

AIX-MARSEILLE UNIVERSITÉ

ÉCOLE DOCTORALE PHYSIQUE-SCIENCES DE LA MATIÈRE
INSTITUT MATÉRIAUX MICROÉLECTRONIQUE NANOSCIENCES DE
PROVENCE

Mention : Matière condensée et Nanosciences

Modélisation de la croissance de boîtes quantiques sous contrainte élastique

Philippe GAILLARD

Composition du jury :

| | |
|-----------------|---------------------------|
| P. Müller | <i>Président du jury</i> |
| J. Collin | <i>Rapporteur</i> |
| O. Pierre-Louis | <i>Rapporteur</i> |
| I. Berbezier | <i>Examineur</i> |
| J. Brault | <i>Examineur</i> |
| T. Frisch | <i>Directeur de thèse</i> |
| J.-N. Aqua | <i>Directeur de thèse</i> |

Thèse soutenue le 14 février 2014 à Marseille

INLN - UMR 7335 - UNS
INSP - UMR 7588 - UPMC
IM2NP - UMR 7334 - AMU

Résumé

La formation et la morphologie des boîtes quantiques est un sujet d'un grand intérêt, ces structures ayant de nombreuses applications potentielles, en particulier en microélectronique et optoélectronique. Le contrôle de la taille, de la forme et de la distribution de ces boîtes est critique pour les applications envisagées. Cette thèse porte sur l'étude théorique et numérique de la croissance d'îlots par épitaxie par jet moléculaire. Pour cela nous avons utilisé deux modèles : une étude non-linéaire de l'instabilité de type Asaro-Tiller-Grinfeld, et des simulations Monte Carlo cinétiques. La première modélisation convient pour les systèmes à faibles désaccords de maille, et est plus spécifiquement appliquée au cas où le désaccord de maille est anisotrope. Expérimentalement, ceci est observé dans le cas du dépôt de GaN sur AlGaN. Le calcul de l'instabilité que nous avons effectué prend en compte les effets élastiques causés par le désaccord de maille, les effets de mouillage et les effets d'évaporation. Les résultats de la résolution numérique de l'instabilité nous permettent de constater une croissance plus rapide dans le cas anisotrope comparé au cas isotrope, ainsi que la croissance d'îlots fortement anisotropes.

Le deuxième modèle est basé sur des simulations Monte Carlo cinétiques, qui permettent de décrire la nucléation d'îlots 3D. Ces simulations sont utilisées pour les systèmes à fort désaccord de maille, comme Ge sur Si. Nos simulations prennent en compte la diffusion des adatoms, les effets élastiques, ici calculés à l'aide d'une fonction de Green discrétisée, et un terme simulant la présence de facettes (105). Les simulations aboutissent à la formation d'îlots pyramidaux, conformément aux expériences, dont le mûrissement d'Ostwald est interrompu. Les résultats obtenus ont été comparés au cas de la nucléation 2D, et on retrouve en particulier une densité d'îlots en loi de puissance par rapport au rapport D/F du coefficient de diffusion et du flux de déposition.

The growth and morphology of quantum dots is currently a popular subject as these structures have numerous potential uses, specifically in microelectronics and optoelectronics. Control of the size, shape and distribution of these dots is of critical importance for the uses that are being considered. This thesis presents a theoretical and numerical study of the growth of islands during molecular beam epitaxy. In order to study these dots, we used two models : a nonlinear study of an Asaro-Tiller-Grinfeld like instability, and kinetic Monte Carlo simulations. The first model is appropriate for low misfit systems, and is detailed in the case where misfit is anisotropic. Experimentally, this is the case when depositing GaN on AlGaN. In this case we took into account elastic effects, wetting effects and evaporation. Numerical calculations show faster growth, compared to the isotropic misfit case, and the growth of strongly anisotropic islands.

The second model is based on kinetic Monte Carlo simulations that can describe 3D island nucleation. We use these simulations to study systems with high misfits, specifically Ge on Si. Adatom diffusion on a surface is considered and takes into account elastic effects, through a Green function model, and surface energy anisotropy, that allows us to stabilize (105) facets. Simulation results show the growth of pyramid-shaped 3D islands, as observed in experiments, and their Ostwald ripening is interrupted. The results of these simulations are then compared to the case of 2D nucleation, and we find that several of the known 2D properties also apply to 3D islands. Specifically, island density depends on a power law of D/F , the diffusion coefficient divided by the deposition flux.

MOTS CLÉS: Hétéro-épitaxie, Nanostructures, Simulations Monte Carlo cinétiques, Instabilités, contraintes élastiques

Table des matières

| | |
|---|-----------|
| Table des matières | 5 |
| Remerciements | 9 |
| Introduction | 11 |
| 1 Fondements | 15 |
| 1.1 L'auto-organisation | 16 |
| 1.2 L'hétéro-épitaxie | 16 |
| 1.3 Maille cristalline | 18 |
| 1.3.1 Le désaccord de maille | 18 |
| 1.3.2 Les modes de croissance | 21 |
| 1.3.3 Facettes cristallines | 23 |
| 1.4 Instabilités et nucléations | 24 |
| 1.5 Nucléation d'îlots | 24 |
| 1.6 Mûrissement d'Ostwald | 25 |
| I Instabilités d'Asaro-Tiller-Grinfeld | 29 |
| 2 Instabilité linéaire ATG | 31 |
| 2.1 Champ élastique | 32 |
| 2.2 Potentiel chimique | 37 |
| 2.3 Dynamique de croissance | 38 |
| 2.4 Ajout des effets de mouillage | 41 |
| 3 Instabilité de Grinfeld non-linéaire | 43 |
| 3.1 Analyse faiblement non-linéaire | 45 |
| 3.1.1 Dynamique de croissance | 47 |
| 3.2 Résolution numérique | 48 |
| 3.3 Résultats | 49 |

| | | |
|------------|--|------------|
| 4 | Instabilité de Grinfeld anisotrope | 53 |
| 4.1 | Modélisation élastique linéaire | 55 |
| 4.2 | Énergie élastique non linéaire anisotrope | 59 |
| 4.3 | Modèle de transport de la matière | 60 |
| 4.4 | Dynamique linéaire | 62 |
| 5 | Dynamique du mûrissement dans le cas d'un film élastique sous contrainte anisotrope | 67 |
| 5.1 | Morphologie d'un film sous contrainte anisotrope | 68 |
| 5.2 | Effets de l'anisotropie de désaccord de maille sans évaporation | 68 |
| 5.3 | Effets de l'évaporation | 71 |
| 5.4 | Lien avec l'expérience | 74 |
| 5.5 | Perspectives et ajouts possibles dans le modèle | 76 |
| II | Simulations Monte Carlo cinétiques | 77 |
| 6 | Simulations Monte Carlo : le modèle | 79 |
| 6.1 | Contexte expérimental | 80 |
| 6.2 | Bases des simulations Monte-Carlo cinétiques | 81 |
| 6.3 | Le modèle employé | 84 |
| 6.3.1 | Calcul de l'élasticité | 84 |
| 6.3.2 | Prise en compte de l'anisotropie cristalline | 87 |
| 7 | Simulations Monte Carlo : résultats | 93 |
| 7.1 | Morphologie des îlots | 94 |
| 7.2 | Effets de la température et du flux de déposition | 98 |
| 7.3 | Distribution de taille des îlots | 103 |
| III | Conclusion et annexes | 107 |
| | Conclusion | 109 |
| A | Rappels d'élasticité | 111 |
| B | Les équations d'évolution de la surface | 115 |
| C | Nucléation 2D | 121 |
| D | Calcul non linéaire de l'instabilité de Grinfeld | 125 |
| D.1 | Calcul dans le cas du désaccord de maille isotrope | 125 |
| D.2 | Calcul dans le cas du désaccord de maille anisotrope | 128 |
| E | Ajout de l'anisotropie d'énergie de surface | 131 |

| | | |
|-----------|--|------------|
| F | Introduction à la croissance des alliages | 133 |
| F.1 | Calcul linéaire dans le cas d'un alliage | 134 |
| F.1.1 | Déplacement élastique | 134 |
| F.1.2 | Détermination des équations de morphologie et de concentration | 137 |
| F.1.3 | Simulations numériques linéaires | 139 |
| F.2 | Calcul non-linéaire d'un alliage | 141 |
| | Glossaire | 143 |
| | Bibliographie | 145 |
| IV | Article Monte Carlo Cinétique | 153 |

Remerciements

Je tiens d'abord à remercier mes directeurs de thèse Thomas Frisch et Jean-Noël Aqua pour m'avoir proposé cette thèse et pour leur direction de ces travaux. Les enseignements qu'ils ont apportés, par exemple sur les méthodes de simulation ou la rédaction de la thèse ont été très précieux. Ils se sont montrés disponibles et pédagogues pendant mes trois années de thèse, malgré les moments d'éloignement géographique. Je remercie également les autres membres de mon jury P. Müller, I. Berbezier, J. Brault et en particulier les rapporteurs J. Collin et O. Pierre-Louis qui ont relu et apporté des commentaires constructifs à ce manuscrit. Je souhaite également remercier toutes les personnes qui sont venues à la soutenance de thèse.

Je tiens à mentionner les laboratoires qui m'ont accueilli et leur personnel, notamment administratif, spécifiquement l'IM2NP de Marseille pendant ma première année de thèse et l'INLN à Sophia-Antipolis pendant les deux suivantes. Mon séjour dans les deux laboratoires s'est effectué dans de très bonnes conditions dans deux laboratoires assez différents par leurs taille et leurs thématiques. Je remercie aussi l'INSP (Paris, site de Jussieu) qui m'a accueilli pendant quelques semaines pour travailler avec mon co-directeur de thèse J.-N. Aqua.

D'autre part je n'oublie pas mes collègues doctorants, stagiaires et chercheurs avec lesquels j'ai travaillé, soit directement en collaborant avec eux, soit en partageant un bureau ou un laboratoire. Je pense en particulier au groupe théorie et modélisation de l'IM2NP et aux doctorants de l'INLN, dont X. Xu, mon "co-doctorant", L. Raymond et A. Verga de l'IM2NP et M. Marconi, M. Turconi, M. T. Roubah, F. Gustave, B. Garbin, F. Hebert de l'INLN. J'ai trouvé leur compagnie très agréable, et l'ambiance très bonne.

Enfin je tiens à remercier ma famille, en particulier mes parents, pour leur soutien tout au long de cette thèse.

Introduction

Le but de cette thèse est l'étude de la croissance par hétéroépitaxie, et plus spécifiquement l'effet des contraintes élastiques sur la morphologie des nano-structures. Celles-ci se forment spontanément durant le dépôt de matière suivant les processus de l'auto-organisation. L'étude des nanostructures, telles que les boîtes quantiques, a été permise par la découverte de techniques expérimentales d'observation des objets dont les dimensions sont réduites à quelques nanomètres. La plupart des nanostructures sont produites à l'aide de techniques de croissance avancées, comme par exemple l'épitaxie par jet moléculaire.

L'épitaxie par jet moléculaire dans les semi-conducteurs nécessite un appareillage fonctionnant dans l'ultra-vide qui permet de réaliser la croissance dans des conditions quasi-idéales. Ces technologies de croissances sont très délicates à mettre en oeuvre et nécessitent un environnement spécifique (salle blanche) afin de limiter au possible l'adsorption d'impuretés sur les surfaces cristallines.

L'observation expérimentale de ces surfaces cristallines a été rendue possible notamment par l'invention des techniques de microscopie électronique par effet tunnel en 1981 [1][2] (pour lesquelles Rohrer et Binnig ont reçu le prix Nobel de physique en 1986) et du microscope à force atomique en 1985 [3] qui permettent d'obtenir des résolutions allant jusqu'à la taille d'un atome. Les techniques de LEEM (Low Energy Electron Microscopy) permettent de visualiser avec précision la fascinante dynamique des marches sur les surfaces cristallines à température ambiante.

A l'heure actuelle, la dynamique de la croissance dans le cas de l'homo-épitaxie est relativement bien comprise et il existe de nombreux ouvrages [4, 5, 6, 7, 8] qui démontrent une panoplie riche de phénomènes à la confluence de la physique des solides et des surfaces (comme l'effet Schwoebel), de la physique statistique (fluctuations des marches) et de la physique non-linéaire (instabilité). Par exemple, la problématique de la mise en paquets des marches et des instabilités de méandres par électromigration ou lors de la croissance par homo-épitaxie fait appel à des notions de croissance cristalline et de physique hors-équilibre qui permettent de décrire l'évolution spatio-temporelle des marches ainsi que l'évolution morphologique des surfaces. Dans le cas de la croissance par hétéro-épitaxie, où on fait croître un film d'un matériau A sur un substrat composé d'un matériau B, on peut observer une multitude de phénomènes complexes qui sont loin d'être tous compris, et dont une partie est l'objet de cette thèse. Par exemple, il existe une instabilité générique lors de la croissance d'un matériau avec une maille atomique voisine de celle de son

substrat. Cette instabilité, nommée instabilité d'Asaro-Tiller-Grinfeld (ATG) est induite par le désaccord de maille et donne lieu à la formation d'îlots qui permettent de relaxer la contrainte élastique.

Lorsque le désaccord de maille n'est pas trop grand, il existe un domaine de paramètres (température, composition) pour lequel les interfaces sont dites cohérentes et les dislocations entre les matériaux sont quasi-absentes. Dans ces conditions, il est alors possible d'avoir de nombreux îlots de tailles plus ou moins contrôlées qui recouvrent les surfaces avec une densité assez élevée (10^{10} cm^{-2}). Ces îlots, qui sont dénommés boîtes quantiques auto-organisées peuvent avoir un grand intérêt en microélectronique et en optoélectronique.

Les boîtes quantiques peuvent permettre de produire par exemple des diodes laser [9] ou des transistors [10], voire des transistors à un électron [11, 12]. Une des difficultés principales lors de la croissance des boîtes quantiques est leur grande variabilité de taille et de composition. Cette grande variabilité peut avoir plusieurs causes : les fluctuations intrinsèques à température finie, les effets du mûrissement et d'aléa de la nucléation sur les sites de germination. La variabilité de taille nuit au rendement des lasers et autres dispositifs et son contrôle est un enjeu physique et technologique important. Cette variabilité peut être relativement bien contrôlée aujourd'hui et même réduite en faisant la croissance sur des surfaces nano-patternées mais ces techniques nécessitent un prégravage de la surface très laborieux [13, 14].

L'objectif de cette thèse est de donner des outils théoriques pour la modélisation de la croissance par hétéro-épitaxie et ce, dans deux cas bien précis. Dans le premier cas, nous nous intéressons à la croissance de AlGaIn/GaN. Ces matériaux ont la propriété d'être des semi-conducteurs à gap direct appartenant au groupe III-V et ils peuvent donc émettre de la lumière avec une signature spectrale particulière. On rappelle que les semi-conducteurs III-V sont fréquemment utilisés dans l'industrie pour les diodes lasers (Led rouge, bleu, etc..) et les applications dans le cas du GaN sont très nombreuses (Lecteur de dvd, diode rouge, éclairage blanc, blue-ray). Dans le cas des nitrures tel que AlGaIn/GaN, on vise aujourd'hui la diode ultra-violette qui pourrait avoir de nombreuses applications (purification de l'eau, remplacement des lampes de mercure, etc..). Dans le cadre de l'hétéro-épitaxie des III-V, des expériences en laboratoires ont été réalisées au CRHEA sur des substrats spécifiques afin de pouvoir moduler le spectre d'émission de la lumière. Le cas qui nous a intéressé est la croissance des boîtes quantiques de AlGaIn/GaN sur des substrats semi-polaires, c'est à dire des substrats dont l'orientation cristalline induit un désaccord de maille anisotrope. Dans les expériences menées au CRHEA, la formation d'une transition 2D-3D a été observée lors de la croissance sur des substrats polaires et semi-polaires et la formation des boîtes quantiques a été analysée.

Motivés par ces expériences nous avons montré qu'il existe théoriquement une instabilité de Grinfeld anisotrope et que cette instabilité donne lieu à la formation de structures allongées qui sont plus ou moins filiformes. Nous avons donc pour cela développé une méthode spécifique pour calculer l'évolution spatio-temporelle de la surface au-delà du régime linéaire. Cette méthode fait appel à des techniques de

développement non-linéaires en utilisant l'existence d'un petit paramètre, qui est ici la faible pente. Notre modélisation de la croissance de films de GaN sur AlGaN, et en particulier du désaccord de maille anisotrope, nous a permis de constater la présence d'une direction privilégiée pour la croissance des ondulations. Ceci a pour conséquence de former des structures allongées dans une direction. Nous avons ensuite caractérisé numériquement la dynamique de la croissance et du mûrissement de ces films. En particulier nous avons pu observer une augmentation de la rugosité de la surface avec l'augmentation de l'anisotropie de désaccord de maille, due à un taux de croissance de l'instabilité qui croît avec l'anisotropie de désaccord de maille. De plus nous avons montré que la formation de structures unidimensionnelles a tendance à augmenter la rugosité de la surface. D'autres effets sont également discutés, en particulier celui de l'évaporation. Ces résultats sont actuellement en cours de comparaison avec les expériences de laboratoire et la prise en compte de l'évaporation semblerait être une voie prometteuse dans la modélisation.

Dans le second cas, nous nous sommes intéressés à la croissance des îlots pyramidaux de silicium-germanium (SiGe) sur silicium (Si). Les semi-conducteurs SiGe ont un gap indirect et ils sont couramment utilisés dans la micro-électronique pour la fabrication des transistors. Le système Silicium Germanium est paradigmatique de la croissance des boîtes quantiques par hétéroépitaxie de semi-conducteurs. Bien que relativement plus simple d'un point de vue compositionnel que les alliages III-V, les boîtes quantiques SiGe présentent une panoplie de phénomènes très riches tels que la transition 2D-3D (d'un film plan vers la formation d'îlots), l'apparition de structures pré-pyramidales et pyramidales, ou la formation de dômes et de super-dômes. De plus ces systèmes montrent l'apparition de nombreux effets d'alliages qui donnent lieu à des variations spatiales de la composition.

Les applications potentielles des boîtes quantiques SiGe, hormis l'aspect fondamental que nous venons d'évoquer, sont principalement dans le domaine de la microélectronique, de la thermo-électricité et du photovoltaïque, et ces boîtes pourraient être compatibles avec les technologies Si et germanium (Ge) utilisées et bien maîtrisées en micro-électronique. Dans ce travail, nous avons développé une méthode de type Monte-Carlo cinétique qui permet de prendre en compte des effets des fluctuations sur la croissance des îlots et aussi de prendre en compte la présence de surfaces (105). En particulier, nous avons étudié l'évolution de la dynamique de croissance des îlots de SiGe et la distribution de taille de ces boîtes. Nous avons montré que la distribution des tailles suit une loi auto-similaire qui rend compte des expériences.

Le premier chapitre de cette thèse est dédié aux fondements de l'hétéroépitaxie. Nous discutons de la structure des surfaces, des différents modes de croissance, des effets élastiques, des mécanismes de diffusion de surface et de la nucléation bidimensionnelle. Le second chapitre est consacré à l'instabilité d'Asaro-Tiller-Grinfeld. Nous exposons les bases de la théorie des films sous contrainte élastique dans le cadre de l'élasticité linéaire, via la notion de potentiel chimique élastique et nous décrivons la dynamique de l'instabilité ATG. Dans le troisième chapitre, nous exposons

la méthode non-linéaire pour le calcul de l'instabilité en insistant sur la méthode de développement aux faibles pentes et nous présentons la méthode numérique spectrale permettant de faire une résolution numérique de ces équations. Les quatrième et cinquième chapitres constituent le coeur des résultats originaux de la première partie de cette thèse. Nous avons généralisé la méthode non-linéaire dans le cas d'une anisotropie de désaccord de maille. Nous mettons en évidence la présence de nouveaux termes issus de l'anisotropie dans les termes linéaires et non-linéaires. Ces termes donnent lieu à un effet d'amplification de la rugosité. Nous discutons aussi des effets d'évaporation. La deuxième partie de cette thèse est consacrée à la croissance des îlots Si-Ge. Dans le chapitre 6, nous développons une méthode numérique KMC pour la croissance des îlots SiGe avec des facettes (105). Dans le chapitre 7, nous exposons les résultats obtenus grâce à ces simulations, en particulier la distribution de taille des îlots. Nous clôturons cette thèse par quelques perspectives sur la croissance et nous présentons dans les appendices les détails des techniques utilisées sur l'élasticité, la nucléation et l'évolution des surfaces dans le cadre général des alliages.

Chapitre 1

Fondements

Sommaire

| | | |
|------------|------------------------------------|-----------|
| 1.1 | L'auto-organisation | 16 |
| 1.2 | L'hétéro-épitaxie | 16 |
| 1.3 | Maille cristalline | 18 |
| 1.3.1 | Le désaccord de maille | 18 |
| 1.3.2 | Les modes de croissance | 21 |
| 1.3.3 | Facettes cristallines | 23 |
| 1.4 | Instabilités et nucléations | 24 |
| 1.5 | Nucléation d'îlots | 24 |
| 1.6 | Mûrissement d'Ostwald | 25 |

La croissance cristalline met en jeu en grand nombre de mécanismes de base que nous allons brièvement présenter dans ce chapitre. En particulier, nous introduirons quelques notions d’auto-organisation, de surfaces cristallines, la définition du désaccord de maille, les modes de croissance, les facettes cristallines et le mûrissement. Bien que tous ces mécanismes de base soient assez bien compris individuellement, le résultat de la combinaison de ces mécanismes n’est pas évident, et va nous intéresser par la suite.

