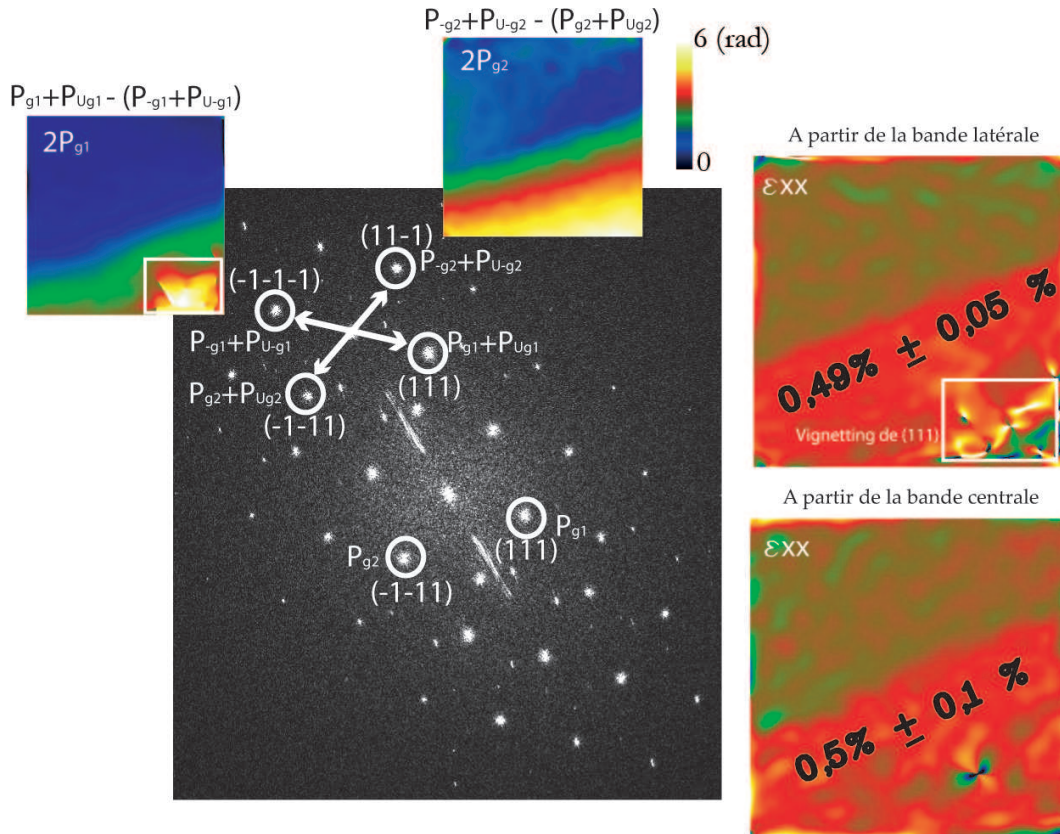


FIG. 8.3 – Calcul de la déformation  $\epsilon_{xx}$  à partir d'un traitement GPA des taches de la bande latérale et de la bande centrale provenant de la FFT déterminé grâce à l'hologramme de la figure(8.1). Notez que la précision obtenue est deux fois plus importante avec les taches de la bande latérale. Le rayon des masques utilisés vaut  $0,5nm^{-1}$ . Le carré blanc reporté sur certaines images, met en évidence une zone perturbée par une coupure de la tache (111) par le biprisme [78]. Cette zone est évidemment rejetée lors du calcul de  $\epsilon_{xx}$ .

celle calculée grâce à la bande centrale de l'hologramme, identique à la FFT d'une image HREM classique. L'origine de cette meilleure précision n'est pas encore bien déterminée. Nous pensons notamment à l'effet filtrant de l'hologramme [64] qui pourrait améliorer le rapport S/N associé aux taches de la bande latérale.

Les informations contenues dans les bandes latérales font de l'holographie HREM une technique de choix pour la caractérisation chimique et structurale quantitative de couche épitaxiée. Nous avons essayé d'appliquer cette technique aux couches de *GaInAs/GaAs* afin de pouvoir remonter à la concentration en indium. Le cas des semiconducteurs III-V est plus difficile car ils sont non-centrosymétriques.

### 8.3 Application aux cas particulier des semiconducteurs de type III-V non-centrosymétriques

Ce paragraphe présente les résultats obtenus grâce aux hologrammes électroniques des couches de *Ga<sub>0,8</sub>In<sub>0,2</sub>As(10nm)/GaAs* dont les caractéristiques ont été présentées au paragraphe(1.2). Les échantillons ont été préparés en section transverse par tripode et une attaque ionique finale avec un angle d'attaque faible ( $\beta = 10^\circ$ ). La direction d'amincissement correspond à l'axe [110]

du cristal.

### 8.3.1 Evidences expérimentales

On souhaite déterminer le potentiel interne  $V_0$  de la couche de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As(20nm)$  déposée sur du  $GaAs$ . Le but étant de pouvoir remonter à la concentration en indium que l'on utilise lors de la détermination du champ de déformation  $\epsilon$ . Le traitement de l'hologramme ainsi que les résultats sont reportés sur la figure(8.4).

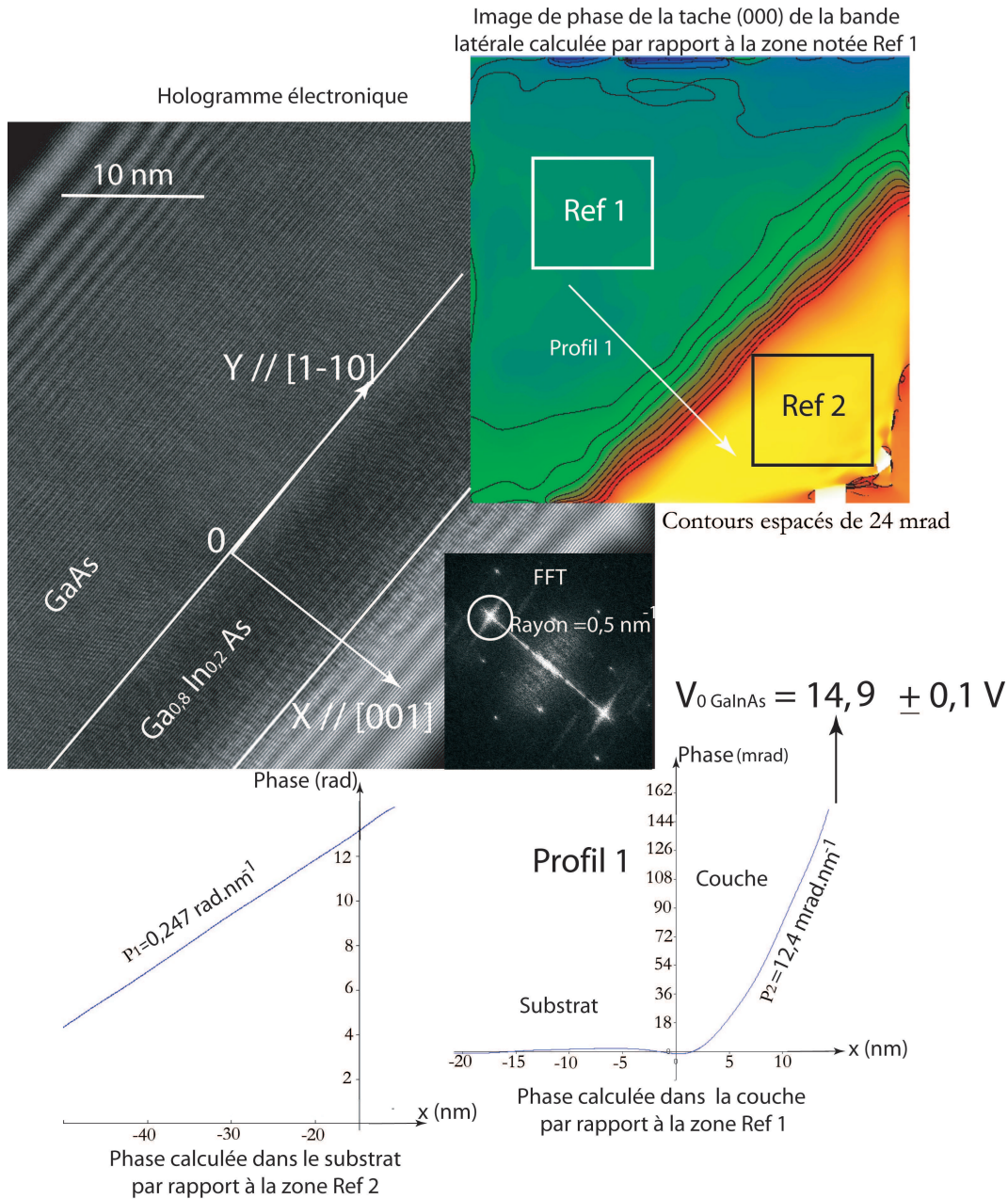


FIG. 8.4 – Hologramme électronique d'une couche de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$  observé près de l'axe de zone [110]. Le traitement *GPA* de la tache (000) de la bande latérale ainsi que deux profils de la phase associés aux deux zones de références (ref 1 et ref 2) y sont aussi reportés.

Contrairement aux couches de  $SiGe/Si$  étudiées au paragraphe(8.2), on ne peut pas ici

remonter à l'information structurale contenue dans la phase géométrique à partir du traitement de la bande latérale, puisque les alliages de  $GaInAs$  sont non-centrosymétriques. Des termes inconnus provenant du potentiel  $U_{\vec{g}}$  que l'on ne pourra faire disparaître viendront par conséquent perturber la mesure. On n'analysera que la tache (000) de la bande latérale. Par conséquent, il n'est pas obligatoire d'être dans les conditions HREM. C'est pourquoi les hologrammes réalisés sur ces échantillons ont tous été obtenus hors des axes de zones, minimisant ainsi les effets dynamiques même pour des épaisseurs importantes [65]. On reste tout de même proche de l'axe principal [110]. Mis à part ce point, d'autres avantages découlent de ces conditions. La tension du biprisme ne doit pas forcément être très importante pour séparer la bande centrale des bandes latérales. On travaillera donc avec des tensions comprises entre 80V et 130V. Les distorsions parasites sont retirées grâce à un hologramme de référence. La préparation des échantillons, décrite en début de paragraphe, ne permet pas un contrôle de l'épaisseur aussi précis que celui obtenu avec le biseau de  $Si_{0,7}Ge_{0,3}(27nm)/Si$  étudié dans les paragraphes précédents (8.1) et (8.2). Aussi, il est nécessaire de faire quelques hypothèses. La principale est de considérer l'évolution de l'épaisseur le long de la direction  $x = [001]$  linéaire de la forme :  $t = ax + b$ . L'axe  $x$  est défini sur la figure(8.4), l'origine étant prise à l'interface. L'évolution de la phase dans la couche et le substrat s'écrit donc :  $P_{000couche} = C_E V_{0GaInAs} ax + C_E V_{0GaInAs} b$  et  $P_{000substrat} = C_E V_{0GaAs} ax + C_E V_{0GaAs} b$ . Si on calcule l'image de phase en prenant la référence dans le substrat (ref 1 dans l'image(8.4)), le terme  $\Delta P$  dans la couche s'écrit :

$$\Delta P = C_E(V_{0GaInAs} - V_{0GaAs})ax + C_E(V_{0GaInAs} - V_{0GaAs})b \quad (8.22)$$

On obtient donc une droite dont la pente et l'ordonnée à l'origine dépendent de la différence de potentiel interne entre les deux matériaux. Pour calculer la pente de cette droite, on détermine la différence de phase entre le substrat de  $GaAs$  et le vide (ref 2 dans la figure(8.4)). La variation de la phase dans le substrat est alors donnée par  $P_{000substrat}$  dont la pente vaut  $C_E V_{0GaAs} a$ . La figure(8.4) présente l'image de phase obtenue après le traitement GPA de la tache (000) de la bande latérale ainsi que le tracé des profils de la phase calculée dans le substrat de  $GaAs$  et dans la couche de  $GaInAs$  pour une résolution spatiale de 2nm. Les deux profils étant obtenus avec la référence dans le vide et dans le substrat respectivement. On détermine une pente  $P_1 = 0,247 \pm 0,0005 rad.nm^{-1}$  dans le substrat et  $P_2 = 12,4 \pm 1 mrad.nm^{-1}$  à partir de la phase prise dans la couche. Le rapport des pentes peut directement être relié aux potentiels internes par la relation :

$$\frac{P_2}{P_1} = \frac{C_E(V_{0GaInAs} - V_{0GaAs})a}{C_E V_{0GaAs} a} = \frac{(V_{0GaInAs} - V_{0GaAs})}{V_{0GaAs}} = 0,051 \quad (8.23)$$

Le potentiel interne d'un cristal de GaAs ayant déjà été mesuré par Kruse *et al* [67]  $V_{0GaAs} = 14,18V \pm 0,07V$ , on en déduit le potentiel mesuré dans la couche de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As$  :  $V_{0GaInAs} = 14,9V \pm 0,1V$  avec une résolution spatiale de 2nm.

Kruse *et al* [67] ont pu aussi déterminer le potentiel interne de l' $InAs$  qui diffère très peu de celui du  $GaAs$  :  $V_{0InAs} = 14,50V \pm 0,07V$ . Sachant que le potentiel interne d'une couche de  $GaInAs$  peut être calculé grâce à la loi des mélanges :  $V_{0Ga_{1-x}In_xAs} = (1-x)V_{0GaAs} + xV_{0InAs}$  il se trouve par conséquent compris dans l'intervalle  $[V_{0GaAs}, V_{0InAs}]$ . Dans notre cas, le potentiel mesuré est supérieur à celui de l' $InAs$  pur ! Une contribution, autre que le potentiel moyen interne, vient donc s'ajouter, modifiant le potentiel global à l'origine du déphasage du faisceau électronique :  $V_{0GaInAs} = V_{0interne} + V_{0ajout}$ .

### 8.3.2 Une interprétation du phénomène : détection de la relaxation par un effet piezoélectrique

Des études réalisées par holographie électronique sur des couches épitaxiées contraintes ont montré qu'un champ piezoélectrique introduit par la contrainte épitaxiale pouvait être à

l'origine d'une modification du potentiel [70, 71, 119, 120]. *GaAs* et *GaInAs* sont des cristaux non-centrosymétriques de groupe d'espace  $F43m$  qui possèdent par conséquent un tenseur piezoélectrique non nul pouvant s'écrire (notation matricielle [121]) :

$$d = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{pmatrix} \quad (8.24)$$

Les tenseurs définis dans cette partie sont toujours écrits par le repère classique  $\mathcal{R}_0 : x_0 = [100], y_0 = [010], z_0 = [001]$ . Si on considère notre couche en contrainte biaxiale pseudomorphe dans la direction  $[001]$ , le tenseur des contraintes contient seulement deux composantes comme suit :

$$\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (8.25)$$

Dans ce cas, aucune polarisation électrique  $P = d\sigma$  n'est introduite par cette contrainte. Or les résultats obtenus en CBED sur ces échantillons et présentés au paragraphe(5.1.2) montrent un effet de modification des profils de lignes de HOLZ caractéristique d'une relaxation élastique de la contrainte présente dans la couche de *GaInAs*. Ce phénomène a aussi pu être mis en évidence sur les couches de *SiGe/Si* par CBED et HREM dans le paragraphe(7.2.2) et (5) puis confirmé par des simulations FEM. Afin de déterminer le champ de contrainte présent dans les échantillons étudiés, nous avons réalisé les simulations FEM 2D associées à notre système dans les mêmes conditions que celles décrites au chapitre(5.2). Le modèle géométrique choisi est bidimensionnel mais tient compte de la variation d'épaisseur dans la direction  $x$  perpendiculaire à l'interface dont la pente  $a$  a pu être déterminée dans le paragraphe précédent. On néglige, par conséquent, les faibles variations d'épaisseur dans la direction  $y$  comme pour le cas d'un barreau FIB. Les résultats mettent en évidence la relaxation dans la direction d'amincissement  $[110]$  déjà observée par CBED, et permettent ainsi de calculer le champ de contrainte  $\sigma$  présent qui s'écrit maintenant :

$$\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ \sigma_6 \end{pmatrix} \quad (8.26)$$

On remarque que dans ce cas la composante de cisaillement  $\sigma_6$  est présente dans le tenseur des contraintes. Les valeurs de  $\sigma_6$  calculées par FEM sont reportées dans la figure(8.5).

Cette composante du champ de contrainte introduit une polarisation dans l'échantillon par un effet piezoélectrique :

$$\begin{pmatrix} P_1 \\ P_2 \\ P_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ \sigma_6 \end{pmatrix} \Rightarrow P_3 = d_{14}\sigma_6 \quad (8.27)$$

La constante de piezoélectricité  $d_{14}$  dans la couche est calculée à partir de la loi de Vegard, en utilisant les constantes du *GaAs* et de l'*InAs* reportées dans le chapitre(1.2). Le vecteur

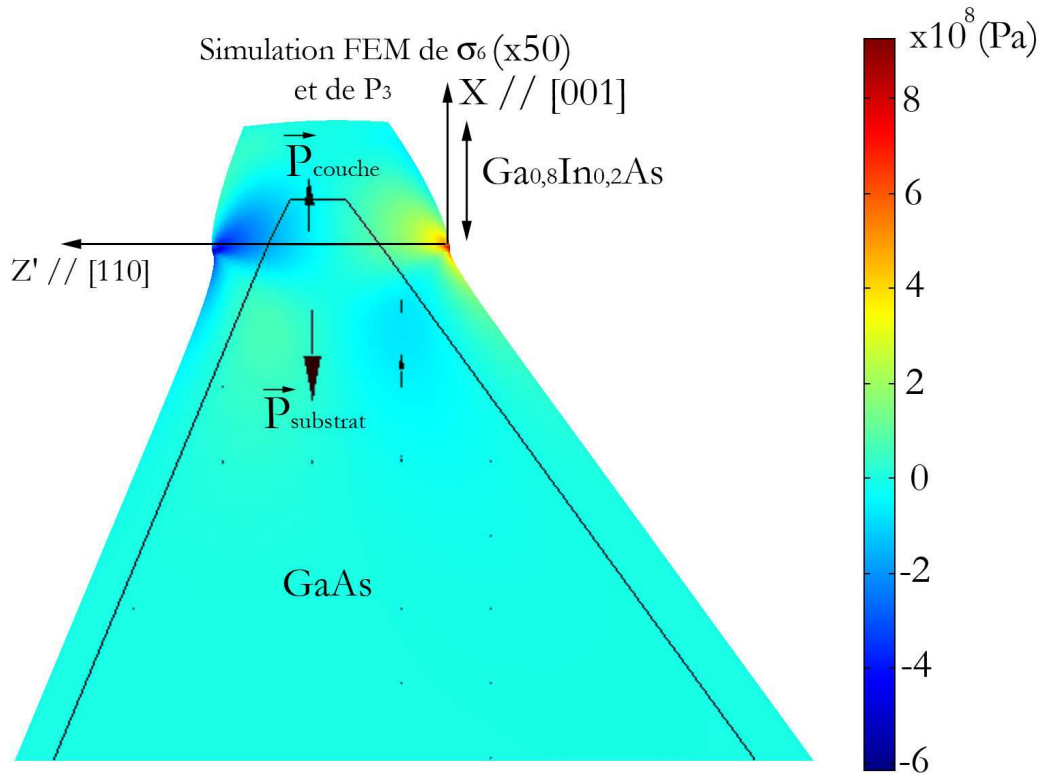


FIG. 8.5 – Simulation FEM 2D de la composante de cisaillement  $\sigma_6$  du tenseur des contraintes  $\sigma$  de la couche épitaxiée  $Ga_{0,8}In_{0,2}As(10nm)/GaAs$  ( $\times 50$ ). Le champ de polarisation piezoélectrique introduit par cette contrainte et calculé par le logiciel d'éléments finis ainsi que les arêtes géométriques y sont aussi présentés.

polarisation  $\vec{P}$ , calculé grâce au logiciel d'éléments finis, est obtenu à partir de la composante de cisaillement  $\sigma_6$  de la contrainte et reporté sur le tracé des arêtes géométriques de la structure. La figure(8.5) présente le résultat du calcul où l'on peut clairement voir apparaître les deux vecteurs polarisation opposés dans la couche et dans le substrat. Cette polarisation est à l'origine d'un champ électrique qui peut s'écrire [70] :

$$E_3(x) = \frac{-P_3(x)}{\epsilon_0 \epsilon_r} \quad (8.28)$$

où  $\epsilon_0 = 8,8545 \times 10^{-12}$  représente la permittivité diélectrique du vide et  $\epsilon_r$  la permittivité relative qui vaut 12,5 dans le cas du substrat de  $GaAs$  et 12,9 dans le cas de la couche de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As$ . Le champ ainsi calculé dans la couche et dans le substrat est à l'origine d'une différence de potentiel qui peut s'écrire [120] :

$$\Delta V = - \int_{x_1}^{x_2} E_3(x) dx \quad (8.29)$$

Le champ  $E_3(x)$  est alors défini dans l'intervalle  $x = [x_1, x_2]$ .

Nous avons écrit un programme sous MATLAB qui permet de calculer la différence de potentiel  $\Delta V$  en réalisant l'intégration(8.29) dans la région affectée par le champ de polarisation  $P_3$  calculé par FEM. Dans le cas de la couche, on trouve une valeur moyenne de  $E_3 = 1,28 \times 10^7 V.m^{-1}$  ce qui nous permet d'obtenir une différence de potentiel  $\Delta V = 0,13V$ . Dans le cas du substrat on obtient un potentiel  $\Delta V = -0,45V$ . Le terme  $V_{\text{ajout}}$  introduit lors de la présentation des



résultats vaut alors  $0,58V$ .

Le potentiel de la couche déterminé par la loi des mélanges vaut  $V_{0Ga_{0,8}In_{0,2}As} = 12,24 \pm 0,07V$ . La pente  $a$  de la courbe d'évolution de l'épaisseur  $t$  selon  $x$  est calculée grâce à la mesure de  $P_1$  effectuée dans le paragraphe précédent. On a pris soin de rajouter la différence de potentiel  $\Delta V = -0,45V$  introduit par le champ piezoélectrique au potentiel  $V_{0GaAs}$ . On détermine enfin la pente  $P_2$  introduite par la différence de phase entre la couche et le substrat et définie par l'équation(8.22) :

$$P_{2calculé} = C_E(V_{0Ga_{0,8}In_{0,2}As} - V_{0GaAs} + 0,58)a = 11,5 \text{ mrad.nm}^{-1} \quad (8.30)$$

au lieu de  $1 \text{ mrad.nm}^{-1}$  si on néglige le  $V_{0ajout}$  attribué à l'effet piezoélectrique.

On retrouve ainsi les résultats expérimentaux décrits au paragraphe précédent et présentés dans la figure(8.4).

Il est important de noter que les calculs qui précèdent négligent l'effet de piezoélectricité inverse introduit par le champ  $E_3(x)$ . En effet, le champ  $E_3$  introduit, par l'intermédiaire de cet effet, une déformation de cisaillement  $\epsilon_6 = d_{14} \times E_3$  qui sera à l'origine d'un champ de contrainte de cisaillement qui s'écrit dans l'approximation des petites déformations (voir annexe(D)) :  $\sigma_6 t = s_{44} \epsilon_6$ .  $s_{44}$  représente une composante du tenseur des souplesses et vaut  $16,8(TPa)^{-1}$  dans le cas du  $GaAs$  et  $18,5(TPa)^{-1}$  pour la couche de  $Ga_{0,8}In_{0,2}As$ . A partir des résultats donnés par les éléments finis on calcule une contrainte de cisaillement  $\sigma_6 t \approx 5 \times 10^{-16} Pa$ . Il n'est donc pas aberrant de négliger cet effet du deuxième ordre sur le tenseur des contraintes introduit par piezoélectricité inverse.

## 8.4 Discussion

Nous avons montré que l'information sur la phase, apportée par l'holographie électronique, permettait de remonter à différentes caractéristiques des couches épitaxiées comme la déformation, la composition chimique ou encore la présence d'un champ piézoélectrique. L'holographie haute résolution permet ainsi d'atteindre une précision de  $0,1\%$  à  $2nm$  de résolution spatiale dans la mesure des composantes du tenseur des déformations par traitement GPA de la bande centrale. Un traitement GPA de la bande latérale permet de plus d'accéder à la valeur du potentiel interne  $V_0$  avec une précision de  $0,1V$  sur la même zone. Des simulations multislices permettent par la suite de remonter à l'information chimique. Ces analyses combinées permettent ainsi d'accéder à une connaissance du champ de déformation plus complète que celle apportée par l'analyse d'une image HREM. La précision de mesure des composantes du tenseur de déformation peut même être améliorée dans le cas des cristaux centrosymétriques grâce à un traitement des différentes taches  $\vec{g}$  de la bande latérale. Ces analyses peuvent être par la suite couplées, à une échelle nanométrique, avec la caractérisation de champs de nature physique différente. Ainsi, dans le cas des couches de semiconducteurs non-centrosymétriques III-V, nous avons pu mettre en évidence un champ piezoélectrique directement relié à l'état de contrainte de notre système. La combinaison de ces différentes propriétés fait de l'holographie une technique particulièrement riche, même s'il s'avère souvent difficile de trier l'information présente dans les hologrammes. Ainsi une variation de concentration chimique et un champ électrique auront le même effet sur la phase. Il a été montré par Twitchett *et al* qu'une amélioration de la précision de mesure sur le potentiel devait être accompagnée d'une méthode de préparation spécifique permettant d'évacuer les charges parasites pouvant être accumulées sur l'échantillon au cours de l'expérience par le faisceau électronique du microscope [76]. Ces effets de charge, bien que faibles, peuvent augmenter l'incertitude de mesure. Enfin, les artefacts étant nombreux en holographie électronique [73], une grande prudence doit être employée lors de l'acquisition des hologrammes de l'objet et de la référence afin de minimiser les effets de vignettage, les franges de Fresnel, les distorsions, etc ...

# Conclusion et perspectives

LA technique de diffraction électronique en faisceau convergent a été utilisée dans ce travail pour déterminer l'état de déformation d'un cristal, une couche épitaxiée dans notre cas. Les clichés CBED apportent une information tridimensionnelle sur le cristal en raison de la superposition de lignes provenant de la ZOLZ et de lignes provenant des HOLZ. Chaque ligne provient de la diffraction du faisceau d'électrons par une famille de plans réticulaires lors de la traversée du matériau. La position des lignes de HOLZ est très sensible à la variation des paramètres réticulaires et de la tension d'accélération du microscope. De plus, avec des tailles de sonde de l'ordre du nanomètre, le CBED offre une très bonne résolution spatiale pour déterminer les caractéristiques structurales locales des cristaux. Nous avons montré comment, à partir de l'analyse fine de la position des lignes de HOLZ, on pouvait remonter aux paramètres réticulaires du cristal et ainsi déterminer son état de déformation. Dans ce cas, la très grande sensibilité est un atout considérable, mais cela peut devenir une difficulté en présence d'hétérogénéités. Dans le disque transmis, une fine ligne de HOLZ constituée d'un seul minimum en position de Bragg ne se forme que lorsque les plans diffractants conservent, tout au long de l'épaisseur traversée, la même distance interréticulaire. Si cette distance varie le long de la traversée du faisceau, le profil de la ligne de HOLZ devient plus complexe et contient un nombre important de minima. L'observation, l'interprétation et l'exploitation de ces effets pour mesurer la déformation dans des couches épitaxiées de *SiGe/Si* et *GaInAs/GaAs* constituent la partie principale de notre travail. Ainsi nous avons proposé différents protocoles d'analyse des clichés CBED suivant la symétrie du champ de déplacement :

1. Si le champ de déplacement est constant au cours de la trajectoire électronique  $z$ , le potentiel cristallin peut être considéré comme parfaitement périodique dans la direction  $z$ . Les états propres des électrons à l'intérieur du cristal sont alors définis par des ondes de Bloch 3D  $|J\rangle$ . L'intensité diffractée peut être obtenue à partir du calcul des coefficients  $C_g^J$  des vecteurs propres et de l'énergie propre  $\gamma_J$  correspondant au traitement de la théorie dynamique classique [15, 2]. On détermine l'état de déformation du cristal à partir de **la position des lignes de HOLZ**
2. Si le champ de déplacement varie au cours de la trajectoire électronique mais que sa variation reste très faible ou très localisée, la perturbation peut être traitée comme un simple déphasage  $\alpha$  des coefficients des ondes de Bloch 3D. On calcule alors l'intensité diffractée par le traitement classique comme dans le cas précédent. Cette situation est celle rencontrée lors de l'étude de défauts cristallins comme les dislocations, les fautes d'empilements, etc ... Les propriétés de ces défauts sont alors déduites des modifications introduites sur le **profil des lignes**
3. Si le champ de déplacement est inhomogène dans toute la lame, et que ses variations deviennent trop importantes, le potentiel cristallin ne peut plus être considéré comme périodique dans la direction de propagation  $z$ . Les ondes de Bloch 3D ne sont plus des états propres du système et la théorie dynamique classique n'est plus adaptée au traitement de ce phénomène. Nous avons montré que l'interaction du faisceau avec ce type d'échantillon pouvait être traité à l'aide des perturbations au cours du temps  $z$  des ondes de Bloch

2D  $|j\rangle$ . Les lignes voient leurs profils perturbés et une comparaison avec des simulations permet de remonter à l'état de déformation du cristal. On ne travaille plus sur la position des lignes mais sur **leur profil**.

