

## Diffraction des rayons X

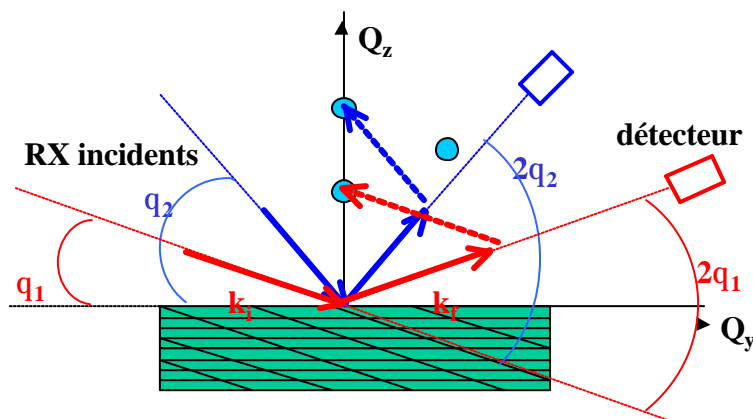
La diffraction des rayons X permet d'étudier **le réseau réciproque**. C'est une technique avec une sonde large et fixe. La taille typique d'un faisceau RX est de  $1 \text{ cm} \times 50 \text{ } \mu\text{m}$  avec une pénétration de quelques dizaines de microns.

C'est une méthode non destructive qui ne nécessite pas de préparation de l'échantillon.

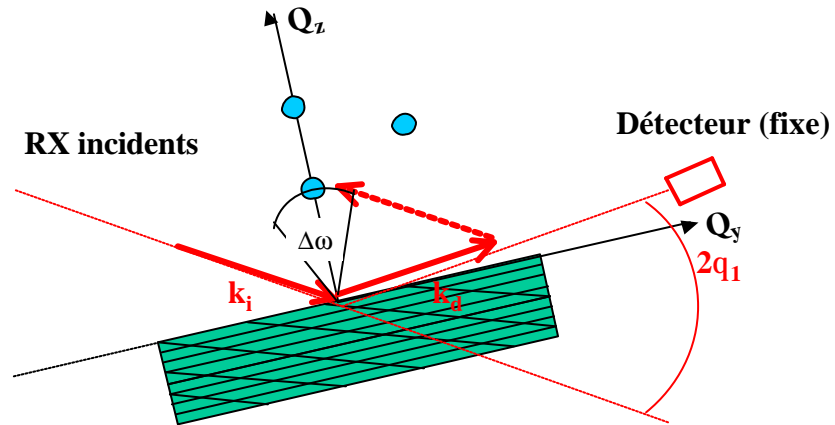
La condition de diffraction d'un plan d'un plan (hkil) est donnée par la loi de Bragg:

**$2d_{(hkil)} \sin \theta = n\lambda$**        $\lambda$  longueur d'onde,  $d_{(hkil)}$  distance interéticulaire des plans (hkil)

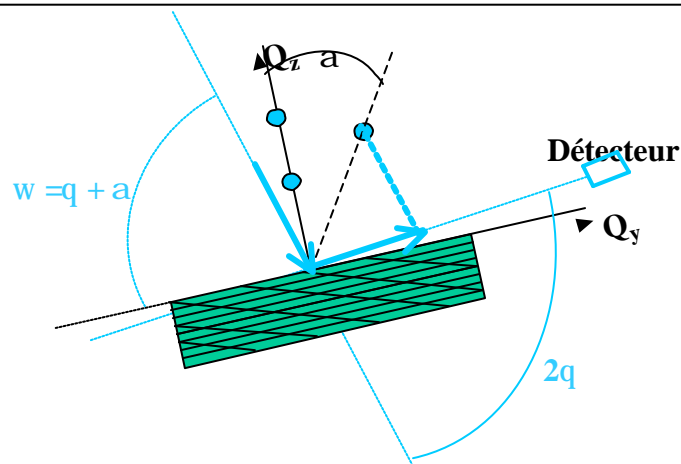
**$\mathbf{Q} = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i$**        $\mathbf{Q}$  vecteur du réseau réciproque,  $\mathbf{k}_i$  vecteur d'onde incident,  $\mathbf{k}_f$  vecteur d'onde final     $|\mathbf{Q}| = 1/d$ ,  $|\mathbf{k}| = 1/\lambda$



**Mode de balayage q/2q:** l'angle d'incidence et l'angle de sortie restent identiques: on parcourt la direction de l'espace réciproque normale à la surface de l'échantillon