1.1 L’auto-organisation

L’auto-organisation est un phénomène général qui intervient dans de nombreux systèmes physiques, chimiques, biologiques, sociologiques et économiques. Une des caractéristiques générales de l’auto-organisation est l’émergence spontanée de structures spatiales ou temporelles qui sont le résultat d’une brisure de symétrie par le biais d’instabilités [15]. L’un des exemples classiques d’auto-organisation est bien sûr la formation de cellules convectives en rouleau dans les nuages tels que l’on peut en observer vu d’avion. À bien plus petite échelle, des phénomènes d’auto-organisation peuvent être observés lors de la croissance par hétéro-épitaxie dans les semi-conducteurs. En particulier, cette organisation pourrait permettre de créer des réseaux de boîtes quantiques semi-conductrices ayant des applications dans les domaines du photovoltaïque, de la thermo-électricité, des transistors à un électron et des capteurs infra rouges [16, 17, 13, 14].

La compréhension de la physique de l’auto-organisation est importante pour la fabrication et le contrôle de ces réseaux de boîtes quantiques. Par exemple on peut voir en figure 1.1 un exemple de l’organisation que peuvent prendre des îlots de SiGe sur un substrat de Si et sur la figure 1.2 la croissance d’îlots de Ge sur Si. Ces boîtes quantiques ont la particularité d’être dans des conditions d’épitaxie avec le substrat cristallin. Dans le paragraphe suivant, nous allons donc décrire les bases de l’hétéro-épitaxie afin de pouvoir décrire les différents mécanismes de croissance.

1.2 L’hétéro-épitaxie

L’épitaxie est une technique de croissance cristalline qui a connu un grand développement avec la mise au point de techniques de croissance sous vide. Le lecteur pourra trouver une présentation pédagogique de la croissance cristalline dans le chapitre 4 du livre *Crystal growth for beginners* de I. V. Markov [7]. Le terme hétéro-épitaxie provient des mots grecs pour ordre (“ $\tau\alpha\xi\iota\sigma$ ”) et au dessus (“ $\epsilon\pi\iota$ ”). Il a été introduit par Royer à la fin des années 1920.

Dans le cas de l’hétéro-épitaxie, le matériau déposé (adsorbat) est de nature différente de celle du substrat. De nombreux systèmes peuvent être produits par hétéroépitaxie, par exemple les alliages semi-conducteurs silicium et germanium, qui

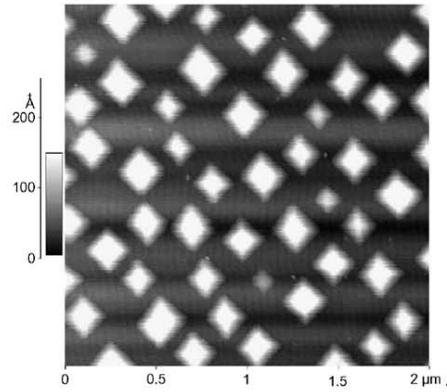


FIGURE 1.1 – Images AFM de la morphologie d’une couche de $\text{Si}_{0.75}\text{Ge}_{0.25}$. Source : [18].

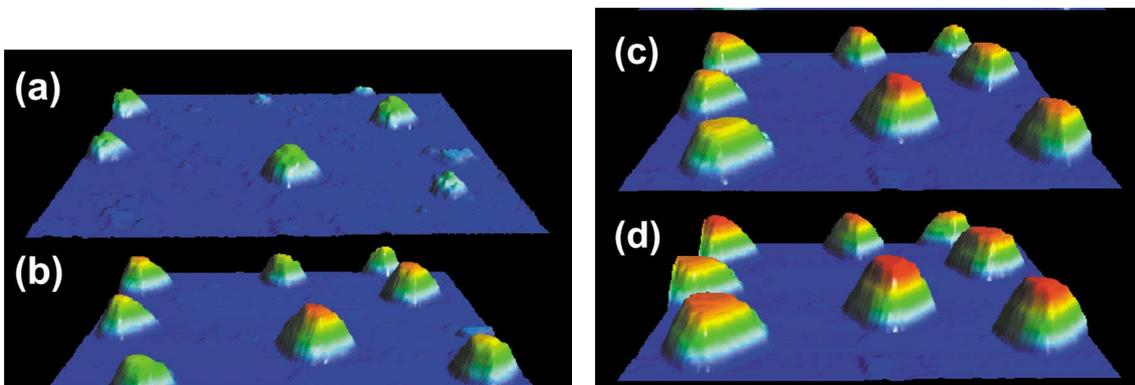


FIGURE 1.2 – Images successives de la croissance d’îlots de Ge sur Si (111), surface de taille $330 \times 330 \text{ nm}^2$. Source : [19].

font partie de la famille des “IV-IV”, et des alliages InGaAs et AlGaN qui font partie de la famille des semi-conducteurs “III-V”. Ces derniers sont les matériaux de base des diodes électroluminescentes. Dans les cas que nous considérons, l’interface entre adsorbat et substrat est cohérente : il n’y a pas de dislocations et le champ des déformations est continu sur l’interface. Pour assurer cette dernière condition, la vitesse de croissance doit être suffisamment faible, mais doit permettre une certaine évolution morphologique, le désaccord de maille que nous définirons plus bas doit l’être également et l’épaisseur de film déposée ne doit pas être trop grande. Il existe des méthodes expérimentales permettant de réunir ces conditions, comme par exemple l’épitaxie par jet moléculaire (EJM), pour laquelle les vitesses de croissance peuvent être faibles et contrôlées. L’EJM est une technique souvent employée pour former des puits et boîtes quantiques, mais d’autres techniques de croissance existent comme la déposition en vapeur chimique (Chemical Vapor Deposition), l’épitaxie en phase liquide (LPE), la déposition métal-organique en vapeur chimique (MOCVD), etc...

Cette thèse porte sur l'étude de l'épitaxie par jet moléculaire qui est, en première approximation, un dépôt d'une phase vapeur de très faible densité sur un substrat solide cristallin. Elle est effectuée sous un vide poussé (environ 10^{-8} Pa) et le jet moléculaire est assuré par une source de matière qui s'évapore. Dans le cas des alliages plusieurs sources sont utilisées dans la même chambre.

Cette technique permet de déposer les atomes à un rythme lent de quelques monocouches par seconde au maximum, soit une vitesse de l'ordre du μm par heure. Par exemple dans le cas des couches de nitrure de gallium (GaN) de Kahouli *et al* [20], que nous discuterons dans le chapitre 4, la vitesse de croissance est de $0.3\mu\text{m}/\text{h}$ (une dizaine de monocouches par minute). De même dans le cas des alliages silicium germanium la vitesse de croissance est de l'ordre de la monocouche par minute (voir chapitre 7).

Nous allons maintenant donner au lecteur quelques rappels de base, et la définition du désaccord de maille.

1.3 Maille cristalline

La maille cristalline est un arrangement d'atomes qui se répète périodiquement dans un solide. Plusieurs types de mailles existent, en particulier les mailles cubiques simples, cubiques centrées, cubiques faces centrées...

Le réseau de Bravais est un réseau périodique permettant de décrire un solide cristallin. Il représente l'ensemble des points $\vec{R} = n_1\vec{a}_1 + n_2\vec{a}_2 + n_3\vec{a}_3$ où les n_i sont des entiers et les \vec{a}_i des vecteurs non coplanaires (voir par exemple [21]). Chaque point du réseau de Bravais peut être un atome, un groupe d'atomes, un ion... L'alliage SiGe possède une structure similaire à celle du diamant : maille cubique à faces centrées à laquelle on ajoute des atomes sur la moitié des sites tétraédriques (Fig. 1.3). Le côté du cube dans un cristal de Si fait $0,543$ nm, alors que dans le cas du Ge cette longueur est de $0,566$ nm [21].

Le GaN a une maille hexagonale nommée wurtzite (voir la figure 1.4¹) qui correspond à deux mailles hexagonales compactes entremêlées. Dans le cas qui nous intéresse, on va plutôt utiliser les paramètres de maille dans les directions $[1-100]$ ($2,76$ Å pour GaN et $2,69$ Å pour AlN) et $[-1-123]$ ($6,08$ Å pour GaN et $5,87$ Å pour AlN).

1.3.1 Le désaccord de maille

Dans le cadre de l'hétéroépitaxie, le substrat est différent de l'adsorbat et on observe souvent une différence entre les tailles des mailles cristallines que l'on appelle le désaccord de maille. On exprime le désaccord de maille η de la manière suivante :

$$\eta = \frac{a_f - a_s}{a_s}, \quad (1.1)$$

1. Source : [22]

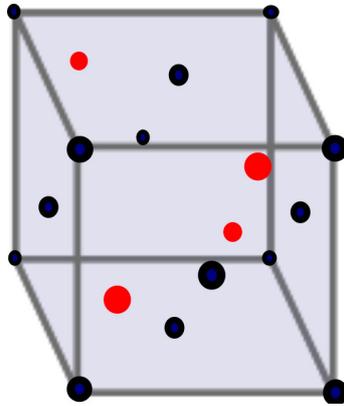


FIGURE 1.3 – Maille cristalline d'un alliage ordonné SiGe, les points rouges représentent les atomes situés sur les lacunes tétraédriques, et les points noirs, les atomes sur la maille cubique face centrée.

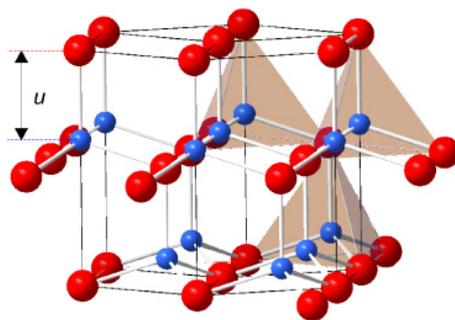


FIGURE 1.4 – Maille cristalline du nitrure de Gallium. Les atomes d'une espèce sont en rouge et ceux de l'autre espèce en bleu.

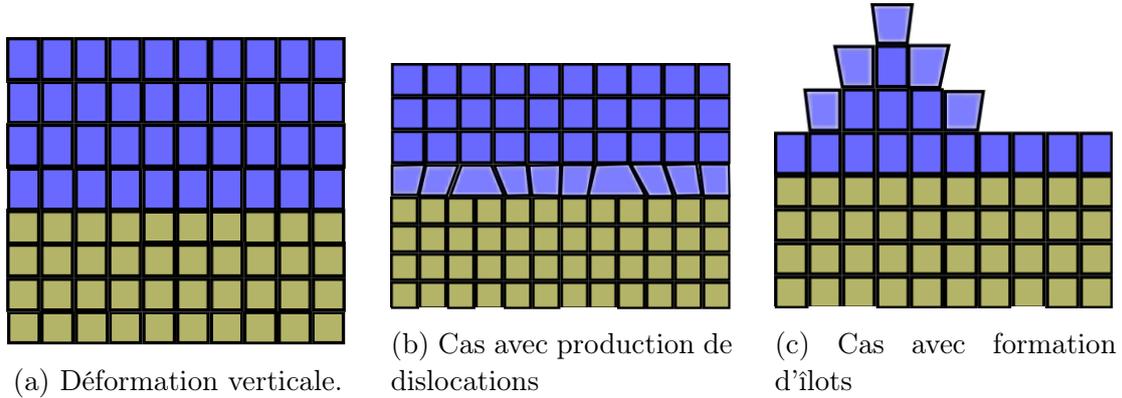


FIGURE 1.5 – Les relaxations élastiques possibles dans le cas d'un adsorbant de maille atomique plus grande que le substrat (ex. Ge sur Si).

où a_f est la maille du film et a_s est la maille du substrat.

Dans le cas du germanium et des alliages de silicium-germanium sur substrat de silicium un désaccord de maille est observé et peut être approximé par la relation linéaire suivante, dite loi de Végard :

$$a_f = a_{Si}c_{Si} + a_{Ge}c_{Ge}, \quad (1.2)$$

où $c_{Ge} = x = 1 - c_{Si}$ sont les concentrations respectives de silicium et germanium. La relation est approximative et il faudrait également décrire les variations de concentration dans le film qui seront discutées plus en détail dans l'annexe F.

Le désaccord de maille entre adsorbant et substrat cause une contrainte élastique qui peut être relaxée de trois manières :

- une simple relaxation verticale du film (Fig. 1.5a),
- la formation de défauts (Fig. 1.5b),
- la formation d'îlots (Fig. 1.5c).

Quand le paramètre de maille n'est pas trop important, et la diffusion de surface est activée, on obtient expérimentalement le passage continu entre la première étape (relaxation verticale, dite de Poisson) et la formation d'îlots cohérents.

C'est la formation d'îlots cohérents qui va nous intéresser plus spécifiquement. Celle-ci augmente la surface du film et donc en général l'énergie de surface mais permet de réduire l'énergie élastique. La présence de dislocations permet de relaxer les contraintes élastiques mais ajoute une énergie d'interface (voir par exemple le chapitre 3-3 de [23]).

Dans le cas du dépôt de Ge sur Si, le désaccord de maille maximum est d'environ 4%, et il a été montré [24] que les îlots formés n'ont pas de dislocations dans la plupart des cas. Dans le cas du GaN sur AlGaIn, qui sera discuté au chapitre 4, le désaccord de maille n'est plus isotrope. Le désaccord selon une direction est alors différent de celui observé selon une autre direction.

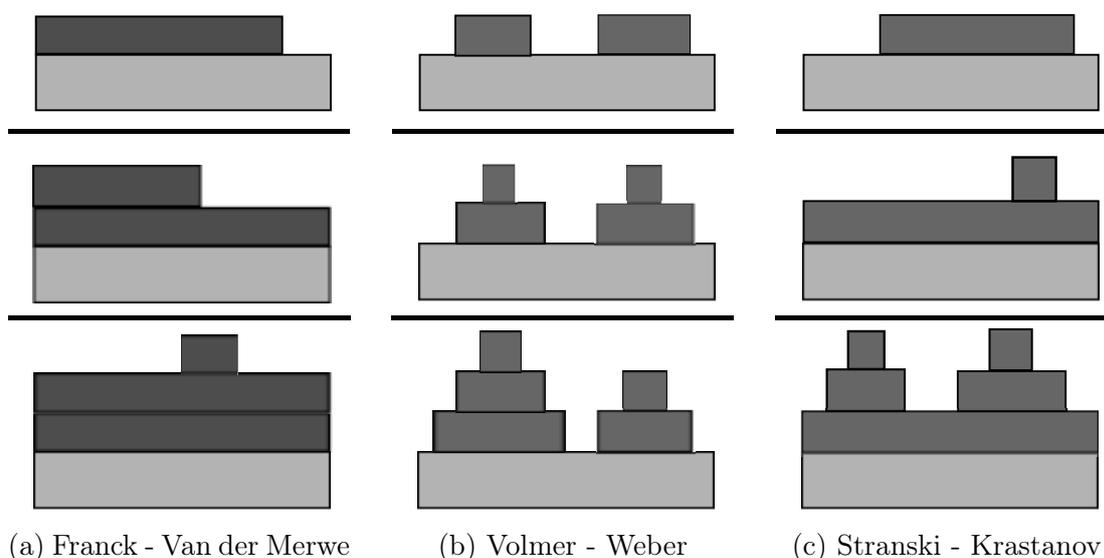


FIGURE 1.6 – Les modes de croissance à des taux de couverture croissants.

1.3.2 Les modes de croissance

Il existe plusieurs modes de croissance possibles en hétéroépitaxie, en fonction des énergies de mouillage. Si on considère les énergies de surface de l'adsorbat et du substrat γ_a et γ_s , ainsi que celle du contact adsorbat-substrat γ_{as} , la valeur de γ_{as} peut être calculée par la relation de Dupré :

$$\gamma_{as} = \gamma_a + \gamma_s - \beta_{as} , \quad (1.3)$$

où β_{as} est le travail requis pour séparer l'adsorbat et le substrat.

On pourra observer plusieurs modes de croissance selon la valeur de γ_{as} :

- La croissance de type Frank-van der Merwe (Fig. 1.6a). Dans ce mode de croissance, seules des couches 2D sont observées.
- La croissance de type Volmer-Weber (Fig. 1.6b). Dans ce mode, des îlots 3D se forment directement sur le substrat. Un exemple de ce type de croissance est montré figure 1.7 (image STM).
- La croissance de type Stranski-Krastanov (Fig. 1.6c) pour laquelle $\gamma_s > \gamma_a + \gamma_{as}$. Dans ce dernier mode on commence par observer une couche de mouillage de faible épaisseur (quelques monocouches) avant d'obtenir des îlots 3D. La figure 1.8 présente un exemple expérimental. C'est ce mode de croissance qui sera étudié dans le reste de ce document.

Les deux premiers modes sont similaires à ceux observés lors du dépôt d'une goutte liquide sur un substrat. On peut considérer que dans le cas Stranski-Krastanov, les premières couches d'adsorbat mouillent complètement le substrat, mais qu'après ce dépôt on peut considérer que ces couches sont un nouveau "substrat".

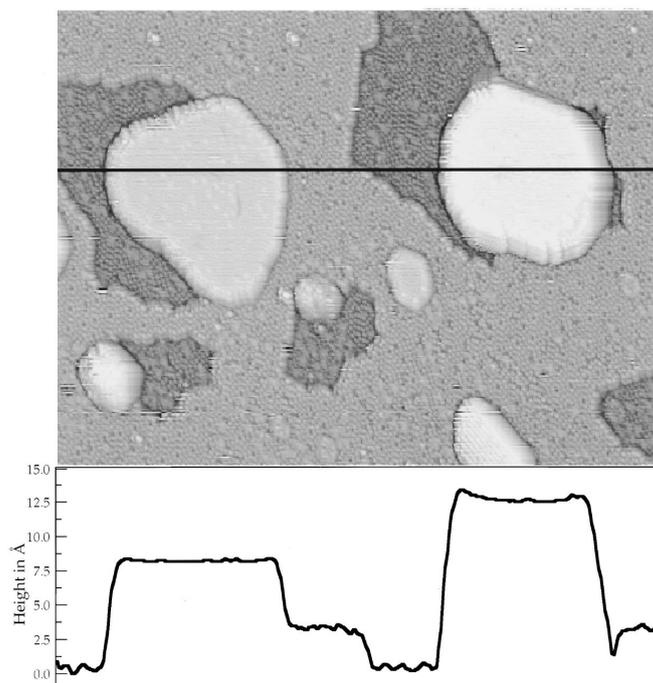


FIGURE 1.7 – Image STM de manganèse sur silicium (111) : croissance de type Volmer-Webber. D’après [25].

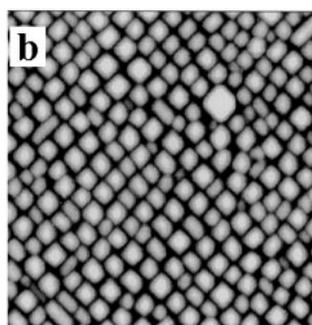
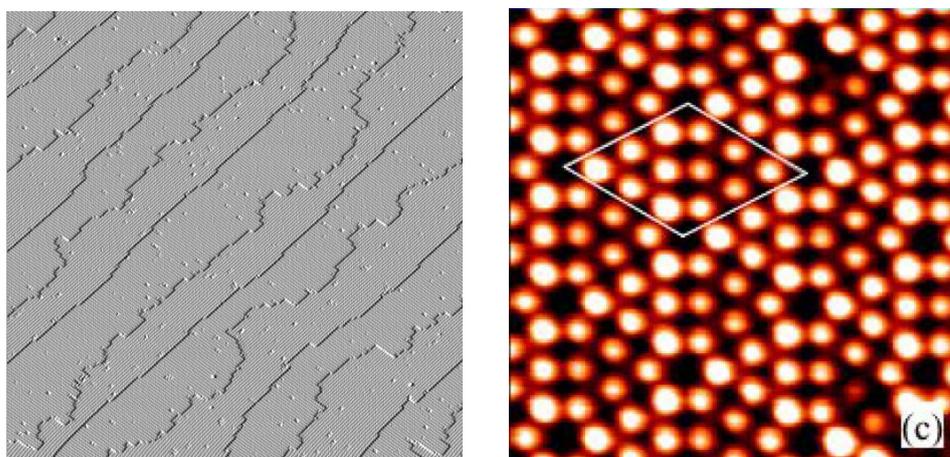


FIGURE 1.8 – Image AFM de la surface d’une couche de $\text{Si}_{0,25}\text{Ge}_{0,75}$ sur substrat de silicium. L’image représente une surface carrée de $0,8\ \mu\text{m}$ de côté après dépôt de 20 monocouches. Source : [16].



(a) Surface Si (100).

(b) Surface de Si (111).

FIGURE 1.9 – Images par STM de surfaces de Si (100) et (111). Sources respectives : http://mrgcvd.engr.wisc.edu/lagallygroup/archive/images/bs0_5f.gif, [26].

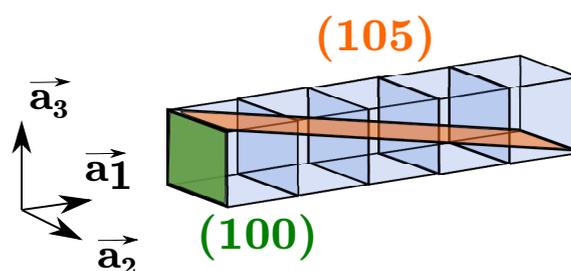


FIGURE 1.10 – Les facettes (100) et (105) d'une maille cubique simple.