Dans les échantillons étudiés, nous avons montré que la relaxation par les surfaces rendues libres lors des processus de préparation étaient à l'origine d'un champ de déplacement inhomogène introduit dans la couche et le substrat, que ce soit en section transverse ou en vue plane. Notre étude se situe donc dans la troisième situation évoquée précédemment. Afin de tirer parti de ces phénomènes très sensibles, nous avons développé une méthode de mesure basée sur la comparaison systématique entre les lignes perturbées dans les clichés expérimentaux et simulés. Les simulations étant obtenues par une combinaison entre des modélisations par éléments finis permettant de déterminer le profil du champ de déplacement inhomogène et des calculs dynamiques traités dans le nouveau formalisme. Dans le cas des sections transverses les clichés expérimentaux sont obtenus dans le substrat, les diagrammes dans la couche étant trop perturbés. Dans le cas des vues planes, le faisceau d'électrons traverse la couche et le substrat, mais nous avons montré que la modification du profil des lignes pouvait être traitée grâce au champ de déplacement inhomogène du substrat seul. Grâce à cette méthode, on remonte au champ de déformation présent dans la couche avant amincissement avec une précision de 5% en relatif. La précision sera d'autant meilleure que la géométrie de l'objet est bien maîtrisée. Les techniques de préparations FIB sont alors fortement recommandées.

Les processus de relaxation présents dans nos échantillons TEM peuvent être évités en prenant certaines précautions lors de la préparation. Dans les objets préparés en vue plane, la relaxation est introduite par la courbure de la lame. Nous avons pu empêcher la formation de cette courbure en réalisant des préparations tripodes. Dans certains cas, la relaxation par les surfaces libres a au contraire permis d'homogénéiser le champ de déplacement le long de la trajectoire des électrons. C'est le cas lorsque l'échantillon est suffisamment mince pour relaxer totalement dans cette direction (cas des couches pour lesquelles  $t \approx d$  dans nos études).

Les observations en microscopie haute résolution sont faites en général dans des zones où  $t \approx d$ . La couche se trouve alors relaxée uniaxialement le long de la direction d'observation comme cela a pu être confirmé par les analyses GPA. Le couple  $(t, d)$ , pour lequel  $t \approx d$ , utilisé dans les analyses CBED et HREM est bien entendu différent, mais les résultats obtenus amènent les mêmes conclusions concernant la relaxation. Les faisceaux diffractés formant l'image HREM peuvent donc être considérés comme non perturbés par rapport à ceux observés en CBED. L'image ainsi formée possède un contraste classique attribué à la projection des colonnes atomiques (dans les conditions d'imagerie optimales). Enfin les études réalisées par holographie électronique nous ont permis aussi de détecter la présence de la relaxation par les surfaces libres ne serait-ce que par la présence d'un champ piezoélectrique dans les échantillons de *GaInAs/GaAs*. Ceci vient une fois de plus conforter les observations CBED.

L'analyse des diagrammes CBED que nous avons développée devrait permettre de remonter à l'état de déformation dans des systèmes contraints divers, en particulier dans différents dispositifs de micro(nano)électronique où cette information s'avère essentielle. Nous avons également envisagé d'appliquer cette analyse à des alliages industriels TA6V utilisés dans l'aéronautique. Le but est de déterminer la déformation présente dans les grains qui composent la microstructure de cet alliage. Des résultats expérimentaux prometteurs ont déjà pu être obtenus et devraient être suivis des analyses quantitatives associées. Du point de vue théorique l'étude de différents systèmes permettrait de valider les simulations dynamiques et les modélisations par éléments finis. En particulier, nous souhaiterions vérifier la validité du développement à l'ordre 1 de l'opérateur évolution dans les simulations réalisées pour des systèmes très déformés. Une extension à l'ordre 2, voire supérieur, pourrait alors être envisagée pour améliorer la comparaison quantitative.

Nous envisageons également de généraliser l'approche en perturbations dépendantes du temps à la simulation des images haute résolution. Nous pensons ainsi pouvoir affiner la comparaison entre les contrastes simulés et expérimentaux dans le cas de champs de déplacement inhomogènes. La simulation des hologrammes HREM peut également être améliorée, en particulier pour l'information chimique. En effet, on utilise dans ces simulations les facteurs de diffusions de Doyle-Turner alors que des travaux récents montrent que des facteurs plus précis peuvent être obtenus par les calculs DFT type LDA ou GGA, [122]. On envisage donc de calculer les facteurs de diffusion par DFT, pour les introduire dans notre formalisme appliqué à la simulation d'un hologramme. On espère ainsi améliorer sensiblement la mesure des sauts de phase liés aux variations de potentiel interne, par exemple dans *SiGe/Si*.



## Annexe A

# Discussion sur l'interprétation physique du formalisme TDDT : principales différences avec la théorie dynamique classique

L'intérêt de ce formalisme réside dans la description quantique de la diffraction en considérant le paramètre  $z$  comme la dimension temporelle. La traversée de l'échantillon par le faisceau d'électrons correspond à l'évolution au cours du temps  $z$  des ondes de Bloch  $|j\rangle$  et peut être décrit en ces termes. On peut ainsi introduire de manière beaucoup plus naturelle des événements perturbatifs tout au long de cette trajectoire. Ces événements peuvent être considérés comme ponctuels (brusque dans le temps), c'est le cas des défauts comme les dislocations, ou comme continus au cours du temps  $z$  ce qui est le cas du champ de déplacement  $\vec{u}$  introduit dans le substrat par la relaxation de surface. La théorie dynamique classique traite un champ de déplacement par un déphasage  $\alpha = -2\pi\vec{g}\cdot\vec{u}$  des coefficients complexes des ondes de Bloch  $C_{\vec{g}}^j$  qui s'écrit  $C_{\vec{g}}^j e^{i\alpha}$ . Dans le nouveau formalisme tout le travail consiste à exprimer le terme  $\langle\vec{q}|\mathcal{U}(0, z)|0\rangle$  pour chaque faisceau  $\vec{q}$  (y compris le faisceau transmis caractérisé par  $\vec{\chi}$ ). Afin de donner une interprétation physique claire du formalisme et pour faire ressortir ces avantages vis-à-vis de la théorie dynamique classique, discutons de l'origine physique de ce terme. En mécanique quantique il représente la probabilité de transition de l'état  $|0\rangle$  à l'état  $|\vec{q}\rangle$  se produisant au cours du temps  $z$ . On peut faire le lien avec le formalisme des intégrales de chemins de Feynman qui permet une interprétation physique simple des processus de propagation. D. Van Dick en 1980 [34] a déjà réalisé le parallèle entre la théorie dynamique classique et le formalisme des chemins de Feynman dans le cas d'un électron se propageant dans un espace tridimensionnel  $(x, y, z)$  au cours du temps  $t$ . Dans notre cas la probabilité de transition peut se réécrire dans le formalisme des chemins de Feynman [123] comme suit :

$$\langle\vec{q}_1|\mathcal{U}(z, 0)|0\rangle = \int_{\vec{l}(0)=\vec{\chi}}^{\vec{l}(z)=\vec{q}_1} e^{i\frac{S(\vec{l})}{\hbar}} [d\vec{l}(\tau)] \quad (\text{A.1})$$

$\vec{l}$  étant un vecteur bidimensionnel quelconque du réseau réciproque. Ceci correspond à une intégrale de chemin (à ne pas confondre avec un intégrale classique) puisque le membre de droite correspond à une somme sur tous les chemins, chacun étant caractérisé par un poids de  $e^{\frac{iS(\vec{l})}{\hbar}}$ . La mesure d'intégration d'une intégrale de chemin est notée  $[d\vec{l}(\tau)]$  et contient un facteur de normalisation [123],  $l(\vec{\tau})$  représentant un morceau rectiligne d'un chemin particulier. La fonction  $S(\vec{l})$

correspond à l'action classique usuelle, intégrale du lagrangien calculé par rapport au temps  $z$  :

$$S(\vec{l}) = \int_0^z \mathcal{L}(\vec{l}, \tau) d\tau = \int_0^z \frac{(\vec{l}(\tau))^2}{m} - H(\vec{l}, \vec{\rho}, \tau) d\tau = \int_0^z \left( \frac{(\vec{l}(\tau))^2}{m} - \frac{1}{2k_z} \left( \frac{(\vec{l}(\tau))^2}{\hbar^2} - \vec{\chi}^2 \right) - U(\vec{\rho}, \tau) \right) d\tau \quad (\text{A.2})$$

Comme précédemment, nous allons nous contenter de l'ordre 1 du développement de l'opérateur évolution. En reprenant l'équation(5.13) on peut écrire :

$$\langle \vec{q}_1 | \mathcal{U}^1(z, 0) | 0 \rangle = \sum_{j', j} \int_0^z d\tau' \langle \vec{q}_1 | \mathcal{U}^0(z, \tau') | j' \rangle \langle j' | \frac{\mathcal{U}^{pert}(\vec{\rho}, \tau')}{2k_z} | j \rangle \langle j | \mathcal{U}^0(\tau', 0) | 0 \rangle \quad (\text{A.3})$$

Afin de pouvoir exprimer ce terme dans le formalisme des chemins de Feynman, nous devons développer l'onde de Bloch dans la base des  $|\vec{q}\rangle$ . D'après l'équation(2.22) on peut écrire :

$$|j\rangle = \sum_{\vec{G}} C_{\vec{q}_1 + \vec{G}}^j |\vec{q}_1 + \vec{G}\rangle e^{-i\gamma_j z} \quad (\text{A.4})$$

On peut ainsi réécrire l'équation(A.3) dans la base  $|\vec{q}\rangle$  en réalisant l'opération suivante :

$$\begin{aligned} \langle \vec{q}_1 | \mathcal{U}^0(z, \tau') | j' \rangle \langle j' | &= \sum_{\vec{G}, \vec{G}'} \langle \vec{q}_1 | \mathcal{U}^0(z, \tau') | \vec{q}_1 + \vec{G} \rangle \langle \vec{q}_1 + \vec{G}' | C_{\vec{q}_1 + \vec{G}}^{j'} C_{\vec{q}_1 + \vec{G}'}^{j'*} e^{-i\gamma_{j'} \tau'} e^{i\gamma_{j'} \tau'} \\ &= \sum_{\vec{G}} \left| C_{\vec{q}_1 + \vec{G}}^{j'} \right|^2 \langle \vec{q}_1 | \mathcal{U}^0(z, \tau') | \vec{q}_1 + \vec{G} \rangle \langle \vec{q}_1 + \vec{G} | \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

On peut ainsi réécrire le terme perturbatif du premier ordre comme suit :

$$\begin{aligned} \langle \vec{q}_1 | \mathcal{U}^1(z, 0) | 0 \rangle &= \sum_{j', j} \int_0^z d\tau' \sum_{\vec{G}, \vec{G}'} \left| C_{\vec{q}_1 + \vec{G}}^{j'} \right|^2 \left| C_{\vec{q}_1 + \vec{G}'}^j \right|^2 \langle \vec{q}_1 | \mathcal{U}^0(z, \tau') | \vec{q}_1 + \vec{G} \rangle \langle \vec{q}_1 + \vec{G}' | \frac{\mathcal{U}^{pert}(\vec{\rho}, \tau')}{2k_z} | \vec{q}_1 + \vec{G}' \rangle \\ &\quad \times \langle \vec{q}_1 + \vec{G}' | \mathcal{U}^0(\tau', 0) | 0 \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

Cette expression peut de nouveau être écrite en utilisant le formalisme des intégrales de chemins avec :

$$\begin{aligned} \langle \vec{q}_1 | \mathcal{U}^0(z, \tau') | \vec{q}_1 + \vec{G} \rangle &= \int_{\vec{l}(\tau') = \vec{q}_1 + \vec{G}}^{\vec{l}(z) = \vec{q}_1} e^{\frac{iS_2(\vec{l})}{\hbar}} [d\vec{l}(\tau)] \quad \text{et} \quad \langle \vec{q}_1 + \vec{G}' | \mathcal{U}^0(\tau', 0) | 0 \rangle = \int_{\vec{l}(0) = \vec{\chi}}^{\vec{l}(\tau') = \vec{q}_1 + \vec{G}'} e^{\frac{iS_1(\vec{l})}{\hbar}} [d\vec{l}(\tau)] \\ \text{avec} \quad S_1(\vec{l}) &= \int_0^{\tau'} \mathcal{L}(\vec{l}, t) dt \quad \text{et} \quad S_2(\vec{l}) = \int_{\tau'}^z \mathcal{L}(\vec{l}, t) dt \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

On peut donc réécrire le terme perturbateur de l'intensité diffractée comme suit :

$$\begin{aligned} \langle \vec{q}_1 | \mathcal{U}^1(z, 0) | 0 \rangle &= \sum_{j', j} \sum_{\vec{G}, \vec{G}'} \int_0^z d\tau' \left| C_{\vec{q}_1 + \vec{G}}^{j'} \right|^2 \left| C_{\vec{q}_1 + \vec{G}'}^j \right|^2 \int_{\vec{l}(\tau') = \vec{q}_1 + \vec{G}}^{\vec{l}(z) = \vec{q}_1} e^{\frac{i \int_{\tau'}^z \mathcal{L}(\vec{l}, t) dt}{\hbar}} [d\vec{l}(\tau)] \langle \vec{q}_1 + \vec{G}' | \frac{\mathcal{U}^{pert}(\vec{\rho}, \tau')}{2k_z} | \vec{q}_1 + \vec{G}' \rangle \\ &\quad \times \int_{\vec{l}(0) = \vec{\chi}}^{\vec{l}(\tau') = \vec{q}_1 + \vec{G}'} e^{\frac{i \int_0^{\tau'} \mathcal{L}(\vec{l}, t) dt}{\hbar}} [d\vec{l}(\tau)] \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

L'intégrale de chemin donne ainsi une interprétation physique aux termes du développement perturbatif : chaque chemin contribuant au terme du premier ordre est une succession de segments de droite dans le réseau réciproque, où au temps  $\tau'$  le vecteur du réseau réciproque  $\vec{q}_1 + \vec{G}'$

se transfère en  $\vec{q}_1 + \vec{G}$ . La contribution de base de l'équation(A.8) calcule la somme de tous les chemins possibles dans le réseau réciproque pour que, partant du vecteur  $\vec{\chi}$  à  $\tau = 0$  on arrive au vecteur  $\vec{q}_1 + \vec{G}$  à  $\tau = \tau'$ . La probabilité associée à chaque chemin étant  $e^{i\frac{S(\vec{l})}{\hbar}}$ . Physiquement, cela correspond à l'interférence entre tous les chemins du réseau réciproque possible de  $\vec{l}(0) = \vec{\chi}$  à  $\vec{l}(\tau') = \vec{q}_1 + \vec{G}$  ayant comme résultat le chemin quantique "réel" de l'électron. Puis à  $\tau'$  chacun des chemins possibles calculés arrivant en  $\vec{q}_1 + \vec{G}$  passent en  $\vec{q}_1 + \vec{G}$  pour enfin calculer la somme de tous les chemins possibles dans le réseau réciproque partant de  $\vec{q}_1 + \vec{G}$  à  $\tau = \tau'$  jusqu'à la destination finale  $\vec{q}_1$  à  $\tau = z$ . On peut représenter ce processus par un schéma du type diagramme de Feynman représenté sur la figure(A.1).

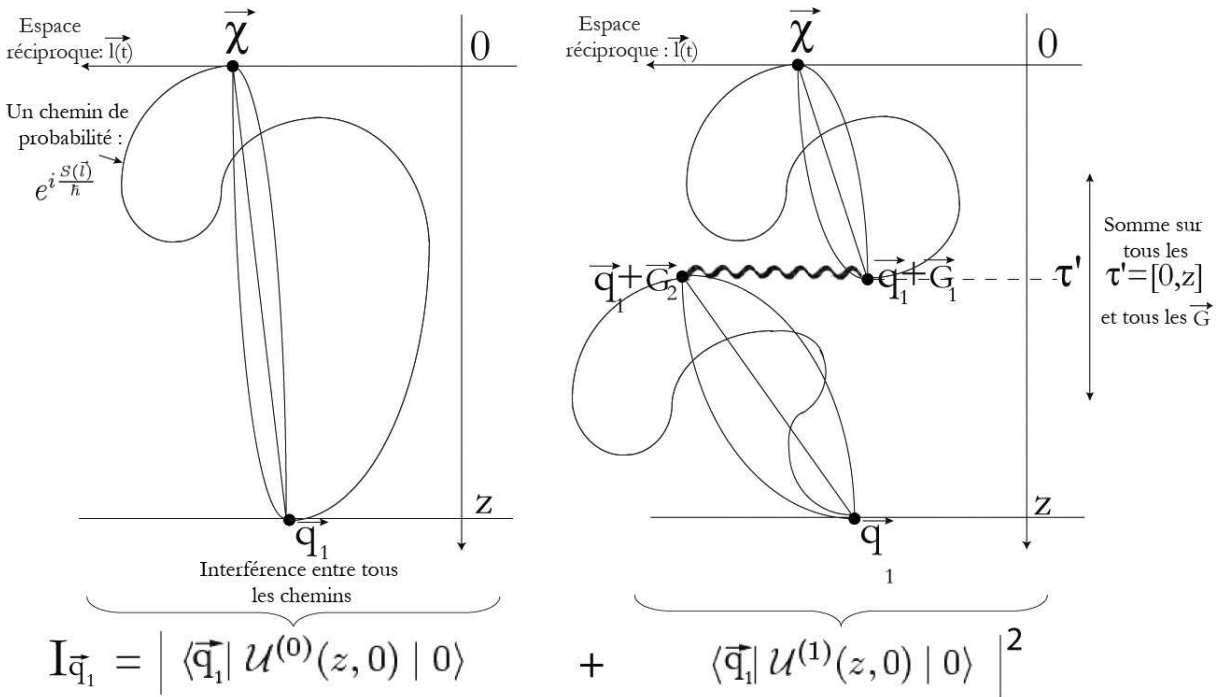


FIG. A.1 – Interprétation des différents termes entrant dans le calcul de l'intensité diffractée  $I_{\vec{q}_1}$  en terme d'interférence de chemins dans le réseau réciproque.

Le calcul final correspond à une somme de toutes ces contributions de base pour tous les temps  $\tau'$  compris de 0 à  $z$  et pour toutes les ondes de Bloch, chacune définie par une combinaison de tous les vecteurs du réseau réciproque  $\vec{q}_1 + \vec{G}$ . C'est donc un calcul extrêmement complet puisqu'il prend en compte tous les événements possibles sur tous les chemins possibles. Une première approximation consiste à considérer la transition comme instantanée, laissant de côté le caractère relativiste du phénomène. Ce genre de simplification de la théorie relativiste en formalisme plus classique n'est pas nouveau en microscopie électronique puisque Fujiwara [42] a déjà montré que l'équation de Dirac pouvait être remplacée par l'équation de Schrödinger. La dernière approximation considère que la perturbation introduite ne réalisera qu'une seule transition pour chaque chemin, ce qui est une approximation logique vis-à-vis du potentiel des HOLZ (voir paragraphe(5.4.1)) et de la déformation. Elle peut s'avérer incorrecte lorsque le cristal déformé s'éloigne trop du cristal parfait. Dans tous les cas, ce formalisme permet une généralisation évidente à des ordres élevés  $m$ , bien que le calcul de ces termes deviennent vite très complexe.

On peut enfin calculer l'expression de l'intensité diffractée dans le formalisme des chemins de



Feynman :

$$I_{\vec{q}_1} = \left| \int_{\vec{l}(0)=\vec{x}}^{\vec{l}(z)=\vec{q}_1} e^{i \int_0^z \frac{\mathcal{L}(\vec{l}, t)}{\hbar} dt} [d\vec{l}(\tau)] + \langle \vec{q}_1 | \mathcal{U}^1(z, 0) | 0 \rangle \right|^2 \quad (\text{A.9})$$

avec  $\langle \vec{q}_1 | \mathcal{U}^1(z, 0) | 0 \rangle$  défini précédemment dans l'équation(A.8). Cette expression donne une idée très claire des différentes contributions de tous les chemins (perturbés ou non) à l'intensité diffractée. Chacune de ces contributions peut être aisément visualisée grâce au schéma(A.1). On voit ainsi apparaître naturellement la différence entre notre formalisme et la théorie classique des ondes de Bloch. Là où notre formalisme prend en compte tous les chemins possibles en traitant la perturbation par un changement brusque dans leurs trajets, la théorie dynamique classique ne considère qu'une modification de l'action de chacun d'entre eux. En théorie dynamique classique, la déformation agit donc en changeant simplement les probabilités associées à chacun des chemins non perturbés [34] et ne considère jamais d'autres chemins possibles pouvant être introduits par la déformation, ce qui le rend, dans ce cas précis, beaucoup moins complet que notre approche.

## Annexe B

# La microscopie électronique en transmission

### B.1 Introduction

Les principaux apports de la microscopie électronique en transmission (MET ou TEM) sont d'une part sa très grande résolution dans l'espace réel pouvant atteindre l'échelle atomique, avec des grossissements variant de  $10^3$  à  $10^6$ , et d'autre part la possibilité de combiner l'information obtenue dans l'espace réel en mode image avec l'information obtenue dans l'espace de Fourier (ou réciproque) en mode diffraction. De plus, la nature de l'interaction électron-matière permet de coupler les études structurales ou morphologiques à des études de composition chimique.

La possibilité de réaliser un microscope avec des électrons, c'est à dire produire une image agrandie d'un objet, résulte de plusieurs propriétés :

- la nature ondulatoire des électrons. Un faisceau d'électrons équivaut au rayonnement de longueur d'onde  $\lambda = h/mv$ , où  $h$ ,  $m$  et  $v$  sont respectivement la constante de Planck, la masse et la vitesse de l'électron, ces deux dernières étant dépendantes de la tension d'accélération  $V$ . Par exemple, pour une tension  $V=200\text{kV}$ ,  $\lambda=0,002507\text{nm}$ .
- l'existence de lentilles adaptées à ce type de rayonnement ; il est possible de focaliser un faisceau parallèle d'électrons monocinétiques à l'aide de lentilles magnétiques.
- l'existence de sources à électrons (canons thermoélectroniques à filament de tungstène ou  $LaB_6$  - canons à émission de champ).

Comparé à d'autres sources de rayonnement, le faisceau électronique offre avant tout l'avantage d'un pouvoir de résolution élevé du fait de ses faibles longueurs d'onde. En effet, la limitation du pouvoir de résolution par des phénomènes de diffraction dans un instrument optique augmente avec la longueur d'onde du rayonnement utilisé. Si le critère de Rayleigh est appliqué, les images en deux points distincts de l'objet ne sont "séparables" que si la distance entre ces points est au moins égale à  $R=0,61\lambda/\alpha$  où  $\lambda$  est la longueur d'onde du rayonnement utilisé et  $\alpha$  l'ouverture angulaire effective de la lentille objectif. Le pouvoir de résolution est donc accru par l'utilisation de très faibles longueurs d'ondes. L'ouverture effective de l'objectif est principalement limitée par l'aberration sphérique  $C_S$ . Cette aberration crée un disque de confusion de rayon minimum  $R_S=C_S\alpha^3$ . Les valeurs de  $R$  et de  $R_S$  variant en sens opposé avec l'ouverture de l'objectif, il existe une ouverture optimale donnant une résolution  $R_{opt}=B\lambda^{3/4}C_S^{1/4}$ , où  $B$  est proche de l'unité. Les lentilles objectifs ont des  $C_S$  de l'ordre de 0,7 à 1,5mm.

Plusieurs aspects importants sont à prendre en compte dans l'interaction entre les électrons et l'échantillon. Comparée à celle des autres rayonnements utilisés pour des études de diffraction (rayons X et neutrons), cette interaction peut être considérée comme très forte. En effet, les

volumes d'interaction typiques pour les neutrons thermiques se situent autour de quelques  $cm^3$ , les épaisseurs d'interaction pour la diffraction X sont de l'ordre de dizaines de microns. Pour des électrons d'énergie moyenne (200keV), l'épaisseur des échantillons ne doit pas dépasser environ 100nm et il devient donc nécessaire de passer par une étape de préparation des échantillons qui vise à les amincir pour l'observation MET (voir l'annexe(E)). D'autre part, cette interaction électron-matière est complexe et nécessite une théorie adaptée pour la simulation des images obtenues en microscopie : c'est le domaine de la théorie dynamique. La théorie de la diffraction prend en compte les électrons ayant eu une interaction élastique (sans perte d'énergie). Cependant, d'autres interactions sont à considérer : les interactions inélastiques, conduisant à des pertes d'énergie des électrons transmis (de quelques eV à quelques keV ; c'est le domaine de la spectroscopie de pertes d'énergie des électrons (EELS), des cartographies et des images filtrées en énergie), les transferts d'énergie produisant des électrons secondaires et/ou des électrons Auger, les phénomènes de désexcitation produisant des photons X (c'est le domaine de la microanalyse X). On peut également citer d'autres signaux provenant de cette interaction comme les électrons rétrodiffusés, la cathodoluminescence, le courant induit dans l'échantillon, etc.

## B.2 Présentation du MET

Pour une présentation plus exhaustive du microscope électronique en transmission, le lecteur pourra consulter un site internet que j'ai pu réaliser au cours de ma thèse : (<http://www.cemes.fr/microscopie>). La colonne du MET typique est schématisée sur la figure B.1.

La colonne et le canon sont maintenus sous vide poussé ( $10^{-5}$  à  $10^{-6}$  Torr) , indispensable pour que les électrons puissent se propager librement avant et après l'échantillon. Le MET est constitué schématiquement d'un système d'illumination de l'échantillon (canon et lentilles condenseurs) et d'un système de formation de l'image (lentilles objectifs, lentilles intermédiaires et projecteur).

### B.2.1 Canon

Le faisceau électronique est généré par le canon à électrons. Deux types de canons peuvent être distingués : le canon thermoélectronique et le canon à émission de champ.

Les canons thermoélectroniques sont des canons à filaments de tungstène ou d'hexaborure de lanthane ( $LaB_6$ ). Les électrons sont émis par effet thermoélectronique à partir du filament chauffé entre 1600 et 2400°C. Le système Wehnelt-anode (équivalent à deux lentilles, convergente et divergente) condense les électrons émis en un faisceau électronique (figure(B.1)). Une faible tension négative est appliquée au cylindre Wehnelt et les électrons sortant de la cathode convergent dans une zone appelée le cross-over. A partir d'une certaine valeur du courant utilisée pour chauffer le filament, ce dernier sature et il est inutile d'augmenter encore le courant d'alimentation. Les conditions de luminosité sont optimales à la saturation ou juste en dessous.