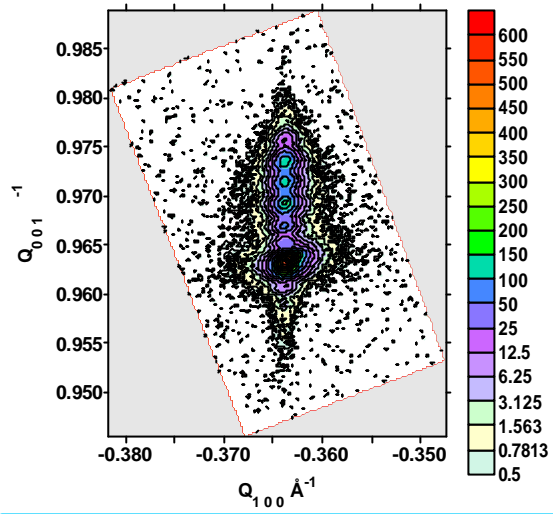


**Mode de balayage en w :** avec le détecteur fixe en position  $2\theta$ , on fait varier l'angle d'incidence de  $\pm \Delta\omega/2$  autour de  $\theta$  : on parcourt un arc centré sur la normale à l'échantillon.



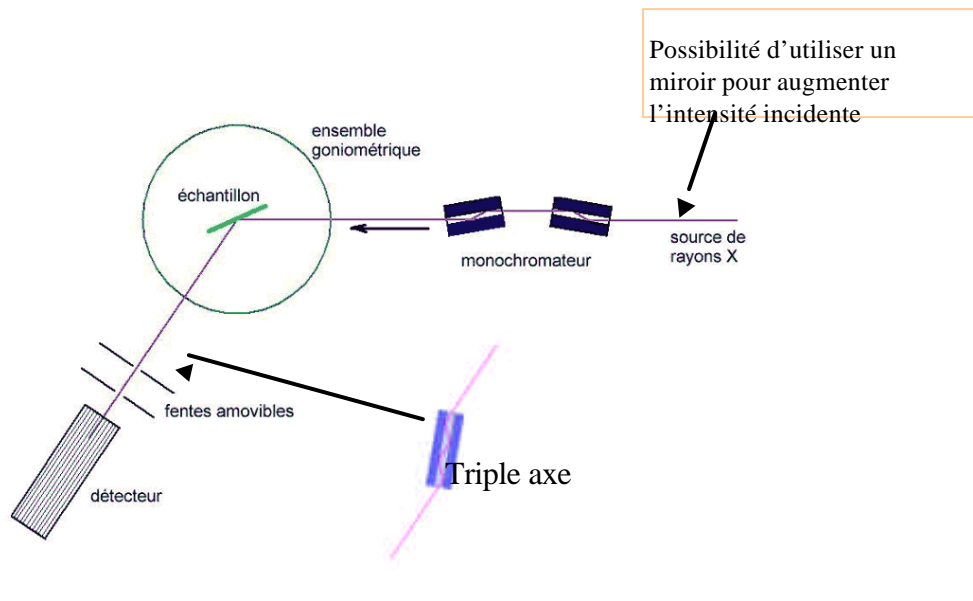
**Balayage en  $w/2q$  d'une réflexion asymétrique :** on décrit la droite qui joint l'origine du réseau réciproque et le nœud à étudier

On peut étudier une réflexion asymétrique en réalisant un balayage en  $\omega$  autour de la position  $\theta + \alpha$  avec un détecteur fixe en position  $2\theta$



Carte du réseau réciproque autour de (10-15): série de balayages  $\omega$  ou  $\omega/2\theta$