1.3.3 Facettes cristallines

Une facette est définie par des indices cristallographiques, par exemple les indices (n_1, n_2, n_3) . Prenons, par exemple, le cas d'un réseau cubique simple dont la base est formée par les vecteurs \vec{a}_i . Une facette (100) va correspondre à un plan horizontal et est représentée sur la figure 1.10. Une facette (105) est également représentée sur cette figure 1.10.

Dans le cas de la croissance sur silicium, il existe différents substrats de croissance, comme la surface Si (100) (figure 1.9a) ou la surface Si (111) (figure 1.9b).

Pour le cas du GaN et des structures de type wurtzite, en général les coordonnées de facettes et de directions sont données avec quatre paramètres (a, b, c, d) , les trois premières coordonnées correspondent à la base hexagonale et la quatrième à la direction verticale dans la figure précédente.

La croissance cristalline peut être orientée dans plusieurs directions : le cristal sera alors orienté selon une direction particulière par rapport au substrat [27]. Par exemple une croissance selon le plan (0001) va se faire de la base hexagonale en bas

de la figure 1.4 vers la base hexagonale située en haut de la figure, verticalement. Au contraire une croissance selon le plan (11-22) va se faire dans une direction inclinée (croissance semi-polaire).

1.4 Instabilités et nucléations

Dans le cas de la croissance Stranski-Krastanov, il existe deux chemins assez différents pour la croissance des îlots. Dans les cas où le désaccord de maille est faible la surface subit une instabilité qui a tendance à créer des ondulations à grande échelle. Le seuil de cette instabilité, dite instabilité d'Asaro-Tiller-Grinfeld, est contrôlé par la contrainte élastique et les effets de surface et de mouillage. Au contraire si on se place dans un cas où le désaccord de maille est élevé, la croissance sera dominée par la nucléation d'îlots. Dans le cas des îlots de $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ sur Si (001), les cas où la proportion x de Ge est inférieure à environ 50% correspondent à l'instabilité alors que les cas avec $x > 0.5$ sont dans le cadre de la nucléation [14]. On peut voir une image expérimentale du cas de la nucléation figure 1.8 et du cas de l'instabilité figure 2.1.

1.5 Nucléation d'îlots

Dans le cas où le désaccord de maille est important on observe la nucléation d'îlots, plutôt que d'observer l'instabilité ATG. Du point de vue de la modélisation, il est nécessaire de prendre en compte les phénomènes stochastiques inhérents à la nucléation, ce qui est naturellement présent dans une méthode de simulation Monte-Carlo cinétique (KMC) (voir chapitre 6). D'autres modélisations ont déjà été réalisées, par exemple en champ moyen [28].

La nucléation d'îlots est causée par la relaxation élastique, et dans le cas Stranski-Krastanov, commence après le dépôt de quelques monocouches de mouillage. Ceci est en général appelé transition 2D-3D, et se produit avec environ 3 mono-couches (MCs) de Ge sur Si [14, 24]. La nucléation d'îlots 3D est précédée par celle d'îlots 2D dans les systèmes où le taux de couverture (le nombre de MC déposées) est inférieur à 1. Cette nucléation a été étudiée dans le cas de films contraints en particulier à l'aide de simulations Monte Carlo cinétiques [29, 30]. Ces simulations ont effectivement montré que l'élasticité se traduit par la répulsion des atomes en bords inférieurs de marche.

Le processus de nucléation en croissance cristalline est similaire à celui de la nucléation lors d'un changement de phase en thermodynamique : des petits agrégats d'atomes ou de molécules de la nouvelle phase se forment dans la phase sursaturée. La formation d'agrégats nécessite le franchissement d'une barrière d'énergie, ce qui est rendu possible par des fluctuations locales de densité. Les îlots sont formés de manière stochastique et leur position est aléatoire, mais on peut déterminer des

propriétés moyennes comme la densité ou le volume moyen. Un exemple expérimental de nucléation d'îlots est présenté dans la figure 1.11.

Dans la suite de cette section on considère un modèle simple où les adatoms diffusent avec un coefficient de diffusion D sur un substrat jusqu'à ce qu'ils atteignent un autre atome et qu'ils s'y attachent sans pouvoir plus bouger. On peut alors montrer que dans certains modèles avec une taille critique, c'est à dire une taille au delà de laquelle un îlot ne peut se dissoudre, la densité totale d'îlots N suit une loi d'échelle :

$$N \sim \left(\frac{D}{F} \right)^\alpha, \quad (1.4)$$

où l'exposant α est fonction de la température et de la taille critique des îlots.

Si on considère la nucléation lors de la croissance d'une fraction de monocouche, et où la seule échelle caractéristique est la taille moyenne des îlots $\langle s \rangle$, on trouve que la distribution de taille d'îlots suit une loi d'échelle de la forme :

$$N_s = \frac{\Theta}{\langle s \rangle^2} f \left(\frac{s}{\langle s \rangle} \right), \quad (1.5)$$

où N_s est la densité d'îlots comportant s atomes, Θ le taux de couverture ($\Theta = Ft$ dans le cas d'un dépôt d'une seule espèce) et f est une fonction d'échelle dépendant du rapport D/F entre le coefficient de diffusion D et le flux F (voir partie 3-2 de [14]). Ces deux relations sont démontrées dans l'annexe C. La figure 1.12 montre le résultat de simulations Monte Carlo cinétiques qui suivent effectivement cette loi d'échelle. Des calculs utilisant des méthodes de champ moyen ont été appliqués au cas des îlots 3D [28] et a permis d'obtenir des densités d'îlots en fonction du temps, de la température et du flux de dépôt, les valeurs obtenues sont comparables aux résultats expérimentaux en utilisant des paramètres appropriés. Les résultats obtenus à l'aide de ce modèle ne dépendent pas beaucoup de la taille critique des îlots qui est choisie. Considérer ou non la couche de mouillage comme inerte ne change pas la dynamique générale, sauf pour le volume des îlots.

Un article de revue récent recouvre le sujet de la nucléation et aborde également quelques sujets non traités dans cette thèse (par exemple la nucléation de la 2e couche d'un îlot ou la forme d'îlots sur une surface (111)) [32].

1.6 Mûrissement d'Ostwald

Le mûrissement d'Ostwald est un processus décrit par Ostwald en 1896. Il s'applique de manière générale dans de nombreux domaines de la physique et de la physico-chimie (métallurgie, croissance cristalline, etc...). D'une manière générale c'est un processus qui régit la dissolution d'un ensemble de cristaux de tailles différentes.

Le mûrissement d'Ostwald décrit la disparition des petits cristaux au profit des plus gros [33] (voir Fig. 1.13). Ce processus est observé dans de nombreux systèmes,

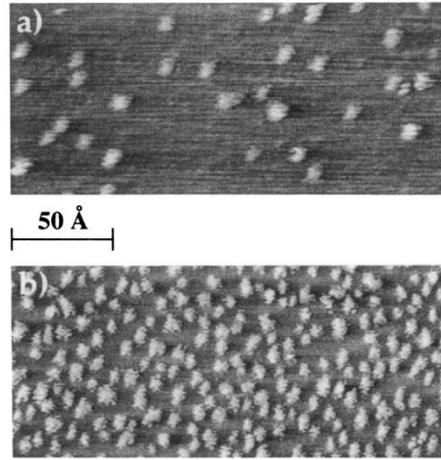


FIGURE 1.11 – Image STM de 7% et 12% d’une monocouche d’argent déposée sur un substrat de platine à 50 K. Images tirés de l’article de H. Brune *et al* [31].

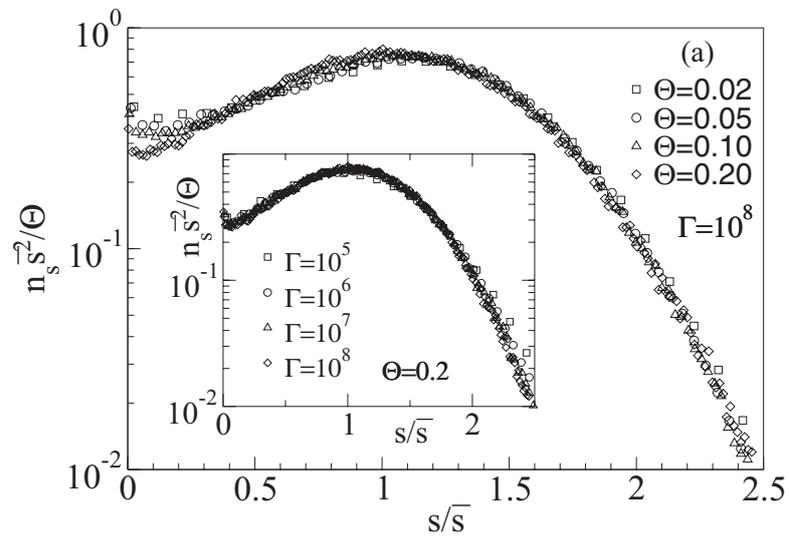


FIGURE 1.12 – Loi d’échelle (1.5) vérifiée par des simulations Monte Carlo cinétiques, d’après [30] et $\Gamma = D/F$.

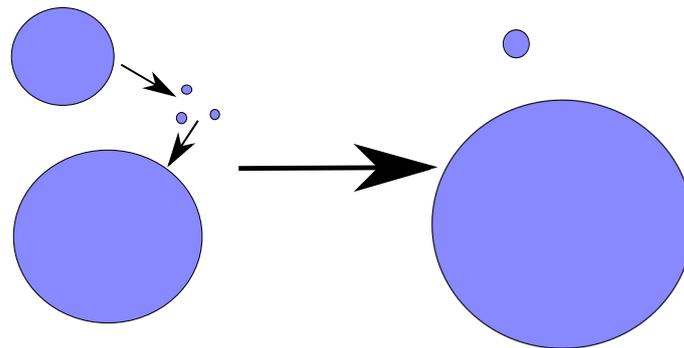


FIGURE 1.13 – Mûrissement d'Ostwald

allant de la glace ([34] pages 78 et 79) aux îlots d'argent [35]. Il a souvent été observé expérimentalement que les cristaux croissent avec une loi de puissance en t^α , où α est un exposant qui peut dépendre de la géométrie.

Ce processus thermodynamique est rendu possible par le mécanisme suivant. Une configuration composée de gros îlots a une énergie plus faible qu'une configuration composée de petits îlots, car l'énergie de surface totale est relativement plus faible avec de plus gros îlots. Par exemple si on prend le cas le plus simple de deux îlot 2D de rayons R et R' , en gardant une taille $\pi R^2 + \pi R'^2$ constante et en faisant varier lentement les tailles du système on obtient $RdR + R'dR' = 0$. Lors d'une évolution des tailles, l'énergie totale du système diminue si le périmètre total des îlots diminue. Ceci est le cas quand $2\pi(dR + dR') < 0$, soit, en utilisant la relation précédente, $2\pi(1 - R/R')dR < 0$, d'où $dR < 0$ si $R < R'$ (et inversement si $R > R'$). On voit donc que les petits îlots vont décroître jusqu'à disparaître (voir chapitre 8 du livre de A. Pimpinelli et J. Villain p. 138 [4]).

Dans le cadre des systèmes étudiés dans cette thèse, le mûrissement a pour effet de transférer par diffusion de surface des atomes des petits îlots aux plus gros îlots car les plus petits îlots vont avoir un potentiel chimique plus grand que les gros îlots suite aux effets élastiques.

Première partie

Instabilités d'Asaro-Tiller-Grinfeld

Chapitre 2

Instabilité linéaire ATG

Sommaire

| | | |
|-----|---|----|
| 2.1 | Champ élastique | 32 |
| 2.2 | Potentiel chimique | 37 |
| 2.3 | Dynamique de croissance | 38 |
| 2.4 | Ajout des effets de mouillage | 41 |

L'instabilité d'Asaro-Tiller-Grinfeld a été décrite dans le cas de la formation de craquelures lors de la corrosion des métaux par Asaro et Tiller en 1972 [36] puis par Grinfeld en 1986 [37, 38], dans un cas plus proche de celui qui nous intéresse. L'instabilité a été observée dans des systèmes assez variés, en particulier dans de l'hélium solide sous contrainte [39, 40] ou dans des cas de solidification [41] et pour le démouillage d'un film de polymères contraint [42].

L'instabilité morphologique ne concerne que les systèmes à (relativement) faible désaccord de maille. Pour le cas de l'alliage SiGe cela correspond à une concentration de Ge inférieure à 50% [14], soit un désaccord de maille d'environ 2%. Elle ne commence à être observée qu'après le dépôt de quelques couches de mouillage dans le cas d'une croissance Stranski-Krastanov. Dans le cas de l'hétéroépitaxie de SiGe sur Si, l'interface reste cohérente (pas de dislocations) lorsque la diffusion de surface est activée et pour des épaisseurs pas trop importantes [24]. Pour modéliser ce type de système dans le régime de l'instabilité ATG, nous allons modéliser les contraintes élastiques causées par les déformations dues au désaccord de maille (voir la figure 1.5c). Nous considérons un modèle d'élasticité linéaire et isotrope dans un film à l'équilibre mécanique (donc avec un équilibre mécanique qui se produit en un temps court par rapport aux temps caractéristiques de l'instabilité). Le film est périodique dans le plan (x,y) et le substrat infiniment épais. Ces dernières hypothèses sont raisonnables, la longueur caractéristique de l'instabilité (de l'ordre de la centaine de nanomètres) étant faible par rapport à la surface considérée et à l'épaisseur du substrat.

La figure 2.1 montre une image expérimentale par AFM d'un système $\text{Si}_{0,7}\text{Ge}_{0,3}$ sur Si (100), dans le cadre du régime d'instabilité (d'après [14]). Nous allons maintenant ébaucher le calcul de l'instabilité d'Asaro-Tiller-Grinfeld. Tout d'abord nous allons calculer les champs élastiques en résolvant les équations de Lamé.

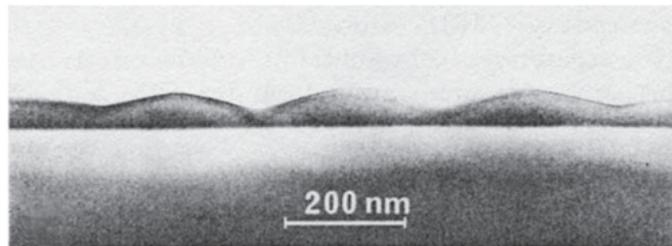


FIGURE 2.1 – Image TEM d'un système $\text{Si}_{0,79}\text{Ge}_{0,21}$ sur Si selon la direction (100). L'image est issue de [43].

2.1 Champ élastique

Le calcul que nous présentons ici est inspiré du calcul effectué dans l'annexe N du livre d'A. Pimpinelli et J. Villain [4]. Nous avons inclus quelques rappels d'élasticité

dans l'annexe A. Dans le calcul suivant et le reste de la thèse, k_x (k_y) est le vecteur d'onde de la déformation selon x (y) et :

$$k = |\vec{k}| = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}. \quad (2.1)$$

Les calculs élastiques partent de l'équation de Lamé (voir annexe A pour sa démonstration) :

$$(1 - 2\nu)\Delta\vec{u} + \nabla(\nabla\vec{u}) = \vec{0}, \quad (2.2)$$

où $\Delta\vec{u}$ est le Laplacien vectoriel, \vec{u} est le vecteur déplacement et ν est le coefficient de Poisson. On définit la transformée de Fourier par rapport à $\vec{r} = (x, y)$:

$$\mathcal{F}(h) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int d\vec{r} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} h(\vec{r}), \quad (2.3)$$

avec \vec{k} le vecteur d'onde et \mathcal{F}^{-1} la transformée de Fourier inverse.

Nous prenons comme état de référence du système entier le substrat non déformé (il faut donc faire attention à prendre en compte la différence de paramètre de maille entre adsorbat et substrat puisque cet état de référence n'est pas l'état pour lequel les contraintes sont nulles pour l'adsorbat). Dans le cas linéaire on choisit

$$\vec{u} = \vec{f}_\alpha(z) e^{-ik_x x - ik_y y}, \quad (2.4)$$

ce qui va simplifier le calcul des dérivés selon x et y . La détermination de la solution pour \vec{u} nécessite la prise en compte des conditions aux limites : déplacement nul à l'infini à l'intérieur du substrat, continuité des déplacements et des contraintes à l'interface cohérente et contraintes nulles à la surface. Les observations expérimentales [44] ont permis de déterminer que la croissance de SiGe se fait de manière cohérente, on n'a donc pas de dislocations à l'interface entre substrat et film, ce qui justifie les conditions de continuité à l'interface. De plus la croissance est réalisée sous vide, et nous pouvons donc considérer que la pression à la surface du film est nulle. En faisant l'hypothèse de l'absence de contraintes de surface on obtient la condition de contraintes nulles en surface.

L'équation de Lamé donne alors :

$$(1 - 2\nu)\Delta \left[\vec{f}_\alpha(z) e^{-ik_x x - ik_y y} \right] + \nabla \left(\nabla \left[\vec{f}_\alpha(z) e^{-ik_x x - ik_y y} \right] \right) = \vec{0}, \quad (2.5)$$

avec $\alpha = x, y, z$. Nous trouvons ainsi les équations suivantes :

$$\begin{aligned} [-(1 - 2\nu)k^2 - k_x^2] f_x - k_x k_y f_y - ik_x df_z/dz + (1 - 2\nu)d^2 f_x/dz^2 &= 0, \\ [-(1 - 2\nu)k^2 - k_y^2] f_y - k_x k_y f_x - ik_y df_z/dz + (1 - 2\nu)d^2 f_y/dz^2 &= 0, \\ k^2(-1 + 2\nu) f_z - i(k_x df_x/dz + k_y df_y/dz) + 2(1 - \nu)d^2 f_z/dz^2 &= 0. \end{aligned}$$

Nous avons ici un système d'équations différentielles ordinaires contenant trois équations du second ordre. La solution générale sera donc une combinaison linéaire de solutions dans laquelle il y aura six constantes indépendantes à déterminer.

Dans le cas d'une élasticité isotrope, les équations précédentes sont dégénérées, car il existe des valeurs propres identiques. On cherche alors des solutions sous la forme :

$$f_\alpha = (a_{1,\alpha} + a_{2,\alpha}z)e^{kz} + (b_{1,\alpha} + b_{2,\alpha}z)e^{-kz}, \quad (2.6)$$

avec $\alpha = x, y, z$. Du fait des équations de Lamé, les constantes $a_{2,\alpha}$ et $b_{2,\alpha}$ ne seront pas des paramètres indépendants, mais des fonctions de $a_{1,\alpha}$ et $b_{1,\alpha}$ respectivement que nous déterminerons.

Dans le substrat, nous cherchons des solutions dont le déplacement s'annule en $z = -\infty$. Les solutions en e^{-kz} ne sont donc pas présentes dans le substrat :

$$f_\alpha^s = (A_{1,\alpha} + A_{2,\alpha}z)e^{kz}. \quad (2.7)$$

Nous notons maintenant la solution générale de l'équation de Lamé dans le film de la façon suivante :

$$f_\alpha^f = (B_{1,\alpha} + B_{2,\alpha}z)e^{-kz} + (C_{1,\alpha} + C_{2,\alpha}z)e^{kz}. \quad (2.8)$$

Afin de déterminer les constantes inconnues de ces solutions, nous utilisons les conditions aux limites. D'une part, étant donné que l'interface entre le substrat et le film est cohérente, le déplacement et les contraintes sont continues à cette interface :

$$\vec{u}^f(z=0) = \vec{u}^s(z=0) \quad (2.9)$$

$$\sigma^f \cdot \hat{z}|_{z=0} = \sigma^s \cdot \hat{z}|_{z=0}, \quad (2.10)$$

l'interface étant considérée comme plane et située en $z = 0$. σ^f et σ^s sont respectivement les tenseurs des contraintes du film et du substrat. On rappelle que ces tenseurs peuvent s'exprimer de la façon suivante dans le cas de l'élasticité isotrope avec e^s les déformations dans le substrat et σ^s les contraintes :

$$e_{(i,j)}^s = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i^s}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j^s}{\partial x_i} \right) \quad (2.11)$$

$$\sigma^s = \frac{Y}{1+\nu} e^s - \frac{Y\nu}{-1+\nu+2\nu^2} \text{Tr}(e^s) \mathbb{1}, \quad (2.12)$$

où $\mathbb{1}$ est la matrice identité et Y le module de Young. Les mêmes lois de comportement sont utilisées pour le film. Pour décrire les déformations dans le film, on rappelle le tenseur des déformations du film :

$$e_{(i,j)}^f = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i^f}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j^f}{\partial x_i} \right) - \mathbb{1}\eta \quad (2.13)$$

où η est le désaccord de maille défini en (1.1) ; ici nous avons pris comme état de référence l'état du substrat non-déformé. Il est donc normal d'être dans un état contracté isotrope en l'absence de déformation relative ($\vec{u}^f = \vec{0}$). On rappelle en

particulier que la maille du germanium est 4,2% plus grande que la maille du silicium (d'où $\eta=4,2\%$ dans le cas du germanium pur sur silicium). Le tenseur des contraintes du film se déduit alors simplement du tenseur des déformations, selon la même formule que pour les contraintes du substrat :

$$\sigma^f = \frac{Y}{1+\nu} e^f - \frac{Y\nu}{-1+\nu+2\nu^2} (\text{Tr}(e^f)) \mathbf{1}. \quad (2.14)$$

Afin de simplifier le modèle, nous considérons un système où les constantes élastiques du film et du substrat sont identiques (même module de Young et coefficient de Poisson). Les différences entre ces paramètres renormalisent les coefficients obtenus plus bas (voir [45]). Une troisième condition traduit l'absence de pression à la surface du solide (l'épitaxie a lieu sous vide). Les contraintes s'annulent donc en surface :

$$\sigma^f \cdot \vec{n}|_{z=h(x,y,t)} = \vec{0}, \quad (2.15)$$

en $z = h(x, y, t)$ qui correspond à la surface du film, où \vec{n} est le vecteur normal à la surface du film (équation (2.29)).