Dans le cas d'un canon à émission de champ ("Field Emission Gun" ou FEG), les électrons sont extraits du filament par la force d'extraction du champ électrique existant entre le filament et l'anode (c'est le principe de l'émission de champ : effet tunnel). Le filament est un petit cristal de tungstène en forme d'aiguille porté à une tension d'extraction importante (2 à 7kV). Dans le cas d'un FEG à cathode froide ou d'un FEG à cathode froide thermo-assisté, le rayon de courbure de la pointe est très petit et les électrons sont directement extraits de la pointe. Un canon FEG Schottky utilise une pointe plus large possédant une couche en surface de  $ZrCO_2$  (zircone). La zircone possède un travail de sortie des électrons plus faible que le tungstène et

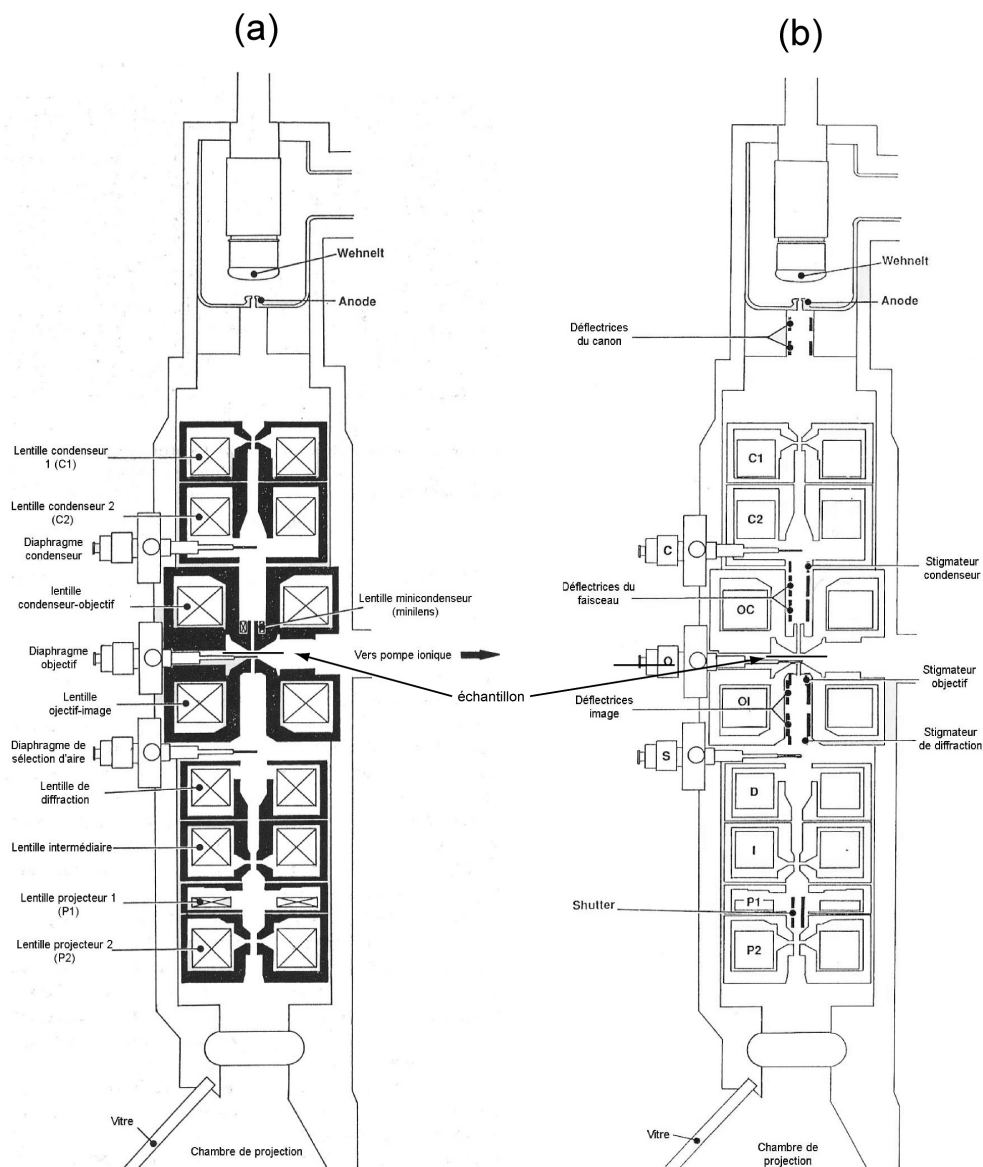


FIG. B.1 – Schéma de la colonne d'un microscope électronique en transmission : (a) lentilles et diaphragmes, (b) déflecteurs et stigmatiseurs (documents FEI).

permet ainsi l'utilisation d'une pointe plus large. L'importante brillance des FEG provient de deux raisons :

- grande émissivité
- les électrons sortent du filament avec un angle très petit.

De plus, les électrons émis par les FEG ont une dispersion en énergie, autour de la valeur nominale, très faible en raison de la faible température de travail et de la géométrie du filament.

### B.2.2 Système électro-optique

Le faisceau d'électrons, émis par le canon, est repris par un système de lentilles électromagnétiques, dites condenseur, destiné à condenser le faisceau sur l'objet (figure(B.1a)). Ces

lentilles changent le mode d'éclairement de l'objet. Les électrons transmis à travers l'échantillon sont focalisés grâce à la lentille objectif pour former la première image intermédiaire. Le réglage de cette lentille assure la mise au point sur l'objet et ses qualités déterminent la résolution. La seconde image intermédiaire, formée par la lentille intermédiaire, devient l'objet de la lentille projecteur. Celle-ci forme l'image agrandie sur l'écran de visualisation du microscope. Le grandissement peut être changé en agissant sur les courants d'excitation des projecteurs seuls si le mode microscope reste inchangé (SA ou M) ou également sur l'excitation de l'objectif lorsqu'on change de mode. En modifiant le courant dans la lentille intermédiaire, deux images peuvent être observées :

- l'image du plan focal de l'objectif contenant le diagramme de diffraction de l'objet.
- l'image du plan image de l'objectif où est située la première image.

### B.2.3 Diaphragmes d'ouverture

Ces diaphragmes limitent la taille du faisceau à certains endroits stratégiques de sa trajectoire. Le diaphragme condenseur situé en aval des lentilles condenseurs permet de limiter l'ouverture angulaire du faisceau (figure B.1a)). Le diaphragme objectif (ou de contraste) situé dans son plan focal image limite le nombre de faisceaux diffractés contribuant à l'image. Le diaphragme d'aire sélectionnée (SA) situé au niveau de la première image intermédiaire permet de choisir la région de l'objet dont on veut obtenir un diagramme de diffraction.

### B.2.4 Résolution

La résolution effective d'un microscope est sa faculté à séparer dans l'image deux points les plus rapprochés possibles de l'objet. Elle est limitée par trois effets de l'objectif qui ne s'annulent pas sur l'axe optique : diffraction par le diaphragme d'ouverture, aberration sphérique et aberration chromatique. Chacun de ces effets transforme l'image stigmatique d'un point en un disque de confusion. La résolution correspond à la largeur du pic de la transformée de Fourier de la fonction de transfert de la lentille, qui indique le contraste du faisceau transmis en fonction de la fréquence spatiale. Pour une lentille parfaite, la fonction de transfert est un plateau et la transformée de Fourier est un pic de Dirac.

La résolution du microscope dépend de la longueur d'onde des électrons et des qualités optiques des lentilles. La résolution ponctuelle, en particulier, est limitée par les aberrations de l'objectif.

Les principales aberrations sont :

- l'aberration de sphéricité : écart à la sphéricité des surfaces d'onde à la sortie d'une lentille recevant une onde plane, les rayons passant loin de l'axe optique convergent plus rapidement que ceux proches de l'axe. La lentille est plus "dure" sur les bords.
- l'aberration chromatique : variation de la distance focale en fonction de la longueur d'onde des électrons.
- l'aberration de diffraction : diffraction des ondes électroniques par le diaphragme objectif.
- l'astigmatisme : écart à la symétrie de révolution du système optique.

Ces aberrations peuvent être corrigées dans une certaine mesure. Le principe de ces corrections font l'objet de l'annexe(C).

## Annexe C

# Le correcteur d'aberration sphérique

L'objet de cette annexe est de présenter le principe du correcteur d'aberration sphérique installé sur le TECNAI F20 du CEMES. Toutes les études de cette thèse ont été réalisées sur ce microscope très particulier. Comme nous avons pu le voir dans la présentation des résultats, le correcteur a permis de considérables améliorations sur la qualité des images HREM et holographie HREM, permettant ainsi d'obtenir des mesures difficilement comparables à celles obtenues sur un microscope électronique en transmission classique. C'est pourquoi nous allons lui consacrer cette partie pour comprendre son fonctionnement utilisant de nombreuses lentilles multipolaires.

### C.1 Les aberrations en optique électronique

La présentation des lentilles électromagnétiques, telle qu'elle a été introduite dans l'annexe(B), suppose implicitement admises les hypothèses suivantes :

1. Les trajectoires des électrons sont paraxiales puisque nous utilisons l'approximation de Gauss pour réaliser les schémas optiques
2. Tous les faisceaux sont constitués par des électrons monocinétiques
3. L'effet de répulsion que les électrons exercent entre eux est négligeable (sauf dans le cas de l'effet Boersch au cross over du canon)

Ces conditions ne sont pas rigoureusement remplies, en général. Il en résulte que les lentilles électromagnétiques présentent, comme les lentilles de verre de l'optique classique, des défauts ou aberrations qui altèrent la qualité des images obtenues. Ces défauts ont des origines différentes. On peut les classer, par exemple, de la manière suivante :

1. Aberrations géométriques
2. Aberrations chromatiques
3. Aberrations de charge d'espace

Les deux premiers défauts sont analogues à ceux des lentilles de verre. Par contre le troisième défaut n'a pas d'équivalent en optique classique. Nous avons également admis que les champs électriques et magnétiques des lentilles sont parfaitement de révolution (puisque l'on ne considérerait pour le moment que les lentilles rondes). Cela nous amène à envisager un quatrième groupe de défaut que l'on désigne par :

1. Défauts inhérents aux imperfections de construction des lentilles
2. Diffraction

En effet, par la suite des très faibles ouvertures des lentilles électromagnétiques, la diffraction joue un rôle important dans la formation des images. Dans le cadre de cette annexe consacrée au correcteur, nous ne nous intéresserons qu'aux aberrations géométriques et chromatiques

### C.1.1 Aberrations géométriques

On retrouve en optique électronique les cinq aberrations classiques bien connues :

1. Aberration de sphéricité
2. Coma
3. Courbure de champ
4. Astigmatisme
5. Distorsion

Ces défauts sont communs aux lentilles électrostatiques et magnétiques. Leur interprétation est tout à fait analogue à celle qu'on en donne en optique classique. Dans le cas qui nous intéresse, les lentilles magnétiques, en raison du phénomène de rotation des électrons qui accompagne leur focalisation, trois nouveaux défauts, inconnus pour les lentilles de verre, apparaissent :

1. la coma anisotrope
2. l'astigmatisme anisotrope
3. la distorsion anisotrope

Il peut donc exister huit défauts dans les lentilles électromagnétiques. La correction de ces défauts ne peut se faire de manière analogue à la correction faite en optique classique. Pour les lentilles de verre, on peut corriger simultanément les aberrations de sphéricité et les aberrations chromatiques, par exemple, ce qui ne peut être fait en optique électronique. Le principe général de ces corrections consiste à associer, en nombre convenable, des éléments présentant des défauts de sens contraires. Mais d'autres voies pour corriger les aberrations en optique électronique ont été préalablement suivies :

1. Diminuer l'angle d'ouverture des lentilles, afin de retomber dans le cas de la dioptrique de Gauss. Mais cela se fait au détriment de la luminosité des images
2. Trouver analytiquement des formes de champ magnétique dans la lentille qui supprimeraient totalement certaines aberrations. Certaines découvertes ont été réalisées à ce sujet, mais la forme des champs trouvée ne pouvait être réalisée en pratique. Cette solution ne peut, qu'au mieux, permettre la construction de lentilles présentant une aberration minimum
3. Construire des éléments d'optique électronique (autre que les lentilles rondes vues précédemment) présentant des aberrations de signes opposés à celles des lentilles rondes formant la colonne du microscope. C'est le cas pour la correction de l'astigmatisme et de l'aberration sphérique comme nous le verrons par la suite

Nous allons tous d'abord décrire les défauts des lentilles.

#### Aberration sphérique

Cette aberration provient du fait que les électrons paraxiaux issus du point  $P$  vont se couper en  $P_c$ , et les électrons marginaux en un autre point  $P_m$  plus rapproché de la lentille. Cela revient à dire que les bords de la lentille sont trop convergents. Après la traversée de la lentille, les trajectoires sont tangentes à une surface que l'on appelle caustique, composée de deux nappes. L'une d'elles est confondue avec la portion  $P_m P_c$  de l'axe optique, la seconde est de révolution autour de cet axe ; elle a pour méridienne une courbe  $AP_c A'$ , qui présente un point de rebroussement en  $P_c$  (figure(C.1)).

Pour une lentille électromagnétique, comme pour une lentille de verre, le rayon  $d_0$  du cercle d'aberration transversale est proportionnel à la constante  $C_s$  appelée constante d'aberration sphérique, multipliée par l'angle d'ouverture  $\alpha$  à la puissance 3 :  $d_0 = C_s(\alpha)^3$ . On dit que

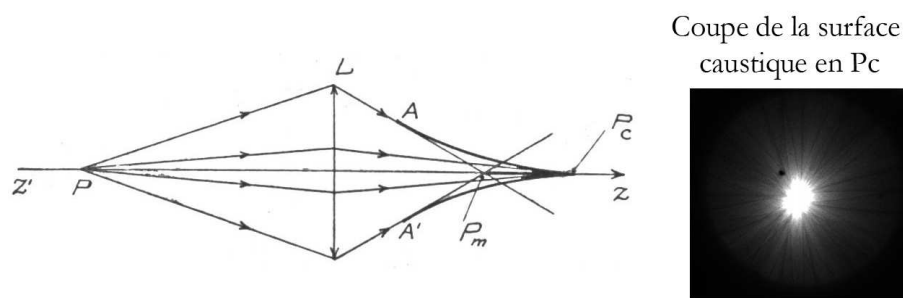


FIG. C.1 – Influence de l'aberration sphérique d'une lentille sur le trajet géométrique des électrons.

l'aberration sphérique est d'ordre 3. On verra une notation plus générale au paragraphe(C.1.2) permettant de mettre en évidence des effets d'ordre plus élevés. La constante  $C_s$  (parfois notée  $C_3$  si on considère seulement l'ordre 3) dépend de la configuration du champ dans la lentille électromagnétique. Cela revient à dire qu'il est possible de la modifier en agissant sur la forme des pièces polaires. C'est ainsi qu'a pu être déterminée la forme optimale pour les pièces polaires des lentilles afin de minimiser l'aberration sphérique (distance entre les entrefers, forme du champ magnétique, saturation des pièces polaires, etc ...). Malgré le fait que cette aberration fut minimisée grâce à un "design" des lentilles performantes, il reste des traces de ce défaut qui est le principal facteur limitant de la résolution des microscopes électroniques en transmission modernes. Les lentilles électromagnétiques rondes ont toutes des convergences positives, leur aberration de sphéricité est donc aussi positive ( $C_s > 0$ ). Il est donc rigoureusement impossible d'obtenir une correction de cette aberration par une combinaison de ce type de lentilles. Par contre d'autres composants de l'optique électronique, comme les lentilles hexapolaires, ont des aberrations de sphéricité négatives. C'est le sujet du paragraphe(C.1.5).

### Coma

L'existence de cette aberration a pour effet de transformer l'image du point situé en dehors de l'axe en une figure ayant l'apparence d'une comète (figure(C.2)).

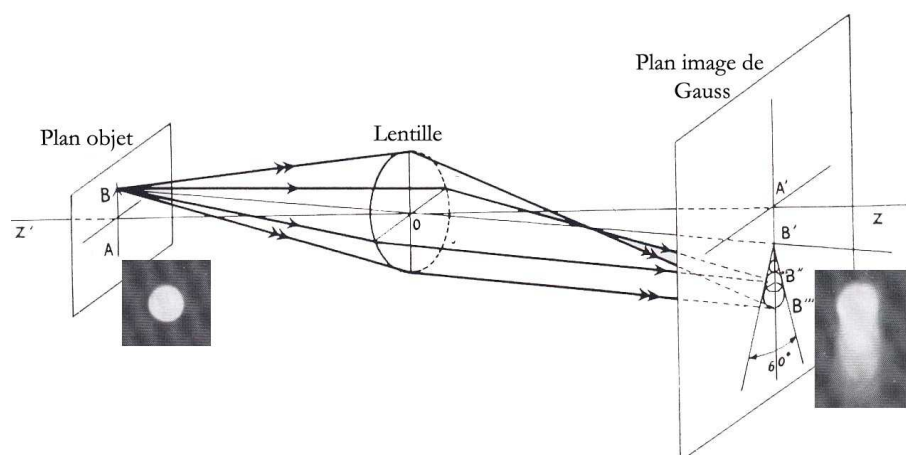


FIG. C.2 – Influence de la coma d'une lentille sur le trajet géométrique des électrons.

Si l'on considère des rayons situés dans le plan méridien de symétrie contenant l'objet, l'image de  $B$  est en  $B'$ . Des rayons traversant une même zone de la lentille sont, en général,



disposés obliquement les uns par rapport aux autres ; des rayons diamétralement opposés se coupent dans le plan image. Des rayons passant dans des zones concentriques de la lentille intersectent le plan image suivant des cercles ; ceux-ci ne sont pas concentriques, mais disposés entre deux droites passant par le point  $B'$  et formant un angle de  $60^\circ$ . La figure observée dans le plan image correspond à une variation du grandissement de l'image suivant les différentes zones. Chaque zone donne une image en forme de cercle, appelé cercle comatique, dont le rayon décroît quand on se rapproche du centre de la lentille. En réalité, ces cercles ne sont pas distincts ; ils se fondent en une figure unique, ayant l'apparence indiquée.

Dans le cas des lentilles électromagnétiques, on observe une rotation de la queue des images autour du point correspondant à l'image paraxiale ; si bien que la queue de la comète n'est pas forcément orientée perpendiculairement à l'axe optique : c'est la coma anisotrope. Le sens de la rotation est lié à celui du champ magnétique et il s'inverse quand le courant change de sens dans les bobines magnétisantes. On minimise cette aberration en utilisant un alignement que l'on appelle le "coma-free" dont on parlera dans la suite. On peut même supprimer cette aberration en utilisant une lentille de Stabenow (deux lentilles l'une à la suite de l'autre avec des courants qui parcourent les bobines en sens inverse).

### Astigmatisme et courbure de champ

On observe ces deux défauts pour des points éloignés de l'axe, même si le diaphragme d'ouverture de la lentille est petit. On sait que les rayons issus d'un point  $P$  de l'objet ne convergent pas en un même point, mais s'appuient sur deux petites portions de droites, appelées focales. La focale sagittale  $F_s$  est située dans le plan méridien défini par le point  $P$  et l'axe  $Z$  ; la focale méridionale  $F_m$  est perpendiculaire à la précédente. C'est l'ouverture du diaphragme qui conditionne la longueur des deux focales.

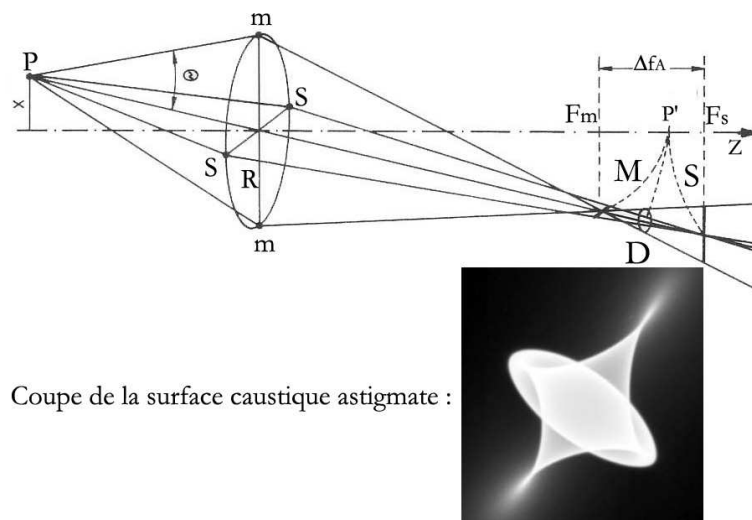


FIG. C.3 – Influence de l'astigmatisme d'une lentille sur le trajet géométrique des électrons. La coupe de la surface caustique y est aussi reportée.

Comme dans le cas des autres aberrations, les rayons suivent des trajectoires comprises dans une surface caustique. Une coupe, entre la lentille et la focale méridionale, perpendiculairement à cette surface caustique est représentée par le cliché de la figure (C.3). Elle correspond à l'emplacement des électrons déviés d'un cercle parfait dû à la présence de l'astigmatisme. Entre  $F_m$  et  $F_s$ , on trouve une section circulaire  $D$  du faisceau, qui constitue le disque de diffusion

minimum. Si le point  $P$  se déplace sur toute la surface de l'objet,  $F_m$  et  $F_s$  décrivent respectivement deux surfaces : la surface image sagittale  $S$  et la surface image méridionale  $M$ , dont les méridiennes sont représentées sur la schéma optique de la figure(C.3). Ces deux surfaces sont respectivement tangentes, sur l'axe de révolution  $z$ , au plan image de Gauss. Quand au cercle  $D$ , il décrit de son côté une surface courbe  $D$  entre  $S$  et  $M$ . Elle correspond à la position de l'image la plus acceptable.

Ce qui précède décrit également l'aberration de courbure de champ de l'image ; celle-ci peut être notable si l'inclinaison des faisceaux augmente. Les deux défauts apparaissent simultanément dans la formation des images.

Dans la lentille électromagnétique, les deux lignes focales tournent d'un certain angle par rapport aux positions habituelles : elles ne sont plus ni sagittale, ni méridionale. Pourtant elles se trouvent toujours orientées perpendiculairement entre elles. On appelle ce phénomène, l'astigmatisme anisotrope. L'astigmatisme d'une lentille ronde peut être compensé en utilisant des stigmatiseurs constitués de quadripôles dont nous parlerons dans la suite.

## Distorsion

Lorsque dans un système optique convenablement diaphragmé on arrive à supprimer l'astigmatisme et la courbure de champ pour des faisceaux inclinés sur l'axe optique, il peut subsister un autre défaut qu'on appelle la distorsion : un objet rectiligne qui ne rencontre pas l'axe a comme image une ligne courbe.

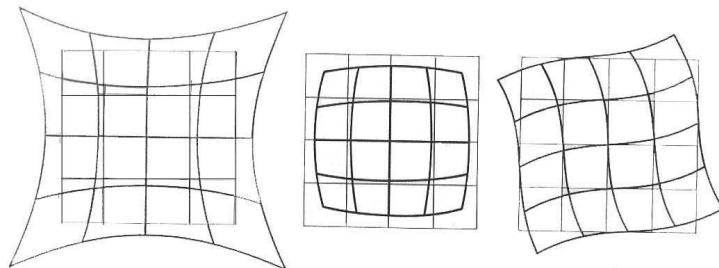


FIG. C.4 – Influence des distorsions géométriques : a = croissant, b = barillet, c = distorsions anisotropes.

Ce défaut affecte la forme de l'image et non sa finesse. Il consiste, en fait, dans la destruction de la similitude entre l'image et l'objet. On connaît les apparences classiques résultant de la déformation des images : distorsion en barillet (image du milieu figure(C.4)) ou en croissant (à gauche). En définitive, il s'agit d'une variation progressive du grandissement, quand on s'éloigne de l'axe. Cet effet est proportionnel au cube de la distance du point lumineux à l'axe de révolution de la lentille (voir paragraphe(C.1.2)). La distorsion ne joue pratiquement pas de rôle chaque fois que le système optique n'est appelé à former l'image que d'une très petite portion de l'objet autour de l'axe. Dans le cas des lentilles électromagnétiques, on observe un phénomène particulier : il se produit une déformation, par rotation, des parties extérieures de l'image (photo de droite). C'est la distorsion anisotrope (ou distorsion de rotation). Il faut noter que dans l'optique du TEM, les lentilles projecteurs sont responsables des distorsions de l'image. Si l'ouverture et le champ de la lentille sont assez importants, toutes les aberrations géométriques peuvent apparaître simultanément ; on observe un défaut de finesse d'ensemble de l'image, résultant de leur superposition.

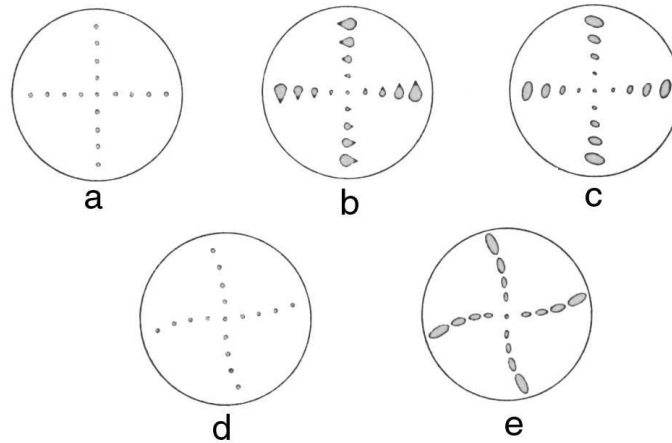


FIG. C.5 – Influence des aberrations anisotropes propres aux lentilles électromagnétiques : a = objet, b = coma anisotrope, c = astigmatisme anisotrope, d = distorsion anisotrope, e = courbure de champ + distorsion anisotrope

### Aberrations anisotropes propres aux lentilles électromagnétiques

La figure(C.5.a) représente l'objet constitué d'une série de petit trous percés suivant deux axes rectangulaires :

1. Le coma anisotrope se traduit par un effet du type classique (comète), mais dont l'orientation ne se produit pas dans la même direction. C'est la figure b.
2. L'astigmatisme anisotrope est figuré en c : l'image d'un point objet est une petite ellipse dont les axes sont inclinés par rapport à la direction radiale.
3. La distorsion anisotrope produit l'effet de la figure d. Enfin si l'astigmatisme anisotrope est accompagné de courbure de champ et de distorsion anisotrope, l'apparence de l'image est celle de la figure e.

Tous ces défauts, spéciaux aux lentilles électromagnétiques, s'inversent en même temps que le sens du champ magnétique. Cela permet de les distinguer des autres.

#### C.1.2 Expressions générales du décalage à la trajectoire de Gauss du aux aberrations géométriques

Considérons un système optique conventionnel  $(P_0, P_a, P_i)$  où  $P_0$  désigne le plan objet,  $P_a$  la pupille de sortie et  $P_i$  le plan de formation de l'image (image(C.6.a)). Les aberrations détaillées géométriquement depuis le début de cette annexe peuvent être exprimées mathématiquement en terme d'écart à la trajectoire de Gauss  $T_G$  dans le plan de formation de l'image que nous noterons  $\Delta u_i$  (figure(C.6.a)). Le traitement matriciel des aberrations permettant de retrouver cette expression est ici hors sujet et se trouve résumé dans divers ouvrages [124, 125, 126].

$$\begin{aligned}
 \Delta u_i = & Cr_a^2 u_a \quad \text{Aberration sphérique} \\
 & + 2(B + ib)r_a^2 u_0 + (B - ib)u_a^2 u_0 * \quad \text{Coma} \\
 & + (A + ia)u_0^2 u_a * \quad \text{Astigmatisme} \\
 & + Fr_0^2 u_a \quad \text{Courbure de champ} \\
 & + (D + id)r_0^2 u_0 \quad \text{Distorsion}
 \end{aligned} \tag{C.1}$$

Les divers termes  $C, B, A, F, D, b, a, d$  correspondent aux coefficients des aberrations géométriques développées. Les variables  $r_a = \sqrt{x_a^2 + y_a^2}$  et  $r_0 = \sqrt{x_0^2 + y_0^2}$  correspondent au module des distances de Larmor complexe  $u_a = x_a + iy_a$  et  $u_0 = x_0 + iy_0$  définies dans la figure(C.6.a). On remarque que seules les distorsions dépendent de la position du point objet, mais que les autres aberrations dépendent de l'angle de la trajectoire par rapport à l'axe optique (défini par les distance dans la pupille de sortie  $P_a$ ).