### Dispositif expérimental

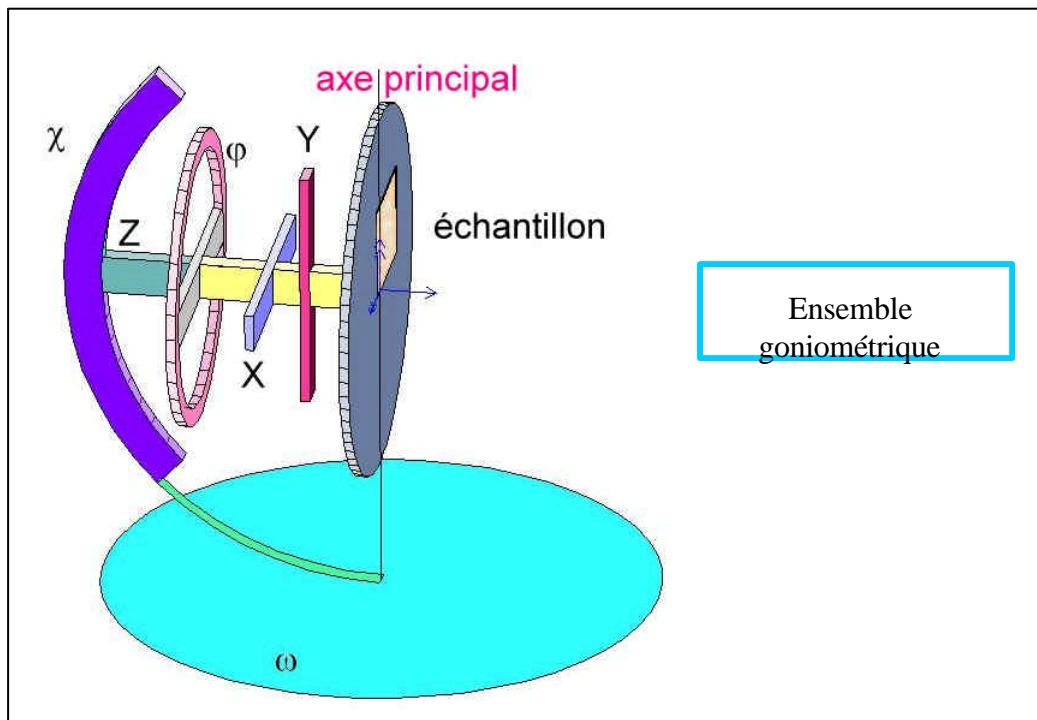


Source de RX: tube RX (Cu, Co ...), anode tournante, rayonnement synchrotron

Monochromateur: pour la diffraction haute résolution, on utilise un quadruple monochromateur ce qui conduit à une divergence de faisceau de 4 à 15''

Ensemble goniométrique qui permet d'orienter l'échantillon

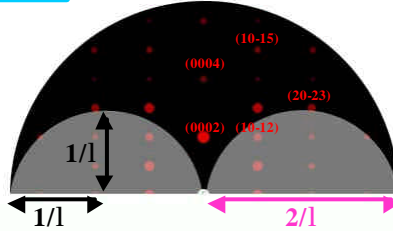
Possibilité d'utiliser un triple axe : résolution de détection = 5''



## Réseau réciproque accessible

$$n\lambda = 2d \sin \theta \Rightarrow 1/d \text{ max} = 2/\lambda$$

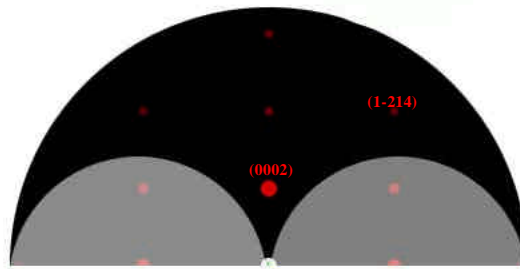
Échantillon épais :  
diffraction en réflexion



Angles limites pour des expériences en réflexion:  
incidence rasante, détection rasante : élimine 2 cercles centrés en  $\pm 1/\lambda$  et de rayon  $1/\lambda$

**Plan (1-210)**

$$\lambda = 0.154056 \text{ nm (Cu K}\alpha_1\text{)}$$



**Plan (10-10)**

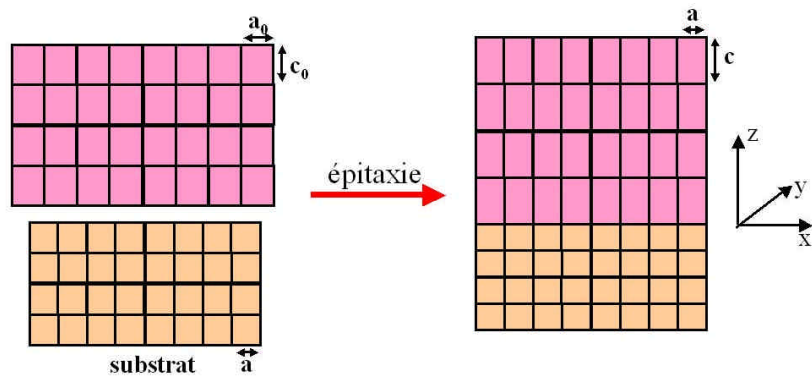
## Quelques applications courantes de la diffractions X aux couches minces de II-N

→ Mesure des paramètres cristallins, détermination des états de contrainte et des concentrations d' alliages

→ Détermination de la qualité des couches, étude de la mosaïcité

→ Détermination des épaisseurs de couches (super-réseaux, multi-puits)

## Détermination des déformations, des contraintes et des compositions pour les alliages



Épitaxie d'une couche mince sur un substrat: déformation biaxiale

Déformation d'un film mince dans le plan de croissance et perpendiculairement au plan de croissance:

$$\mathbf{e}_{xx} = \mathbf{e}_{yy} = \frac{a - a_0}{a_0} \quad \mathbf{e}_{zz} = \frac{c - c_0}{c_0}$$