Pour commencer la résolution du problème élastique, nous considérons le cas d'une surface plane, la solution est alors :

$$\begin{cases} \vec{u}_0^f = (0, 0, \eta z \frac{1+\nu}{1-\nu}) \\ \vec{u}_0^s = \vec{0} \end{cases}. \quad (2.16)$$

Nous montrerons par la suite que cette solution, dite de contrainte biaxiale, est instable.

Quand la surface est ondulée, nous résolvons le système d'équations élastiques dans le cadre de l'approximation de faible pente

$$h(x, y) = h_0 + \epsilon h_k e^{-ik_x x - ik_y y}, \quad (2.17)$$

avec ϵ petit, h_0 une constante et h_k l'amplitude de la variation de hauteur du film. Dans le substrat, on cherche des solutions sous la forme

$$\vec{u}^s = \epsilon (\vec{A}_1 + z \vec{A}_2) e^{-ik_x x - ik_y y + kz}. \quad (2.18)$$

En résolvant l'équation de Lamé dans le substrat on obtient la valeur du vecteur déplacement, avec trois inconnues :

$$u_x^s = \epsilon \left(A_{1,x} + \frac{-k_x z (k_x A_{1,x} + k_y A_{1,y} + ik A_{1,z})}{k(4\nu - 3)} \right) e^{-ik_x x - ik_y y + kz} \quad (2.19)$$

$$u_y^s = \epsilon \left(A_{1,y} + \frac{-k_y z (k_x A_{1,x} + k_y A_{1,y} + ik A_{1,z})}{k(4\nu - 3)} \right) e^{-ik_x x - ik_y y + kz} \quad (2.20)$$

$$u_z^s = \epsilon \left(A_{1,z} + \frac{-iz (k_x A_{1,x} + k_y A_{1,y}) + kz A_{1,z}}{4\nu - 3} \right) e^{-ik_x x - ik_y y + kz}. \quad (2.21)$$

Dans le film on a une solution de la forme suivante :

$$\vec{u}^f = \vec{u}_0^f + \epsilon(\vec{B}_1 + z\vec{B}_2)e^{-ik_x x - ik_y y - kz} + \epsilon(\vec{C}_1 + z\vec{C}_2)e^{-ik_x x - ik_y y + kz}. \quad (2.22)$$

En procédant de manière similaire, on trouve pour le déplacement dans le film :

$$u_x^f = \epsilon \left[\left(B_{1,x} + \frac{k_x z (k_x B_{1,x} + k_y B_{1,y} - ik B_{1,z})}{k(4\nu - 3)} \right) e^{-kz} + \left(C_{1,x} + \frac{-k_x z (k_x C_{1,x} + k_y C_{1,y} + ik C_{1,z})}{k(4\nu - 3)} \right) e^{kz} \right] e^{-ik_x x - ik_y y} \quad (2.23)$$

$$u_y^f = \epsilon \left[\left(B_{1,y} + \frac{k_y z (k_x B_{1,x} + k_y B_{1,y} - ik B_{1,z})}{k(4\nu - 3)} \right) e^{-kz} + \left(C_{1,y} + \frac{-k_y z (k_x C_{1,x} + k_y C_{1,y} + ik C_{1,z})}{k(4\nu - 3)} \right) e^{kz} \right] e^{-ik_x x - ik_y y} \quad (2.24)$$

$$u_z^f = \eta z \frac{1 + \nu}{1 - \nu} + \epsilon \left[\left(B_{1,z} + \frac{-iz(k_x B_{1,x} + k_y B_{1,y}) - kz B_{1,z}}{4\nu - 3} \right) e^{-kz} + \left(C_{1,z} + \frac{-iz(k_x C_{1,x} + k_y C_{1,y}) + kz C_{1,z}}{4\nu - 3} \right) e^{kz} \right] e^{-ik_x x - ik_y y}. \quad (2.25)$$

L'utilisation des conditions aux limites permet de calculer les 9 coefficients manquants dans le déplacement du film et du substrat :

- la continuité des déplacements à l'interface film-substrat (en $z = 0$) (2.9)
- la continuité des contraintes à l'interface film-substrat (2.10)
- l'absence de contrainte à la surface du film (2.15) (en $z = h(x, y, t)$)

Pour commencer on prend le déplacement \vec{u} du film et du substrat en $z = 0$ qui doivent être égaux. On obtient alors les coefficients :

$$A_{1,j} = B_{1,j} + C_{1,j}, \quad (2.26)$$

pour $j = x, y, z$. Les contraintes verticales à l'interface doivent également être continues. Ceci permet le calcul des coefficients $B_{1,j}$

$$B_{1,j} = 0, \quad (2.27)$$

pour $j = x, y, z$. Enfin on sait que les contraintes à la surface du film de hauteur $z = h(x, y, t)$ sont nulles, quand la pression peut être considérée comme négligeable (c'est le cas pour l'épitaxie sous vide), d'où

$$\sigma^f \cdot \vec{n} = \vec{0}, \quad (2.28)$$

où

$$\vec{n} = \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\partial h}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial h}{\partial y}\right)^2}} \left(-\frac{\partial h}{\partial x}, -\frac{\partial h}{\partial y}, 1 \right), \quad (2.29)$$

et on en déduit les coefficients $C_{1,j}$

$$C_{1,x} = -\frac{ie^{-h_0k}h_kk_x(1+\nu)(-2+h_0k+2\nu)\eta}{k(1-\nu)} \quad (2.30)$$

$$C_{1,y} = -\frac{ie^{-h_0k}h_kk_y(1+\nu)(-2+h_0k+2\nu)\eta}{k(1-\nu)} \quad (2.31)$$

$$C_{1,z} = -\frac{ie^{-h_0k}h_k(1+\nu)(1+h_0k+2\nu)\eta}{(1-\nu)} \quad (2.32)$$

Finalement on trouve un déplacement au premier ordre du film :

$$\vec{u}^f = \begin{pmatrix} i\epsilon\eta h_k k_x (k(z-h_0) + 2(1-\nu)) \frac{1+\nu}{k(1-\nu)} e^{k(z-h_0)-ik_x x - ik_y y} \\ i\epsilon\eta h_k k_y (k(z-h_0) + 2(1-\nu)) \frac{1+\nu}{k(1-\nu)} e^{k(z-h_0)-ik_x x - ik_y y} \\ \eta z \frac{1+\nu}{1-\nu} + \frac{1+\nu}{1-\nu} (\epsilon\eta h_k (1-k(z-h_0) - 2\nu) e^{k(z-h_0)-ik_x x - ik_y y}) \end{pmatrix} \quad (2.33)$$

2.2 Potentiel chimique

À partir de la valeur du déplacement on peut déduire la densité d'énergie élastique à l'aide des contraintes et des déformations dans le film [46]. Cette densité d'énergie élastique est :

$$E_{el} = \frac{1}{2} e_{i,j} \sigma_{i,j}. \quad (2.34)$$

Et dans le film, l'énergie élastique à l'ordre 0 est :

$$E_{el}^0 = \frac{Y\eta^2}{1-\nu}. \quad (2.35)$$

On trouve à l'ordre 1, en utilisant les formules (2.33), (2.13) et (2.14), une énergie élastique :

$$E_{el}^1 = \left(\epsilon \frac{2h_k k Y \eta^2 (1+\nu)}{(-1+\nu)} \right) e^{-ik_x x - ik_y y} \quad (2.36)$$

qui traduit le gain en énergie élastique lorsqu'un film contraint présente une modulation.

En plus des effets élastiques, il existe une contribution due à l'énergie de surface qui vient contrebalancer le gain en énergie élastique. Cette contribution dépend de la courbure du film, et est similaire aux effets capillaires dans les films liquides. L'énergie de surface est simplement

$$\mathcal{F}^{surf} = \int d^2\vec{r} \gamma \sqrt{1 + \vec{\nabla} h^2} \quad (2.37)$$

Compte tenu de l'énergie élastique et de l'énergie de surface, on trouve que la densité de potentiel chimique est [45] :

$$\mu = \Omega(E_{el} + \gamma\kappa). \quad (2.38)$$

Dans cette équation et le reste de la thèse, le potentiel chimique μ est sous entendu comme étant le potentiel chimique par unité de volume et Ω est le volume atomique, κ est la courbure du film.

2.3 Dynamique de croissance

On cherche à calculer l'évolution du système causée par la diffusion des atomes que l'on peut déduire du potentiel chimique (2.38). Ceci est par exemple discuté au chapitre 2 de la thèse de Roberto Bergamaschini [47] (ou dans la partie II-A de l'article de Spencer *et al* [48]) et est rappelé dans l'annexe B.

Dans le cadre de la réponse linéaire, le flux de matière par diffusion est :

$$\vec{J} = -D\nabla\mu, \quad (2.39)$$

où D est le coefficient de diffusion de surface. L'équation de transport des adatoms, dans le cas où celui-ci est limité par la diffusion est :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = \Omega(F - \nabla \cdot \vec{J}). \quad (2.40)$$

Par souci de simplicité, nous prenons d'abord le cas où $F = 0$. Nous posons $h = h_0 + \epsilon h_k(t)e^{-ik_x x - ik_y y}$, ce qui permet d'obtenir l'équation suivante :

$$\epsilon \frac{\partial h_k}{\partial t} = \epsilon \frac{h_k k^3 D \Omega}{1 - \nu} [k\gamma(-1 + \nu) + 2Y\eta^2(1 + \nu)]. \quad (2.41)$$

La compétition entre les énergies de surface et élastiques permet de définir les grandeurs caractéristiques l_0 et t_0 :

$$l_0 = \frac{\gamma(1 - \nu)}{2Y\eta^2(1 + \nu)} \quad (2.42)$$

$$t_0 = \frac{l_0^4}{\gamma\Omega D}, \quad (2.43)$$

et l'équation (2.41), ainsi adimensionnée est :

$$\frac{\partial h_k}{\partial t} = h_k(k^3 - k^4), \quad (2.44)$$

qui a une solution de la forme $h_k = h_k(0)e^{\sigma t}e^{-ik_x x - ik_y y}$ où σ est le taux de croissance de l'instabilité ATG :

$$\sigma = k^3 - k^4. \quad (2.45)$$

Le taux de croissance a un maximum qui correspond à un nombre d'onde $k = k_{max}$. La valeur de ce taux de croissance peut être positive, et donc permettre la croissance

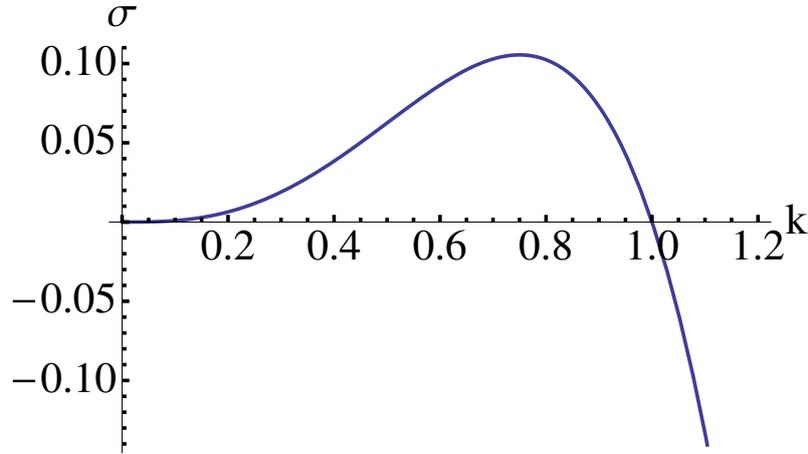


FIGURE 2.2 – Taux de croissance en fonction du nombre d’onde

de l’instabilité. Pour les nombres d’onde élevés ($k > 1$), σ est négatif, ces longueurs d’onde sont donc stables.

La longueur de Grinfeld est la longueur d’onde correspondant au nombre d’onde qui a le taux de croissance le plus élevé. Nous trouvons (voir Fig. 2.2) $\lambda_G = \frac{2\pi}{k_{max}}$, avec

$$k_{max} = 3/4, \quad (2.46)$$

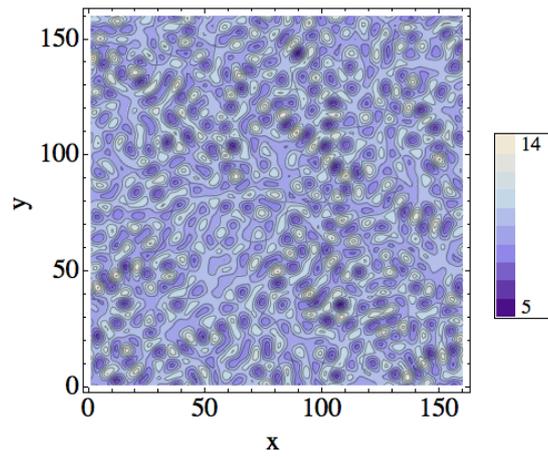
en unités adimensionnées. Dans le système dimensionné on trouve :

$$k_{max} = \frac{3Y\eta^2(1+\nu)}{2\gamma(1-\nu)} \quad (2.47)$$

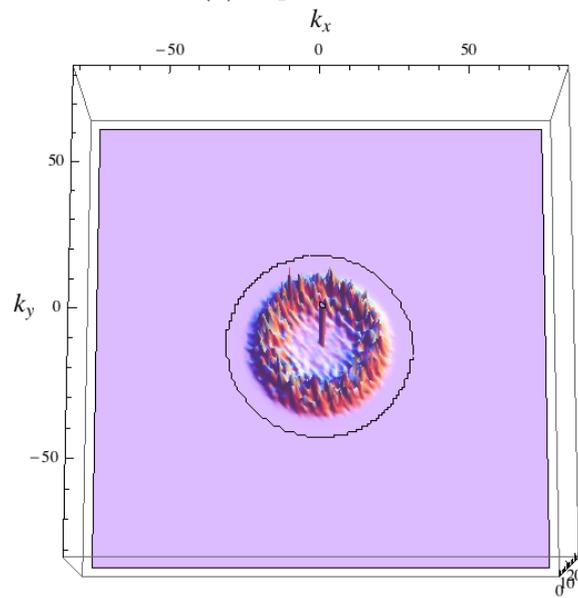
$$\lambda_G = 2\pi \frac{2\gamma(1-\nu)}{3Y\eta^2(1+\nu)}. \quad (2.48)$$

Le système aura tendance à adopter cette longueur d’onde étant donné que c’est cette amplitude qui croît le plus vite. La longueur d’onde dominante permet alors d’observer une organisation, une régularité, dans la morphologie du film déposé. Ceci peut être observé sur la figure 2.3, en particulier sur le graphique de l’espace de Fourier.

Nous avons rappelé dans ce chapitre les bases de l’instabilité de Grinfeld, et avons mis en évidence l’existence d’une instabilité dont le taux de croissance ne dépend pas de la hauteur du film déposé. Pour conclure, notons que nous n’avons pas pris en compte les effets de mouillage qui ont tendance à stabiliser les films d’épaisseur inférieure à une certaine épaisseur H_c . Ces effets de mouillage sont abordés dans la section suivante.



(a) Espace réel.



(b) Espace de Fourier.

FIGURE 2.3 – Simulation du calcul linéaire avec un désaccord de maille isotrope.

2.4 Ajout des effets de mouillage

Les expériences dans le mode de croissance Stransky-Krastanov ont montré l'existence d'une couche de mouillage dont l'épaisseur dépend du matériau. Pour modéliser cet effet nous allons introduire une dépendance de l'énergie de surface en h :

$$\gamma(h) = \gamma[1 + \gamma_h(h)], \quad (2.49)$$

où γ est l'énergie de surface à épaisseur infinie et $\gamma_h(h)$ représente le terme de mouillage. Il traduit le fait que les liaisons rompues décrites par l'énergie de surface sont fonction de l'environnement local des atomes, qui évolue sur quelques couches atomiques au voisinage de la surface. Nous avons pris ce dernier terme sous la forme :

$$\gamma_h(h) = c_w e^{-h/\delta_w}, \quad (2.50)$$

où c_w et δ_w représentent l'amplitude et la distance sur laquelle s'applique le potentiel de mouillage. Ce modèle exponentiellement décroissant de l'effet du mouillage est cohérent avec les résultats de calculs *ab initio* [49].

Ces effets de mouillage s'ajoutent aux termes vus précédemment (2.38). Le potentiel chimique en présence de mouillage s'écrit alors :

$$\mu = \Omega \left(E_{el} + \gamma\kappa + \frac{d\gamma_h(h)}{dh} \frac{1}{\sqrt{1 + |\nabla h|^2}} \right). \quad (2.51)$$

Ce potentiel chimique permet d'obtenir un nouveau taux de croissance :

$$\sigma = k^3 - k^4 - \frac{d^2\gamma_h(\bar{h})}{dh^2} k^2, \quad (2.52)$$

qui dépend explicitement de l'épaisseur \bar{h} du film. Ce nouveau terme réduit le taux de croissance à faible épaisseur de film. Avec le mouillage décrit par l'équation (2.50), et en utilisant des paramètres typiques (par exemple $c_w \sim 0.1$ et $\delta_w \sim a$, conformément aux calculs *ab initio*), on constate que σ peut être négatif pour toute longueur d'onde pour certaines épaisseurs, tandis qu'il redevient positif au delà d'une certaine épaisseur critique (voir figure 2.4).

On peut définir une hauteur critique H_c telle que le taux de croissance soit toujours négatif pour $\bar{h} < H_c$. Cette hauteur critique vaut

$$H_c = \delta_w \ln \left(\frac{4c_w}{\delta_w^2} \right), \quad (2.53)$$

pour le mouillage représenté par l'équation (2.50). Pour toute épaisseur supérieure à cette épaisseur critique H_c on pourra observer une instabilité.

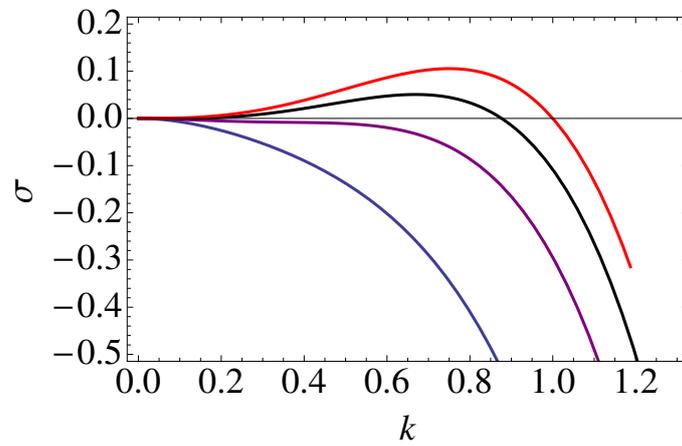


FIGURE 2.4 – Effet du mouillage sur le taux de croissance de l'instabilité, pour des épaisseurs croissantes du film. k en unités adimensionnées, avec une hauteur de 0 (courbe bleue), $0.5 l_0$, l_0 et $10 l_0$ (courbe rouge). l_0 est défini en (2.42). Les paramètres du mouillage sont $c_w = 0.1$ et $\delta_w = 1$.

Chapitre 3

Instabilité de Grinfeld non-linéaire

Sommaire

| | | |
|------------|--|-----------|
| 3.1 | Analyse faiblement non-linéaire | 45 |
| 3.1.1 | Dynamique de croissance | 47 |
| 3.2 | Résolution numérique | 48 |
| 3.3 | Résultats | 49 |

Comme nous l'avons vu précédemment, l'étude linéaire de l'instabilité de Grinfeld permet d'obtenir une dynamique temporelle qui croît exponentiellement, ce qui va rapidement poser problème aux temps relativement longs. Pour résoudre ce problème on va dans ce chapitre rappeler le calcul de l'instabilité et mettre en évidence les termes non-linéaires de l'énergie élastique [45]. Pour cela nous procéderons à un développement non-linéaire en fonction de la pente de la surface que nous supposons faible. De plus nous discuterons des effets de l'anisotropie d'énergie de surface et des effets de mouillage. Les effets d'anisotropie permettent de modéliser de façon relativement simple les facettes des îlots, et les facettes (105) en particulier dans le cas des îlots de SiGe.

Nous allons d'abord rappeler quelques résultats de la littérature obtenus à l'aide du calcul non linéaire de l'instabilité, de l'ajout du mouillage et d'une modélisation des facettes. La modélisation d'îlots sous contraintes élastiques est un sujet qui a attiré une attention considérable. Le modèle basique ne prenant en compte que les effets élastiques est limité. Il rend la comparaison avec les expériences difficile, par exemple en ce qui concerne le mûrissement. De nouveaux paramètres ont été inclus pour améliorer la compréhension du problème. En particulier les effets de mouillage [50, 51] et les effets d'anisotropie d'énergie de surface (pour modéliser les facettes dominantes) [52, 53].