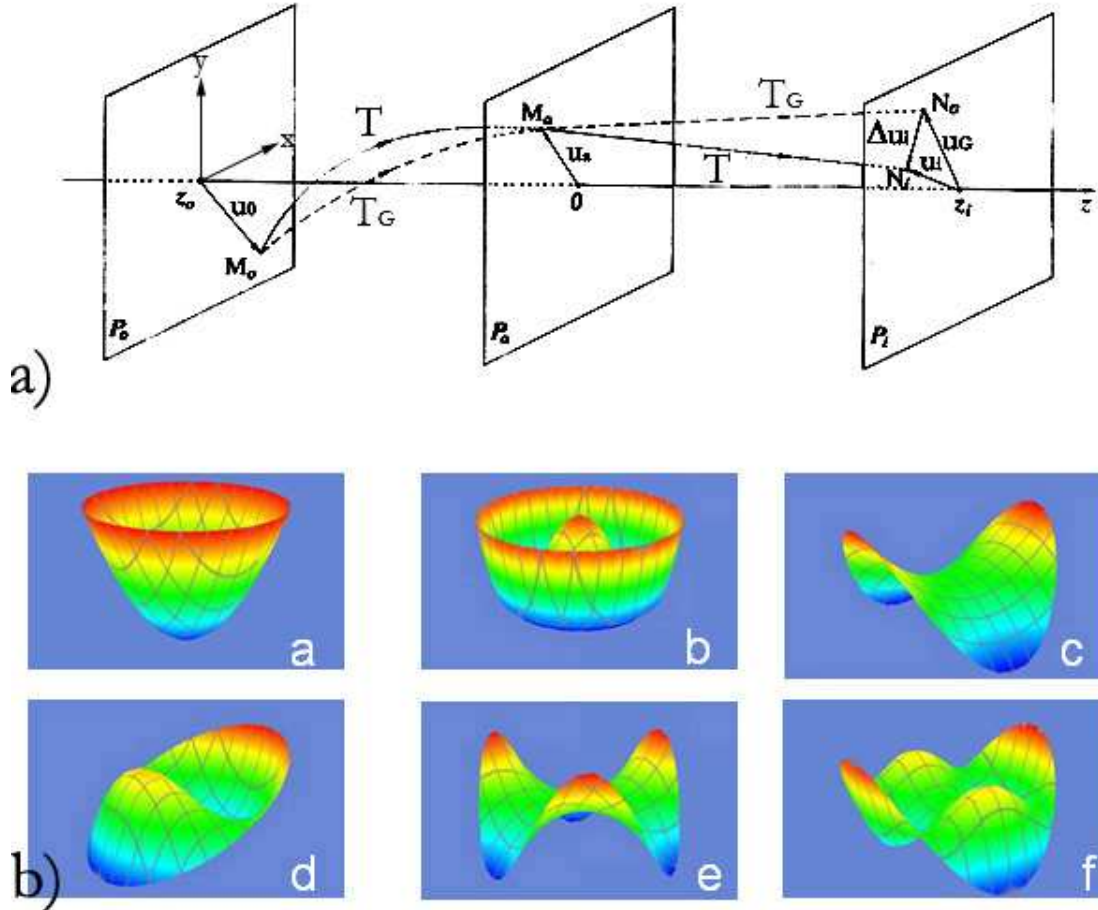


FIG. C.6 – a) : Trajet gaussien  $T_G$  et réel  $T$  des rayons dans un système optique conventionnel. b) : Influence des aberrations sur la symétrie du front d'onde : a = défocalisation  $C_1$ , b = aberration sphérique  $C_3$ , c = astigmatisme  $A_1$ , d = coma  $B_2$ , e = astigmatisme  $A_2$ , f = astigmatisme  $A_3$

Les coefficients  $C$ =aberration sphérique,  $B$ =coma,  $A$ =astigmatisme,  $F$ =courbure de champ,  $D$  = distorsion correspondent à la partie isotrope des aberrations. Les termes  $b, a, d$  correspondent aux coefficients d'aberrations anisotropes propres aux lentilles électromagnétiques et résumés dans le paragraphe (C.1.1). Ces coefficients peuvent être décomposés en série de puissance en fonction du grandissement réciproque  $m = \frac{1}{M}$  avec  $M$  le grandissement du microscope. Par exemple le coefficient de coma global  $B$  peut s'écrire :

$$B = B_0 + B_1 \times m + B_2 \times m^2 + B_3 \times m^3 + B_4 \times m^4 + etc... \quad (C.2)$$

La même opération peut être réalisée pour  $C, A, D, F, a, b$  et  $d$ . Ces divers développements sont valables pour tous les types de lentilles (électromagnétiques, électrostatiques, rondes, multipolaires, etc...). On peut donc écrire différents types de coefficients d'aberrations d'ordre  $i$  dans la série :  $A_i, C_i, B_i, F_i$  etc ... Ces divers coefficients sont indépendants de la position de l'objet ainsi

que du grandissement ; ils ne dépendent que des caractéristiques de la lentille (distance focale, etc ...). Dans le cas particulier des lentilles rondes on ne trouve que des coefficients impairs pour  $C$  :  $C_1$ =défocalisation,  $C_3 = C_s$ =aberration sphérique d'ordre 3,  $C_5$ =aberration sphérique d'ordre 5, etc ... Les coefficients de la coma sont  $B_2$ = coma axial d'ordre 2,  $B_4$ =coma axial d'ordre 4, etc ... L'astigmatisme contient  $A_1$ =astigmatisme d'ordre 1,  $A_2$  = ordre 2,  $A_3$  = ordre 3, etc ... Le même raisonnement peut être fait pour les coefficients des aberrations anisotropes.

Depuis le début, nous avons développé l'effet des aberrations sur le faisceau dans l'espace réel par l'intermédiaire d'un décalage  $\Delta u_i$  dans le plan image entre l'image stigmatée et réelle. En microscopie électronique en transmission (notamment en HREM) le même traitement est souvent réalisé dans l'espace de Fourier où un décalage  $\Delta u_i$  peut être traité par une variation de phase  $\chi(\omega)$  en fonction de la fréquence spatiale complexe  $\omega = \lambda g$  (aussi appelé angle complexe de diffusion). Dans le cas d'une lentille ronde, la modification de la phase du front d'onde peut s'écrire [110] :

$$\begin{aligned} \chi(\omega) = \text{Re} & \left( \frac{1}{2} \omega \omega^* C_1 + \frac{1}{2} \omega^{*2} A_1 + \omega^2 \omega^* B_2 + \frac{1}{3} \omega^{*3} A_2 + \frac{1}{4} (\omega \omega^*)^2 C_3 + \omega^3 \omega^* S_3 + \frac{1}{4} \omega^{*4} A_3 + \omega^3 \omega^{*2} B_4 + \frac{1}{5} \omega^{*5} A_4 \right. \\ & \left. + \frac{1}{6} (\omega \omega^*)^3 C_5 + \frac{1}{6} \omega^{*6} A_5 + \text{etc...} \right) \end{aligned} \quad (\text{C.3})$$

Cette variation de la phase peut être interprétée comme une modification de la forme du front d'onde par ces aberrations. Chacune ayant une action différente, on voit souvent dans la littérature une appellation de ces aberrations en fonction des symétries du front d'onde déformé. Un résumé des notations rencontrées est réalisé ci-dessous (les lettres correspondent aux représentations de la figure(C.6.b)) :

1.  $A_1$ =Astigmatisme d'ordre 1 (par rapport à la représentation en trajectoire dans l'espace réel) = Two-fold Astigmatism (Astigmatisme de symétrie 2 par rapport à la symétrie du front d'onde dans l'espace de Fourier) (c) ;  $A_2$ =astigmatisme d'ordre 2 = Three fold Astigmatism (e) ;  $A_3$ = astigmatisme d'ordre 3 = four-fold astigmatism (f), etc ...
2.  $C_1$ = défocalisation (a),  $C_3$ = Aberration sphérique d'ordre 3 (b),  $C_5$ =Aberration sphérique d'ordre 5,  $B_2$ =Coma axial d'ordre 2 (d),  $B_4$ =Coma axial d'ordre 4

### C.1.3 Aberration chromatique

Dans l'étude des aberrations géométriques, on suppose implicitement que le faisceau incident est composé d'électrons monocinétiques. Si les électrons ont des vitesses différentes, leurs trajectoires sont distinctes : pendant la traversée d'une lentille électromagnétique, les électrons les moins rapides sont les plus déviés. Il en résulte une succession de foyers entre  $F_l$  (foyer des électrons lents) et  $F_r$  (foyer des électrons rapide).

Ceci est à rapprocher du fait bien connu que la distance focale d'une lentille de verre varie avec la couleur, c'est-à-dire avec la longueur d'onde de la lumière utilisée. De même qu'en optique classique, on définira en optique électronique une aberration chromatique longitudinale principale :  $l_e = F_l F_r$ , et une aberration chromatique transversale principale  $d_c$  qui est le rayon du cercle  $D$  (figure(C.7)). Cette valeur  $d_c$  est proportionnelle à une constante notée  $C_c$ , appelée constante d'aberration chromatique. Les fluctuations d'énergies des électrons en sortie de pointe du canon  $\Delta E$  peuvent donc devenir contraignantes à cause de cette aberration. Ces variations dépendent du canon utilisé mais sont typiquement beaucoup plus faibles pour un FEG ( $\Delta E = 0,6eV$  pour le Tecnai F20) que pour un LaB6 ( $\Delta E = 1,6eV$  pour le CM20).

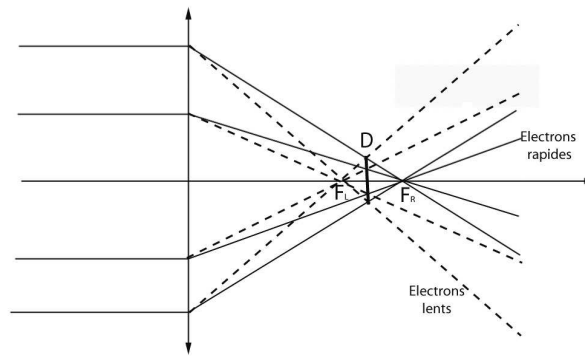


FIG. C.7 – Influence de l'aberration chromatique d'une lentille sur le trajet géométrique des électrons.

#### C.1.4 Pourquoi corriger l'aberration sphérique $C_s$ ?

Comme nous avons pu en discuter dans le chapitre(3), l'expression(C.3) permet de définir la fonction de transfert du microscope  $\tilde{K}(\omega) \approx e^{i\chi(\omega)}$  d'une importance cruciale lors de la formation des images haute résolution. La figure(C.8) permet de bien visualiser l'effet de la correction de  $C_s = C_3$  sur la fonction de transfert de contraste de phase ou PCTF  $\sin(\chi(\omega)) \times E(\omega)$  définie au chapitre(3) et (7.1) ( $E(\omega)$  correspond aux termes introduits par la perte de cohérence spatiale et temporelle). Les deux PCTF sont tracées pour un microscope équipé d'un FEG dont les caractéristiques sont :  $200kV, \Delta E = 0,6eV, C_c = 0,5mm, C_5 = 0mm$ . Les courbes tracées correspondent à des défocalisations proches de Scherzer permettant un transfert linéaire le plus étendu dans les deux cas :  $C_1 = -60nm$  si  $C_s = 1,2mm$  et  $C_1 = 4nm$  si  $C_s = 0mm$ .

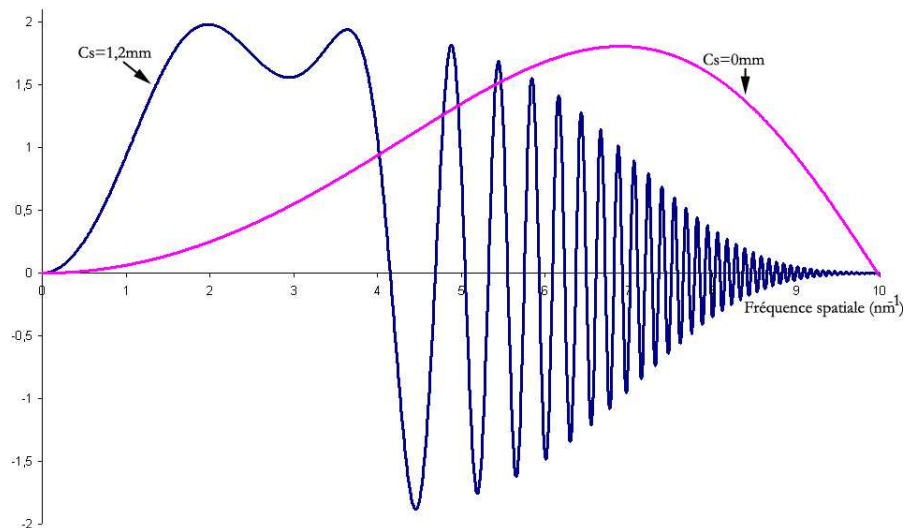


FIG. C.8 – Influence de l'aberration sphérique sur la PCTF d'un TECNAIF20.

Corriger le  $C_s$  permet ainsi d'accéder à des fréquences spatiales supérieures dans l'image HREM avec une suppression de la zone d'oscillations du contraste néfaste lors de l'interprétation des clichés. On augmente ainsi considérablement la limite de résolution du microscope puisque dans ce cas on passe d'une résolution de  $R = 0,25nm$  avec un  $C_s = 1,2mm$  à  $R = 0,1nm$  avec un  $C_s = 0mm$ . Tout ceci, bien entendu, si les autres aberrations restent constantes. On

verra que ce n'est pas aussi simple ... Un deuxième avantage important concerne la suppression de la délocalisation du contraste (à défocalisation nulle), qui reste un obstacle majeur lors de l'étude des interfaces ou des défauts ponctuels avec un microscope équipé d'un FEG. Cet artefact provient de la largeur importante des disques diffractés dont le diamètre augmente avec le  $C_s$  de l'objectif. Les effets qui en résultent sont particulièrement prononcés dans les régions contenant des objets non périodiques dans l'image comme les interfaces. La correction du  $C_s$  permet donc de supprimer la délocalisation ce qui est un avantage considérable pour l'étude de nano-objets (couches minces, nanoparticules, etc ...).

Ce sont les deux principaux effets résultant de la correction du  $C_s$  que l'on trouve décrit dans la littérature [127, 109, 103, 104, 128, 129]. Tous les autres avantages rencontrés expérimentalement grâce à cet instrument ont été longuement développés dans le corps de cette thèse (LACBED, HREM, holographie).

### C.1.5 Les lentilles rondes : le théorème de Scherzer. Principe de la correction

Otto Scherzer en 1936 [130] a montré que si le champ  $\phi$  à l'intérieur d'une lentille satisfaisait :

1. symétrie cylindrique
2. statique
3. sans aucune charge d'espace
4. continu ainsi que sa dérivée  $\frac{\phi'}{\phi}$
5. avec un objet et image formée réelle

alors les coefficients  $C_s$  et  $C_c$  sont obligatoirement positifs ; c'est, bien sûr, le cas des lentilles rondes. En relaxant une de ces conditions, on devrait pouvoir trouver des éléments d'optique électronique ayant un  $C_s$  négatif (et aussi un  $C_c$  pour la correction de l'aberration chromatique mais ce n'est pas le sujet). En 1947, Scherzer [131] propose un certain nombre de voies permettant de réaliser ce travail. Beaucoup d'idées ont ainsi été analysées et il ressort que la relaxation de la condition "symétrie cylindrique" semble être la solution amenant le moins d'artefacts et de problèmes. Ainsi Scherzer propose un système basé sur des lentilles à symétrie non cylindrique et plus particulièrement sur une combinaison d'octopoles et de quadrupoles pour corriger le  $C_s$  de lentilles rondes. Cette solution a tout d'abord été réalisée par Seeliger en 1953 [132] puis par O.Krivanek [133]. Ce correcteur possède les inconvénients d'introduire énormément d'aberrations "off-axis" comme la coma  $B_2$ , l'astigmatisme d'ordre 3  $A_3$  dans l'image. Aussi son application se trouve restreinte à la correction des sondes électroniques en STEM. Ce sont des correcteurs sondes. Comment alors corriger une image HREM dans son ensemble ? Existe-t-il des correcteurs images ?

En 1965, P.Hawkes propose un théorème [126, 134] qui peut se décliner comme suit :

une aberration d'ordre  $n$  peut être corrigée par une lentille multipolaire contenant  $2n$  poles

D'après ce théorème, l'aberration sphérique d'ordre 3 d'une lentille ronde pourrait être compensée par une lentille hexapolaire (ou hexapole). C'est, en effet, le composant de base du correcteur image qui équipe le TECNAI. La suite présente donc les propriétés des hexapoles et nous verrons comment ces composants permettent de réaliser un correcteur image semiaplanatique ( $B_2 = 0$ ) sans aucune aberration résiduelle.

## C.2 Principe du correcteur de Cs image en TEM

### C.2.1 Les Hexapoles

Les hexapoles n'ont aucun effet au premier ordre (focalisation) mais ont deux effets majeurs qui sont :

1. effet du 3ème ordre négatif à symétrie cylindrique (aberration sphérique  $C_s < 0$ )
2. astigmatisme du 2ème ordre  $A_2$  ayant une symétrie 3 (Three-fold astigmatism)

Le premier effet constitue le principal apport des hexapoles à notre problème. Le second effet est néfaste pour la formation de l'image et il est essentiel de pouvoir s'en débarrasser de manière à ne garder que le  $C_s$  négatif. Une première solution proposée par Crewe [135] consiste à focaliser le faisceau d'électrons incident au centre de l'hexapole ce qui n'introduit aucun  $A_2$ . Par contre le faisceau obtenu possédera une forme triangulaire [136].

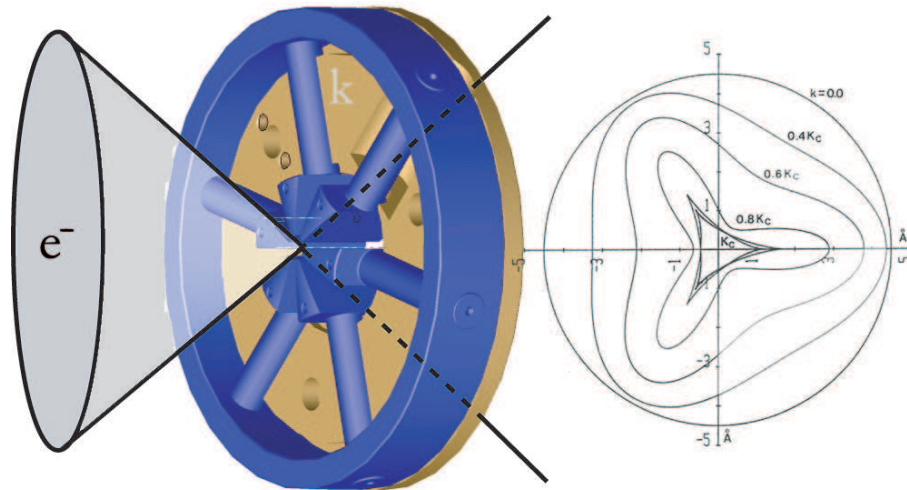


FIG. C.9 – Première solution de Crewe permettant d'éliminer les effets d'ordre 2 d'un hexapole. On forme alors un faisceau avec une forme triangulaire.

La figure(C.9) présente ce processus pour différentes forces d'excitations, notées  $k$ , de l'hexapole ( $K_c$  étant la force requise pour une correction optimale de l'aberration sphérique). Lorsque le faisceau à symétrie 3 rencontrera le champ cylindrique d'une lentille ronde dans la suite de son parcours, une augmentation importante des aberrations du 4ème et du 5ème ordre sera introduite. Afin de pallier ce problème, Crewe proposa d'utiliser deux hexapoles dans le correcteur [137]. Il est intéressant de noter que cette solution avait déjà été proposée par V.Beck en 1979 [138].

### C.2.2 Correcteur à 2 hexapoles : solution de Crewe

Cette solution consiste à utiliser deux hexapoles identiques séparés symétriquement par rapport au centre d'une lentille ronde intermédiaire (figure(C.10)). Le but de la lentille intermédiaire est d'imager le premier hexapole dans le deuxième dont la configuration de champ doit être opposée. Ainsi la forme triangulaire du faisceau introduit par le premier hexapole sera compensée par le deuxième nous permettant ainsi d'obtenir un faisceau à symétrie cylindrique à la sortie du système. Le correcteur d'aberration sphérique ne doit pas jouer le rôle de projecteur (ou condenseur), ce qui impose un grandissement unité  $M = 1$  à l'ensemble du système.



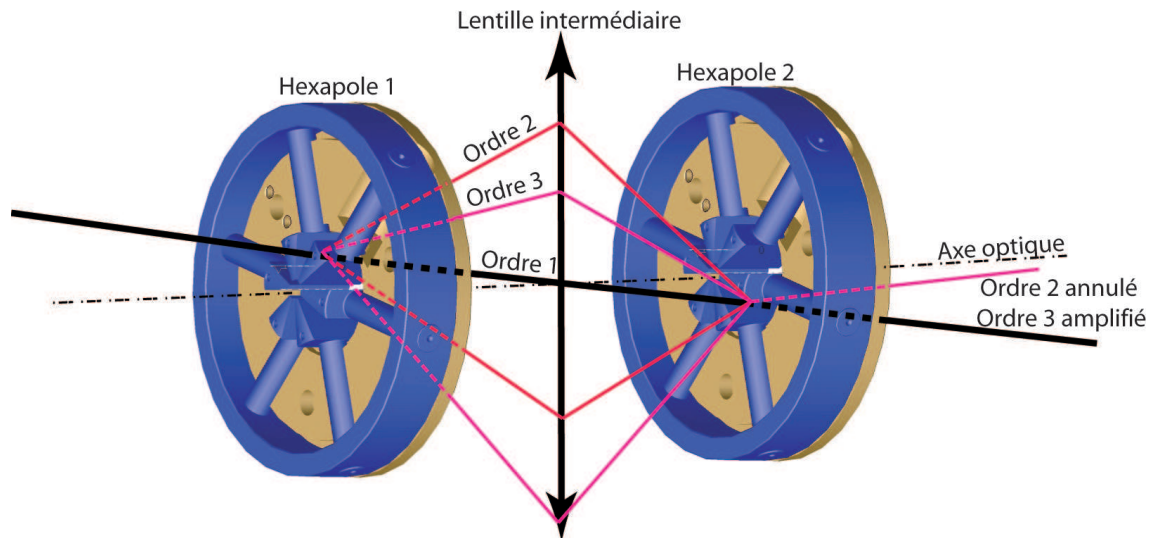


FIG. C.10 – Deuxième solution de Crewe : système constitué de deux hexapoles identiques et d'excitations  $k$  opposées placés symétriquement de part et d'autre d'une lentille ronde intermédiaire.

On peut résumer l'action de ce système comme suit :

1. L'action à l'ordre 1 de l'ensemble du correcteur est nulle. En effet les hexapoles n'ont aucun effet à l'ordre 1 et tous les faisceaux affectés au premier ordre sont tous focalisés à l'intérieur de la lentille intermédiaire. Un faisceau circulaire qui entre dans le système restera circulaire à la sortie.
2. L'ordre 2 d'un hexapole ( $A_2$ ) introduit des aberrations proportionnelles à sa force d'excitation  $k$  et au carré de l'amplitude de déflexion. Or comme schématisé sur la figure(C.10), les faisceaux défléchis à l'ordre 2 dans le premier hexapole (force  $k$ ) seront défléchis avec la même amplitude mais dans la direction opposée par le second hexapole de force  $-k$ . La même déflexion est donc appliquée dans les deux hexapoles mais avec des signes opposés, si bien qu'un faisceau rond à l'entrée restera rond à la sortie du deuxième hexapole. L'action à l'ordre 2 est donc complètement annulée.
3. L'ordre 3 d'un hexapole introduit un effet proportionnel au carré de la force  $k^2$  et au cube de l'amplitude. Les rayons affectés au troisième ordre par le premier hexapole seront donc aussi imagés à l'intérieur du deuxième hexapole où ils recevront la même déflexion avec un signe identique. L'action à l'ordre 3 est donc amplifiée par le deuxième hexapole (toujours avec  $C_s < 0$ ). Puisque les aberrations d'ordre 3 des hexapoles possèdent une symétrie cylindrique, un faisceau rond avec  $C_s = 0$  à l'entrée ressortira avec rond avec  $C_s < 0$ .

On peut généraliser le raisonnement et on montre que ce système imaginé par Crewe en 1980 permet de supprimer tous les effets d'ordres pairs et d'amplifier les aberrations d'ordres impairs. Ainsi, en théorie, ce système reste limité par l'aberration sphérique d'ordre 5,  $C_5$ . D'après le théorème de Hawkes, pour compenser le  $C_5$  il faudrait utiliser des décupoles en plus des hexapoles.

En 1990, H.Rose [127] montre que le correcteur proposé par Crewe réalise seulement l'annulation des aberrations du 2ème ordre on-axis et ne permet pas une correction des aberrations du 2ème ordre off-axis. Celles-ci introduisent une réduction intolérable du champ de vision de l'image TEM. De plus, il montre que si un tel système est placé derrière une lentille ronde (l'objectif dans notre cas) une quantité considérable de coma isotrope  $B_2$  sera introduite dans l'image. Le système n'est donc pas semiaplanatique. Il conclut que la solution de Crewe ne peut en aucun

cas être utilisée comme correcteur image mais seulement comme correcteur sonde en STEM où les aberrations off-axis n'ont aucune importance. Il propose donc une solution permettant de réaliser un correcteur image semiaplanatique sans aberrations résiduelles du 2ème ordre on et off-axis.

### C.2.3 Le correcteur de Rose : 2 hexapoles et 2 doublets

H.Rose imagine un correcteur image placé derrière l'objectif du microscope, en ajoutant deux conditions supplémentaires au système de Crewe :

1. Le plan coma-free de l'objectif doit coïncider avec le plan coma-free du correcteur, de manière à ce que l'ensemble du système soit semiaplanatique
2. Les centres des deux hexapoles identiques mais d'excitations opposées, doivent être disposés sur les points nodaux  $N_1$  et  $N_2$  d'un doublet télescopique de lentilles rondes identiques de grandissement  $M = 1$  au lieu d'une simple lentille intermédiaire. Le doublet ne doit pas non plus introduire de rotation de l'image entre les deux hexapoles.

La première caractéristique empêche la création de coma isotrope  $B_2$  par le correcteur. Sachant que le plan coma-free d'un hexapole se situe en son centre, il faut que le plan coma-free de l'objectif placé à une distance de  $\frac{2}{3}f_0$  ( $f_0$  représentant la distance focale) du plan objet soit imagé dans le centre de l'hexapole pour satisfaire cette condition. Pour cela, on utilise un doublet télescopique de lentilles rondes identiques, de grandissement  $M = 1$  dont les plans nodaux  $N_0$  et  $N_1$  sont placés respectivement sur le plan coma-free de l'objectif et au centre du premier hexapole. Les deux lentilles doivent être connectées en série avec un sens du courant opposé à l'objectif de manière à supprimer la coma anisotrope  $b_2$  en plus de la coma isotrope  $B_2$ .

La deuxième caractéristique permet d'annuler les effets d'ordre 2 on et off-axis introduit par les hexapoles. La figure(C.11) permet d'apprécier l'action de la combinaison des deux hexapoles et du doublet télescopique sur les faisceaux on et off-axis. Les courants dans les deux lentilles du doublet doivent être identiques pour satisfaire  $M = 1$  mais opposés afin de ne pas introduire de coma anisotrope  $b_2$ .

Le système final proposé est reporté dans la figure(C.11) où on remarque que la distance totale du correcteur vaut  $l = 8f$  avec  $f$  la distance focale des 4 lentilles rondes identiques formant les doublets.

Il constitue donc un élément d'optique semiaplanatique de  $C_s < 0$  et de grandissement total unité puisque les hexapoles n'ont aucune action à l'ordre 1. Il peut par conséquent être utilisé comme correcteur image si on corrige certains points gênants. En effet les doublets télescopiques augmentent le coefficient d'aberration chromatique  $C_c$  du microscope. Afin que la taille du correcteur  $l$  ne soit pas trop importante, un compromis entre ces deux effets opposés (si  $l$  diminue  $C_c$  augmente et inversement) a dû être trouvé. Les lentilles rondes étant faibles  $f > 10f_0$  la longueur totale du correcteur augmente la taille de la colonne de  $27cm$  et le coefficient  $C_c$  passe de  $1,5mm$  à  $2mm$ . Afin que ces deux détails ne soient pas trop contraignants, le système final doit satisfaire les conditions suivantes :

1. un FEG doit être utilisé comme source d'électrons afin de minimiser le plus possible l'effet de l'aberration chromatique devenue importante. L'utilisation d'un monochromateur peut même être envisagée, les correcteurs de  $C_c$  étant actuellement indisponibles sur le marché.
2. une lentille adaptatrice (notée ADL) doit être placée après le deuxième hexapoles afin d'imager le plan image du correcteur dans le plan objet des lentilles intermédiaires. Le reste du microscope restant ainsi inchangé malgré les  $27cm$  de plus du correcteur

Les lentilles constituant les doublets sont appelées les lentilles de transfert notées  $TL11$  et  $TL12$  pour le premier doublet,  $TL21$  et  $TL22$  pour le deuxième doublet. La suite présente les tolérances

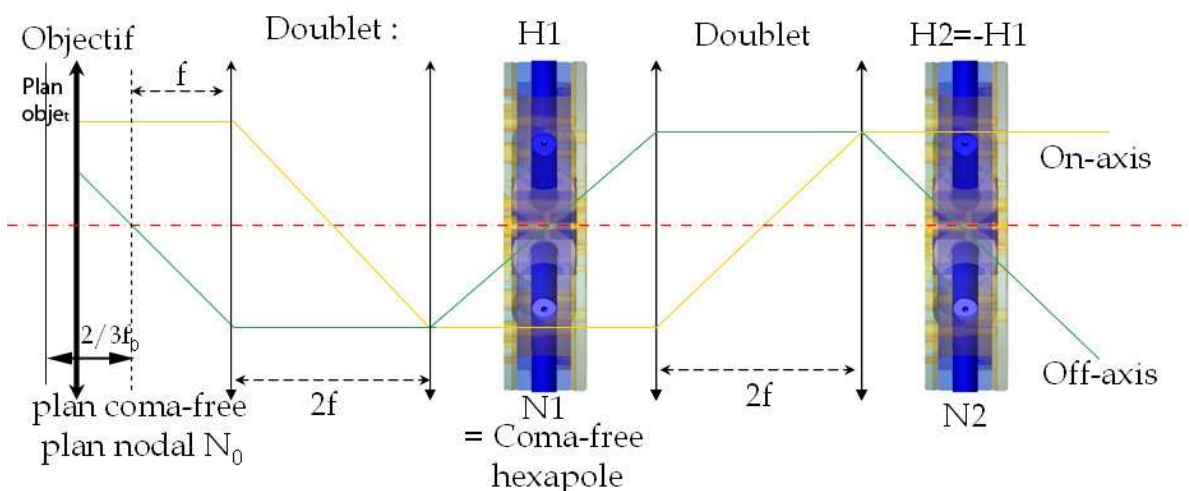


FIG. C.11 – Solution de Rose permettant d'améliorer le correcteur de Crewe en éliminant les aberrations du 2<sup>ème</sup> ordre off-axis et la coma  $B_2$ . Correcteur semiaplanatique utilisable comme correcteur-image.

du système proposé par Rose ainsi que la description du correcteur réel tel que celui installé sur le TECNAI du CEMES, et construit par CEOS.