Dans la cas d'un système hexagonal, la loi de Hooke qui relie contrainte et déformation s'écrit:

$$\begin{bmatrix} \mathbf{s}_{xx} \\ \mathbf{s}_{yy} \\ \mathbf{s}_{zz} \\ \mathbf{s}_{xy} \\ \mathbf{s}_{yz} \\ \mathbf{s}_{zx} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{66} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{e}_{xx} \\ \mathbf{e}_{yy} \\ \mathbf{e}_{zz} \\ \mathbf{e}_{xy} \\ \mathbf{e}_{yz} \\ \mathbf{e}_{zx} \end{bmatrix}$$

Pour une déformation biaxiale, la contrainte le long de l'axe z est nulle ( $\sigma_{zz} = 0$ ), on obtient donc:

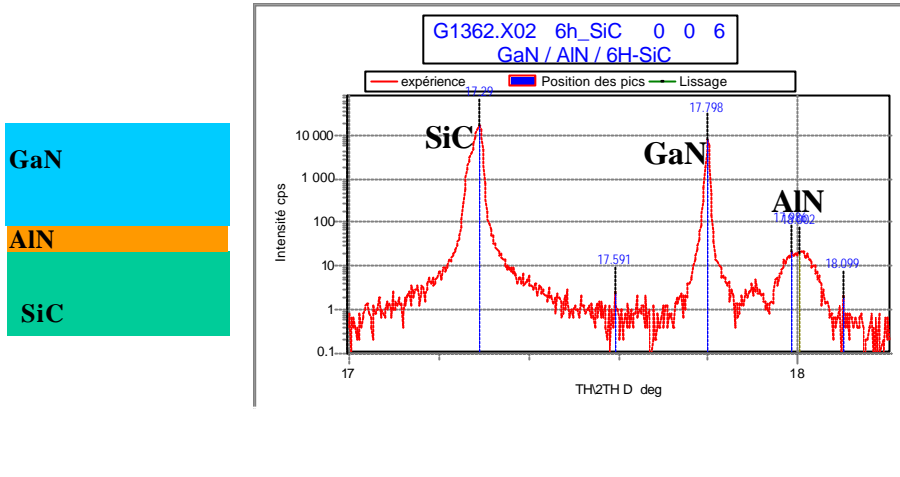
$$\frac{c - c_0}{c_0} = -2 \frac{C_{13}}{C_{33}} \frac{a - a_0}{a_0}$$

La contrainte dans le plan est:

$$\mathbf{s}_{xx} = \mathbf{s}_{yy} = (C_{11} + C_{12} - 2 \frac{C_{13}^2}{C_{33}}) \frac{(a - a_0)}{a_0}$$

Pour un matériau pur (AlN, GaN, InN), la mesure du paramètre  $c$  permet de déterminer la contrainte dans le plan.

La mesure du paramètre  $c$  est obtenue en déterminant  $d_{(0002)}$  (ou  $d_{0004}$  ...) par un balayage  $\theta/2\theta$ .



Pour un alliage, on peut en plus déterminer les concentrations, en appliquant la loi de Vegard. En prenant l'exemple de l'alliage  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ :

$$a_{0x} = xa_{\text{InN}} + (1-x)a_{\text{GaN}}$$

$$c_{0x} = xc_{\text{InN}} + (1-x)c_{\text{GaN}}$$

$$C_{13x} = xC_{13\text{InN}} + (1-x)C_{13\text{GaN}}$$

$$C_{33x} = xC_{33\text{InN}} + (1-x)C_{33\text{GaN}}$$

Avec  $a_{0x}$  et  $c_{0x}$  paramètres de maille de l'alliage non contraint, et  $a_x$  et  $c_x$  paramètres de maille de l'alliage épitaxié

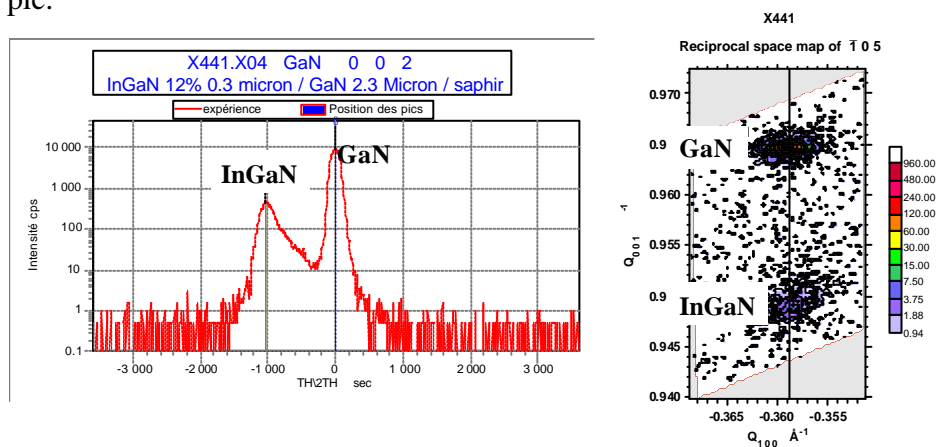
$$\frac{c_x - c_{0x}}{c_{0x}} = -2 \frac{C_{13} a_x - a_{0x}}{C_{33} a_{0x}}$$