Dans l'article de J.-N. Aqua, T. Frisch et A. Verga [45], une équation non-linéaire et non-locale a été établie en utilisant une approximation de film mince. Cette équation a ensuite été résolue numériquement en utilisant une méthode pseudo-spectrale. Cette méthode est avantageuse du point de vue de la rapidité du calcul par rapport aux méthodes numériques de résolution des équations de l'élasticité par éléments finis [54]. L'équation non-linéaire a l'intérêt de ne pas nécessiter le calcul des champs élastiques à chaque pas de temps, comme dans le cas des éléments finis. Ces différents modèles permettent d'analyser la morphologie des systèmes étudiés (généralement SiGe), une description de quelques uns des principaux résultats s'impose donc.

Nous présentons plus précisément les résultats obtenus précédemment par J.-N. Aqua, T. Frisch et A. Verga, dont le modèle est présenté dans ce chapitre. Dans leur premier article [45], l'effet du mouillage est inclus dans le calcul non-linéaire. Celui-ci est essentiel car il empêche la formation de singularités en temps fini. L'évolution temporelle d'un film est montrée sur la figure 3.1. Contrairement au cas du calcul linéaire, on ne trouve plus une croissance exponentielle des modulations, qui serait non physique, et une couche plane de mouillage se développe entre des îlots. De plus, un mûrissement ininterrompu suivant une loi de puissance a lieu, et est visible quantitativement dans les valeurs de la rugosité, du nombre d'îlots et du taux de couverture par les îlots. Par exemple la densité d'îlots évolue en $N(t) \sim 1/t^\zeta$, avec $\zeta = 1.3$. En utilisant uniquement les effets précédemment cités les systèmes tendent à former un seul gros îlot accompagné d'une couche de mouillage, du fait de ce mûrissement ininterrompu.

L'ajout d'un effet d'anisotropie d'énergie de surface représentant les facettes du système permet d'obtenir un résultat plus proche des expériences et donne lieu

à l'apparition de plusieurs îlots aux formes pyramidales dont le mûrissement est interrompu [55, 56]. La morphologie des îlots est effectivement assez différente, avec des bases plutôt rectangulaires ou carrées (figure 3.2). Les densités d'îlots obtenues en faisant le calcul numérique retranscrivent bien les résultats expérimentaux, en utilisant des paramètres raisonnables pour le mouillage dont les caractéristiques sont moins connues.

Le reste du chapitre porte sur des explications plus techniques sur le calcul non-linéaire et sa résolution, plus une discussion de l'anisotropie d'énergie de surface, qui sera utile pour comprendre l'ajout de l'anisotropie de désaccord de maille discuté au chapitre 4.

3.1 Analyse faiblement non-linéaire

Nous allons faire un développement non-linéaire du calcul de l'élasticité en fonction d'un petit paramètre ϵ issu de l'approximation des faibles pentes du film. Nous allons chercher des solutions de l'équation de Lamé sous la forme suivante :

$$\vec{u} = \vec{u}_0 + \epsilon \vec{u}_1 + \epsilon^2 \vec{u}_2, \quad (3.1)$$

où le tenseur des contraintes se décompose en

$$\sigma = \sigma_0 + \epsilon \sigma_1 + \epsilon^2 \sigma_2, \quad (3.2)$$

et de même pour le tenseur des déformations.

Le calcul est exact à l'interface entre substrat et film en $z = 0$ (dans l'hypothèse d'un substrat parfaitement plan), mais la condition à la limite de la surface du film ne peut être résolue de façon exacte, et l'approximation de faible pente nous donne des solutions en puissance de ϵ . On rappelle que le vecteur normal à la surface est :

$$\vec{n} = \frac{1}{\sqrt{1 + h_x^2 + h_y^2}} (-h_x, -h_y, 1), \quad (3.3)$$

et que

$$h(x, y) = h_0 + \epsilon h_k e^{-ik_x x - ik_y y}. \quad (3.4)$$

Pour réaliser ce calcul non linéaire nous reprenons le calcul linéaire jusqu'à l'application de la continuité des contraintes à la surface du film (calcul des coefficients $C_{1,j}$) et poursuivons le calcul en conservant la partie en ϵ^2 en plus des termes linéaires.

Le résultat du calcul à l'ordre 2 a été publié en 2007 [45] et est redémontré dans ce chapitre. Comme indiqué précédemment, le calcul à l'ordre 1 détaillé au chapitre 2 est en fait exact en ce qui concerne la forme générale de la solution, la condition aux limites ($z \rightarrow -\infty$) et les conditions de continuité à l'interface film / substrat. La question est alors de refaire la condition de continuité des contraintes à la surface

du film (2.28) en considérant les termes d'ordre 2. Cette surface est localisée en $z = h_0 + \epsilon h_1$.

Nous allons commencer par déterminer l'ordre 2 en ϵ du déplacement, avant de l'utiliser pour obtenir le potentiel chimique non-linéaire issu de l'élasticité. Lors de la détermination de l'ordre 2 du déplacement, il est important de ne pas oublier que le produit de la transformée de Fourier de h par lui-même est un produit de convolution.¹ Le calcul non-linéaire est davantage détaillé en annexe D.

À 2D (en prenant $k_y = 0$) on trouve :

$$u_x(k_x, z) = \eta \frac{1 + \nu}{1 - \nu} e^{k(z-h_0)} \int dk_{x1} i \frac{\hat{h}_1(k_1) \hat{h}_1(k - k_1)}{k} \left\{ k k_{x1} [1 - 2\nu + k(z - h_0)] + 2k_1 k_x [2(\nu - 1) - k(z - h_0)] \right\}, \quad (3.5)$$

et dans la direction verticale :

$$u_z(k_x, z) = -\eta \frac{1 + \nu}{1 - \nu} e^{k(z-h_0)} \int dk_{x1} \frac{\hat{h}_1(k_1) \hat{h}_1(k - k_1)}{k} \left\{ k [k_x k_{x1} (z - h_0) + 2k_1 (1 - 2\nu)] - 2k_x k_{x1} (1 - \nu) + 2k^2 k_1 (h_0 - z) \right\}. \quad (3.6)$$

Il reste alors à calculer le potentiel chimique produit par ce déplacement. Le calcul de l'énergie élastique est d'abord réalisé dans un cas plus général en prenant

$$u_i = u_{i,0} + \epsilon u_{i,1} + \epsilon^2 u_{i,2}, \quad (3.7)$$

où $i = x, y, z$ et en développant autour de $z = h_0 + \epsilon h_k$. Si on prend $e_f = e_f^0 + \epsilon e_f^1 + \epsilon^2 e_f^2$ et $\sigma_f = \sigma_f^0 + \epsilon \sigma_f^1 + \epsilon^2 \sigma_f^2$ on trouve :

$$E_{el} = \frac{1}{2} [e_f^0 \sigma_f^0 + \epsilon (e_f^1 \sigma_f^0 + e_f^0 \sigma_f^1) + \epsilon^2 (e_f^2 \sigma_f^0 + e_f^1 \sigma_f^1 + e_f^0 \sigma_f^2)], \quad (3.8)$$

et en remplaçant les termes en e_f et σ_f par les termes facteurs du déplacement, on peut alors calculer e_f et σ_f en fonction de $u_{i,k}$, puis calculer l'énergie élastique (2.34). Une fois le calcul précédent terminé il "suffit" de prendre les termes facteurs de ϵ^2 et de remplacer les $u_{i,k}$ par les valeurs calculées précédemment, en n'oubliant pas les produits de convolution dans les produits entre termes d'ordre 1.

Le résultat final s'exprime à l'aide de la transformée d'Hilbert, définie comme :

$$\mathcal{H}_{ij}(h) = \mathcal{F}^{-1} \left[\frac{k_i k_j}{k} \mathcal{F}(h) \right], \quad (3.9)$$

avec \mathcal{F} la transformée de Fourier et \mathcal{F}^{-1} la transformée inverse. Le nouveau potentiel chimique élastique à l'ordre 2 est :

$$\begin{aligned} \mu_{el}^{nl} = & 2h\Delta h + |\nabla h|^2 + 4(1 - \nu) \mathcal{H}_{xy}[h \mathcal{H}_{xy}[h]] + \mathcal{H}_{xx}[h]^2 + \mathcal{H}_{yy}[h]^2 \\ & + 2\mathcal{H}_{xx}[h (\mathcal{H}_{xx}[h] + \nu \mathcal{H}_{yy}[h])] + 2\mathcal{H}_{yy}[h (\mathcal{H}_{yy}[h] + \nu \mathcal{H}_{xx}[h])] \\ & + 2(1 - \nu) \mathcal{H}_{xy}[h]^2 + 2\nu \mathcal{H}_{xx}[h] \mathcal{H}_{yy}[h], \end{aligned} \quad (3.10)$$

1. Ces produits de convolution peuvent être résolus plus simplement dans les calculs numériques en faisant la transformée de Fourier inverse puis en repassant dans l'espace de Fourier.

toujours en utilisant l'adimensionnement précédent ((2.42) et (2.43)) et auquel il faut ajouter la partie à l'ordre 1 (équations (2.35), (2.36), et (2.38)).

On peut montrer que ce potentiel chimique dérive d'une énergie élastique, avec $\mu_{el} = \delta F^{el}/\delta h$. On trouve que :

$$F^{el} = \int d\vec{r} h(\vec{r}) \left[1 - \frac{1}{2} \mathcal{H}_{ii}(h) - |\nabla h|^2 + \mathcal{H}_{ij}(h) \theta_{ijkl} \mathcal{H}_{kl}(h) \right], \quad (3.11)$$

tiré de [45] et adapté au cas où film et substrat ont les mêmes constantes élastiques. Le terme θ_{ijkl} est tel que $\theta_{ijij} = 1$, $\theta_{iijj} = \nu$, $\theta_{ijji} = -\nu$ et $\theta_{ijkl} = 0$ dans les autres cas, avec $i, j, k, l \in \{x, y\}$. Cette équation peut aussi être notée sous la forme :

$$F^{el} = \int d\vec{r} h(\vec{r}) \left[1 - \frac{1}{2} \mathcal{H}_{ii}(h) - |\nabla h|^2 + \mathcal{H}_{xx}[h]^2 + \mathcal{H}_{yy}[h]^2 + 2(1 - \nu) \mathcal{H}_{xy}[h]^2 + 2\nu \mathcal{H}_{xx}[h] \mathcal{H}_{yy}[h] \right], \quad (3.12)$$

cette énergie libre sera utilisée au chapitre 6 pour modéliser l'élasticité dans nos simulations Monte Carlo cinétiques.

3.1.1 Dynamique de croissance

Une fois le potentiel chimique calculé, à partir de l'effet de l'énergie de surface (E.3) et des effets élastiques (3.10), il ne reste plus qu'à utiliser les équations d'évolution de la morphologie du système. Nous avons vu précédemment comment le flux de diffusion et l'équation d'évolution sont obtenus (section 2.3).

Nous rappelons que l'équation de diffusion de surface est :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = \Omega(F - \nabla_s \cdot \vec{J}), \quad (3.13)$$

en présence d'un flux F , où ∇_s est le gradient de surface. L'équation complète, incluant les termes linéaires, non-linéaires et de mouillage, de l'évolution de la morphologie du film peut être écrite sous la forme :

$$\begin{aligned} \frac{\partial h}{\partial t} = & F + \Delta \left[- (1 + \gamma_h(h)) \Delta h + \left(1 - \frac{1}{2} |\nabla h|^2 \right) \frac{d\gamma_h}{dh} - \mathcal{H}_{xx}[h] - \mathcal{H}_{yy}[h] \right. \\ & + 2h\Delta h + |\nabla h|^2 + 4(1 - \nu) \mathcal{H}_{xy}[h] \mathcal{H}_{xy}[h] + \mathcal{H}_{xx}[h]^2 + \mathcal{H}_{yy}[h]^2 \\ & + 2\mathcal{H}_{xx}[h] (\mathcal{H}_{xx}[h] + \nu \mathcal{H}_{yy}[h]) + 2\mathcal{H}_{yy}[h] (\mathcal{H}_{yy}[h] + \nu \mathcal{H}_{xx}[h]) \\ & \left. + 2(1 - \nu) \mathcal{H}_{xy}[h]^2 + 2\nu \mathcal{H}_{xx}[h] \mathcal{H}_{yy}[h] \right], \quad (3.14) \end{aligned}$$

en utilisant les unités adimensionnées définies en (2.42) et (2.43). Les termes en $\gamma_h(h)$ représentent le mouillage vu en (2.50). On retrouve la partie linéaire du calcul dans les termes $-\mathcal{H}_{xx}[h] - \mathcal{H}_{yy}[h]$ et $-\Delta h$.

3.2 Résolution numérique

La résolution numérique de l'équation (3.14) fait appel à une méthode pseudo-spectrale. Le calcul fait ressortir plusieurs produits de convolution dans l'espace de Fourier, qui seraient relativement difficiles (et longs) à calculer numériquement. Or dans l'espace réel ces produits de convolution sont des produits simples, ce qui est beaucoup plus facile à manipuler. Au cours du programme on utilisera donc de nombreuses transformées de Fourier et transformées inverses, qui sont optimisées par rapport à un calcul général d'intégrale (qui interviendrait dans les produits de convolution), de manière à passer dans l'espace réel ou dans l'espace de Fourier, selon ce qui simplifie le plus les calculs. En pratique des transformées de Fourier discrètes sont utilisées (bibliothèque de fonctions `fft` pour C++).

La résolution en elle-même est une méthode pseudo spectrale utilisant une méthode de différentiation Runge-Kutta du 4e ordre décrite dans [57] ou [58]. Nous allons décrire cette méthode un peu plus en détail. On prend \mathcal{L} la partie linéaire (constante) de l'équation (2.40) et \mathcal{N} sa partie non linéaire. L'équation est donc de la forme :

$$\dot{h} = \mathcal{L}h + \mathcal{N}(h, t). \quad (3.15)$$

Pour commencer, on met un facteur $e^{-\mathcal{L}h}$ à l'équation précédente, et on l'intègre entre t_n et $t_{n+1} = t_n + dt$:

$$h(t_{n+1}) = h(t_n)e^{\mathcal{L}dt} + e^{\mathcal{L}dt} \int_0^{dt} e^{-\mathcal{L}\tau} \mathcal{N}(h(t_n + \tau), t_n + \tau) d\tau, \quad (3.16)$$

on cherche alors une approximation à cette équation. On prend \mathcal{N} constant entre t_n et t_{n+1} , et on obtient :

$$h(t_{n+1}) = h(t_n)e^{\mathcal{L}dt} + \frac{(e^{\mathcal{L}dt} - 1)}{\mathcal{L}} \mathcal{N}(h(t_n), t_n), \quad (3.17)$$

l'erreur est alors de $dt^2 \dot{\mathcal{N}}/2$.

La méthode de Runge-Kutta du second ordre consiste à reprendre l'équation (3.17), ce qui permet d'obtenir une première étape :

$$a_n = h_n e^{\mathcal{L}dt} + \frac{(e^{\mathcal{L}dt} - 1)}{\mathcal{L}} \mathcal{N}(h(t_n), t_n), \quad (3.18)$$

où $h_n = h(t_n)$. Une nouvelle approximation de \mathcal{N} est prise entre t_n et t_{n+1} ,

$$\mathcal{N} = \mathcal{N}(h_n, t_n) + (t - t_n) (\mathcal{N}(a_n, t_n + dt) - \mathcal{N}(h_n, t_n)) / dt + O(dt^2) \quad (3.19)$$

et est utilisée dans l'équation (3.16) pour donner la fin de la méthode :

$$h(t_{n+1}) = a_n + (\mathcal{N}(a_n, t_n + dt) - \mathcal{N}(h_n, t_n)) \frac{(e^{\mathcal{L}dt} - 1 - \mathcal{L}dt)}{\mathcal{L}dt^2}, \quad (3.20)$$

où l'erreur est $-dt^3\ddot{\mathcal{N}}/12$.

La méthode de 4e ordre n'est pas redémontrée ici, et donne, pour un intervalle de temps dt entre deux étapes n et $n + 1$ du calcul :

$$a_n = e^{\mathcal{L}dt/2}h_n + \mathcal{L}^{-1}(e^{\mathcal{L}dt/2} - \mathcal{I})\mathcal{N}(h_n, t_n) \quad (3.21)$$

$$b_n = e^{\mathcal{L}dt/2}h_n + \mathcal{L}^{-1}(e^{\mathcal{L}dt/2} - \mathcal{I})\mathcal{N}(a_n, t_n + dt/2) \quad (3.22)$$

$$c_n = e^{\mathcal{L}dt/2}a_n + 2\mathcal{L}^{-1}(e^{\mathcal{L}dt/2} - \mathcal{I})(\mathcal{N}(b_n, t_n + dt/2) - \mathcal{N}(h_n, t_n)) \quad (3.23)$$

$$\begin{aligned} h_{n+1} = & e^{\mathcal{L}dt}h_n + \frac{1}{(dt)^2\mathcal{L}^3} \left(\mathcal{N}(h_n, t_n)[-4 - \mathcal{L}dt + e^{\mathcal{L}dt}(4 - 3\mathcal{L}dt + (\mathcal{L}dt)^2] \right. \\ & + 2(\mathcal{N}(a_n, t_n + dt/2) + \mathcal{N}(b_n, t_n + dt/2))[2 + \mathcal{L}dt + (-2 + \mathcal{L}dt)e^{\mathcal{L}dt}] \\ & \left. + \mathcal{N}(c_n, t_n + dt)[-4 - 3\mathcal{L}dt - (\mathcal{L}dt)^2 + e^{\mathcal{L}dt}(4 - \mathcal{L}dt)] \right). \end{aligned} \quad (3.24)$$

Techniquement, les résolutions numériques que nous avons effectuées reprennent ces quatre étapes en utilisant les termes linéaires et non-linéaires appropriés. La partie non-linéaire est calculée en alternant entre l'espace de Fourier pour les dérivés et l'espace réel pour les produits entre fonctions de h . La partie linéaire de l'équation (3.14) est $\mathcal{L} = k^3 - k^4$.

3.3 Résultats

La résolution numérique permet d'obtenir les résultats montrés sur la figure 3.1 en ne prenant en compte que le mouillage et l'élasticité non linéaire. Le mûrissement du système est ininterrompu dans le cas d'une énergie de surface isotrope et interrompu dans le cas où les facettes sont prises en compte [45, 55, 56].

Dans le cas où l'on considère seulement les effets élastiques et de mouillage [45], des lois de puissance sont observées pour l'évolution de la rugosité et de la densité d'îlots. On rappelle que la rugosité w est définie par :

$$w = \sqrt{\langle h^2 \rangle - \langle h \rangle^2}, \quad (3.25)$$

où h est la hauteur du film. Plus précisément, dans le cas sans flux (recuit), la densité d'îlots $N(t)$ et la rugosité $w(t)$ évoluent en loi de puissance :

$$w(t) \sim t^\beta, \quad (3.26)$$

$$N(t) \sim \frac{1}{t^\zeta}, \quad (3.27)$$

avec dans le cas d'un système 3D des valeurs de $\beta = 0.7$ et $\zeta = 1.3$ (voir la figure 3.3). Le mûrissement est donc ininterrompu et, dans les cas 2D, on peut même observer le mûrissement jusqu'à la formation d'un îlot unique. Il est également remarquable que les exposants observés ne correspondent pas aux exposants habituels du mûrissement

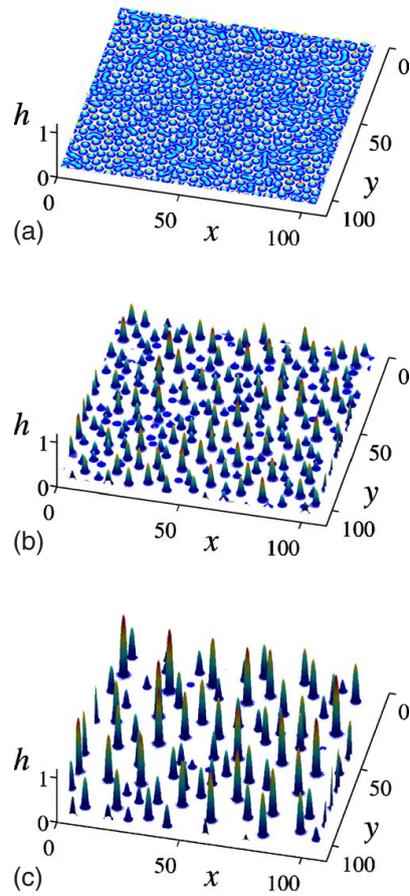


FIGURE 3.1 – Évolution temporelle d'un système après résolution numérique du calcul non-linéaire (d'après 3.1). Les temps adimensionnés sont 3,9 pour (a), 8,3 pour (b) et 13,9 pour (c).

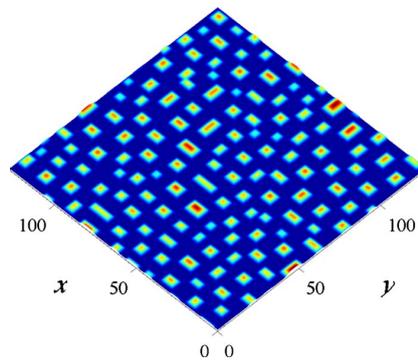


FIGURE 3.2 – Résolution de l'équation d'évolution non-linéaire incluant une anisotropie d'énergie de surface (d'après [55]). 15,2 MC ont été déposées, et la figure correspond à 500 min de recuit.