### C.3 Principe d'alignement du correcteur

#### C.3.1 Tolérance du correcteur de Rose

Afin de réaliser une correction de l'aberration sphérique optimale en minimisant le plus possible les aberrations parasites, les éléments du correcteur doivent satisfaire les conditions suivantes :

1. les hexapoles doivent être parfaitement centrés sur l'axe optique et sur les points nodaux des doublets  $N_1$  et  $N_2$
2. les hexapoles doivent être parfaitement alignés entre eux selon les directions axiales

Comment réaliser en pratique ces conditions d'alignements du correcteur ? Jusqu'à quel point un décalage de ces conditions peut être toléré par le système ? C'est ce que nous allons maintenant développer.

#### Centrage des hexapoles sur les points nodaux des doublets télescopiques

Si un hexapole est décalé d'une distance  $\epsilon$  des points nodaux  $N_1$  ou  $N_2$ , les aberrations off-axis  $A_2$  et  $B_2$  peuvent intervenir. On considère que l'influence de ces aberrations est négligeable tant que  $\epsilon < 28\mu\text{m}$ . Il est évident qu'un alignement mécanique aussi précis du centre des hexapoles est impossible. En pratique, un deuxième hexapole pouvant être excité indépendamment, est rajouté à côté de chacun des hexapoles principaux. En faisant varier l'excitation de chacun de ces éléments on peut ajuster le centre de gravité du champ hexapolaire total le long de l'axe optique de manière très précise. On place ainsi ce centre de gravité sur les points nodaux avec une précision supérieure à la condition portée par  $\epsilon$  ce qui élimine les aberrations off-axis du deuxième ordre. De plus, pour compenser plus précisément la coma isotrope  $B_2$  la direction des faisceaux incidents doit être orientée précisément à l'intérieur du premier hexapole. Cette opération est réalisée par l'intermédiaire de dipôles placés dans le premier doublet.

### Centrage des hexapoles sur l'axe optique

Le décalage d'un hexapole d'une distance  $\rho$  par rapport à l'axe optique, revient à introduire un champ quadrupolaire autour de l'axe optique. En d'autres termes de l'astigmatisme du premier ordre est ajoutée. La coma isotrope  $B_2$ ,  $B_4$  devrait aussi intervenir, ainsi que l'astigmatisme du 3ème ordre  $A_3$  si ce décalage devient trop important. Ces aberrations peuvent être considérées comme négligeables si :

$$A_1 : \rho < 4nm \quad ; \quad B_2 : \rho < 0,2\mu m \quad ; \quad A_3 : \rho < 14\mu m \quad ; \quad B_4 : \rho < 0,2mm \quad (C.4)$$

La principale limitation provient donc de  $A_1$ . Afin d'atteindre une précision du nanomètre sur l'alignement du centre des hexapoles par rapport à l'axe optique, on utilise des quadrupoles qui vont compenser le champ quadrupolaire créé par ce mauvais alignement et ainsi éliminer l'astigmatisme  $A_1$ .

De plus, les champs dipolaires et quadrupolaires peuvent aussi être utilisés pour compenser des champs multipolaires introduits par des défauts d'homogénéité présents dans les hexapoles.

### Alignement axial des hexapoles

Nous avons vu que le faisceau à la sortie du premier hexapole a une forme triangulaire. Pour supprimer cette forme, le doublet télescopique image le premier hexapole dans un deuxième hexapole identique, mais d'excitation opposée. Afin que cette correction se fasse correctement, il est nécessaire de réaliser un alignement parfait dans toutes les directions axiales (perpendiculaires à l'axe optique) sans quoi des aberrations du 2ème ordre importantes apparaîtront. En d'autres termes, le faisceau qui subira une déflexion du deuxième ordre d'amplitude  $A$  dans une région localisée  $r_1$  dans le premier hexapole, subira la déflexion opposée de même amplitude si la région dans le deuxième hexapole correspond à la symétrique de  $r_1$ . C'est le principe de cet alignement. Afin de réaliser cette opération deux solutions ont été proposées :

1. On peut exciter le champ hexapolaire dans un dodécapole (12-poles). Ainsi en faisant varier l'excitation des dodécapoles, on tourne le champ autour de l'axe optique. On trouve la position correcte lorsque les aberrations du 2ème ordre sont supprimées. C'est la solution utilisée sur le correcteur installé sur un CM20 FEG à Jülich [109]
2. On peut utiliser la rotation du deuxième doublet télescopique placé entre les deux hexapoles. Si, par exemple, on augmente l'excitation de  $TL21$  et qu'on diminue celle de  $TL22$  le grandissement du doublet restera constant à 1 mais l'image du premier hexapole tournera dans le deuxième hexapole. On ajuste ainsi la balance entre les excitations de  $TL21$  et  $TL22$  jusqu'à supprimer les aberrations d'ordre 2. C'est la solution utilisée dans notre correcteur.

On possède maintenant tous les prérequis pour comprendre le fonctionnement du correcteur installé dans notre microscope. La suite présente donc sa configuration réelle ainsi que les aspects pratiques qui nous permettent de réaliser l'alignement de manière rapide et précise lors d'une expérience de routine.

### C.3.2 Correcteur réel de CEOS : principe et alignement

#### Schéma de la colonne et action de chaque lentille

Le schéma complet du correcteur construit par CEOS est reporté sur la figure(C.12).

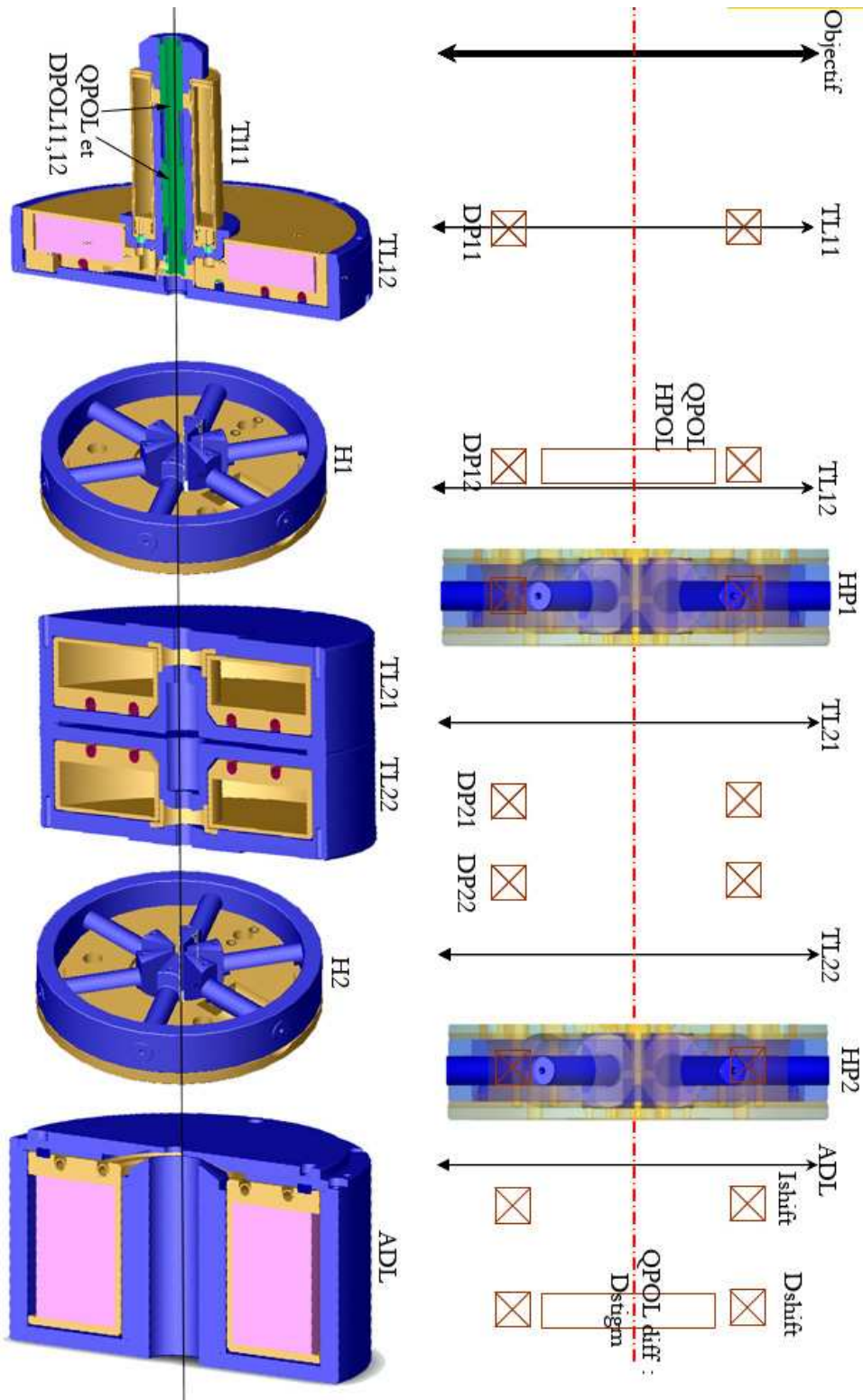


FIG. C.12 – Description complète du correcteur de CEOS présent sur le TECNAI F20 du CEMES.

Chaque lentille répertoriée permet de réaliser les alignements nécessaires détaillés au paragraphe(C.3). Les dipôles (DP11,12,21,22) sont utilisés pour corriger la coma isotrope  $B_2$  ainsi que l'astigmatisme du premier ordre de manière grossière  $A_1Coarse$  et  $A_2$ . Une correc-

tion fine de  $A_1$  est réalisée avec les quadrupoles Qpol. L'excitation des lentilles de transfert (TL11,12,21,22) est ajustée pour éliminer les aberrations du 2ème ordre  $A_2$  et  $B_2$ , alors que celle des hexapoles est modifiée pour changer la valeur du  $C_s$ . Pour corriger les aberrations du 3ème ordre  $A_3$  et  $S_3$ , une modification des excitations de l'ensemble de ces lentilles est nécessaire.

Dans un microscope classique, lorsque l'on change le grandissement, seules les excitations des lentilles projecteurs sont modifiées laissant le courant objectif constant, exception faite du passage des modes SA au mode M du microscope où le courant objectif est obligatoirement modifié. Dans le TECNAI Cs corrigé le passage de SA à M laisse inchangé le courant objectif, la transition étant réalisée par la lentille adaptatrice (ADL). Ainsi le courant objectif correspondant à la position eucentrique reste constant pour n'importe quel grandissement. On terminera par les stigmatiseurs diffraction (quadrupoles placés après l'ADL) permettant de corriger l'astigmatisme  $A_1$  de la diffraction, les dipôles Ishift et Dshift permettant de réaliser les translations de l'image et de la diffraction dans leurs plans respectifs. Ces éléments toujours présents dans un microscope sont donc ici gérés par le correcteur et le programme qui lui est associé.

### Principe de la correction

Afin de réaliser l'ajustement correct des excitations de chacune des lentilles décrites précédemment, le correcteur est associé à un programme informatique développé par CEOS permettant, à partir des mesures des différents coefficients des aberrations, de calculer et d'appliquer les excitations voulues aux éléments du correcteur décrits sur la figure(C.12).

La première étape consiste donc à mesurer les aberrations du microscope. Pour cela le programme utilise des diffractogrammes obtenus par transformée de Fourier (FFT) de l'image d'un échantillon amorphe. La figure(C.13) présente une série de diffractogrammes typiques pouvant être rencontrés lors des alignements. L'amorphe utilisé pour réaliser cette opération est en général du carbone.

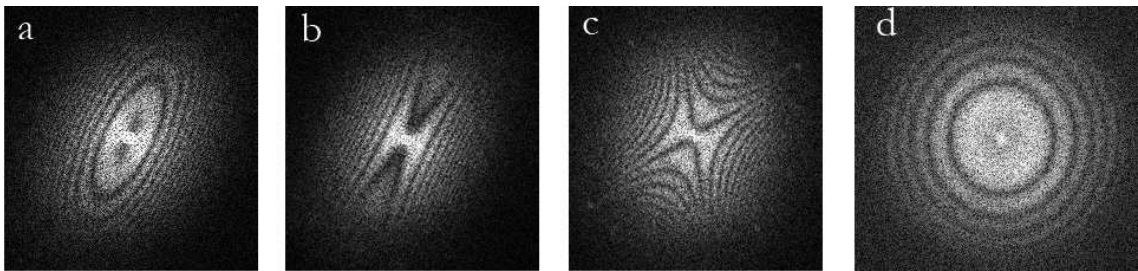


FIG. C.13 – Diffractogrammes obtenus par FFT d'un amorphe de carbone pour différents couples  $(C_1, A_1)$  : a= $(C_1 = -60nm, A_1 = 50nm)$  b= $(C_1 = -25nm, A_1 = 50nm)$  c= $(C_1 = 0nm, A_1 = -50nm)$  d= $(C_1 = -20nm, A_1 = 0)$ , tous ces diffractogrammes sont pris avec le correcteur allumé :  $C_s \approx 700nm$

A partir des diffractogrammes, on peut calculer les valeurs de la défocalisation  $C_1$  et de l'astigmatisme du premier ordre  $A_1$  présents dans l'image. Pour calculer le reste des coefficients on utilise un tableau de Zemlin dont le principe est reporté sur la figure(C.14) [139]. Le principe consiste à acquérir une série de diffractogrammes, provenant d'images défocalisées, en tiltant le faisceau d'un angle  $\alpha$ , choisi préalablement par l'opérateur, et de déterminer les coefficients  $A_1$  et  $C_1$  pour chacun d'eux. Ils dépendent, en effet, de l'angle complexe de tilt  $\tau$  (avec  $|\tau| = \alpha$ ) que

fait le faisceau avec l'échantillon suivant les relations suivantes [110] :

$$\begin{aligned}
 C_1(\tau) &= C_1(0) + 4\operatorname{Re}(\tau B_2) + 2\tau\tau^* C_3 + 6\operatorname{Re}(\tau^2 S_3) + 12\operatorname{Re}(\tau^2 \tau^* B_4) + 3(\tau\tau^*)^2 C_5 + \text{etc...} \\
 A_1(\tau) &= A_1(0) + 2\tau B_2^* + 2\tau^* A_2 + \tau^2 C_3 + 6\tau\tau^* S_3^* + 3\tau^{*2} A_3 + 2\tau^3 B_4 + 6\tau^2 \tau^* B_4^* + \\
 &\quad 4\tau^{*3} A_4 + 2\tau^3 \tau^* C_5 + 5\tau^{*4} A_5 + \text{etc...}
 \end{aligned} \tag{C.5}$$

Ainsi chacune des paires  $A_1, C_1$  mesurée pour un angle complexe  $\tau$  nous donne accès à une relation de type(C.5). Plus on aura de diffractogrammes et plus on pourra déterminer un nombre important de coefficients. A partir du résultat de mesure des divers coefficients d'aberrations, le programme calcule et applique (avec l'accord de l'utilisateur) les excitations nécessaires sur les éléments du correcteur en suivant les règles décrites au paragraphe précédent. La réalisation de cette opération, en routine classique, est décrite dans la figure(C.14).

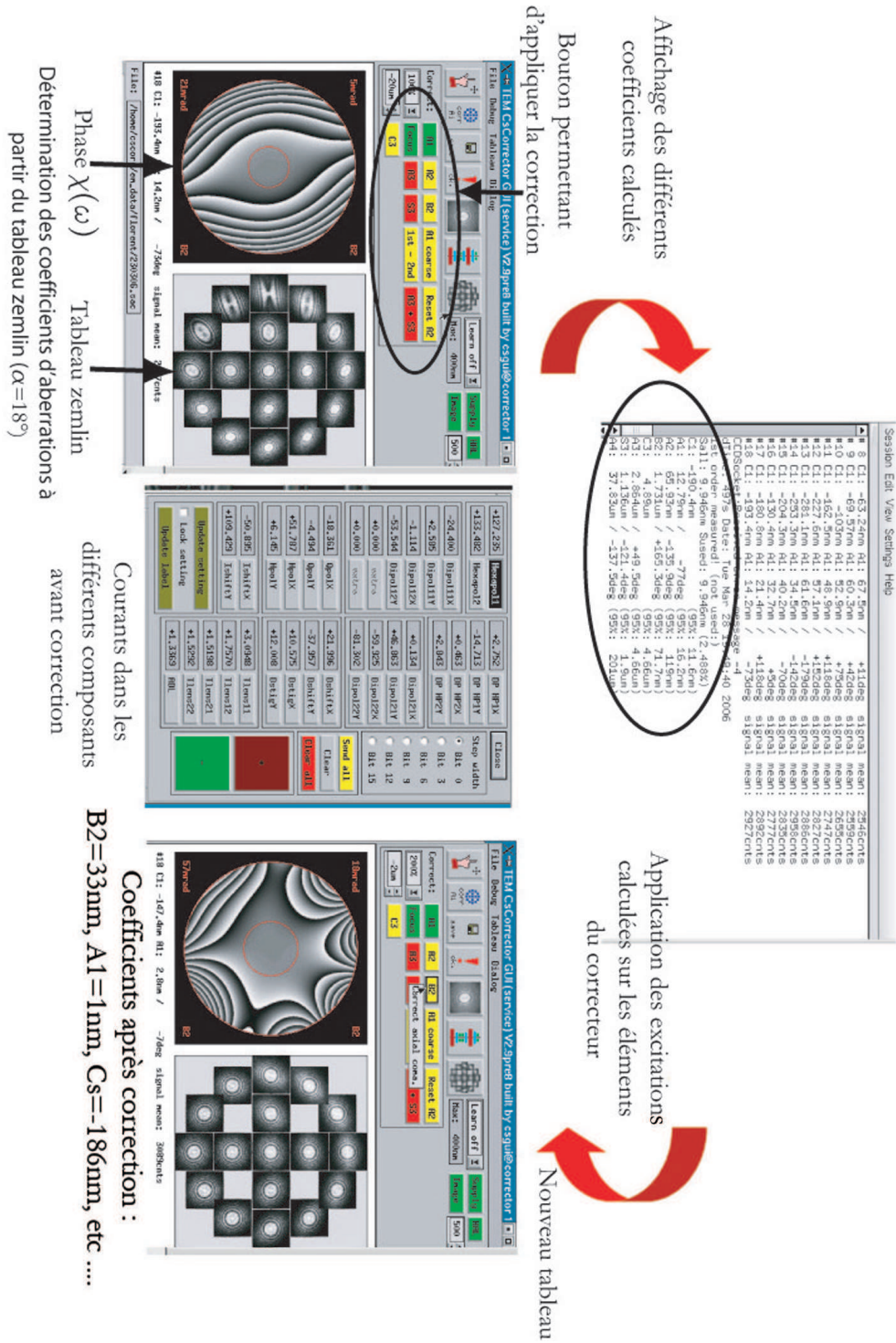


FIG. C.14 – Principe utilisé lors de la mesure et de l'ajustement des divers coefficients d'aberrations du microscope ( $C_3$ ,  $A_1$ ,  $B_2$ ,  $A_2$ , etc ...).

On réitère ce genre d'opérations jusqu'à avoir les valeurs de coefficients voulus. Il nous manque un critère nous permettant de savoir à quel moment on peut considérer une série de coefficients comme satisfaisante vis-à-vis des expériences que l'on cherche à réaliser. Pour cela, la correction est considérée comme optimale lorsque la phase induite pas ces aberrations satisfait



$\chi(\tau) < \frac{\pi}{4}$  appelé critère  $\frac{\pi}{4}$ . C'est pourquoi, le programme nous donne la possibilité d'accéder à la répartition de la phase  $\chi(\omega)$  (figure(C.14)) après le calcul des différents coefficients. Le critère  $\frac{\pi}{4}$  est reporté sur cette image de phase par le premier cercle rouge dans lequel la phase calculée satisfait ce critère. Le but de toute correction est donc d'étendre ce cercle jusqu'à ce qu'il atteigne l'angle de tilt  $\tau$  du tableau. En règle générale, on s'arrête à  $18\text{mrad}$ . Des tables de coefficients en fonction de la résolution du microscope sont reportées dans la publication de S.Uhlemann [110] et peuvent aussi être utilisées comme référence pour le réglage du correcteur.

## C.4 Résultat et mesure des distorsions géométriques introduites par le correcteur

Quelques résultats marquant sont ici reportés, mais les principaux apports sont développés dans le corps de la thèse.

### C.4.1 Augmentation de la résolution et élimination de la délocalisation

L'amélioration de la résolution du microscope est mise en évidence sur la figure(C.15) représentant les images HREM d'un cristal de *GaAs* observé dans l'axe [110] avec un CM30 (300kV) et le TECNAI F20 équipé du correcteur. On observe clairement la séparation des dumbbells par le TECNAI alors que le CM30 en est incapable malgré la différence de tension d'accélération entre ces deux microscopes.

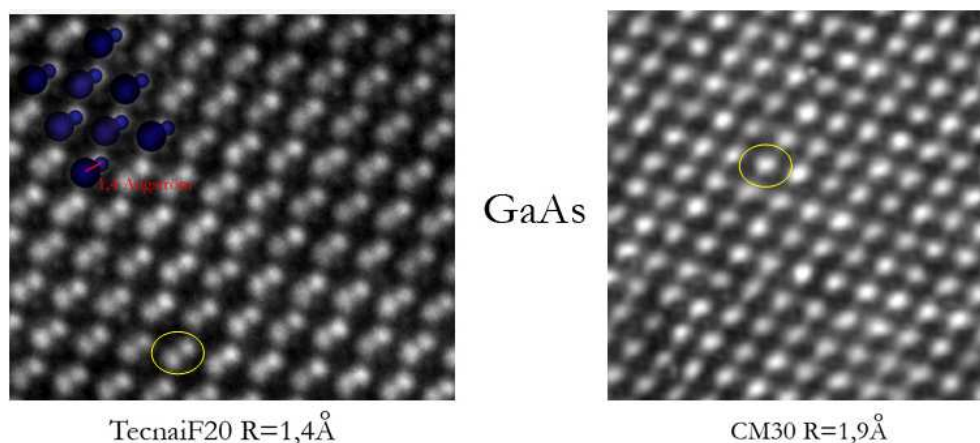


FIG. C.15 – Cristal de *GaAs* observé au TECNAI et au CM30 selon l'axe de zone [110].

La suppression de la délocalisation est clairement mise en évidence sur la figure(C.16) montrant une nanoparticule de Cobalt en bord de trou. Les deux images sont prises au même endroit avec les hexapoles éteints, ce qui élimine la correction du  $C_s$ , et allumés.

### C.4.2 Détermination des distorsions géométriques introduites par le correcteur

Au cours de cette thèse, nous avons tenté de déterminer les distorsions géométriques introduites par le correcteur dans une image HREM. Afin de mesurer ces éventuelles distorsions, on utilise un traitement des phases géométriques sur une image haute résolution de silicium non déformée (voir chapitre(3)). Il est, bien entendu, nécessaire de séparer les contributions des projecteurs et de la caméra CCD de celles du correcteur. Pour cela on utilise des hologrammes

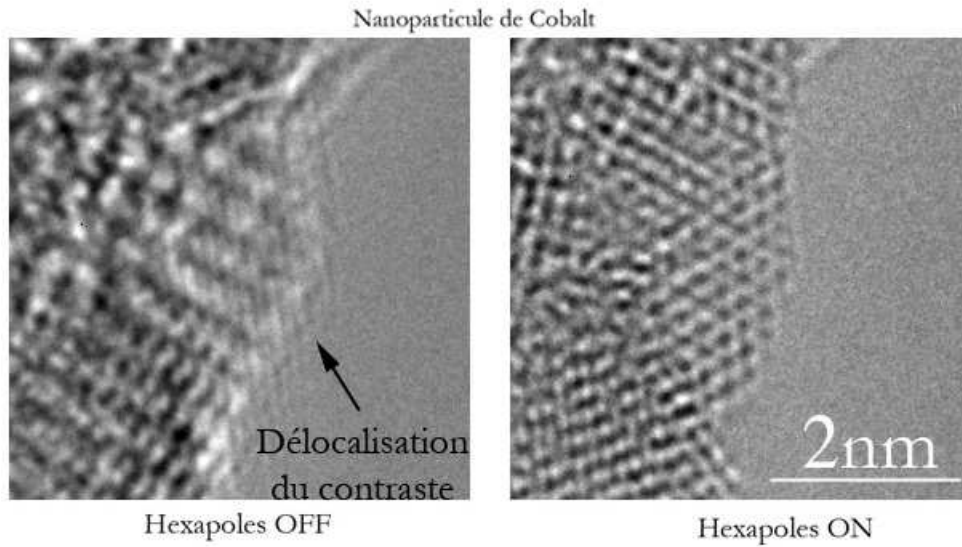


FIG. C.16 – Nanoparticule de Cobalt observé au TECNAI hexapoles OFF et ON.

de référence (voir chapitre(3.2)) qui ne sont affectés que par les projecteurs et la caméra CCD. Comme la fréquence spatiale de l'hologramme et des taches sélectionnées dans l'image haute résolution ne sont pas identiques, on ne peut simplement les soustraire sous peine d'introduire des phases supplémentaires dues à la différence de fréquence spatiale. On utilise alors le processus de calibration mis au point par M.J. Hÿtch. Le principe est le suivant :

on cherche à soustraire l'effet des distorsions  $\vec{u}_1$  (parasites ) présentes dans deux hologrammes de référence aux distorsions  $\vec{u}_2$  (parasites + effet du correcteur  $\vec{u}$ ) présentes dans l'image HREM à analyser. On calcule alors les images de phases à partir des deux fréquences spatiales  $\vec{g}_1$  et  $\vec{g}_2$  appartenant respectivement aux deux hologrammes de référence. On obtient donc :

$$P_{\vec{g}_1} = -\vec{g}_1 \cdot \vec{u}_1 \quad \text{et} \quad P_{\vec{g}_2} = -\vec{g}_2 \cdot \vec{u}_1 \quad (\text{C.6})$$

On calcule ensuite l'image de phase de l'image HREM à analyser à partir d'une fréquence spatiale  $\vec{g}_3$  :

$$P_{\vec{g}_3} = -\vec{g}_3 \cdot \vec{u}_2 \quad (\text{C.7})$$

On cherche les deux paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  tels que  $\vec{g}_3 = \alpha\vec{g}_1 + \beta\vec{g}_2$  ; on peut ainsi calculer :

$$P_{\vec{g}_3} - (\alpha P_{\vec{g}_1} + \beta P_{\vec{g}_2}) = -\vec{g}_3 \cdot \vec{u}_2 + \alpha\vec{g}_1 \cdot \vec{u}_1 + \beta\vec{g}_2 \cdot \vec{u}_1 = -\vec{g}_3(\vec{u}_2 - \vec{u}_1) = -\vec{g}_3 \vec{u} \quad (\text{C.8})$$

On calcule ainsi une image de phase corrigée de toutes les perturbations présentes dans les deux hologrammes de référence. L'échantillon de silicium contient les contributions géométriques suivantes : correcteur + projecteur + CCD. Les deux hologrammes de références contiennent quand à eux : projecteur + CCD. On calcule ainsi la seule contribution du correcteur  $\vec{u}$ . Les images utilisées pour remonter au champ de déplacement  $\vec{u}$  sont reportées sur la figure(C.17).