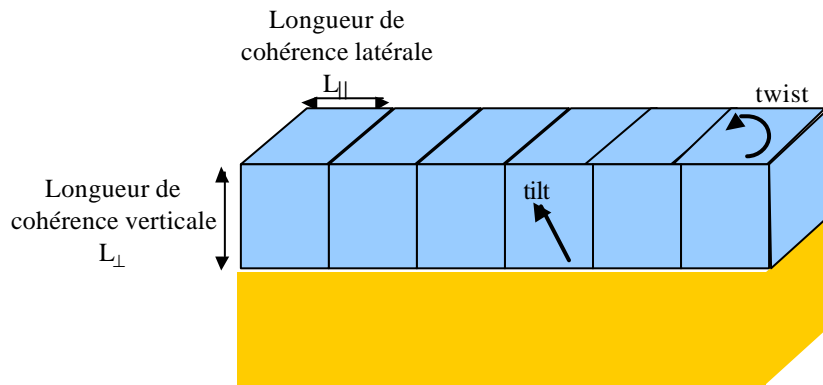
		$c_{11}$	$c_{12}$	$c_{13}$	$c_{33}$	$c_{44}$
AlN	Tsubouchi	345	125	120	395	118
	Mc Neil	411	149	99	389	125
	Deger	410	140	100	390	120
	Kim (theo.)	398	140	127	382	96
	Wright (theo.)	396	137	108	373	116
GaN	Polian	390	145	106	398	105
	Schwarz	377	160	114	209	81.4
	Deger	370	145	110	390	90
	Yamaguchi	365	135	114	381	109
	Kim (theo.)	396	144	100	392	91
InN	Kim (theo.)	271	124	94	200	46
	Wright (theo.)	233	115	92	224	48

Robert Langer Thèse de l'Université Joseph Fourier Grenoble I, 2000

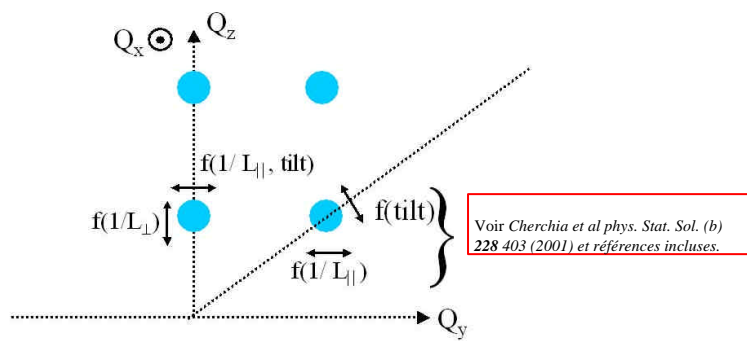
La détermination de la concentration de l'alliage nécessite la mesure de  $a_x$  et de  $c_x$ .  $c_x$  est obtenu à partir de  $d_{0002}$  par un balayage  $\theta/2\theta$  puis  $a_x$  à partir de la détermination de la position d'un pic asymétrique ( $d_{10-15}$  ou autre) par un balayage  $\omega/2\theta$ , un balayage  $\omega$  ou par une cartographie autour de ce pic.



## Étude de la mosaïcité des couches



Définition des paramètres décrivant la mosaïcité



Influence des paramètres caractéristiques de la mosaïcité sur les largeurs de pics dans le plan  $Q_y Q_z$ . La direction  $Q_x$  est perpendiculaire à ce plan.