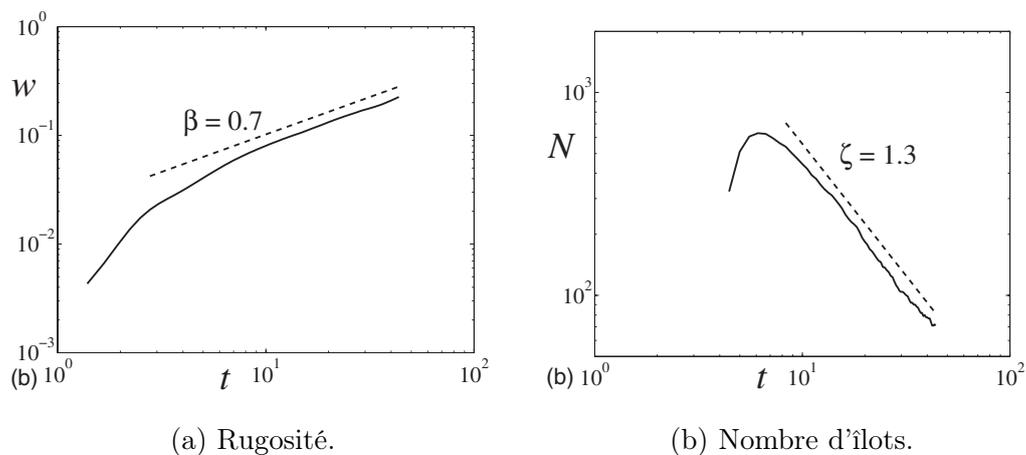


FIGURE 3.3 – Rugosité et densité d'îlots en fonction du temps. Source [45].

d'Ostwald sur une surface. L'effet des interactions élastiques à longue portée se fait ainsi sentir aussi sur la dynamique de mûrissement.

Au contraire, les études incluant l'anisotropie d'énergie de surface [55, 56] (voir la figure 3.2) donnent un mûrissement interrompu. Ceci est visible par exemple sur la figure 3.4, où on peut observer que la rugosité cesse d'augmenter après un certain temps. L'interruption du mûrissement a été expliquée par le fait que la différence de potentiel chimique entre les îlots, qui est la cause du mûrissement d'Ostwald, devient très faible entre des îlots de forme similaire [56]. La méthode utilisée pour inclure ces effets est décrite en annexe E.

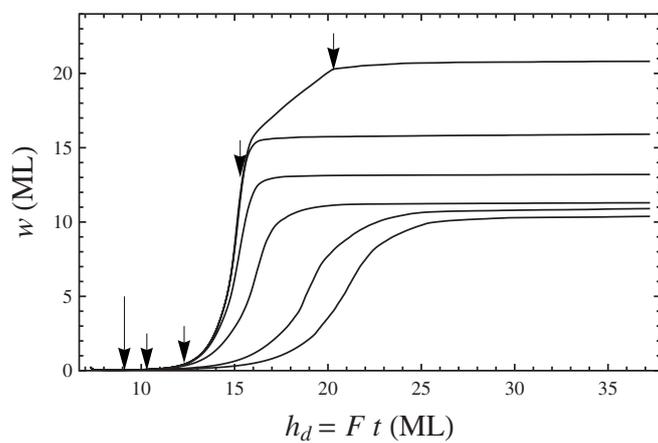


FIGURE 3.4 – Évolution temporelle de la rugosité au cours du dépôt et du recuit, les flèches indiquent le temps où le dépôt cesse pour chacune des courbes. Source : [55].

Chapitre 4

Instabilité de Grinfeld anisotrope

Sommaire

| | | |
|-----|---|----|
| 4.1 | Modélisation élastique linéaire | 55 |
| 4.2 | Énergie élastique non linéaire anisotrope | 59 |
| 4.3 | Modèle de transport de la matière | 60 |
| 4.4 | Dynamique linéaire | 62 |

Des observations, notamment par AFM, de nanostructures allongées sur une surface semi-polaires ont été effectuées dans le laboratoire CRHEA [20] après un dépôt de GaN sur $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$. Ces structures ont des propriétés optiques assez différentes des structures habituellement observées, en particulier une émission de photoluminescence à plus haute énergie, ce qui permet d'émettre dans l'ultraviolet. Nous avons tenté de modéliser la croissance de ces nanostructures qui pourraient avoir des applications à travers la fabrications de DEL émettant dans l'ultraviolet : purification d'eau, remplacement des lampes à mercure, etc... Cette croissance s'effectue selon le mode Stransky-Krastanov avec un désaccord de maille relativement faible de 1,5% en moyenne. La particularité de ce désaccord est son anisotropie, qui induit une anisotropie de contrainte élastique dans le plan de croissance. Il est respectivement de 1,24 et 1,78% selon les directions $[1-100]$ et $[-1-123]$. Les nanostructures formées ont tendance à avoir une forme allongée avec une longueur selon la direction $[1-100]$ au moins deux fois supérieure à leur longueur selon $[-1-123]$ (voir la figure 4.1).

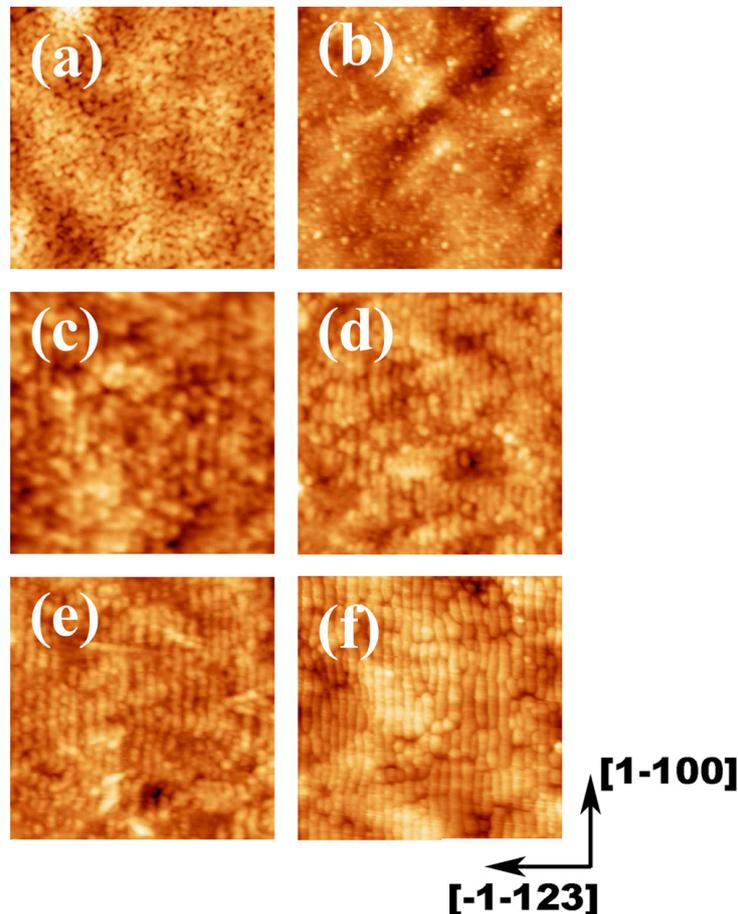


FIGURE 4.1 – Images par microscopie à force atomique de la croissance d'îlots semi-polaires (11-22) de GaN sur $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$ avec des dépôts respectifs de 0, 4, 6, 9, 12, 16 MC de GaN pour les figures (a) à (f). Figure tirée de [20].

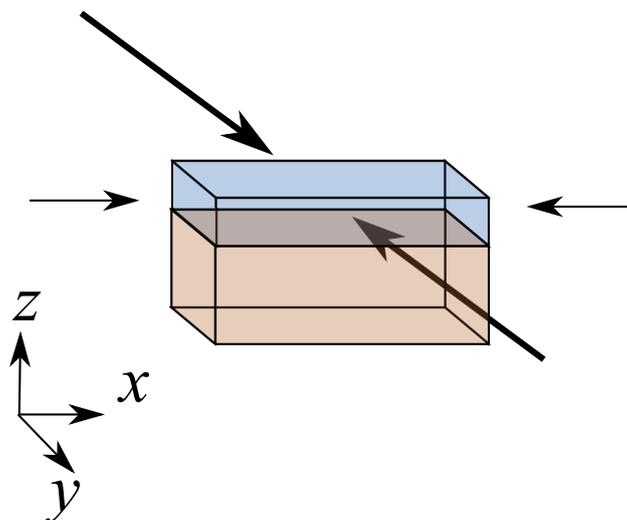


FIGURE 4.2 – Schéma d'un film contraint sur un substrat, où la contrainte n'est pas isotrope. Ici la contrainte selon \hat{y} est plus importante que celle selon \hat{x} .

Pour rendre compte de cette anisotropie observée, nous avons introduit dans notre modèle continu l'anisotropie de désaccord de maille. Ainsi, nous avons enrichi notre modèle d'instabilité ATG en introduisant cette différence de désaccord de maille entre deux directions. Nous présentons tout d'abord les résultats de l'analyse de stabilité linéaire. Elle révèle le rôle crucial de l'anisotropie qui engendre une augmentation du rapport d'aspect des îlots et du taux de croissance de l'instabilité. Nous effectuons ensuite une analyse non-linéaire afin d'étudier la dynamique du mûrissement des îlots par la résolution numérique des équations non-linéaires. Nous montrons l'influence de l'anisotropie de désaccord de maille sur la dynamique de croissance en observant l'évolution de la rugosité et des morphologies des îlots produits.

4.1 Modélisation élastique linéaire

Nous modélisons le système comme étant un film plus contraint dans une direction (ici \hat{y}) que dans l'autre (ici \hat{x}), voir la figure 4.2. Nous reprenons alors le calcul linéaire du cas isotrope, présenté au chapitre 2, mais en choisissant un désaccord de maille dont la valeur est différente dans deux directions différentes. Nous définissons $\bar{\eta}$ le désaccord de maille moyen et $\delta\eta$ la différence de désaccord de maille entre les deux directions orthogonales principales. Le désaccord de maille entre le film et le substrat dans les trois directions est donc :

$$\begin{pmatrix} \bar{\eta} - \delta\eta \\ \bar{\eta} + \delta\eta \\ \bar{\eta} \end{pmatrix}. \quad (4.1)$$

Le calcul du déplacement dans le film à l'ordre 0 donne une solution qui ne fait intervenir que le désaccord moyen $\bar{\eta}$:

$$\vec{u}_0 = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ z\bar{\eta}\frac{1+\nu}{1-\nu} \end{pmatrix}. \quad (4.2)$$

Nous effectuons le calcul linéaire du déplacement dans le film, avec un désaccord de maille anisotrope. En revanche nous considérons des constantes élastiques isotropes. La méthode employée est ainsi similaire à celle utilisée pour le calcul avec un désaccord isotrope. L'équilibre mécanique impose l'équation de Lamé dans le substrat et le film :

$$(1 - 2\nu)\Delta\vec{u}^\alpha + \nabla(\nabla\vec{u}^\alpha) = \vec{0}, \quad (4.3)$$

avec $\alpha = f$ pour le film et $\alpha = s$ pour le substrat. Le désaccord anisotrope est introduit lors du calcul du tenseur des déformations du film (2.13) :

$$e_{(i,j)}^f = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i^f}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j^f}{\partial x_i} \right) - \begin{pmatrix} \bar{\eta} - \delta\eta & 0 & 0 \\ 0 & \bar{\eta} + \delta\eta & 0 \\ 0 & 0 & \bar{\eta} \end{pmatrix}. \quad (4.4)$$

Le tenseur des contraintes, toujours donné dans le cas de l'élasticité isotrope, donne :

$$\sigma^f = \frac{Y}{1 + \nu} e^f - \frac{Y\nu}{-1 + \nu + 2\nu^2} (\text{Tr}(e^f)) \mathbb{1}, \quad (4.5)$$

où l'anisotropie de désaccord de maille est incluse à travers l'équation (4.4). Nous appliquons ensuite les conditions aux limites, comme dans les chapitres 2 et 3 : continuité des contraintes et des déformations à l'interface entre substrat et film, et contrainte nulle à la surface du film. L'application de ces conditions donne le déplacement à l'ordre linéaire de la perturbation de la surface du film $h(\vec{r}) = h_0 + \epsilon h_k e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}$ dans le film :

$$u_x = \frac{i\epsilon h_k k_x e^{-h_0 k + kz - i\vec{k}\cdot\vec{r}}}{k^4(1 - \nu)} \left\{ \bar{\eta} [k^4(z - h_0)(1 + \nu) + 2k\nu(1 - \nu)(k_x^2 + k^2)] + \delta\eta [k(1 - \nu)(k_y^2 - k_x^2)(z - h_0) - 2\nu k_y^2 k(1 - \nu)] \right\} \quad (4.6)$$

$$u_y = \frac{i\epsilon h_k k_y e^{-h_0 k + kz - i\vec{k}\cdot\vec{r}}}{k^4(1 - \nu)} \left\{ \bar{\eta} [k^4(z - h_0)(1 + \nu) + 2k\nu(1 - \nu)(k_y^2 + k^2)] + \delta\eta [k(1 - \nu)(k_x^2 - k_y^2)(z - h_0) - 2\nu k_x^2 k(1 - \nu)] \right\} \quad (4.7)$$

$$u_z = \frac{\bar{\eta}(\nu + 1)z}{1 - \nu} + \frac{h_k \epsilon (h_0 k - kz - 2\nu + 1)}{k^2(\nu - 1)} e^{-h_0 k + kz - i\vec{k}\cdot\vec{r}} [\bar{\eta}(k_x^2 + k_y^2)(\nu + 1) + \delta\eta(k_y^2 - k_x^2)(1 - \nu)]. \quad (4.8)$$

La présence de l'anisotropie de désaccord de maille brise naturellement la symétrie entre les directions x et y .

En procédant comme au chapitre 2 (voir équation (2.34)) nous calculons le potentiel chimique élastique, que nous décomposons de la manière suivante :

$$\mu = \mu_{iso} + \mu_{anis}, \quad (4.9)$$

où μ_{iso} , le potentiel chimique du cas isotrope (proportionnel à $\bar{\eta}^2$), est identique à celui du chapitre 2, et μ_{anis} est un nouveau terme lié au désaccord de maille anisotrope et proportionnel à $\bar{\eta}\delta\eta$ et $\delta\eta^2$. Les anciens et nouveaux termes sont respectivement :

$$\mu_{iso} = \frac{Y\bar{\eta}^2}{1-\nu} + \epsilon \frac{2h_k k Y \bar{\eta}^2 (1+\nu)}{(-1+\nu)}, \quad (4.10)$$

$$\begin{aligned} \mu_{anis} = & \frac{2\epsilon\delta\eta^2 h_k Y}{(1+\nu)k^3} \left((k_x^4 + k_y^4)(\nu-1) - 2\delta\eta k_x^2 k_y^2 (\nu+1) \right) \\ & + \frac{Y\delta\eta^2(\nu-1)}{(\nu-1)(1+\nu)} + \frac{2\epsilon\delta\eta\bar{\eta}h_k Y}{(1+\nu)k^3} \left(2(\nu+1)(k_x^4 - k_y^4) \right). \end{aligned} \quad (4.11)$$

Nous adimensionnons ensuite le calcul, avec

$$l_0 = \frac{\gamma(1-\nu)}{2E(1+\nu)\bar{\eta}^2}, \quad (4.12)$$

$$t_0 = \frac{l_0^4}{\gamma M \Omega^2}. \quad (4.13)$$

Nous définissons un facteur d'anisotropie de désaccord de maille relatif

$$\delta_a = \delta\eta/\bar{\eta}. \quad (4.14)$$

Le potentiel chimique vu en (4.9) est ensuite inséré dans l'équation d'évolution, comme vu précédemment dans le cas isotrope. Au final nous trouvons le taux de croissance :

$$\begin{aligned} \sigma = & -k^4 + k^3 + \frac{2\delta_a(1-\nu)(k_y^4 - k_x^4)}{k(\nu+1)} \\ & + \frac{\delta_a^2(1-\nu)[(1-\nu)(k_x^4 + k_y^4) + 2k_x^2 k_y^2 (\nu+1)]}{k(\nu+1)^2}, \end{aligned} \quad (4.15)$$

où l'on reconnaît le facteur $-k^4 + k^3$ de l'équation (2.45) correspondant à la partie isotrope. La figure 4.3 montre le taux de croissance en fonction de k_x et k_y . Le maximum du taux de croissance n'est plus sur un cercle tel que $k_{max} = \sqrt{k_x^2 + k_y^2} = 3/4$. Le maximum du taux de croissance est en

$$k_y = \frac{3[\delta\eta + \bar{\eta} + \nu(\bar{\eta} - \delta\eta)]^2}{4\bar{\eta}^2(1+\nu)^2}, \quad (4.16)$$

avec $k_x = 0$. Une direction de croissance va donc dominer par rapport aux autres. Nous verrons dans la section 4.4 comment ceci affecte la croissance de l'instabilité.

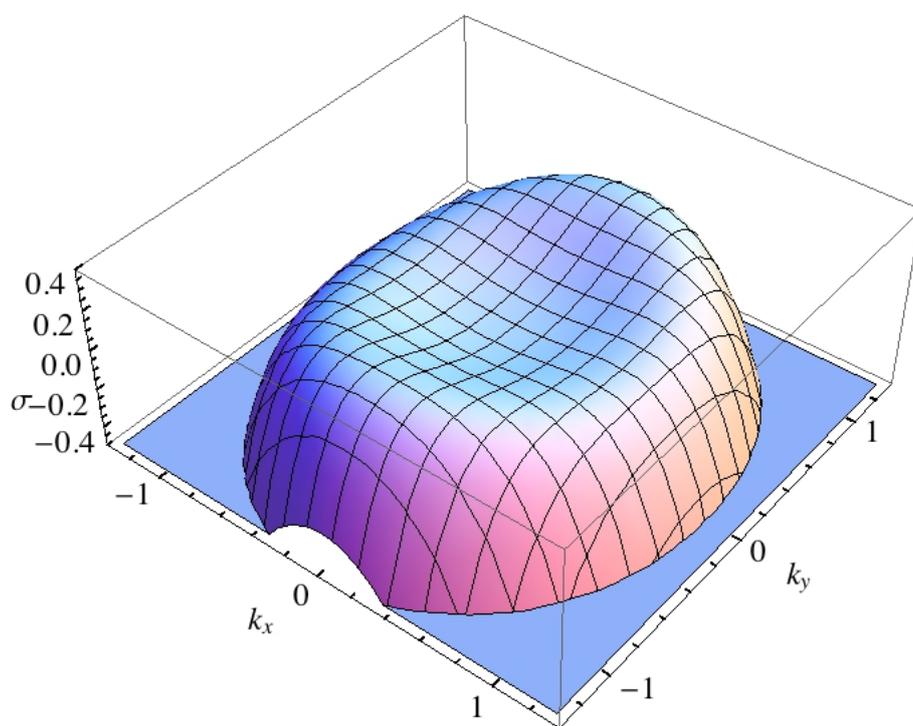


FIGURE 4.3 – Taux de croissance en fonction de k_x et k_y pour $\delta a = 0.18$. On observe la présence de deux maxima pour $k_x = 0$ et $k_y = \pm 0.86$.

4.2 Énergie élastique non linéaire anisotrope

De même que dans le cas isotrope (chapitre 3), le calcul effectué est exact à l'interface entre le film et le substrat. Nous déterminons donc les nouveaux termes non-linéaires en prenant la condition de contrainte nulle à la surface en $h(\vec{r})$ du film. Le calcul est détaillé davantage dans l'annexe D. Les nouveaux termes proportionnels à $\delta\eta\bar{\eta}$ de densité d'énergie élastique à la surface du film à l'ordre 2 en ϵ sont :

$$\begin{aligned} \mu_{el,anis}^{nl} = \frac{2\delta\eta\bar{\eta}Y}{1-\nu} & \left(- (h_x)^2 + (h_y)^2 + (1-2\nu)(\mathcal{R}_{xxx}(ihh_x) - \mathcal{R}_{yyy}(ihh_y)) \right. \\ & - 2(1-\nu^2)(\mathcal{H}_{xx}[h]^2 - \mathcal{H}_{yy}[h]^2) + h(3-2\nu)(h_{yy} - h_{xx}) - 2\nu(1-\nu)(\mathcal{T}_{yyyy}[h]^2 - \mathcal{T}_{xxxx}[h]^2) \\ & - 4\nu(1-\nu)(\mathcal{T}_{xyyy}[h]^2 - \mathcal{T}_{xxyy}[h]^2) - 8\nu(1-\nu)(\mathcal{T}_{xyyy}[h\mathcal{T}_{xyyy}[h]] - \mathcal{T}_{xxyy}[h\mathcal{T}_{xxyy}[h]]) \\ & \quad - 4\nu(1-\nu)(\mathcal{T}_{yyyy}[h\mathcal{T}_{yyyy}[h]] - \mathcal{T}_{xxxx}[h\mathcal{T}_{xxxx}[h]]) \\ & \quad \left. + 4(1-\nu^2)(\mathcal{H}_{yy}[h\mathcal{H}_{yy}[h]] - \mathcal{H}_{xx}[h\mathcal{H}_{xx}[h]]) \right), \quad (4.17) \end{aligned}$$

auxquels il faut ajouter les termes isotropes, proportionnels à $\bar{\eta}^2$, donnés en (3.10). Nous avons négligé les termes en $\delta\eta^2$, en supposant $\delta\eta$ petit devant $\bar{\eta}$. Les opérateurs utilisés dans l'équation (4.17) sont :

$$\mathcal{H}_{ij}[h] = \mathcal{F}^{-1} \left[\frac{k_i k_j}{k} \mathcal{F}(h) \right] \quad (4.18)$$

$$\mathcal{R}_{ijk}[h] = \mathcal{F}^{-1} \left[\frac{k_i k_j k_k}{k^2} \mathcal{F}(h) \right] \quad (4.19)$$

$$\mathcal{T}_{ijkl}[h] = \mathcal{F}^{-1} \left[\frac{k_i k_j k_k k_l}{k^3} \mathcal{F}(h) \right], \quad (4.20)$$

où l'opérateur \mathcal{H} est repris du calcul isotrope. Au final le potentiel chimique élastique, qui est donné par la densité d'énergie élastique à la surface du film, est :

$$\mu_{el} = \mu_{iso} + \mu_{anis} + \mu_{el}^{nl} + \mu_{el,an}^{nl} \quad (4.21)$$

où les trois premiers termes proviennent des équations (4.10), (4.11), (3.10), et le dernier terme correspond à celui de l'équation (4.17).