A partir du traitement de ces images, on détermine les matrices de déformation  $\epsilon$  correspondant à la partie symétrique de la matrice des déplacements  $e$  ainsi que la matrice des rotations rigides  $\omega$  correspondant à la partie antisymétrique de  $e$  (figure(C.18)).

On n'observe aucune distorsion géométrique introduite par le correcteur. Ceci est logique puisque, contrairement aux projecteurs, les lentilles de transfert utilisées dans le correcteur ne grandissent pas. L'image qu'elles reçoivent est donc très petite contrairement à celle reprise par les projecteurs responsables des principales distorsions géométriques d'un microscope.

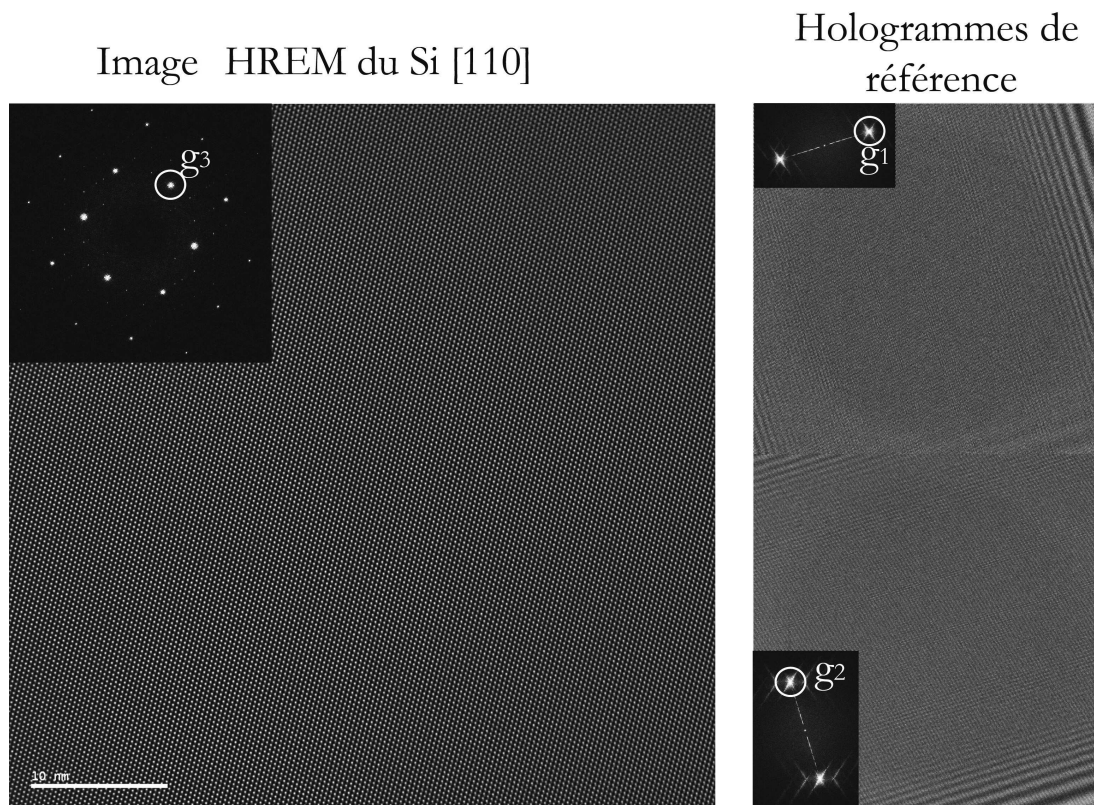


FIG. C.17 – Image HREM d'un cristal de Silicium observé dans l'axe de zone [110] et deux hologrammes de référence obtenus pour une tension de biprisme de  $U = 200V$  utilisés pour déterminer les distorsions géométriques introduites par le correcteur.

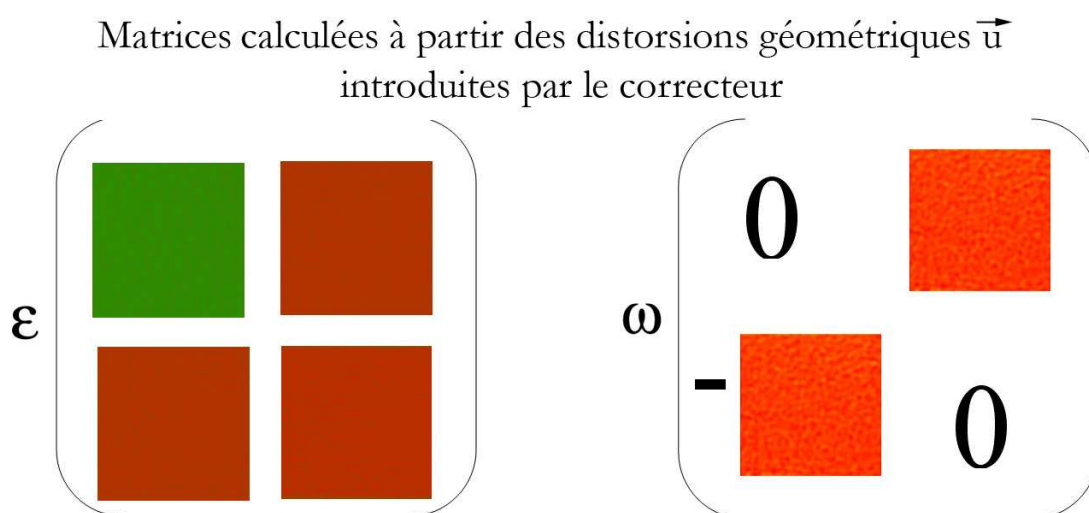


FIG. C.18 – Matrices des déformations  $\epsilon$  et  $\omega$  calculées à partir du champ de déplacement  $\vec{u}$  introduit par les distorsions géométriques du correcteur.

## Annexe D

# Modélisation de la déformation par la méthode des éléments finis

### D.1 Théorie de l'élasticité : généralités

#### D.1.1 Contraintes et déformations

On note  $\underline{\sigma}$  et  $\underline{\epsilon}$  les tenseurs des contraintes et des déformations. Dans un espace à 3 dimensions, ces tenseurs d'ordre 2 sont caractérisés par  $3^2 = 9$  composantes et peuvent être représentés par une matrice 3x3 dans un repère  $(O, x_1, x_2, x_3)$  :

$$\underline{\sigma} = \begin{pmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & \sigma_{13} \\ \sigma_{21} & \sigma_{22} & \sigma_{23} \\ \sigma_{31} & \sigma_{32} & \sigma_{33} \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \underline{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_{11} & \epsilon_{12} & \epsilon_{13} \\ \epsilon_{21} & \epsilon_{22} & \epsilon_{23} \\ \epsilon_{31} & \epsilon_{32} & \epsilon_{33} \end{pmatrix}$$

Les relations d'équilibre impliquent :

$$\sigma_{ij} = \sigma_{ji} \quad \text{et} \quad \epsilon_{ij} = \epsilon_{ji} \quad (\text{D.1})$$

Ces tenseurs sont donc symétriques et possèdent 6 composantes différentes.

#### D.1.2 Loi de Hooke

La loi de Hooke exprime la relation entre les contraintes et les *faibles déformations* dans l'*approximation de l'élasticité linéaire*. Elle s'écrit :

$$\sigma_{ij} = \sum_{kl} C_{ijkl} \epsilon_{kl} \quad (\text{D.2})$$

où les  $C_{ijkl}$  sont les coefficients du tenseur des modules  $\underline{C}$  [140]. Ainsi dans un espace de dimension 3, le tenseur  $\underline{C}$  est caractérisé par  $3^4 = 81$  composantes. Mais il existe des relations de symétrie en considérant les relations (D.1) et les conditions de Cauchy [140] :

$$C_{ijkl} = C_{ijlk} = C_{jikl} = C_{klij}$$

ce qui réduit à 21 le nombre de composantes *indépendantes* non nulles. Pour simplifier les écritures, on peut passer en notation contractée de Voigt avec la règle de correspondance suivante sur les indices  $ij$  et  $kl$  :

$$\begin{array}{lll} 11 \rightarrow 1 & 12 \rightarrow 6 & 13 \rightarrow 5 \\ 21 \rightarrow 6 & 22 \rightarrow 2 & 23 \rightarrow 4 \\ 31 \rightarrow 5 & 32 \rightarrow 4 & 33 \rightarrow 3 \end{array}$$

On peut alors écrire la loi de Hooke sous forme matricielle en représentant les tenseurs  $\underline{\sigma}$  et  $\underline{\epsilon}$  par deux vecteurs colonnes à 6 composantes et le tenseur  $\underline{C}$  par une matrice 6x6 :

$$\underline{\sigma} = \underline{C} \underline{\epsilon}$$

$$\begin{pmatrix} \sigma_{11} \\ \sigma_{22} \\ \sigma_{33} \\ \sigma_{23} \\ \sigma_{13} \\ \sigma_{12} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & C_{14} & C_{15} & C_{16} \\ C_{12} & C_{22} & C_{23} & C_{24} & C_{25} & C_{26} \\ C_{13} & C_{23} & C_{33} & C_{34} & C_{35} & C_{36} \\ C_{14} & C_{24} & C_{34} & C_{44} & C_{45} & C_{46} \\ C_{15} & C_{25} & C_{35} & C_{45} & C_{55} & C_{56} \\ C_{16} & C_{26} & C_{36} & C_{46} & C_{56} & C_{66} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \epsilon_{11} \\ \epsilon_{22} \\ \epsilon_{33} \\ \gamma_{23} = 2\epsilon_{23} \\ \gamma_{13} = 2\epsilon_{13} \\ \gamma_{12} = 2\epsilon_{12} \end{pmatrix}$$

### D.1.3 Symétrie cubique

Considérons un système à symétrie cubique, dans le repère  $R = (O, x, y, z)$  où  $x = [1, 0, 0]$ ,  $y = [0, 1, 0]$  et  $z = [0, 0, 1]$  (qui diffère de celui utilisé lors des calculs de théorie dynamique) seuls 3 termes indépendants sont non nuls, la loi de Hooke s'écrit alors dans ce repère :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{xz} \\ \sigma_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} \\ \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{zz} \\ \gamma_{yz} \\ \gamma_{xz} \\ \gamma_{xy} \end{pmatrix} \quad (D.3)$$

### D.1.4 Etude des couches épitaxiées

Soit le repère  $R = (O, x, y, z)$  où  $x = [1, 0, 0]$ ,  $y = [0, 1, 0]$  et  $z = [0, 0, 1]$ . On considère l'épitaxie d'une couche B de paramètre de maille  $a_B$  et de hauteur  $\Lambda_B$  sur un substrat A de paramètre de maille  $a_A$  et de hauteur  $\Lambda_A$  dans la direction  $z$  (voir figure(D.1)). Les matériaux A et B sont à symétrie cubique.

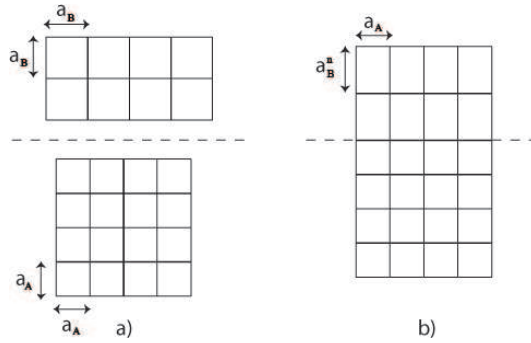


FIG. D.1 – Epitaxie de la couche B de paramètre  $a_B$  sur le substrat A de paramètre  $a_A$ .

Le désaccord de maille entre le substrat A et la couche B s'exprime par la quantité :

$$f = \frac{a_A - a_B}{a_B} \quad (D.4)$$

On note  $a_{Ep}$  la distance interatomique dans le plan  $(x, y)$  ainsi que  $a_B^n$  et  $a_A^n$  les paramètres respectifs de B et A selon la direction de croissance  $z = [0, 0, 1]$ . La condition aux limites sur la surface libre perpendiculaire à l'axe de croissance est donnée par :

$$\sigma_{zz} = 0 \quad (D.5)$$

Dans le cas de couches minces, cette condition est vraie dans *toute* la couche et donc sur l'interface. On peut aussi considérer le milieu infini dans les directions  $x$  et  $y$  ; les conditions aux limites sur les faces perpendiculaires à l'interface considèrent les composantes de cisaillement comme nulles :

$$\sigma_{xy} = \sigma_{xz} = \sigma_{yz} = 0 \quad (\text{D.6})$$

La loi de Hooke qui exprime la relation entre les contraintes et les faibles déformations dans l'approximation de l'élasticité linéaire se décrit alors dans la couche B et dans le substrat A par les équations suivantes :

$$\begin{aligned} \sigma_{xx} &= C_{11}\epsilon_{xx} + C_{12}\epsilon_{yy} + C_{12}\epsilon_{zz} \\ \sigma_{yy} &= C_{12}\epsilon_{xx} + C_{11}\epsilon_{yy} + C_{12}\epsilon_{zz} \\ \sigma_{zz} &= C_{12}\epsilon_{xx} + C_{12}\epsilon_{yy} + C_{11}\epsilon_{zz} \end{aligned} \quad (\text{D.7})$$

avec les définitions suivantes :

$$\begin{aligned} \epsilon_{xx}^A &= \epsilon_{yy}^A = \frac{a_{Ep} - a_A}{a_A} \quad ; \quad \epsilon_{zz}^A = \frac{a_A^n - a_A}{a_A} \\ \epsilon_{xx}^B &= \epsilon_{yy}^B = \frac{a_{Ep} - a_B}{a_B} \quad ; \quad \epsilon_{zz}^B = \frac{a_B^n - a_B}{a_B} \end{aligned}$$

On a alors :

$$a_{Ep} = a_A(1 + \epsilon_{xx}^A) = a_B(1 + \epsilon_{xx}^B)$$

soit :

$$(1 + f)(1 + \epsilon_{xx}^A) = (1 + \epsilon_{xx}^B)$$

la condition  $\sigma_{zz} = 0$  :

$$\epsilon_{zz}^{A,B} = -\frac{2C_{12}^{A,B}}{C_{11}^{A,B}}\epsilon_{xx}^{A,B}$$

La contrainte biaxiale dans le plan s'exprime alors par :

$$\begin{aligned} \sigma_{xx}^{A,B} &= \sigma_{yy}^{A,B} = \left[ C_{11}^{A,B} + C_{12}^{A,B} - \frac{2(C_{12}^{A,B})^2}{C_{11}^{A,B}} \right] \epsilon_{xx}^{A,B} \\ \sigma_{xx}^{A,B} &= \sigma_{yy}^{A,B} = \alpha^{A,B} \epsilon_{xx}^{A,B} \end{aligned}$$

où  $\alpha$  désigne le module biaxial :

$$\alpha = C_{11} + C_{12} - \frac{2C_{12}^2}{C_{11}} = \frac{(C_{11} - C_{12})(C_{11} + 2C_{12})}{C_{11}}$$

On définit également l'énergie élastique par unité de volume, en notation contractée d'Einstein, par :

$$E_{Elast}^V = \frac{1}{2}\sigma_{ij}\epsilon_{ij}$$

Dans notre cas, on utilisera plutôt l'énergie élastique par unité de surface dans le plan de l'épitaxie faisant intervenir les épaisseurs des couches  $\Lambda_B$  et  $\Lambda_A$  et qui s'exprime par :

$$\begin{aligned} E_{Elast}^S &= E_{Elast,A}^S + E_{Elast,B}^S \\ E_{Elast}^S &= \Lambda_A \alpha^A (\epsilon_{xx}^A)^2 + \Lambda_B \alpha^B (\epsilon_{xx}^B)^2 \\ E_{Elast}^S &= \Lambda_A \alpha^A \left( \frac{a_{Ep} - a_A}{a_A} \right)^2 + \Lambda_B \alpha^B \left( \frac{a_{Ep} - a_B}{a_B} \right)^2 \end{aligned}$$

Le paramètre épitaxié s'obtient en minimisant cette énergie :

$$\frac{\partial E_{Elast}^S}{\partial a_{Ep}} = 0 \implies a_{Ep} \left[ \frac{\alpha^A \Lambda_A}{(a_A)^2} + \frac{\alpha^B \Lambda_B}{(a_B)^2} \right] = \frac{\alpha^A \Lambda_A}{a_A} + \frac{\alpha^B \Lambda_B}{a_B}$$

D'où :

$$a_{Ep} = a_A a_B \frac{\alpha^A \Lambda_A a_B + \alpha^B \Lambda_B a_A}{\alpha^A \Lambda_A (a_B)^2 + \alpha^B \Lambda_B (a_A)^2} \quad (D.8)$$

Ainsi en reportant l'équation D.8 dans l'expression de la déformation dans le plan de l'épitaxie, il vient :

$$\epsilon_{xx}^B = \frac{1}{1 + \frac{\alpha^B \Lambda_B}{\alpha^A \Lambda_A} \left( \frac{a_A}{a_B} \right)^2} \frac{a_A - a_B}{a_B} \quad \text{et} \quad \epsilon_{xx}^A = \frac{1}{1 + \frac{\alpha^A \Lambda_A}{\alpha^B \Lambda_B} \left( \frac{a_B}{a_A} \right)^2} \frac{a_B - a_A}{a_A}$$

En remarquant que :

$$\frac{a_A}{a_B} = 1 + f$$

et en introduisant :

$$r = \frac{\Lambda_B}{\Lambda_A} \quad \text{et} \quad \rho = \frac{\alpha^B}{\alpha^A}$$

alors :

$$\epsilon_{xx}^B = \frac{f}{1 + r\rho(1+f)^2} \quad \text{et} \quad \epsilon_{xx}^A = \frac{-r\rho f(1+f)}{1 + r\rho(1+f)^2}$$

Au premier ordre, c'est à dire en supposant  $f \ll 1$  (*cas des petites déformations*) :

$$\epsilon_{xx}^B = \frac{f}{1 + r\rho} \quad \text{et} \quad \epsilon_{xx}^A = \frac{-r\rho}{1 + r\rho} f \quad (D.9)$$

Remarques :

- On note généralement  $m$ , la quantité qui exprime la différence entre les déformations des deux matériaux dans le plan de l'épitaxie :  $m = \epsilon_{xx}^B - \epsilon_{xx}^A$ . Dans le cas des faibles déformations, d'après l'équation D.9,  $m = f$  quel que soit  $\Lambda_A$  et  $\Lambda_B$ .
- Dans le cas où l'épaisseur de la couche A (le substrat) est très grande devant celle de la couche B :  $\Lambda_A \gg \Lambda_B$ , on a les relations suivantes :

$$\begin{aligned} \epsilon_{xx}^A = \epsilon_{yy}^A = 0 & \quad ; \quad \epsilon_{zz}^A = 0 \\ \epsilon_{xx}^B = \epsilon_{yy}^B = f & \quad ; \quad \epsilon_{zz}^B = -\frac{2C_{12}^B}{C_{11}^B} f \end{aligned}$$

## D.2 Modélisation par la technique des éléments finis

### D.2.1 principe du calcul

On peut exprimer le tenseur de distorsion total  $\underline{e}_t$  à partir du champ de déplacement total comme suit :

$$\underline{e} = \begin{pmatrix} e_{xx} & e_{xy} & e_{xz} \\ e_{yx} & e_{yy} & e_{yz} \\ e_{zx} & e_{zy} & e_{zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{\partial u_x}{\partial x} & \frac{\partial u_x}{\partial y} & \frac{\partial u_x}{\partial z} \\ \frac{\partial u_y}{\partial x} & \frac{\partial u_y}{\partial y} & \frac{\partial u_y}{\partial z} \\ \frac{\partial u_z}{\partial x} & \frac{\partial u_z}{\partial y} & \frac{\partial u_z}{\partial z} \end{pmatrix} \quad (D.10)$$

L'équation(D.10) donne la matrice des distorsions dans sa forme la plus générale. Elle peut être séparée en une partie symétrique  $\underline{\epsilon}$  et une partie antisymétrique  $\underline{\omega}$  que l'on peut écrire :

$$\underline{\epsilon} = \frac{1}{2}(\underline{e} + \underline{e}^T) \quad \text{et} \quad \underline{\omega} = \frac{1}{2}(\underline{e} - \underline{e}^T) \quad (\text{D.11})$$

C'est seulement dans le cadre de l'hypothèse des *petites déformations* que l'on peut associer la déformation du matériau au tenseur  $\underline{\epsilon}$  et la rotation rigide de la maille au tenseur  $\underline{\omega}$ . C'est donc seulement dans le cadre de l'hypothèse des faibles déformations que nous pouvons appliquer l'élasticité linéaire avec la loi de Hooke telle que nous l'avons présentée dans les précédents paragraphes. La résolution d'un problème de mécanique des milieux continus consiste à résoudre, entre autre, l'équation d'équilibre suivante ([140]) :

$$\vec{\nabla} \cdot \underline{\sigma} + \vec{\Phi} = 0 \quad (\text{D.12})$$

où  $\vec{\Phi}$  correspond aux forces extérieures présentes. Dans la suite du problème, on négligera les forces extérieures comme les forces de masse. On peut donc réécrire l'équation d'équilibre comme suit :

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} = 0 \quad \text{pour } i = 1..3 \quad (\text{D.13})$$

On peut donc exprimer les  $\epsilon_{kl}$  dans le cas des petites déformations par :

$$\epsilon_{kl} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_k}{\partial x_l} + \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \right) \quad (\text{D.14})$$

En combinant la loi de Hooke et l'équation d'équilibre D.12 il vient :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial x_j} (C_{ijkl} \epsilon_{kl}) &= 0 \quad \text{pour } i = 1..3 \\ \frac{\partial}{\partial x_j} \left( C_{ijkl} \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_k}{\partial x_l} + \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \right) \right) &= 0 \quad \text{pour } i = 1..3 \end{aligned}$$

or, par symétrie,  $C_{ijkl} = C_{ijlk}$  donc l'équation précédente devient :

$$\frac{\partial}{\partial x_j} \left( C_{ijkl} \frac{\partial u_k}{\partial x_l} \right) = 0 \quad \text{pour } i = 1..3 \quad (\text{D.15})$$

La résolution de notre problème revient à résoudre l'équation aux dérivées partielles (D.15) dans le cas de l'épitaxie. Afin de réaliser cette opération mathématique, nous avons utilisé le logiciel COMSOL multiphysics qui permet de résoudre ce genre d'équations en utilisant la méthode des éléments finis.

## D.2.2 Résolution des équations aux dérivées partielles (PDE) avec COMSOL multiphysics

COMSOL multiphysics est un logiciel de résolution d'équations aux dérivées partielles (Partial Differential Equations PDE) par la méthode des éléments finis. Il permet de modéliser et de simuler beaucoup de problèmes physiques. L'équation de base décrivant l'évolution d'une variable inconnue  $\mathbf{u}$  dans un domaine  $\Omega$  s'écrit :

$$\begin{aligned} d_\alpha \frac{\partial u}{\partial t} - \nabla \cdot (c \nabla \mathbf{u} + \alpha \mathbf{u} - \gamma) + \beta \cdot \nabla \mathbf{u} + a \mathbf{u} &= f \quad \text{dans } \Omega \\ n \cdot (c \nabla \mathbf{u} + \alpha \mathbf{u} - \gamma) + q \mathbf{u} &= g - h^T \mu \quad \text{sur } \partial \Omega \\ h \mathbf{u} &= r \quad \text{sur } \partial \Omega \end{aligned} \quad (\text{D.16})$$



La première équation désigne l'équation aux dérivées partielles à résoudre où selon COMSOL multiphysics  $d_\alpha$  est le terme de masse,  $c$  est le coefficient de diffusion,  $\alpha$  et  $\beta$  deux termes de convection,  $a$  coefficient d'absorption,  $\gamma$  et  $f$ , deux termes de source. Les équations 2 et 3 du regroupement(D.16) expriment les conditions aux limites (sur les frontières de  $\Omega$ ).

L'équation D.16 est une écriture généralisée et peut être appliquée au cas où  $\mathbf{u}$  est un vecteur. L'opération  $\vec{\nabla}\vec{u}$  est alors un produit dyadique dont le résultat, une dyade, est un tenseur d'ordre 2. De plus, dans toute la suite, on s'intéressera uniquement aux phénomènes stationnaires, ainsi le premier terme dans D.16 pourra être pris comme nul. Afin de mieux comprendre le lien entre le formalisme de COMSOL multiphysics et celui de la mécanique des milieux continus développé précédemment, nous allons récrire le terme :  $\vec{\nabla} \cdot (c\vec{\nabla}\mathbf{u})$  de l'équation D.16 dans le cas où la fonction  $\mathbf{u}$  est un vecteur à seulement deux composantes ( $u_1, u_2$ ).  $c$  est un tenseur propre à COMSOL multiphysics et doit être noté  $\underline{c}$ . Nous allons dans la suite voir comment relier le tenseur  $\underline{c}$  de COMSOL multiphysics au tenseur des modules  $\underline{C}$  donnés par la mécanique des milieux continus. On peut écrire :

$$\underline{c}\vec{\nabla}\vec{u} = \begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} \\ c_{21} & c_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \vec{\nabla}u_1 \\ \vec{\nabla}u_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} c_{11}\vec{\nabla}u_1 + c_{12}\vec{\nabla}u_2 \\ c_{21}\vec{\nabla}u_1 + c_{22}\vec{\nabla}u_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} c_{11} \begin{bmatrix} \frac{\partial u_1}{\partial x_1} \\ \frac{\partial u_1}{\partial y_1} \end{bmatrix} + c_{12} \begin{bmatrix} \frac{\partial u_2}{\partial x_1} \\ \frac{\partial u_2}{\partial y_1} \end{bmatrix} \\ c_{21} \begin{bmatrix} \frac{\partial u_1}{\partial x_1} \\ \frac{\partial u_1}{\partial y_1} \end{bmatrix} + c_{22} \begin{bmatrix} \frac{\partial u_2}{\partial x_1} \\ \frac{\partial u_2}{\partial y_1} \end{bmatrix} \end{bmatrix}$$

Le vecteur  $\vec{u}$  est un tenseur d'ordre 1 et est donc représenté dans un espace à deux dimensions par un vecteur à  $2^1 = 2$  composantes.  $\vec{\nabla}\vec{u}$  est un tenseur d'ordre 2 qui s'exprime dans le repère  $(x_1, x_2)$  par un vecteur à  $2^2 = 4$  composantes (ou par une matrice  $2 \times 2$ ).