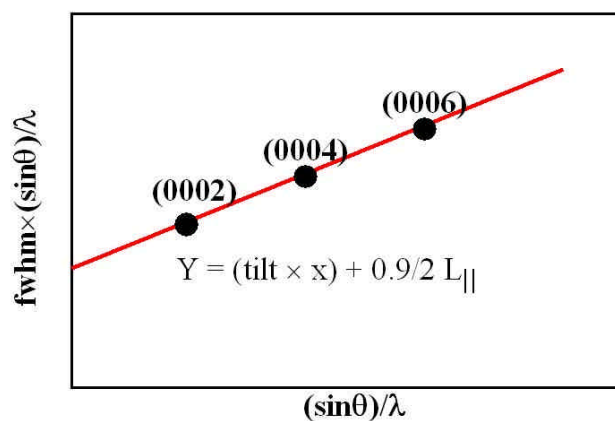
$$\Delta Q_z = f(1/L_{\perp})$$

$\Delta Q_y = f(1/L_{\parallel}, \text{tilt})$  sur les réflexions symétriques

$\Delta Q_x = f(1/L_{\parallel}, \text{twist})$  sur les réflexions asymétriques

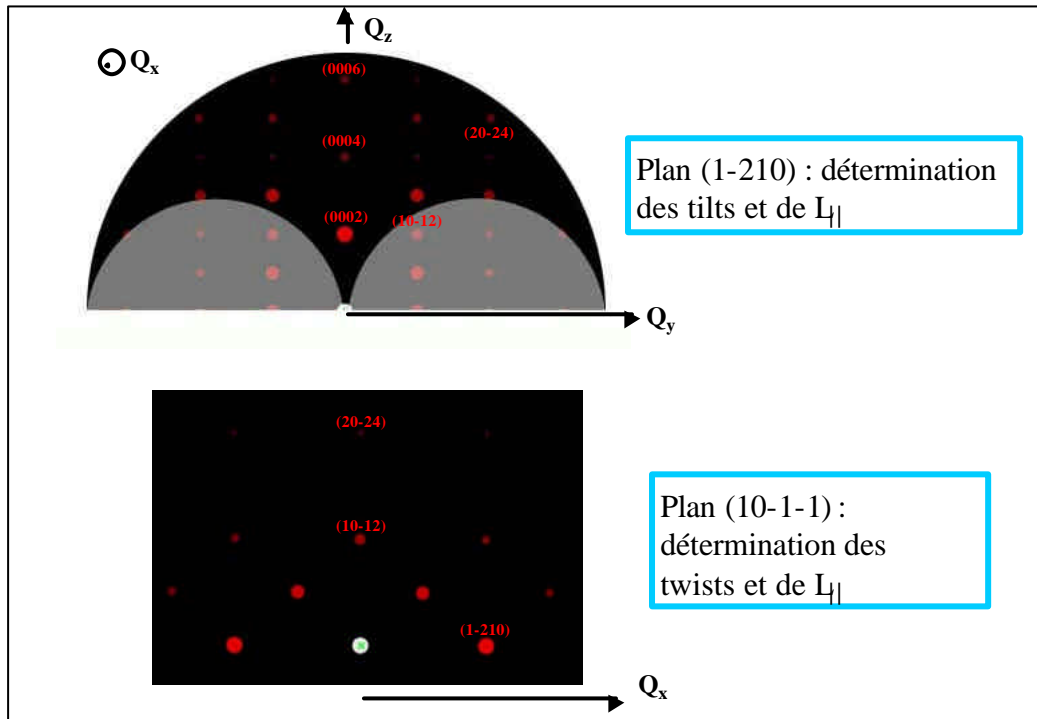
$L_{\perp}$  = épaisseur des couches d'après les résultats MET pour la majorité des couches de III-N.

La contribution du tilt (twist) à la largeur des pics symétriques (asymétriques) augmente avec  $Q_z$  alors que celle due à  $1/L_{\parallel}$  reste constante: on utilise un plot de Williamson-Hall pour déterminer ces 2 paramètres.



Plot de Williamson-Hall pour la détermination du tilt et de  $L_{\parallel}$  sur des raies symétriques.

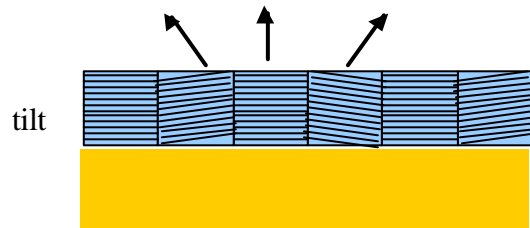
*T. Metzger, R. Höpler, E. Born, O. Ambacher, M. Stutzmann, R. Stömmel, M. Schuster, H. Göbel, S. Christiansen, M. Albrecht, H.P. Strunk, Phil. Mag. A 77, 1013 (1998) et références incluses.*



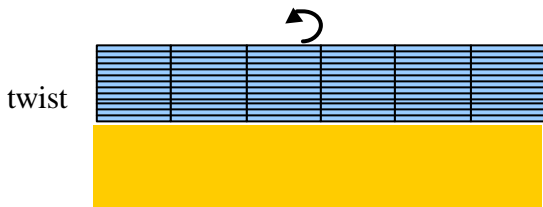
**Que représentent exactement les longueurs de cohérence?**

**Quel(s) critères pour déterminer la qualité d'une couche?**

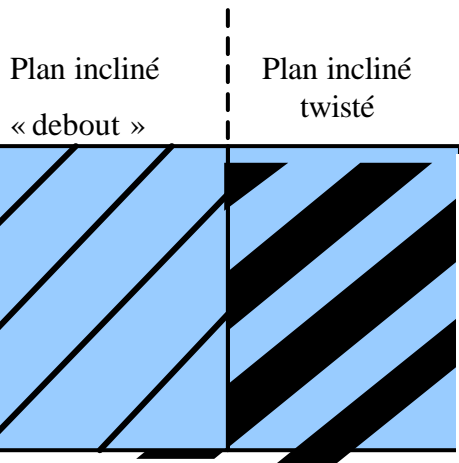
Influence des tilts et des twists sur la longueur de cohérence latérale des plans de croissance (0002)