La densité d'énergie élastique à la surface vue en (4.17) est bien le résultat d'une dérivée fonctionnelle d'une énergie libre. Nous montrons ici que les termes du calcul de potentiel chimique correspondent effectivement au résultat d'une dérivée fonctionnelle, tous les termes sont normalisés par $Y/(1-\nu)$. Nous indiquons d'abord le terme du potentiel chimique, puis le terme dont il est la dérivée fonctionnelle.

En effet, le terme

$$- 4\nu(1-\nu)(\mathcal{T}_{xyyy}[h]^2 - \mathcal{T}_{xxyy}[h]^2) - 8\nu(1-\nu)(\mathcal{T}_{xyyy}[h\mathcal{T}_{xyyy}[h]] - \mathcal{T}_{xxyy}[h\mathcal{T}_{xxyy}[h]]) \quad (4.22)$$

dans $\mu_{el,an}^{nl}$ correspond à la dérivée fonctionnelle de

$$-4\nu(1-\nu) \int d\vec{r} (\mathcal{T}_{xyyy}[h]^2 - \mathcal{T}_{xxxy}[h]^2) h(\vec{r}), \quad (4.23)$$

tandis que

$$-2(1-\nu^2)(\mathcal{H}_{xx}[h]^2 - \mathcal{H}_{yy}[h]^2) + 4(1-\nu^2)(\mathcal{H}_{yy}[h\mathcal{H}_{yy}[h]] - \mathcal{H}_{xx}[h\mathcal{H}_{xx}[h]]) \quad (4.24)$$

dérive de

$$-2(1-\nu^2) \int d\vec{r} (\mathcal{H}_{xx}[h]^2 - \mathcal{H}_{yy}[h]^2) h(\vec{r}), \quad (4.25)$$

et

$$-2\nu(1-\nu)(\mathcal{T}_{yyyy}[h]^2 - \mathcal{T}_{xxxx}[h]^2) - 4\nu(1-\nu)(\mathcal{T}_{yyyy}[h\mathcal{T}_{yyyy}[h]] - \mathcal{T}_{xxxx}[h\mathcal{T}_{xxxx}[h]]) \quad (4.26)$$

dérive de

$$-2\nu(1-\nu) \int d\vec{r} (\mathcal{T}_{yyyy}[h]^2 - \mathcal{T}_{xxxx}[h]^2) h(\vec{r}), \quad (4.27)$$

et enfin,

$$-(h_x)^2 + (h_y)^2 + (1-2\nu)[\mathcal{R}_{xxx}[ihh_x] - \mathcal{R}_{yyy}[ihh_y]] + h(\vec{r})(3-2\nu)(h_{yy}(\vec{r}) - h_{xx}(\vec{r})) \quad (4.28)$$

dérive de

$$\int dr [(h_x)^2 - (h_y)^2] + (1-2\nu) \int d\vec{r} (\mathcal{R}_{xxx}[ihh_x] - \mathcal{R}_{yyy}[ihh_y]) h(\vec{r}). \quad (4.29)$$

Au final $\mu_{el,an}^{nl}$ est bien la dérivée fonctionnelle telle que $\mu_{el,an}^{nl} = \delta F_{anis}^{el} / \delta h$, où :

$$\begin{aligned} F_{anis}^{el} = & 2\delta\eta\bar{\eta} \int d\vec{r} \left(h4\nu(1-\nu)(-\mathcal{T}_{xyyy}[h]^2 + \mathcal{T}_{xxxy}[h]^2) + (h_x)^2 - (h_y)^2 \right. \\ & -2\nu(1-\nu)h(\mathcal{T}_{yyyy}[h]^2 - \mathcal{T}_{xxxx}[h]^2) - 2(1-\nu^2)h(\mathcal{H}_{xx}[h]^2 - \mathcal{H}_{yy}[h]^2) \\ & \left. + (1-2\nu)h(\mathcal{R}_{xxx}[ihh_x] - \mathcal{R}_{yyy}[ihh_y]) \right). \end{aligned} \quad (4.30)$$

Dans la section suivante nous allons présenter le modèle de la croissance dans le cas du GaN.

4.3 Modèle de transport de la matière

Traditionnellement, dans le cas de la croissance de SiGe, les effets d'évaporation sont négligeables aux températures habituelles de croissance. Mais dans le cas des nitrures, l'évaporation pourrait jouer un plus grand rôle étant donné que la pression

de vapeur saturante dans le gaz est plus élevée. Nous commençons donc par présenter un modèle de transport avec les effets d'évaporation.

L'effet de l'évaporation et de la recondensation sur la croissance cristalline a déjà été modélisé à partir de considérations thermodynamiques (voir par exemple [59], partie I ou [4], chapitre 8). Nous avons pris en compte l'effet de l'évaporation en utilisant ces modèles, et combiné ce nouveau facteur à l'effet de la diffusion de surface associée à l'énergie de surface décrite précédemment.

Dans le cadre d'une dynamique avec évaporation et condensation, l'évolution de la surface est régie par :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -\frac{f_{eq}}{k_b T} \Delta \mu, \quad (4.31)$$

où $\Delta \mu = \mu - \mu_0$, avec μ le potentiel chimique du film, μ_0 le potentiel chimique du gaz que l'on considère comme étant constant et f_{eq} , le flux de déposition à la pression de saturation p_{eq} . Ici

$$f_{eq} = \frac{p_{eq}}{\sqrt{2\pi m k_b T}}, \quad (4.32)$$

avec p_{eq} la pression d'équilibre, m la masse atomique et T la température.

Le potentiel chimique du film est repris du calcul précédent, plus précisément la partie linéaire venant de l'équation (4.15) à laquelle on ajoute les parties non linéaires (équations (4.17) et (3.10)) et dépend donc des effets élastiques et d'énergie de surface. Nous ajoutons ces nouveaux termes modélisant l'évaporation et la condensation aux termes précédents modélisant la diffusion de surface liée aux gradients de potentiel chimique sur la surface (équations (2.39) et (2.40)). L'équation d'évolution totale est donc :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -\frac{f_{eq}}{k_b T} \Delta \mu - \Omega \nabla \cdot \vec{J}, \quad (4.33)$$

dans un cas sans flux de dépôt, avec $J = -D \nabla \mu$. Le potentiel chimique par unité de volume est :

$$\mu = \Omega (\mu_{el}^{Is} + \mu_{el}^{An} + \gamma \kappa + \frac{\partial \gamma}{\partial h} \frac{1}{\sqrt{1 + |\nabla h|^2}}), \quad (4.34)$$

où κ est la courbure de la surface. L'équation inclut les effets du mouillage (traduits par la dépendance de γ à l'épaisseur du film), d'énergie de surface et d'élasticité avec les termes élastiques décomposés en un terme de désaccord de maille isotrope μ_{el}^{Is} et un terme représentant les effets du désaccord de maille anisotrope μ_{el}^{An} .

Modélisation du mouillage : De même que dans les chapitres précédents, nous prenons en compte les effets de mouillage à l'aide de l'énergie de surface

$$\gamma = \gamma_f (1 + c_w e^{-h/\delta_w}) \quad (4.35)$$

où δ_w est la distance sur laquelle le mouillage a un effet et c_w mesure l'effet du mouillage en proportion de l'énergie de surface γ_f . Par souci de simplification, nous

avons ici repris le modèle du mouillage utilisé dans le cas du silicium-germanium, sachant que les nitrures de gallium développent un mode de croissance similaire au mode Stransky-Krastanov.

4.4 Dynamique linéaire

Nous allons décrire dans cette section la dynamique d'un film sous contrainte anisotrope. Par la suite, lorsque des valeurs numériques sont données, les valeurs suivantes sont utilisées pour GaN sur AlGaN : $Y=300 \text{ GPa}$ ¹, $\nu=0.4$, $^2\gamma=12 \text{ eV/nm}^2$ [61], où Y est le module de Young, ν le coefficient de Poisson et γ l'énergie de surface. Nous allons commencer par décrire les effets linéaires dans le cas où on considère comme condition initiale un film plan auquel on ajoute un léger bruit blanc.

Tout d'abord, évaluons l'effet du désaccord de maille anisotrope sur le taux de croissance maximum σ_{max} à partir de l'équation (4.15). En prenant les valeurs notées précédemment, on obtient le graphique de la figure 4.4a qui montre un taux de croissance maximum croissant avec δ_a à $\bar{\eta}$ fixé. On s'attend donc à une croissance plus rapide de l'instabilité avec l'augmentation de l'anisotropie de désaccord de maille à désaccord moyen constant. Dans le cas où le désaccord de maille est isotrope, l'instabilité croît plus vite quand le désaccord augmente (voir la figure 4.5), ce qui est assez intuitif : l'augmentation des effets élastiques se traduit par une augmentation de l'instabilité qu'elle cause. *Dans le cas où le désaccord n'est plus isotrope, c'est la direction au plus fort désaccord qui croît le plus vite, et qui va dicter la vitesse de croissance de l'instabilité.* Une augmentation de la différence relative de désaccord de maille va donc causer une augmentation du taux de croissance dans la direction qui croît le plus vite, donc une augmentation du taux de croissance maximum.

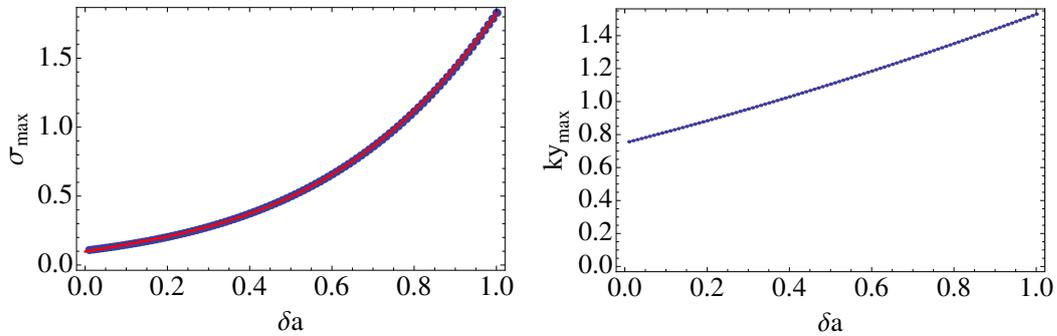
Parallèlement on peut calculer la longueur d'onde d'Asaro-Tiller-Grinfeld à partir du nombre d'onde $k_{y,max}$ et en fonction de δ_a (figure 4.4b). On observe une augmentation presque linéaire de $k_{y,max}$ avec δ_a . La longueur d'onde va donc diminuer si on augmente l'anisotropie de désaccord de maille δ_a . Ceci est similaire à ce qui se produit dans le cas isotrope quand on augmente le désaccord de maille (voir l'équation (2.48)).

La simulation du système linéaire est relativement simple : on part d'un bruit blanc d'amplitude faible dont on fait la transformée de Fourier pour lui appliquer l'équation d'évolution (4.33) dans l'espace de Fourier, qui s'intègre grâce à (4.15) (dans le cas sans effet d'évaporation). On peut s'attendre *a priori* à observer que la longueur d'onde dominante de l'instabilité corresponde au maximum du taux de croissance σ .

Le résultat de l'évolution d'un film, avec un bruit blanc en état initial, est visible sur la figure 4.6. Une longueur d'onde domine effectivement dans la direction \hat{y}

1. Un calcul de J. Brault à partir de [60] donne 289 GPa.

2. D'après <http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/GaN/mechanic.html> le coefficient est de 0,351 pour le GaN (100)



(a) Calcul du maximum du taux de croissance σ_{max} en fonction de l'anisotropie de désaccord de maille relative δ_a . La courbe rouge est un fit par un polynôme du 3e ordre.

(b) Calcul de $k_{y,max}$, valeur de k_y pour laquelle on a le maximum du taux de croissance σ_{max} en fonction de l'anisotropie de désaccord de maille relative δ_a . $k_{x,max}$ est toujours nul.

FIGURE 4.4 – Effets de l'anisotropie de désaccord de maille δ_a sur le taux de croissance σ .

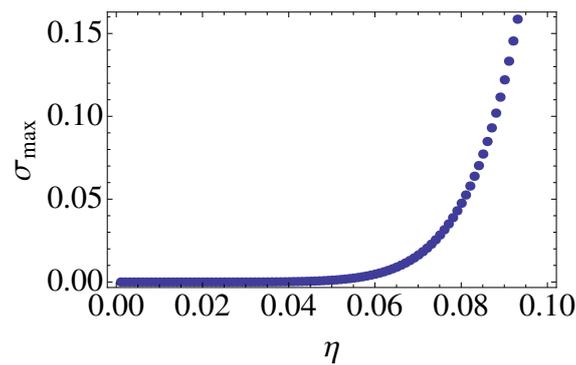
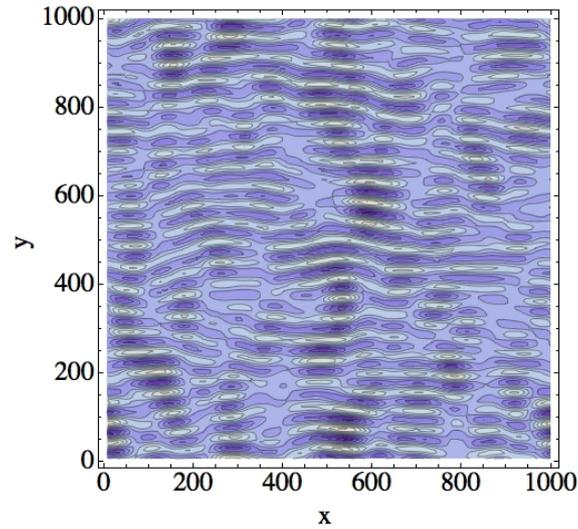


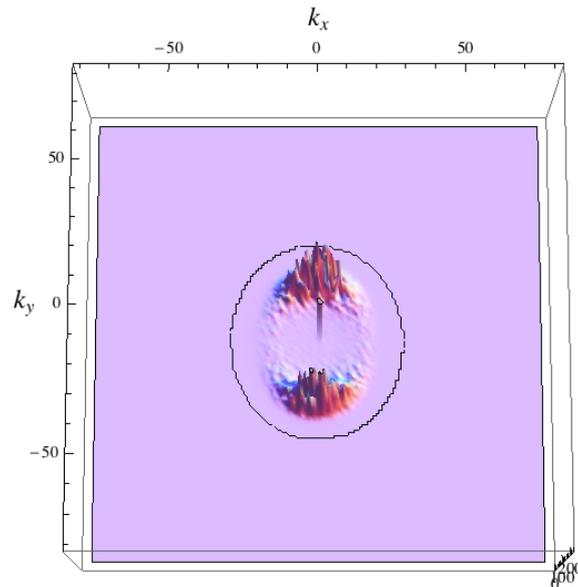
FIGURE 4.5 – Calcul du maximum du taux de croissance σ_{max} en fonction du désaccord de maille $\bar{\eta}$ dans le cas isotrope. Le taux de croissance est en unités arbitraires.

dans le cas avec anisotropie. À la différence du cas isotrope, l'instabilité évolue vers une morphologie anisotrope, avec des ondulations essentiellement étirées selon x et périodiques selon y . Ceci est mieux visible dans les courbes représentant la morphologie du film dans l'espace de Fourier où la différence apparaît clairement, avec des maxima d'amplitude autour de $k_x = 0$. La longueur d'onde de l'instabilité visible sur la figure 4.6 est proche de la valeur obtenue à l'aide du maximum du taux de croissance.

Le chapitre suivant va présenter les résultats de la résolution numérique de l'équation non-linéaire, et en particulier les effets de l'anisotropie de désaccord de maille et les effets de l'évolution par évaporation/condensation.



(a) Espace réel.



(b) Espace de Fourier.

FIGURE 4.6 – Simulation du calcul linéaire dans le cas où le désaccord de maille est anisotrope (désaccord plus grand dans la direction \hat{y}). La hauteur varie de 0 à 150 nm dans l'espace réel (l'échelle de la première figure est en nm). On peut voir sur la figure (b) les nombres d'ondes instables correspondant au maximum du taux de croissance autour de $k_x = 0$. Les paramètres sont proches de ceux de GaN sur AlGaN, avec $\delta_a = 0.18$, $Y = 289$ GPa et $\nu = 0.4$.

Chapitre 5

Dynamique du mûrissement dans le cas d'un film élastique sous contrainte anisotrope

Sommaire

| | | |
|-----|---|----|
| 5.1 | Morphologie d'un film sous contrainte anisotrope | 68 |
| 5.2 | Effets de l'anisotropie de désaccord de maille sans évaporation | 68 |
| 5.3 | Effets de l'évaporation | 71 |
| 5.4 | Lien avec l'expérience | 74 |
| 5.5 | Perspectives et ajouts possibles dans le modèle | 76 |

Dans ce chapitre nous allons présenter les résultats de la résolution numérique de l'équation non-linéaire d'évolution de la morphologie du film. Plus spécifiquement, nous allons commencer par décrire les effets de l'anisotropie de désaccord de maille sur le mûrissement des îlots et leur morphologie. *Nous allons en particulier montrer que l'anisotropie de désaccord de maille accélère l'augmentation de la rugosité par rapport au cas du désaccord isotrope, et que les structures linéaires formées augmentent la rugosité par rapport aux îlots isotropes.* Ensuite nous décrirons l'impact de la prise en compte d'un mécanisme d'évaporation sur la dynamique du film et nous décrirons le rapport de nos simulations aux expériences.

5.1 Morphologie d'un film sous contrainte anisotrope

Comme vu au chapitre précédent, en prenant comme point de départ un bruit blanc, le film commence par former des ondulations étirées selon x et périodiques selon y (voir par exemple la figure 5.5 (a) ou la figure 4.6). Ces ondulations correspondent aux effets de l'instabilité à l'ordre linéaire en ϵ . Ensuite des îlots commencent à se former en fragmentant les ondulations étirées (figure 5.5 (b) et (c)). Ces îlots vont ensuite évoluer sous l'effet d'un mûrissement d'Ostwald. D'une manière générale les îlots qui se forment sont légèrement allongés, mais cette fois selon la direction y .

5.2 Effets de l'anisotropie de désaccord de maille sans évaporation

Nous avons cherché à déterminer l'influence du paramètre supplémentaire qu'est l'anisotropie de désaccord de maille. Pour ce faire nous avons observé l'évolution de la rugosité en fonction du temps de dépôt ou de recuit pour plusieurs valeurs du paramètre $\delta\eta$. On rappelle que la rugosité w est :

$$w = \sqrt{\langle h^2 \rangle - \langle h \rangle^2}, \quad (5.1)$$

où celle-ci est donc homogène à une longueur.

La figure 5.1 montre l'évolution de la rugosité en faisant varier le paramètre δ_a (anisotropie de désaccord de maille relative) entre 0 (cas isotrope) et 0.3. Cette figure montre que, lors de la croissance, la rugosité des systèmes à fort désaccord de maille anisotrope augmente plus vite. Cet effet est dû à la dépendance du taux de croissance maximal à l'anisotropie de désaccord de maille, effet décrit dans l'analyse linéaire et que nous avons illustré sur la figure 4.4a. Nous montrons sur la figure 5.2 l'évolution de la rugosité pendant un recuit, toujours en faisant varier δ_a . Le point de départ de tous les cas présentés est une surface un peu rugueuse à une

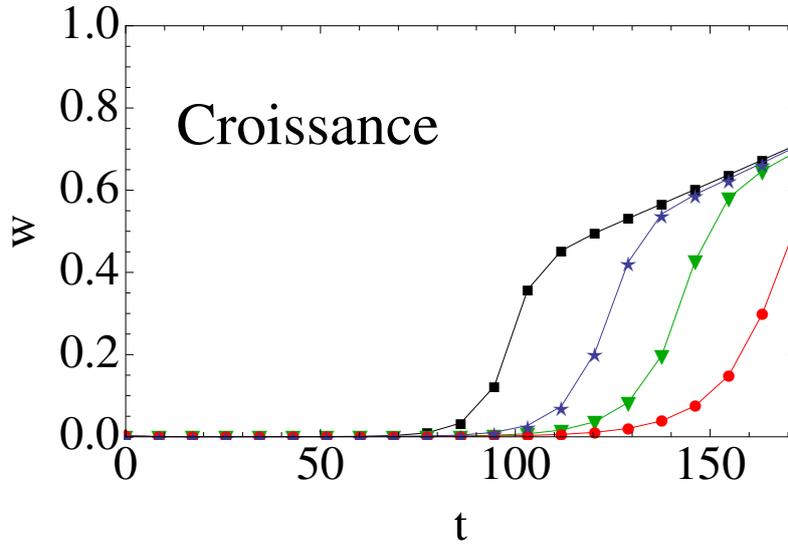


FIGURE 5.1 – Rugosité (en unités adimensionnées) en fonction du temps de dépôt (0 à 172). Le flux de dépôt est de 0.005 en unités adimensionnées. Les courbes représentent un paramètre δ_a variant de 0 (courbe rouge), 0.1 (courbe verte), 0.18 (courbe bleue), et 0.3 (courbe noire) à $\bar{\eta}$ fixé.

hauteur donnée (0,86 en unités adimensionnées, qui correspond à une vingtaine de monocouches, proche de la quantité de matière déposée sur la figure 4.1 (f)). Ici, de même que dans les cas de croissance présentés précédemment, la rugosité des systèmes à fort désaccord de maille anisotrope augmente plus vite si on augmente l'anisotropie de désaccord, mais on remarque cependant une inversion de cet ordre autour de $t \simeq 170$.