Pour des matériaux anisotropes et dans le formalisme de COMSOL multiphysics, les composantes  $c_{ij}$  sont elles mêmes des tenseurs d'ordre 2 ( $c$  est bien un tenseur d'ordre 4) que l'on peut représenter dans  $(x_1, x_2)$  par une matrice  $2 \times 2$ . Ainsi le terme  $\underline{c}\vec{\nabla}\vec{u}$  peut se réécrire en notation COMSOL multiphysics :

$$\underline{c}\vec{\nabla}\vec{u} = \begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} \\ c_{21} & c_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \vec{\nabla}u_1 \\ \vec{\nabla}u_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} c_{11}\vec{\nabla}u_1 + c_{12}\vec{\nabla}u_2 \\ c_{21}\vec{\nabla}u_1 + c_{22}\vec{\nabla}u_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \begin{bmatrix} c_{1111} & c_{1112} \\ c_{1121} & c_{1122} \end{bmatrix} \vec{\nabla}u_1 + \begin{bmatrix} c_{1211} & c_{1212} \\ c_{1221} & c_{1222} \end{bmatrix} \vec{\nabla}u_2 \\ \begin{bmatrix} c_{2111} & c_{2112} \\ c_{2121} & c_{2122} \end{bmatrix} \vec{\nabla}u_1 + \begin{bmatrix} c_{2211} & c_{2212} \\ c_{2221} & c_{2222} \end{bmatrix} \vec{\nabla}u_2 \end{bmatrix}$$

$$\underline{c}\vec{\nabla}\vec{u} = \begin{bmatrix} \begin{bmatrix} cu_1x_1 \\ cu_1x_2 \end{bmatrix} \\ \begin{bmatrix} cu_2x_1 \\ cu_2x_2 \end{bmatrix} \end{bmatrix}$$

Ainsi, le produit scalaire de l'opérateur  $\vec{\nabla}$  avec ce tenseur d'ordre 2 s'écrit comme un tenseur

d'ordre 1 :

$$\vec{\nabla} \cdot (\underline{c} \vec{\nabla} \vec{u}) = \begin{bmatrix} \vec{\nabla} \cdot \begin{bmatrix} cu_1x_1 \\ cu_1x_2 \end{bmatrix} \\ \vec{\nabla} \cdot \begin{bmatrix} cu_2x_1 \\ cu_2x_2 \end{bmatrix} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \begin{bmatrix} \frac{\partial}{\partial x_1} \\ \frac{\partial}{\partial x_2} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} cu_1x_1 \\ cu_1x_2 \end{bmatrix} \\ \begin{bmatrix} \frac{\partial}{\partial x_1} \\ \frac{\partial}{\partial x_2} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} cu_2x_1 \\ cu_2x_2 \end{bmatrix} \end{bmatrix}$$

En développant tous ces termes et en généralisant le résultat dans un espace à 3 dimensions, on obtient :

$$\vec{\nabla} \cdot (c \vec{\nabla} \mathbf{u}) = \sum_k \frac{\partial}{\partial x_k} \sum_{j,l} c_{ijkl} \frac{\partial u_j}{\partial x_l} \quad \text{pour } i = 1..3$$

soit en notation contractée en sommant sur les indices répétés :

$$\vec{\nabla} \cdot (c \vec{\nabla} \mathbf{u}) = \frac{\partial}{\partial x_k} c_{ijkl} \frac{\partial u_j}{\partial x_l} \quad \text{pour } i = 1..3$$

En adoptant les mêmes conventions pour les autres termes de l'équation D.16, on obtient (toujours en se plaçant dans un régime stationnaire) en notation COMSOL multiphysics :

$$\frac{\partial}{\partial x_k} \left( -c_{ijkl} \frac{\partial u_j}{\partial x_l} - \alpha_{ijk} u_k + \gamma_{lk} \right) + \beta_{ijk} \frac{\partial u_j}{\partial x_k} + a_{ij} u_j = f_i \quad \text{pour } i = 1..3$$

Afin de retrouver une équation de la même forme que l'équation (D.15) de la mécanique des milieux continus, on néglige les termes de convection et de source, l'équation D.16 devient alors :

$$\frac{\partial}{\partial x_k} c_{ijkl} \frac{\partial u_j}{\partial x_l} = 0 \quad \text{pour } i = 1..3 \quad (\text{D.17})$$

COMSOL multiphysics sera donc capable de résoudre la PDE donné par (D.17) en considérant des conditions aux limites que l'on pourra introduire à partir des conditions aux limites propres au problème étudié. Cette équation correspond à l'équation d'équilibre (D.15) de la mécanique des milieux continus à conditions de considérer la relation entre les coefficients du tenseur  $\underline{c}$  de COMSOL multiphysics et les coefficients du tenseur des modules  $\underline{C}$  donnés par la théorie de l'élasticité linéaire. Cette relation est facilement obtenue en comparant les équations (D.15) et (D.17) :

$$c_{ijkl} = C_{ikjl} \quad (\text{D.18})$$

Il suffit donc de remplacer correctement les coefficients propres à COMSOL multiphysics par les paramètres caractéristiques de notre problème, et de définir les différentes conditions aux limites. C'est ce dont nous allons discuter maintenant.

### D.2.3 Modélisation 3D

#### Introduction d'une "charge" thermique

Il est maintenant nécessaire de préciser comment appliquer la relation d'équilibre dans le cas d'un problème d'épitaxie. Sachant que la mécanique des milieux continus reste valable sur des zones de tailles d'au moins 10 atomes, on peut réaliser un maillage de la couche et du substrat par rapport aux atomes du cristal (faisant un taille d'au moins 10 atomes), et on applique l'équation d'équilibre (D.15) dans chaque maille en considérant les conditions aux limites dont on parlera plus précisément lors la résolution proprement dite. Dans notre cas, la

taille du maillage de la couche et celle du substrat sont différentes. Afin de rendre compte de l'épitéxie, il faut trouver un moyen de coller le maillage de la couche sur le maillage du substrat en accolant les noeuds. En effet, dans l'épitéxie, la maille de la couche s'adapte à la maille du substrat de telle sorte que leurs distances interatomiques dans le plan de l'interface soient égaux. Afin de réaliser l'adaptation des maillages, on attribue deux coefficients de dilatation thermique différents  $\alpha_A$  pour le substrat et  $\alpha_B$  pour la couche. On réalise alors *artificiellement* un gradient de température (voir figure D.2) permettant d'adapter le maillage de la couche sur celui du substrat si  $\alpha_A = 0$  (ou inversement si  $\alpha_B = 0$ ) [141].

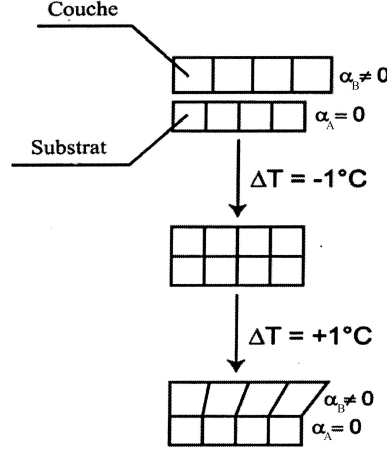


FIG. D.2 – Prise en compte de l'épitéxie de la couche  $B$  de coefficient de dilatation thermique  $\alpha_B$  sur le substrat  $A$  de coefficient  $\alpha_A$  grâce à un gradient de température fictif  $\Delta T$  [141]

On se retrouve avec un déplacement total dans la couche (cas où  $\alpha_A = 0$  et  $\alpha_B \neq 0$ ) qui s'écrit :

$$\vec{u}_t = \vec{u} + \vec{u}_{th} \quad (D.19)$$

où  $\vec{u} = \vec{u}_{epitaxie}$  correspond aux déplacements élastiques dues à l'épitéxie de la couche sur le substrat. On peut ainsi réécrire la matrice des distorsions :

$$\underline{\epsilon}_t = \underline{\epsilon}_{epitaxie} + \underline{\epsilon}_{thermique} \quad (D.20)$$

et donc on peut réécrire le tenseur des déformations comme suit :

$$\underline{\epsilon}_t = \underline{\epsilon}_{epitaxie} + \underline{\epsilon}_{thermique} \quad (D.21)$$

ainsi que le tenseur des contraintes totales en considérant le cas de l'élasticité linéaire :

$$\underline{\sigma}_t = \underline{\sigma}_{epitaxie} + \underline{\sigma}_{thermique} \quad (D.22)$$

Il suffit donc de résoudre l'équation différentielle aux dérivées partielles (D.15) pour la contrainte élastique d'épitéxie réelle  $\underline{\sigma}_{epitaxie}$  dans chaque maille en considérant les conditions aux limites ; la partie thermique n'ayant aucun sens physique, puisqu'elle n'est là que pour rendre compte de l'épitéxie dans le calcul.

### Considérations générales

On étudie l'épitéxie d'une couche d'épaisseur  $\Lambda_B$  sur un substrat d'épaisseur  $\Lambda_A$  dans le repère  $R = (O, x, y, z)$  où  $x = [1, 0, 0]$ ,  $y = [0, 1, 0]$  et  $z = [0, 0, 1]$ . La croissance s'effectue

suivant l'axe  $z$  et le plan de l'épitaxie est le plan  $(x, y)$ . Les propriétés physiques de la couche et du substrat sont tirés des tables de Hellwege [8]. Les propriétés d'alliage tel que  $Si_{1-x}Ge_x$  sont déduites de ces valeurs en utilisant des lois de type Vegard. Dans COMSOL multiphysics le déplacement total  $\vec{u}_{couche}$  dans la couche est donné par (d'après (D.19))

$$\vec{u}_{couche} = \vec{u}_{couche} + \vec{u}_{thermiquecouche} \quad (D.23)$$

Ici l'indice "épitaxie" est retiré par simplicité. Dans le cas du substrat, on prend comme origine des dilatations thermiques  $\alpha_A = 0$ . C'est pourquoi, il n'intervient aucun déplacement thermique dans le substrat. Le déplacement total dans le substrat peut donc s'écrire :

$$\vec{u}_{tsubstrat} = \vec{u}_{substrat} \quad (D.24)$$

Si maintenant on écrit l'équation d'équilibre(D.15) dans la couche on obtient (en négligeant la contribution des forces extérieures) :

$$\frac{\partial}{\partial x_j} \left( C_{ijkl} \frac{\partial u_{couche,k}}{\partial x_l} - C_{ijkl} \frac{\partial u_{thermiquecouche,k}}{\partial x_l} \right) = 0 \quad (D.25)$$

Afin de résoudre cette équation avec COMSOL multiphysics, on utilise l'équation de base(D.16) en enlevant le terme non-stationnaire ainsi que les coefficients de convection, d'absorption et de source  $f$  et en gardant  $\gamma$  qui, on va le voir, va représenter la source thermique permettant de tenir compte de l'épitaxie de la couche sur le substrat. Dans ce cas, COMSOL multiphysics sera capable de résoudre l'équation suivante :

$$\vec{\nabla} \cdot (\underline{c} \vec{\nabla} \vec{u} - \gamma) = 0 \quad (D.26)$$

On a démontré précédemment que l'on pouvait associer le coefficient  $\underline{c}$  de COMSOL multiphysics au tenseur des coefficients élastiques  $\underline{C}$  si  $c_{ijkl} = C_{ikjl}$ . Mais pour réaliser correctement le parallèle entre la PDE de COMSOL (D.26) et l'équation d'équilibre dans la couche (D.25), il est nécessaire d'introduire la composante thermique. Celle-ci, représentée par le terme  $C_{ijkl} \frac{\partial u_{thermiquecouche,k}}{\partial x_l} = \underline{C} \cdot \underline{\epsilon}_{thermiquecouche}$  dans l'équation(D.15) peut être introduite dans le formalisme de COMSOL via le deuxième terme source  $\gamma$ . Ainsi afin de résoudre l'équation d'équilibre dans la couche épitaxiée avec COMSOL, on remplace les  $c_{ijkl}$  par les coefficients de la couche  $C_{ikjl}$  et  $\underline{\gamma}$  par  $\underline{C} \underline{\epsilon}_{thermiquecouche}$ . L'équation d'équilibre dans le substrat est beaucoup plus simple vu qu'on ne considère pas de déplacement thermique.

### Résolution de l'équation d'équilibre avec COMSOL multiphysics

La composante thermique est introduite via une déformation isotrope  $f$  dans les trois directions de la couche  $B$  prise dans l'état initial. On écrit donc :

$$\begin{pmatrix} \epsilon_{couche,xx} \\ \epsilon_{couche,yy} \\ \epsilon_{couche,zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \epsilon_{couche,xx} \\ \epsilon_{couche,yy} \\ \epsilon_{couche,zz} \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} f \\ f \\ f \end{pmatrix}$$

de telle sorte qu'à l'état initial, puisque  $\underline{\epsilon}_{couche} = \underline{0}$  alors  $\underline{\epsilon}_{couche} = \underline{f}$ . La loi de Hooke reliant le tenseur des contraintes  $\underline{\sigma}$  au tenseur des déformations s'écrit alors dans la couche B :

$$\begin{aligned} \underline{\sigma}_B &= \underline{C} \underline{\epsilon}_B \\ \underline{\sigma}_B &= \underline{C} (\underline{\epsilon}_{tB} + \underline{f}) \end{aligned}$$

soit dans le repère  $(x, y, z)$  défini précédemment :

$$\begin{aligned}\sigma_{B,xx} &= C_{11}\varepsilon_{tB,xx} + C_{12}\varepsilon_{tB,yy} + C_{12}\varepsilon_{tB,zz} + (C_{11} + 2C_{12})f \\ \sigma_{B,yy} &= C_{12}\varepsilon_{tB,xx} + C_{11}\varepsilon_{tB,yy} + C_{12}\varepsilon_{tB,zz} + (C_{11} + 2C_{12})f \\ \sigma_{B,zz} &= C_{12}\varepsilon_{tB,xx} + C_{12}\varepsilon_{tB,yy} + C_{11}\varepsilon_{tB,zz} + (C_{11} + 2C_{12})f\end{aligned}\quad (D.27)$$

Les termes de droite forment donc le tenseur  $\underline{C}\varepsilon_{thermiqueB}$  que l'on introduit dans COMSOL multiphysics via le coefficient de source  $\underline{\gamma}$ . Il est maintenant aisé de résoudre notre problème avec le formalisme de COMSOL multiphysics. La figure(D.3) présente l'interface homme machine de COMSOL multiphysics où l'on peut apercevoir l'équation(D.16) que COMSOL multiphysics va résoudre. On entre ainsi les coefficients du tenseur des rigidités  $\underline{C}$  dans les cases correspondants aux coefficients du tenseur  $\underline{c}$  de COMSOL multiphysics en respectant la règle de passage(D.18). Dans la figure(D.3) nous avons reporté la matrice  $\underline{c}$  de COMSOL multiphysics écrite en utilisant les coefficients de  $\underline{C}$ . On peut maintenant rentrer la contribution thermique dans le formalisme

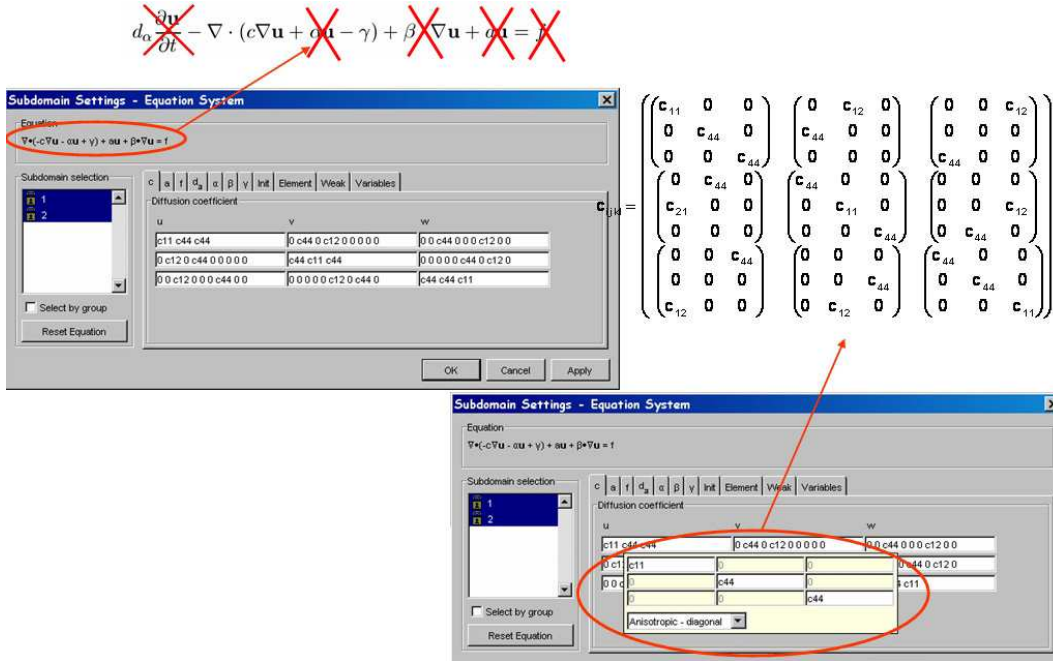


FIG. D.3 – Introduction des coefficients du tenseur  $\underline{C}$  des rigidités dans le tenseur  $\underline{c}$  du formalisme de COMSOL multiphysics.

de COMSOL multiphysics via le tenseur  $\gamma$  de la couche  $B$  comme détaillé dans la figure(D.4). Dans le cas du substrat, on réalise les mêmes opérations sauf que le tenseur  $\gamma$  reste à 0.

**Changement de Base** Toutes les relations présentées dans la partie(D.1.3) sont valables uniquement dans le repère  $\mathcal{R}_0 = (x_0, y_0, z_0)$  des axes principaux selon lesquels sont définis les constantes d'élasticité des matériaux c'est à dire  $x_0 = [1, 0, 0]$ ,  $y_0 = [0, 1, 0]$  et  $z_0 = [0, 0, 1]$ . Dans une repère  $\mathcal{R} = (x, y, z)$ , où  $T$  désigne la matrice de rotation du repère  $\mathcal{R}_0$  vers le repère  $\mathcal{R}$ , la loi de transformation des tenseurs est :

$$\sigma'_{ij} = T_{il}T_{jm}\sigma_{lm} \quad , \quad \varepsilon'_{ij} = T_{il}T_{jm}\varepsilon_{lm} \quad \text{et} \quad C'_{ijkl} = T_{ig}T_{jh}C_{ghmn}T_{km}T_{ln} \quad (D.28)$$

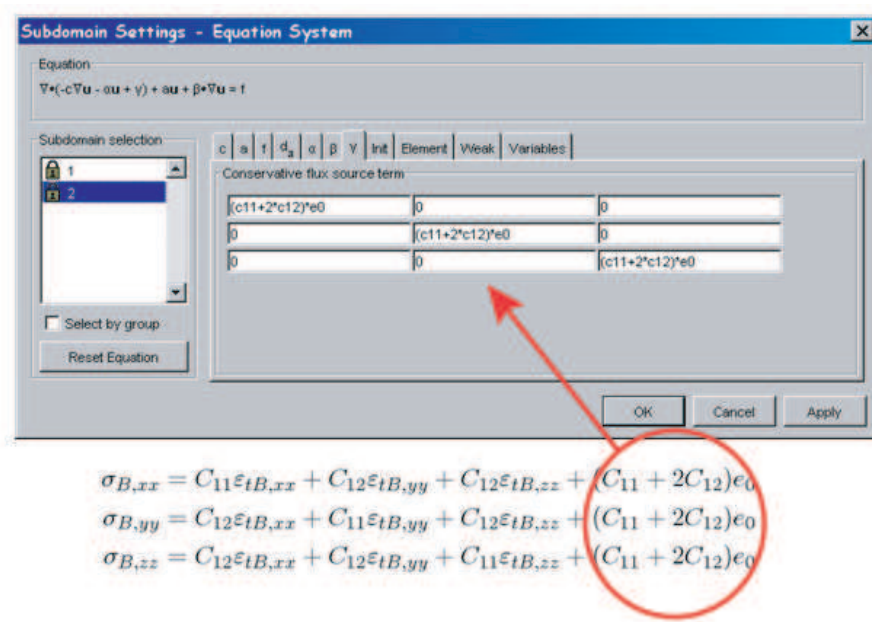


FIG. D.4 – Introduction de la composante thermique dans le formalisme de COMSOL multiphysics via le terme source  $\gamma$

On considère la matrice de rotation d'axe  $z$  et d'angle  $45^\circ$  qui s'écrit dans le repère  $\mathcal{R}_0$  :

$$\begin{pmatrix} \sqrt{2}/2 & \sqrt{2}/2 & 0 \\ -\sqrt{2}/2 & \sqrt{2}/2 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Il est alors possible d'exprimer la loi de Hooke dans le nouveau repère  $\mathcal{R} = (x, y, z)$  où  $x$  correspond à la direction  $:[1, \bar{1}, 0]$ ,  $y$  :  $[1, 1, 0]$  et  $z$  :  $[0, 0, 1]$  :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{xz} \\ \sigma_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (C_{11} + C_{12} + 2C_{44})/2 & (C_{11} + C_{12} - 2C_{44})/2 & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ (C_{11} + C_{12} - 2C_{44})/2 & (C_{11} + C_{12} + 2C_{44})/2 & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & (C_{11} - C_{12})/2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} \\ \varepsilon_{yy} \\ \varepsilon_{zz} \\ \gamma_{yz} \\ \gamma_{xz} \\ \gamma_{xy} \end{pmatrix}$$

Afin de prendre en compte le changement de repère dans le formalisme de COMSOL multiphysics, on remplace les coefficients du tenseur  $\underline{c}$  de COMSOL multiphysics par le nouveau tenseur des rigidités  $\underline{C}$  exprimés dans la nouvelle base  $\mathcal{R} = (x, y, z)$ . Le remplacement doit toujours être fait en suivant les relations de passage entre le formalisme de la mécanique des milieux continus et COMSOL multiphysics.

### Conditions aux limites

Les systèmes épitaxiés étudiés ont été préparés en section transverse grâce à la technique FIB afin de pouvoir l'observer au microscopie électronique en transmission. L'amincissement a été réalisé suivant la direction  $y$  :  $[1, 1, 0]$  (voir figure(D.5)).

Il est donc plus aisé d'exprimer la loi de Hooke dans le repère  $\mathcal{R} = (x, y, z)$  présenté dans le paragraphe précédent. Il est nécessaire d'imposer des conditions aux limites sur les

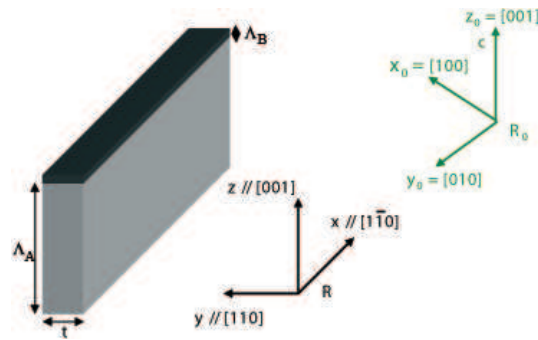


FIG. D.5 – Géométrie de l'échantillon après amincissement FIB nécessaire à l'observation au microscope.

déplacements des différentes faces de la couche et du substrat, et ce, en se référant le plus possible aux conditions mécaniques réelles de notre échantillon. L'échantillon aminci suivant  $y : [1, 1, 0]$  peut être considéré infiniment fin suivant cette direction et infini suivant la direction perpendiculaire  $x : [1, \bar{1}, 0]$ . Les faces de la couche et du substrat perpendiculaires à  $y$  sont donc considérées comme libres (aucune condition aux limites n'est imposée). Il en est de même pour la surface libre de la couche perpendiculaire à  $z$ . Quant aux faces de la couche et du substrat perpendiculaires à  $x$  on les considère comme fixes suivant cette direction afin de satisfaire les conditions de périodicité. De même, la face du substrat perpendiculaire à  $z$  est considérée comme fixe suivant  $z$ . Une fois les conditions aux limites définies, il est nécessaire de déterminer le maillage à réaliser dans la couche et le substrat, dans lequel l'équation d'équilibre sera résolu.

### Maillage

COMSOL multiphysics permet de réaliser différents types de maillage avec notamment différentes formes géométriques de base. La géométrie est choisie en fonction de la symétrie du système que l'on cherche à modéliser. Dans notre cas, on choisit un maillage cubique pour les structures étudiées. La taille du maillage va être directement liée à la précision du calcul. Ainsi plus le maillage sera fin sur une zone particulière, plus le résultat du calcul réalisé sur la zone considérée sera précis.

COMSOL permet de réaliser des maillages de différentes finesses suivant les régions choisies dans la structure.

### Affichage et analyse des résultats

Une fois que le calcul est terminé, COMSOL permet d'afficher les résultats en choisissant la variable à tracer (déplacements, déformations, contraintes, etc ...). Différents modes d'affichages peuvent être appliqués, comme représenté que la figure(D.6) : coupes de la structure, flèches, déformé, etc ... Ainsi le champ de déplacement représenté sur la figure(D.6) est lié à une échelle de couleur et l'effet induit sur la structure de la lame est multiplié par 50 pour mieux se rendre compte des conséquences.

On peut ensuite réaliser des tracés de variables suivant une direction choisie par l'utilisateur. Enfin, le programme permet d'obtenir la valeur calculée d'une variable en un point donné déterminé par l'utilisateur.

Les résultats peuvent aussi être traités par l'intermédiaire de tableaux exploitables dans un second temps sous Matlab et donc dans un programme de simulation écrit dans ce langage. C'est un des grands avantages de COMSOL multiphysics (anciennement appelé FEMLAB) de pouvoir

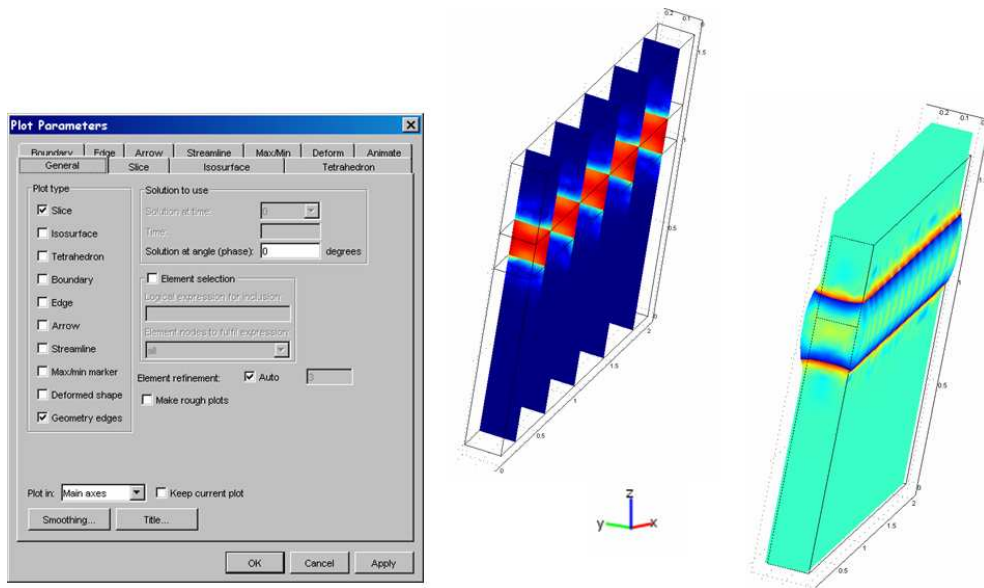


FIG. D.6 – Affichage des résultats du calcul 3D.

aisément traiter les données calculées par les simulations FEM.

#### D.2.4 Modélisation 2D

L'approximation dite des déformations planes dans le plan  $(y, z)$  implique que les composantes  $\varepsilon_{xx,t}, \varepsilon_{xy,t}$  et  $\varepsilon_{xz,t}$  du tenseur des déformations soient nulles. Cela revient à considérer le système infini dans la direction  $x$ . Cette approximation est justifiée dans le cas de l'étude d'une lame mince préparée pour la microscopie électronique puisque la dimension suivant cette dimension est très grande devant les deux autres. Les déformations en n'importe quel point de la lame ne sont alors fonctions que des coordonnées  $(y, z)$  et indépendantes de  $x$ . La relation liant les contraintes et les déformations dans un système sous l'hypothèse de déformations planes s'écrit alors :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \end{pmatrix} = \underline{\underline{\tilde{C}}} \begin{pmatrix} \varepsilon_{yy} \\ \varepsilon_{zz} \\ \gamma_{yz} \end{pmatrix}_{\text{epitaxie}} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & 0 \\ C_{12} & C_{11} & 0 \\ 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_{yy} \\ \varepsilon_{zz} \\ \gamma_{yz} \end{pmatrix}_{\text{epitaxie}}$$

ce qui s'écrit dans le formalisme de COMSOL multiphysics :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \end{pmatrix} = \underline{\underline{\tilde{C}}} \left[ \begin{pmatrix} \varepsilon_{yy} \\ \varepsilon_{zz} \\ \gamma_{yz} \end{pmatrix}_t + \begin{pmatrix} f \\ f \\ 0 \end{pmatrix} \right] \quad (\text{D.29})$$

La condition de déplacement nul du système dans la direction  $y$  introduit la relation suivante :

$$\varepsilon_{xx,t} = \varepsilon_{xx,\text{epitaxie}} + \varepsilon_{xx,\text{thermique}} = 0$$

soit :

$$\varepsilon_{xx,\text{epitaxie}} = -\varepsilon_{xx,\text{thermique}}$$

Cette déformation est obtenue par l'application d'une contrainte purement uniaxiale dans la direction  $x$  et uniforme de valeur  $\sigma_{xx,\text{epitaxie}} = E\varepsilon_{xx,\text{epitaxie}}$  qui s'écrit en remplaçant la valeur



théorique du module d'Young  $E = \frac{(C_{11}-C_{12})(C_{11}+2C_{12})}{C_{11}+C_{12}}$  :

$$\sigma_{xx,epitaxie} = -\frac{(C_{11}-C_{12})(C_{11}+2C_{12})}{C_{11}+C_{12}}\varepsilon_{xx,thermique} = \frac{(C_{11}-C_{12})(C_{11}+2C_{12})}{C_{11}+C_{12}}f.$$

Cette contrainte imposée va aussi induire des déformations dans le plan  $(y, z)$ . Considérons une contrainte uniaxiale notée  $s$  dans la direction  $x$ , la matrice dans le repère  $(x, y, z)$  s'écrit :

$$\underline{\underline{\sigma}} = \begin{pmatrix} s & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Le tenseur des déformations s'écrit alors en utilisant la loi de Hooke isotrope :

$$\underline{\underline{\varepsilon}} = \begin{pmatrix} \frac{C_{11}+C_{12}}{(C_{11}-C_{12})(C_{11}+2C_{12})}s & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{C_{12}}{(C_{11}-C_{12})(C_{11}+2C_{12})}s & 0 \\ 0 & 0 & -\frac{C_{12}}{(C_{11}-C_{12})(C_{11}+2C_{12})}s \end{pmatrix}$$

sachant que le coefficient de Poisson utilisé dans la théorie isotrope s'écrit en fonction des constantes d'élasticité comme suit :  $\nu = \frac{C_{12}}{C_{11}+C_{12}}$ .