Cas de domaines tiltés :  $L_{||}$  est équivalente à la taille latérale des domaines



Cas de domaines twistés:  $L_{||}$  est beaucoup plus grande que la taille latérale des domaines



Pour des réflexions asymétriques,  $L_{||}$  devient équivalente à la taille latérale des grains, même pour des domaines twistés

Pour des couches mosaïques avec des domaines « twistés », la largeur à mi-hauteur ( $f(1/L_{||}$ , tilt)) en  $Q_y$  ( $w$ ) n'est pas un critère de qualité de la couche. Il faut étudier conjointement la largeur à mi-hauteur d'une réflexion asymétrique.

	fwhm (0002) arcsec	fwhm (10-12) arcsec	Nature des dislocations	Densité de dislocations en $cm^{-2}$
A	296	413	a, c et a+c	$7 \cdot 10^8$
B	40	740	a	$2.5 \cdot 10^{10}$

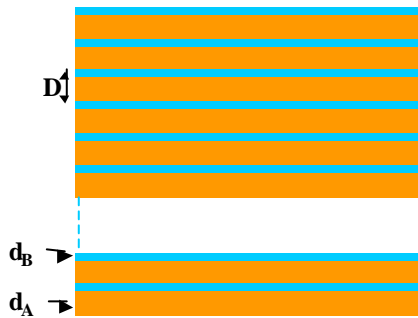
*B. Heying, X. H. Wu, S. Keller, Y. Li, D. Kapolnek, B.P. Keller, S.P. Den Baars, J.S. Speck, Appl. Phys. Lett. 68, 643 (1996).*

### Films EJM ZnO

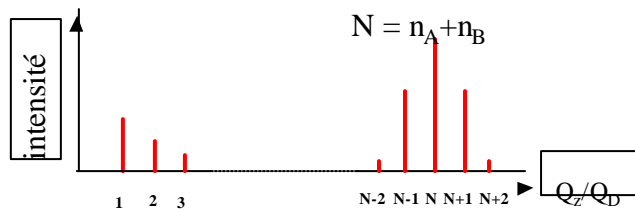
	fwhm en arcsec			twist	Taille des domaines	Densité de dislocation en $cm^{-2}$
	(0002)	(10-15)	(10-12)			
Z63 (croissance 2D)	30	120	2900	+/-0.4deg	25-75nm	$1-4 \cdot 10^{10}$
Z58 (croissance 3D)	250	230	500	+/-0.07deg	100-500nm	$3-5 \cdot 10^9$

*F. Vigué, P. Vennéguès, C. Deparis S. Vézian, M. Laügt and J.-P. Faurie, J. Appl. Phys. 90, 5115 (2001).*

## Détermination des épaisseurs de couches (super-réseaux, multi-puits)



Si on considère un super-réseau de période  $D$  formée de  $n_A$  plans de matériau A de distance inter-réticulaire  $d_A$  et de  $n_B$  plans de matériau B de distance inter-réticulaire  $d_B$ , on obtient schématiquement un spectre de diffraction en  $\theta/2\theta$  :

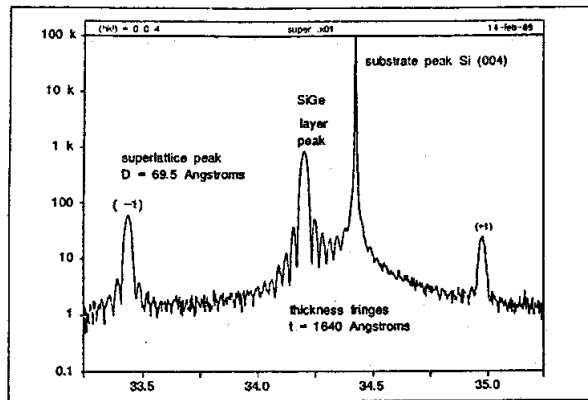


$$Q_D = 1/D$$

$$Q_m = 1/d_m \text{ avec } d_m = (n_A d_A + n_B d_B) / (n_A + n_B) = D / (n_A + n_B)$$

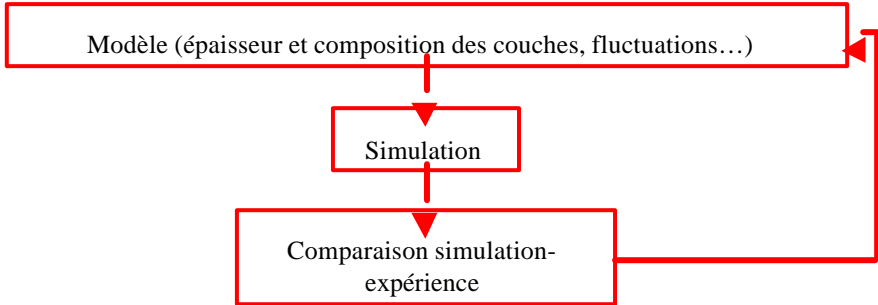
On peut donc directement obtenir la période  $D$  du super-réseau à partir de la différence entre les position des pics  $N$  (pic moyen) et  $N-1$  (satellite) ou à partir de la position du pic  $n=1$  (réflectométrie).