Le calcul montre qu'imposer une contrainte uniaxiale  $\sigma_{xx,epitaxie}$  pour obtenir une déformation  $\varepsilon_{xx,epitaxie} = -\varepsilon_{xx,thermique}$  engendre des déformations dans le plan  $(y, z)$ . La résolution d'un problème dans l'hypothèse des déformations planes doit tenir compte de ces déformations selon le principe de superposition valable pour l'élasticité linéaire. Ainsi, dans les directions  $y$  et  $z$ , au terme  $f$  s'ajoute les déformations calculées ci-dessus :  $\frac{C_{12}}{C_{11}+C_{12}}f$  dans le cas anisotrope.

L'équation D.29 se réécrit alors :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \end{pmatrix} = \underline{\underline{\tilde{C}}} \left[ \begin{pmatrix} \varepsilon_{yy} \\ \varepsilon_{zz} \\ \gamma_{yz} \end{pmatrix}_t + \left(1 + \frac{C_{12}}{C_{11}+C_{12}}\right) \begin{pmatrix} f \\ f \\ 0 \end{pmatrix} \right] \quad (\text{D.30})$$

Ces équations sont exprimées dans le repère  $\mathcal{R}_0$  du cristal. Lors des différentes simulations réalisées au cours de cette thèse, les équations ont été exprimées dans le repère  $\mathcal{R}$ .

Comme pour le cas traité dans le repère  $\mathcal{R}_0$ , on va chercher à calculer la contrainte uniaxiale nécessaire à appliquer au système dans la direction  $x$  pour obtenir déformation suffisante. On s'intéressera ensuite à la contribution de cette contrainte sur les déformations dans le plan orthogonal  $(y, z)$ . Pour cela, on doit exprimer les déformations en fonction des contraintes. En réalisant la même opération que dans la base  $\mathcal{R}_0$  réalisée précédemment, l'équation(D.30) s'écrit dans la base  $\mathcal{R}$  :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \end{pmatrix} = \underline{\underline{\tilde{C}}} \left[ \begin{pmatrix} \varepsilon_{yy} \\ \varepsilon_{zz} \\ \gamma_{yz} \end{pmatrix}_t + \begin{pmatrix} f \left(1 + \frac{C'_{12}C'_{33} - C'_{13}{}^2}{C'_{11}C'_{33} - C'_{13}{}^2}\right) \\ f \left(1 + \frac{C'_{13}(C'_{11} - C'_{12})}{C'_{11}C'_{33} - C'_{13}{}^2}\right) \\ 0 \end{pmatrix} \right]$$

où on définit  $C'_{11} = \frac{(C_{11}+C_{12}+2C_{44})}{2}$ ,  $C'_{12} = \frac{(C_{11}+C_{12}-2C_{44})}{2}$ ,  $C'_{13} = C_{12}$

## Annexe E

# Préparation des échantillons

### E.1 Technique classique de préparation en section transverse et en vue plane

Pour permettre l'observation d'objets au MET, il faut disposer d'échantillons d'épaisseur inférieure à quelques centaines de nm. Les couches épitaxiées peuvent être observées parallèlement au film (section transverse) ou perpendiculairement aux interfaces (vue plane).

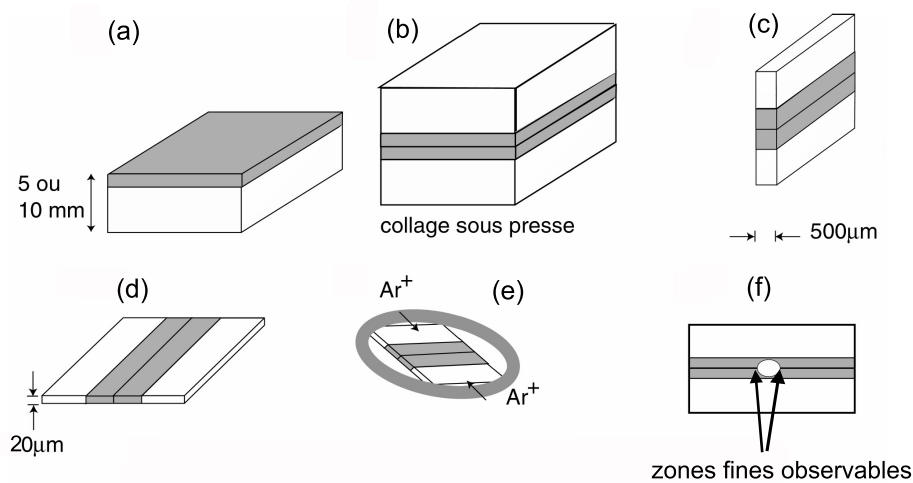


FIG. E.1 – Schéma des différentes étapes de préparation d'un échantillon en section transverse pour la MET.

La préparation pour l'observation en section transverse consiste tout d'abord à couper deux lamelles de l'échantillon de 2mm de largeur parallèlement à la direction d'observation souhaitée (figure E.1a). Les deux lamelles sont ensuite collées face à face (figure E.1b) : les couches se trouvent alors en vis à vis. Des sandwichs d'environ 500µm d'épaisseur sont découpés à la scie à fil diamanté (figure E.1c). Un polissage mécanique amincit l'échantillon jusqu'à environ 20µm (figure E.1d), puis la lame mince est collée sur une grille de cuivre (figure E.1e). L'amincissement ionique est réalisé par un bombardement aux ions  $Ar^+$  de faible énergie (autour de 5keV) dans un PIPS ("Precision Ion Polishing System") (figure E.1e) ou à froid ( $T^{\circ}C$  de l'azote liquide) grâce à un Dual Mill. Cette étape est stoppée lorsqu'un trou apparaît au centre de la lame, l'observation MET étant possible dans les zones minces autour du trou (figure E.1f).

En vue plane, le procédé de préparation est le même, si ce n'est que l'on passe de l'étape (a) à l'étape (d) directement en polissant le substrat jusqu'à environ  $20\mu\text{m}$ . Ensuite l'étape d'amincissement peut être ionique comme pour les sections transverses ou chimique. Les attaques chimiques pour les échantillons de *GaInAs/GaAs* étudiés au cours de cette thèse ont été réalisées à partir d'un mélange brome-méthanol.

Les découpes, les collages, le polissage mécanique sont fait manuellement. Durant toutes ces étapes de préparation, les propriétés structurales (état de déformation) de l'échantillon peuvent être modifiées ...

## E.2 Préparation des échantillons MET par FIB

### E.2.1 Principe du FIB

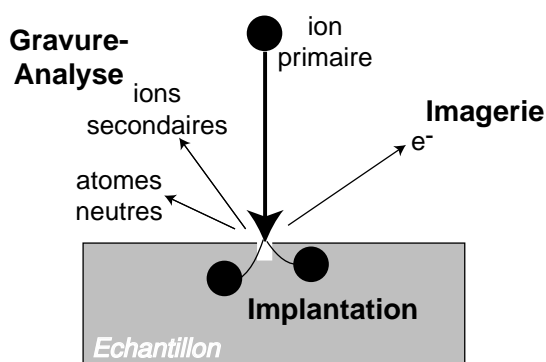


FIG. E.2 – Interaction du faisceau d'ions primaires avec la surface de l'échantillon.

Le fonctionnement d'un FIB (Faisceau d'ions focalisés) est similaire à celui d'un MEB, mais le faisceau utilisé est un faisceau d'ions et non plus un faisceau d'électrons. L'impact du bombardement des ions sur la surface étant plus fort que dans le cas des électrons, le FIB offre ainsi la possibilité d'arracher de la matière.

Comme le montre la figure E.2, l'interaction du faisceau d'ions primaires avec la surface induit l'implantation d'ions primaires et l'émission d'ions secondaires, d'atomes neutres et d'électrons secondaires. Ce dernier signal est collecté pour former une image. Ainsi le FIB offre plusieurs fonctionnalités : l'imagerie à partir d'un faible courant de faisceau, le dépôt, l'implantation ionique et la gravure à partir d'un fort courant de faisceau. C'est cette dernière fonctionnalité de gravure que nous avons exploitée.

Actuellement l'utilisation du FIB se développe fortement au profit de l'industrie des semi-conducteurs pour des applications telles que l'analyse de défauts, la modification des circuits, la réparation de masques, la réalisation de nanostructures, la préparation d'échantillons MET en des zones localisées sur des circuits intégrés...

### E.2.2 Technique de préparation de l'Hbar

Le FIB est un outil particulièrement adapté à la réalisation des préparations en section transverse d'échantillons d'épaisseur constante que ce soit la technique du Lift off ou de l'Hbar. Dans notre cas, l'Hbar, dont le principe est résumé sur la figure(E.3), a pu être mis en oeuvre sur des échantillons de  $Si_{0,8}Ge_{0,2}(27\text{nm})/Si$  par Laurent CLEMENT de Grenoble sur un FIB Micron utilisant un faisceau d'ions Gallium accélérés sous une tension de  $10\text{keV}$ . On commence par réaliser un amincissement primaire de l'échantillon perpendiculairement à l'interface jusqu'à

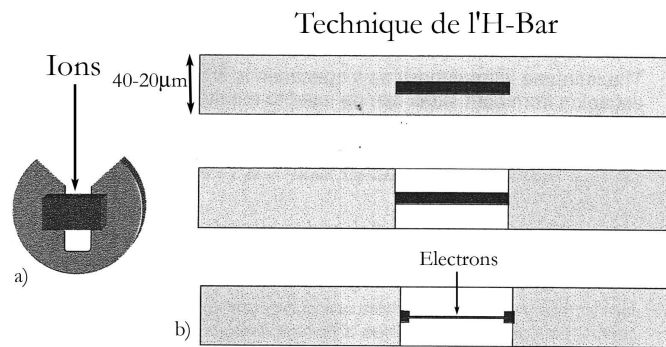


FIG. E.3 – Préparation d'une lame observable au MET par la technique de l'Hbar pratiquée grâce au FIB.

une épaisseur comprise entre 40 et  $20\mu m$ . Puis on colle l'échantillon ainsi aminci sur une grille dont une partie est découpée de manière à permettre le passage du faisceau ionique. Afin de protéger la couche des dégâts provoqués par le faisceau ionique, on évapore une fine couche de carbone amorphe. On réalise ensuite une attaque secondaire grâce au faisceau du FIB placé perpendiculairement à la couche. Cette attaque est arrêtée lorsque l'épaisseur voulue est atteinte. On obtient alors une lamelle transparente aux électrons pouvant être observée au microscope. Afin de permettre des angles de tilt important lors des observations au MET, il est essentiel de réaliser une fenêtre d'attaque la plus large possible.



# Bibliographie

- [1] M.J. Hÿtch J.L. Putaux et J.M.Penisson. *Nature*, 270-273 :423, (2003).
- [2] J.C.H Spence et J.M. Zuo. *Electron microdiffraction*. Plenum Press, (1992).
- [3] G.G.Stoney. *Proc. Rog. Soc. London Ser. A*, 82 :172, (1909).
- [4] P.H. Townsend D.M.Barnett T.A. Brunner. *J. Appl. Phys. Lett*, 62 :4438, (1987).
- [5] M.Cabié. *Mesure de contrainte dans les couches minces épitaxiées de semiconducteurs par la technique de la courbure adaptée à la microscopie électronique en transmission (MET)*. Thèse de l'université Paul-Sabatier TOULOUSE, (2005).
- [6] M.Cabie A.Ponchet A.Rocher L.Durand and A.Altibelli. *Appl. Phys. Lett*, 86 :191901, (2005).
- [7] Edited by Theo Hahn. *International tables for crystallography*. D.Reidel publishing company, (1983).
- [8] M.M. Choy W.R. Cook R.F.S Hearnon H.Jaffe J.Jerphagnon S.K.Kurtz S.T.Liu D.F.Nelson. *Elastic, Piezoelectric and related constants of crystals III/11*. Springer-Verlag, (1979).
- [9] A.Armigliato R.Balboni F.Corticelli et S.Frabboni. *Microsc. Microanal. Microstruct*, 6 :449, (1995).
- [10] Suey Li Toh K.P.Loh C.B.Boothroyd K.Li C.H.Ang et L.Chan. *J. Vac. Sci.Technol. B*, 23 :940–946, (2005).
- [11] STREAM Consortium : CNR-LAMEL STMicroelectronics ISEN SOFT IMAGING SYSTEM University of Sheffield IMEC CNR-IIESS University of Perugia. (2001).
- [12] J.P. Morniroli. *Diffraction électronique en faisceau convergent a grand angle : applications aux défauts cristallins*. Monographie de la société française de microscopie, (1998).
- [13] J.M. Cowley. *Diffraction physics*. New york : North Holland, (1975).
- [14] L. Reimer. *Transmission electron microscopy*. Springer-Verlag, (1989).
- [15] M. De Graef. *Introduction to conventional transmission electron microscopy*. Cambridge university press, (2003).
- [16] J. Beauvillain. *Contribution à l'étude des phénomènes de diffraction électronique : diagrammes de lignes - applications*. Thèse de l'université paul sabatier TOULOUSE, (1977).
- [17] C. Cohen-Tannoudji B. Diu et F. Laloë. *Mécanique quantique tome 1 et 2*. Hermann, (1977).
- [18] A. Messiah. *Mécanique quantique tome 1 et 2*. Dunod, (1964).
- [19] J.W Steeds. *Microscopia Elettronica in Trasmissione e Techniche di Analisi di Superfici nella Scienza di Materiali. B Microscopia Elettronica in Trasmissione*, B :256–257, (1986).
- [20] J.M.Zuo. *Ultramicroscopy*, 41 :211–223, (1992).
- [21] C.J. Rossouw et K. Venkatesan. *Journal of Electron Microscopy*, 50(5) :391–404, (2001).

- [22] S.Krämer J.Mayer C.Witt A.Weickenmeier M.Rühle. *Ultramicroscopy*, 81 :245–262, (2000).
- [23] A.Toda N.Ikarashi H.Ono. *Journal of crystal growth*, 210 :341–345, (2000).
- [24] S.M.Allen. *Phil.Mag.A*, 43(2) :325–335, (1981).
- [25] Electron diffraction software par J.P. Morniroli.
- [26] Java Electron Microscope Simulation de P. Stadelmann.
- [27] L.Sturkey. *Acta Cryst*, 10 :858–859, (1957).
- [28] L.Sturkey. *Proc. Phys. Soc. London*, 80 :321–354, (1962).
- [29] M. Tournarie. *Bull. Soc. Fr. Minéral. Cristallogr.*, 83 :179–186, (1960).
- [30] A. Howie et M.J. Whelan. *Proc. R. Soc. London. Ser. A*, 263 :217–237, (1961).
- [31] K. Kambe. *Z. Naturforsch. Teil A*, 22 :422–431, (1967).
- [32] J.M. Cowley et A.F. Moodie. *Acta Cryst*, 10 :609–619, (1957).
- [33] P.Goodman et A.F. Moodie. *Acta Cryst*, A30 :280–290, (1974).
- [34] D. Van Dyck. *J. Microsc*, 119 :141–152, (1980).
- [35] D.Gratias et R.Portier. *Acta Cryst*, A39 :576–584, (1983).
- [36] H.A. Bethe. *Ann. Phys. Leipzig*, 87 :55, (1928).
- [37] A.J.F. Metherell. *Diffraction of electrons by perfect crystals*. Commission of the European communities, Luxembourg, (1975).
- [38] C.G. Darwin. *Philos. Mag.*, 27 :315–675, (1914).
- [39] R.Portier D.Gratias. *Une description unifiée de la théorie dynamique de la diffraction élastique aux petits angles des électrons*. Edition CNRS, (1983).
- [40] A. Howie. *Modern diffraction and imaging techniques in material science*. North-Holland, Amsterdam, (1970).
- [41] P.A.M. Dirac. *The principles of Quantum Mechanics*. Oxford science publications, (1967).
- [42] K. Fujiwara. *J. Phys. Soc. Japan*, 16 :2226, (1961).
- [43] J. Spence et M.J. Whelan. *Acta Cryst*, A31 :S 242, (1975).
- [44] B. Buxton. *Imaging processes and coherence in physics*. Springer, (1980).
- [45] D.M. Bird. *Journ. Elec. Micr. Techn.*, 13 :77–97, (1989).
- [46] D. Van Dyck. *J. Microscopy*, 119 :141–152, (1980).
- [47] C.J. Humphreys. *Rep. Prog. Phys*, 42 :1825, (1979).
- [48] W. Cochran et H.B. Dyer. *Acta Cryst*, 5 :634, (1952).
- [49] M. Tournarie. *C.R. Acad. Sci.*, 252 :2862–2864, (1961).
- [50] M. Tournarie. *J. Phys. Soc. Jpn.*, BII :98–100, (1962).
- [51] P.Hirsch A.Howie R.B.Nicholson D.W.Pashley et M.J.Whelan. *Electron microscopy of thin crystals*. Krieger Publishing Company, (1976).
- [52] P.A. Stadelmann. *EMS Guide*. (1993).
- [53] John C. H. Spence. *Experimental High-Resolution Electron Microscopy*. Clarendon Press. Oxford, (1981).
- [54] P.W.Hawkes et E.Kasper. *Principle of electron optics (vol.3) : wave optics*. Academic Press, (1994).
- [55] T. Epicier et J.Thibault. *Microscopie électronique à haute résolution. Ouvrage de l'école de St Pierre d'Oléron : Microscopie des Défauts Cristallins*. Société Française des Microscopies, (2001).

- [56] O.Saxton. *J.Microsc.Spectro.elec*, 5 :665, (1980).
- [57] M.Takeda et al. *J. Opt. Soc. Am.*, 72 :156, (1982).
- [58] M.J.Hýtch T.Plamann. *Ultramicroscopy*, 87 :199–212, (2001).
- [59] E.Snoeck B.Warot H. Arduin A.Rocher M.J.Casanove R.Kilaas M.J.Hýtch. *Thin Solid Films*, 319 :157–162, (1998).
- [60] F.Hüe C.L.Johnson S.Lartigue-Korinek G.Wang P.R.Buseck et M.J.Hýtch. *Journal of Electron Microscopy*, 54-3 :181–190, (2005).
- [61] B. Warot. *Elaboration et croissance de bicouches Co/NiO epitaxiées sur MgO(001), MgO(110) et MgO(111). Influence de l'orientation du substrat sur la microstructure : relation structure-magnétique.* thèse de l'université Paul Sabatier, (2001).
- [62] D.Gabor. *Nature*, 161 :777, (1948).
- [63] R.E.Dunin-Borkowski T.Kasama A.Weï S.L.Tripp M.J.Hýtch E.Snoeck R.J.Harrison et A.Putnis. *Microscopy research and technique*, 64 :390–402, (2004).
- [64] E.Völkl L.F.Allard et D.C.Joy. *Introduction to Electron Holography*. Plenum Publishers, New York, (1999).
- [65] M.Gajdardziska-Josifovska M.R.McCartney W.J.de Ruijter D.J.Smith J.K. Weiss et J.M. Zuo. *Ultramicroscopy*, 50 :285–299, (1993).
- [66] J.K.Weiss W.J. de Ruijter M.Gajdardziska-Josifovska M.R.McCartney. *Ultramicroscopy*, 50 :301–311, (1993).
- [67] P.Kruse A.Rosenauer D.Gerthsen. *Ultramicroscopy*, 96 :11–16, (2003).
- [68] P.Formanek et M. Kittler. *Journal of Physics : condensed matter*, 16 :S193–S200, (2004).
- [69] A.Rosenauer D.Van Dyck M.Arzberger G.Abstreiter. *Ultramicroscopy*, 88 :51–61, (2001).
- [70] J.S.Barnard et D.Cherns. *Journal of Electron Microscopy*, 49(2) :281–291, (2000).
- [71] D.Cherns H.Mokhtari C.G.Jiao R.Averbeck H.Riechert. *Journal of crystal growth*, 230 :410–414, (2001).
- [72] W.Lü C.R.Li Z.Zhang. *Applied Physics Letters*, 86 :041902, (2005).
- [73] H.Lichte D.Geiger A.Harscher E.Heindl M.Lehmann D.Malamidis A.Orchowski W.D.Rau. *Ultramicroscopy*, 64 :67–77, (1996).
- [74] D.C. Ghiglia M.D.Pritt. *Two-Dimensional Phase Unwrapping*. Wiley-Interscience Publication, (1998).
- [75] Digital Micrograph software de chez GATAN.
- [76] A.C.Twitchett R.E Dunin-Borkowski R.J.Hallifax R.F.Broom P.A.Midgley. *Journal of microscopy*, 214 :287–296, (2004).
- [77] E.Snoeck R.E. Dunin-Borkowski F.Dumestre P.Renaud C.Amiens B.Chaudret P.Zurcher. *Appl. Phys. Lett*, 82-1 :88–90, (2003).
- [78] H.Lichte. *Ultramicroscopy*, 51 :15–20, (1993).
- [79] K.Scheerschmidt. *Journal of microscopy*, 190 :238–248, (1997).
- [80] R.F.Egerton. *Electron Energy-Loss Spectroscopy in the Electron Microscope*. Ed Plenum Press New York, (1996).
- [81] J.P. Morniroli R.Marceau et S. Ringer. *9ème colloque de la société française des microscopies : caen*, (2005).
- [82] IDL 6.0 de Research Systems Inc.
- [83] Photoshop 8.0 : Adobe.



- [84] Y.P.Lin D.M. Bird et R.Vincent. *Ultramicroscopy*, 27 :233–240, (1989).
- [85] D.Cherns C.Kiely et A.Preston. *Ultramicroscopy*, 24 :355, (1988).
- [86] I. Berbezier A. Ronda et A.Portavoce. *J of Phys. : Condens. Matter*, 14 :8283, 2002.
- [87] L.Clément R.Pantel L.F.Tz.Kwakman J.L. Rouvière. *Appl. Phys. Lett*, 85 :651–653, (2004).
- [88] D.Jacob A.Lefebvre. *Ultramicroscopy*, 96 :1–9, (2003).
- [89] C.T.Chou S.C.Anderson D.J.H. Cockayne A.Z.Sikorski M.R.Vaughan. *Ultramicroscopy*, 55 :334–347, (1994).
- [90] F.Houdellier C.Roucau L.Clément J.L.Rouvière M.J.Casanove. *Ultramicroscopy*, (2006).
- [91] A.Chuvelin et U.Kaiser. *Ultramicroscopy*, 104-1 :73–82, 2005.
- [92] B.F. Buxton. *Proc. R. Soc. London Ser. A*, 350 :335–361, (1976).
- [93] D.Cherns A.R. Preston. *J. Electron Microsc. Tech.*, 13 :111, (1989).
- [94] D.Cherns R.Touaitia A.R.Preston C.J.Roussouw D.C.Houghton. *Phil. Mag. A*, 64 :597–612, (1991).
- [95] C.J.Roussouw D.D.Perovic. *Ultramicroscopy*, 48 :49–61, (1993).
- [96] D.Manno S.Mongelli. *Microsc. Microanal. Microstruct.*, 6 :457–463, (1995).
- [97] X.F.Duan K.K.Fung. *Ultramicroscopy*, 36 :375–384, (1991).
- [98] X.F.Duan K.K.Fung Y.M.Chu S.Cheng G.L.Zhou. *Phil. Mag. Lett.*, 63-2 :79–85, (1991).
- [99] I. Berbezier B.Gallas A.Ronda J.Derrien. *Surface Science*, 412 :415–429, (1998).
- [100] D.Jacob Y.Androussi A.Lefebvre. *Ultramicroscopy*, 89 :299–293, (2001).
- [101] O.Thomas. *La courbure induite par un film mince supporté : mesure directe des contraintes*. Cours du GDR Relax d’Aussois, (2003).
- [102] A.Toda N.Ikarashi et H.Ono. *Journal of Electron Microscopy*, 203 :239–245, (2001).
- [103] M.Haider H.Rose S.Uhlemann E.Schwan B.Kabius K.Urban. *Ultramicroscopy*, 75 :53–60, (1998).
- [104] K.Urban B.Kabius M.Haider H.Rose. *Journal of Electron Microscopy*, 48-6 :821–826, (1999).
- [105] O.Scherzer. *J. Appl. Phys.*, 20 :20, (1949).
- [106] M.Lentzen B.Jahnen C.L.Jia A.Thust K.Tillmann K.Urban. *ultramicroscopy*, 92 :233–242, (2002).
- [107] A.Howie. *Philos.Mag.Lett*, 14 :223, (1966).
- [108] F.Fujimoto. *Phys. Stat. Sol.*, A45 :99, (1978).
- [109] M.Haider G.Braunshausen E.Schwan. *Optik*, 99-4 :167–179, (1995).
- [110] S.Uhlemann M.Haider. *Ultramicroscopy*, 72 :109–119, (1998).
- [111] L.Y.Chang A.I.Kirkland J.M.Titchmarsh. *Ultramicroscopy*, 106 :301–306, (2006).
- [112] M.J.Hýtch E.Snoeck R.Kilaas. *Ultramicroscopy*, 75 :53, (1998).
- [113] M.J.Hýtch F.Houdellier E.Snoeck. *Procc 16th international Congress of Microscopy Sapporro Japan*, (2006).
- [114] M.J.Hýtch F.Houdellier M.J.Casanove E.Snoeck. *Procc 16th international Congress of Microscopy Sapporro Japan*, (2006).
- [115] C.L.Jia M.Lentzen K.Urban. *Science*, 299 :870, (2002).
- [116] M.J.Casanove F.Houdellier M.J.Hýtch. *Procc 16th international Congress of Microscopy Sapporro Japan*, (2006).

- [117] W.J.Ruitjer J.K.Weiss. *ultramicroscopy*, 50 :269–283, (1993).
- [118] J.Li M/R.McCartney R.E.Dunin-Borkowski D.J.Smith. *Acta cryst*, A55 :652–658, (199).
- [119] M.R.McCartney F.A.Ponce J.Cai. *Appl. Phys. Lett.*, 76-21 :3055–3057, (2000).
- [120] D.Cherns J.Banard F.A.Ponce. *Appl. Phys. Lett.*, 76-21 :3055–3057, (2000).
- [121] J.F.Nye. *Physical properties of crystals*. Oxford Science publications, (1985).
- [122] M.Schowalter A.Rosenauer J.T.Titantah D.Lamoen P.Kruse D.Gerthsen. *Procc. DFTEM*, page 11, (2006).
- [123] Jean Zinn-Justin. *Intégrale de Chemin en mécanique quantique : introduction*. EDP Sciences CNRS edition, (2003).
- [124] A.Lannes J.Ph.Perez. *Optique de Fourier en microscopie électronique*. Masson, (1983).
- [125] P. Hawkes. *Handbook of charged particle optics*. CRC Press, (1997).
- [126] P.W.Hawkes et E.Kasper. *Principle of electron optics (vol.1) : basic geometrical optics*. Academic Press, (1994).
- [127] H.Rose. *Optik*, 85-1 :19–24, (1990).
- [128] F.Hosokawa T.Tomita M.Naruse T.Honda P.Hartel M.Haider. *Journal of Electron Microscopy*, 52-1 :3–10, (2003).
- [129] N.Tanaka J.Yamasaki K.Usuda N.Ikarashi. *Journal of Electron Microscopy*, 52-1 :69–73, (2003).
- [130] O.Scherzer. *Z.Physik*, 101 :593–603, (1936).
- [131] O.Scherzer. *Optik*, 2 :114–132, (1947).
- [132] V.R.Seeliger. *Optik*, 10 :29–41, (1953).
- [133] O.L.Krivanek N.Dellby A.R.Lupini. *ultramicroscopy*, 78 :1–11, (1999).
- [134] P.W.Hawkes. *Phil. Trans. Roy. Soc.*, A257 :479–552, (1965).
- [135] A.V.Crewe. *Optik*, 57 :313–327, (1980).
- [136] A.V.Crewe D.Kopf. *Optik*, 56 :391–399, (1980).
- [137] A.V.Crewe. *Optik*, 60 :271–281, (1982).
- [138] V.D.Beck. *Optik*, 53 :241–255, (1979).
- [139] F.Zemlin K.Weiss P.Schiske W.Kunath K.H.Herrmann. *ultramicroscopy*, 3 :49–60, (1978).
- [140] D. François A. Pineau et A. Zaoui. *Comportement mécanique des matériaux*. Hermes, (1991).
- [141] S.Christiansen M.Albrecht et HP.Strunk. *Appl. Phys. Lett*, 64 :3614, (1994).