Si on connaît  $d_A$  et  $d_B$ , on peut remonter aux épaisseurs de chaque couche ( $n_A$  et  $n_B$ ). Si on connaît les épaisseurs, on peut remonter aux distances inter-réticulaires et en déduire les compositions des couches.



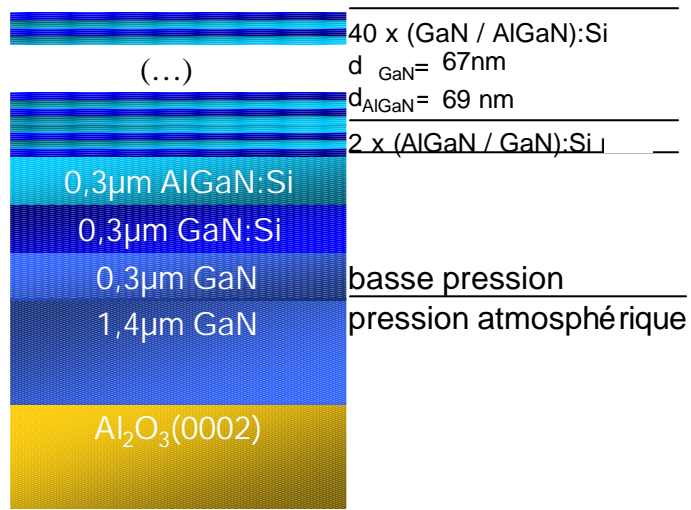
Super-réseau SiGe/Si: période 6.95 nm

Différents paramètres peuvent influencer sur les intensités, largeurs, formes .... des pics de diffraction : fluctuations d'épaisseur, couches interfaciales (diffusion), contraintes.... Pour pouvoir remonter à ces paramètres, on peut réaliser des simulations des spectres de diffraction en utilisant la théorie dynamique de la diffraction.

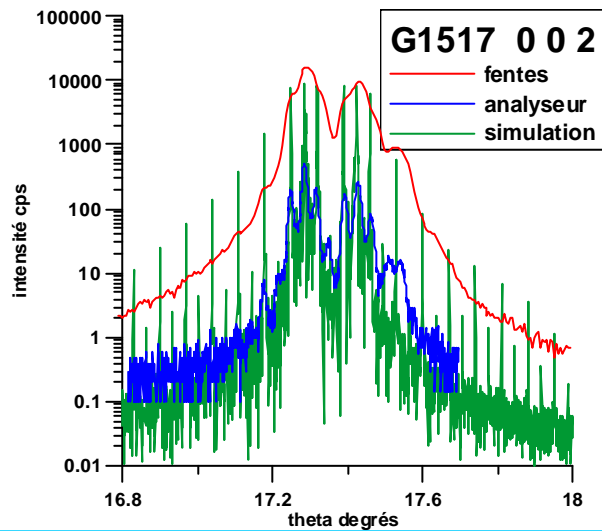


Existe-t-il un modèle unique qui permet de simuler un spectre expérimental?

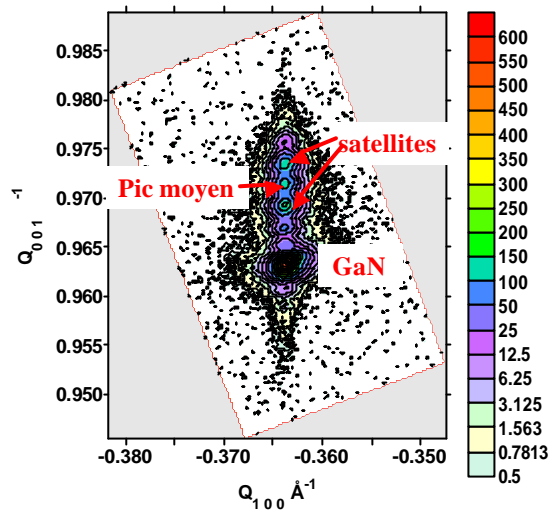




G1517 épaisseur totale de la couche = 8.012 µm



L'accord correct entre simulation et expérience permet de vérifier les paramètres de la croissance (épaisseurs et composition de l'AlGaN).



Carte du réseau réciproque autour de (10-15)