L'explication de l'évolution de la rugosité au début de la croissance ou du recuit peut se comprendre de la manière suivante. Au début, les effets linéaires dominent, et le taux de croissance maximum augmente avec l'anisotropie de désaccord de maille (figure 4.4a). Ceci est parfaitement observé avec l'effet sur la rugosité, qui croît plus vite avec l'augmentation de cette anisotropie de désaccord de maille. Ensuite, dans le cas du recuit et, dans une moindre mesure, dans le cas de la croissance, l'évolution de la rugosité ralentit, sauf dans le cas du désaccord isotrope. La rugosité du cas isotrope est même brièvement supérieure à celle des cas avec désaccord anisotrope, ce qui est bien visible sur la figure 5.3 représentant une croissance suivie d'un recuit ou encore sur la figure 5.2. Cet effet se produit lors de la transition du régime "linéaire" au régime "non-linéaire". Nous expliquons cette inversion d'ordonnement en fonction de l'anisotropie de désaccord par le fait qu'un système ayant une ondulation dans une seule direction, visible sur la figure 5.5 a) voit apparaître des îlots, comme vu figure 5.5 b). Or, de manière générale un système modulé selon une direction, par exemple $h(x, y) = \sin(x)$, a une plus forte rugosité qu'un système modulé selon deux directions, comme $h(x, y) = \sin(x) \sin(y)$. Donc quand, dans le cas avec anisotropie

5. Dynamique du mûrissement dans le cas d'un film élastique sous contrainte anisotrope

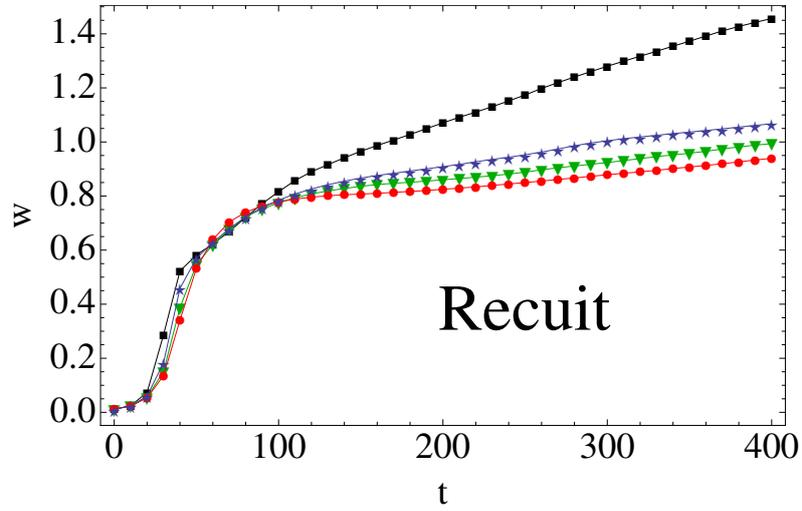


FIGURE 5.2 – Rugosité (en unités adimensionnées) en fonction du temps de recuit (0 à 400). De même que dans la figure 5.1, les courbes représentent un paramètre δ_a variant de 0 (courbe rouge), 0.1 (courbe verte), 0.18 (courbe bleue), et 0.3 (courbe noire).

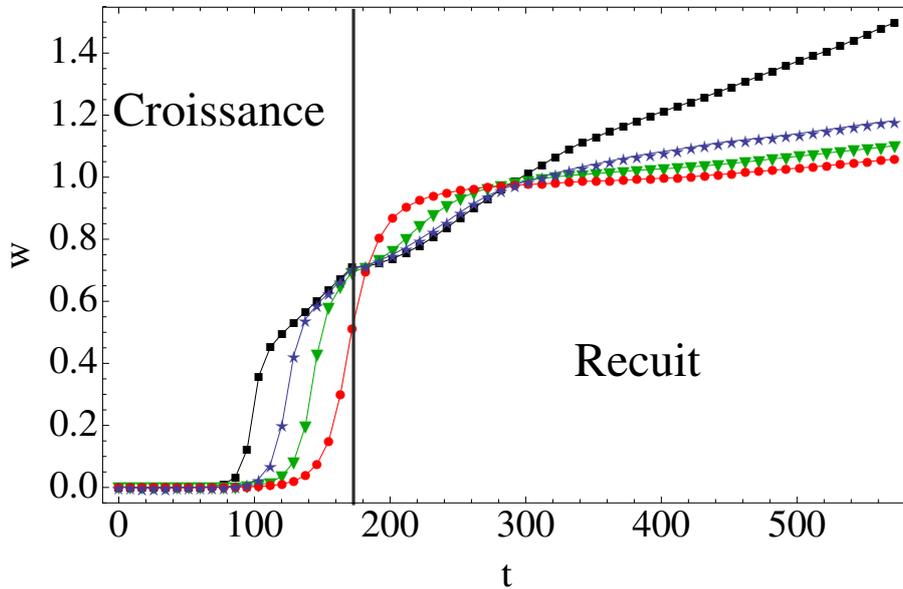
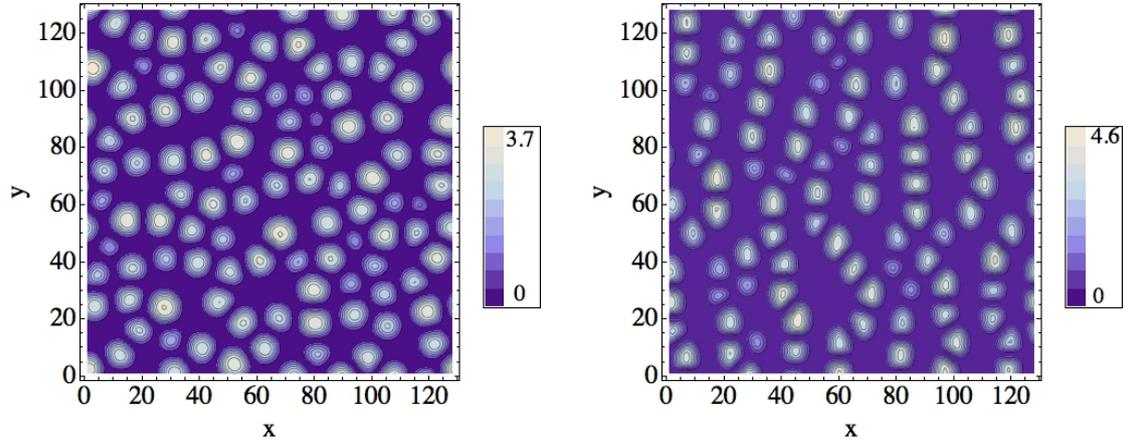


FIGURE 5.3 – Rugosité (en unités adimensionnées) en fonction du temps de dépôt (172) et de recuit (le tout en unités adimensionnées). Les courbes représentent un paramètre δ_a variant de 0 (courbe rouge), 0.1 (courbe verte), 0.18 (courbe bleue), et 0.3 (courbe noire).



(a) Sans anisotropie de désaccord de maille, $\delta a = 0\%$. (b) Avec anisotropie de désaccord de maille $\delta a = 18\%$. Désaccord plus grand dans la direction \hat{y} .

FIGURE 5.4 – Simulation non-linéaire du recuit de deux systèmes sans évaporation. Les longueurs sont en unités adimensionnées dans des systèmes de taille 128×128 . Les deux images correspondent à un recuit à $t = 400$.

de désaccord de maille, on passe d'une modulation principalement dans une direction à la formation d'îlots il n'est pas étonnant que l'évolution de la rugosité ralentisse comparé à un système de désaccord isotrope qui est lui modulé dans deux directions de manière égale. Enfin, dans le régime "non-linéaire" de mûrissement d'îlots, le mûrissement est plus rapide quand on augmente l'anisotropie de désaccord de maille. On retrouve alors l'ordonnancement présent lors de la partie linéaire de l'évolution. Ceci se voit à travers une rugosité plus élevée et des îlots plus hauts (figure 5.4) dans le cas avec anisotropie de désaccord de maille par rapport au cas isotrope. Ici le potentiel chimique dû à l'élasticité augmente avec l'anisotropie de désaccord de maille, ce qui explique l'évolution plus rapide du système quand on augmente δa .

On peut également regarder les effets qualitatifs de cette anisotropie, comme la forme des îlots après mûrissement avec et sans anisotropie de désaccord de maille (figures 5.4a et 5.4b). Les îlots qui se forment en présence d'un désaccord sont légèrement déformés selon une direction opposée à celle de l'ondulation linéaire (voir figure 4.6), donc selon la direction de plus fort désaccord de maille.

5.3 Effets de l'évaporation

Pour commencer, nous allons considérer l'effet de l'évaporation sur le taux de croissance de l'instabilité σ . L'équation (4.33) d'évolution est :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -\frac{f_{eq}}{k_b T} \Delta \mu - \Omega \nabla \cdot \vec{J}, \quad (5.2)$$

5. Dynamique du mûrissement dans le cas d'un film élastique sous contrainte anisotrope

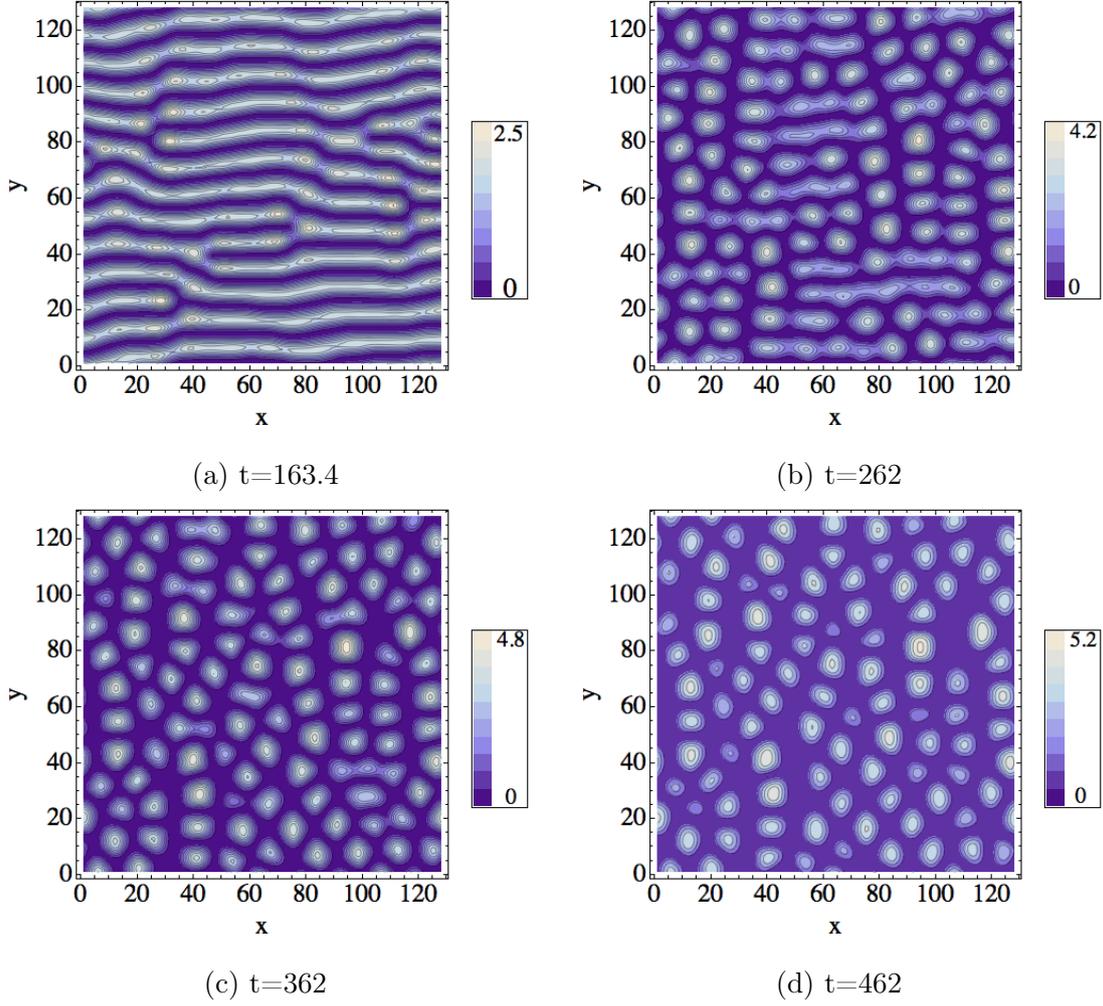


FIGURE 5.5 – Images d'un système sans évaporation avec une différence de désaccord de maille $\delta a = 18\%$ à quatre moments successifs d'un recuit (correspond à la courbe bleue de la figure 5.3). Les longueurs sont en unités adimensionnées. Les couleurs correspondent à des variations de hauteur relatives à chaque image (les îlots de la figure (d) sont plus hauts que ceux de la figure (a)).

avec

$$\vec{J} = -D\nabla\mu \quad (5.3)$$

et l'équation que nous considérons est donc

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -\frac{f_{eq}}{k_b T}(\mu - \mu_0) + \Omega D \Delta \cdot \mu, \quad (5.4)$$

qui permet de déduire un taux de croissance à l'ordre linéaire σ' , en considérant $C_{evap} = \frac{f_{eq}}{k_b T}$ et $C_{diffu} = \Omega D$. De plus, dans le cadre d'un système en transformée de Fourier, le terme $\nabla\nabla \cdot \mu$ correspond à $-k^2\mu$.

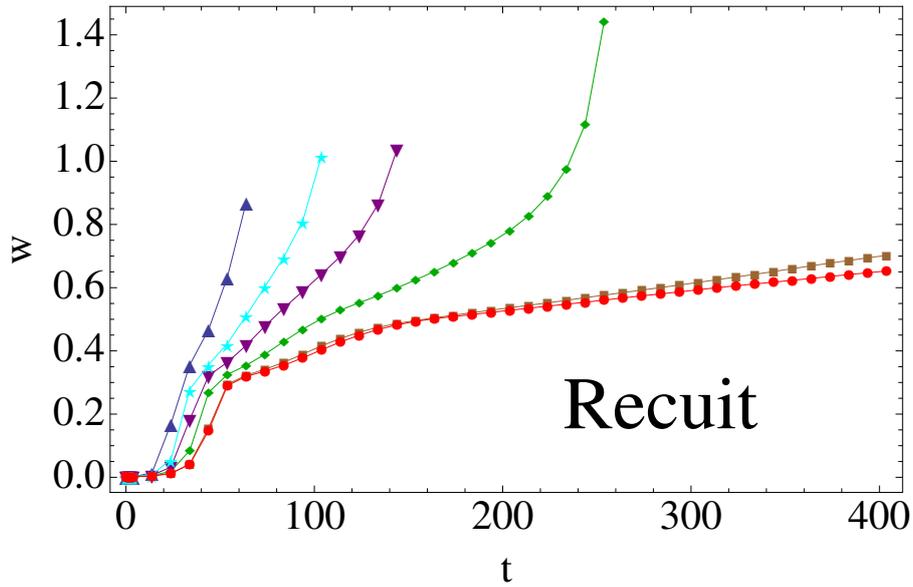


FIGURE 5.6 – Rugosité en fonction du temps de recuit (en unités adimensionnées). Les courbes représentent une proportion d'évaporation grandissante entre la courbe rouge (pas d'évaporation) et la courbe bleue (50% de la diffusion), respectivement 0, 0.01, 0.1, 0.2, 0.3, 0.5.

Nous comparons le cas où $C_{evap} = aC_{diff}$, avec $a > 0$, au cas où il n'y a pas d'évaporation $a = 0$. On obtient un nouveau taux de croissance $\sigma' > \sigma$, où σ est le taux de croissance du cas sans évaporation (voir l'équation (4.15)). On peut donc s'attendre à une croissance plus rapide de l'instabilité après l'ajout de l'évaporation. Plus précisément,

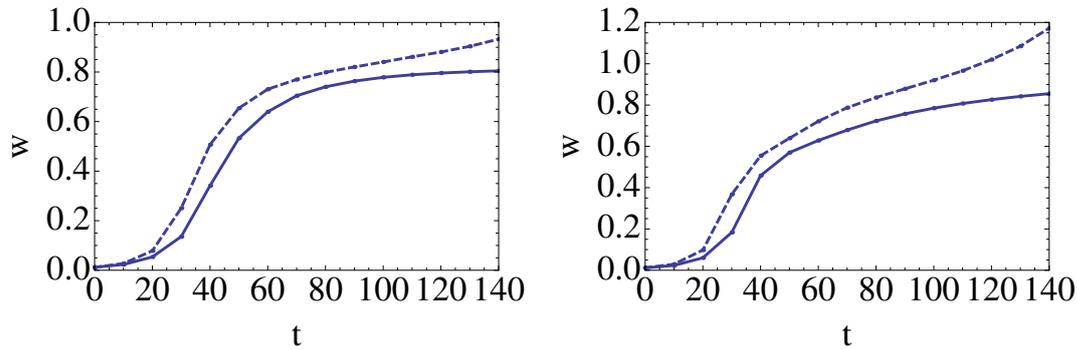
$$\sigma' = \sigma + \frac{a}{k^2}\sigma, \quad (5.5)$$

avec

$$\begin{aligned} \sigma = & -k^4 + k^3 + \frac{2\delta_a(1-\nu)(k_y^4 - k_x^4)}{k(\nu+1)} \\ & + \frac{\delta_a^2(1-\nu)((1-\nu)(k_x^4 + k_y^4) + 2k_x^2k_y^2(\nu+1))}{k(\nu+1)^2}, \end{aligned} \quad (5.6)$$

comme a est positif, le taux de croissance (et donc le taux de croissance maximum) sera toujours plus grand en présence d'effets d'évaporation, quand l'instabilité croît ($\sigma > 0$).

La figure 5.6 montre la rugosité du système en fonction du temps (en unités adimensionnées) avec plusieurs valeurs de l'évaporation. On peut voir que l'ajout de l'évaporation accélère l'augmentation de la rugosité après la fin du dépôt, mais que la forme générale de cette évolution reste la même. Ceci est cohérent avec le fait



(a) Rugosité (en unités adimensionnés) dans un cas sans anisotropie de désaccord de maille. (b) Rugosité (en unités adimensionnés) dans un cas où le désaccord de maille anisotrope relatif est $\delta_a = 18\%$.

FIGURE 5.7 – Évolution de la rugosité avec (courbe en pointillés) et sans (courbe continue) évaporation en fonction du temps de recuit (0 à 140). L'évaporation équivaut à 10 % de la valeur de la diffusion.

que le taux de croissance σ' en présence d'évaporation/condensation est supérieur à celui du cas sans évaporation/condensation. On peut également constater cette accélération de la croissance de l'instabilité sur les figures 5.7a et 5.7b qui comparent l'évolution de la rugosité d'un système avec et sans anisotropie de désaccord de maille suivant la prise en compte ou non de l'évaporation.

Globalement les systèmes incluant un peu d'évaporation se comportent de manière assez similaire au cas sans évaporation, mais évoluent plus vite (figure 5.7a), comme on pouvait s'y attendre étant donné que l'on ajoute un mécanisme de transport de matière qui va déplacer la matière en fonction du même potentiel chimique que le mécanisme de diffusion. Les figures 5.5 et 5.8 montrent l'évolution d'un système avec et sans évaporation. On voit que l'on tend à former plus rapidement un seul îlot et que les îlots formés lors du mûrissement s'alignent suivant la direction perpendiculaire à l'instabilité de départ. L'ajout d'évaporation tend à accélérer l'évolution du système.

5.4 Lien avec l'expérience

Le calcul de l'instabilité d'Asaro-Tiller-Grinfeld dans le cas d'un désaccord de maille anisotrope a été motivé par des recherches sur un système de ce type [20]. Comparer les résultats de nos calculs aux résultats expérimentaux, comme les images AFM (voir figure 4.1), est donc très intéressant.

On peut constater les similitudes entre le calcul linéaire (figure 4.6) et l'image (f) de la figure 4.1. Le désaccord de maille le plus important (1,78%) est présent dans la direction $[-1-123]$ expérimentalement, et dans la direction y dans nos calculs. On constate une bonne correspondance à ce niveau. Par contre, expérimentalement,

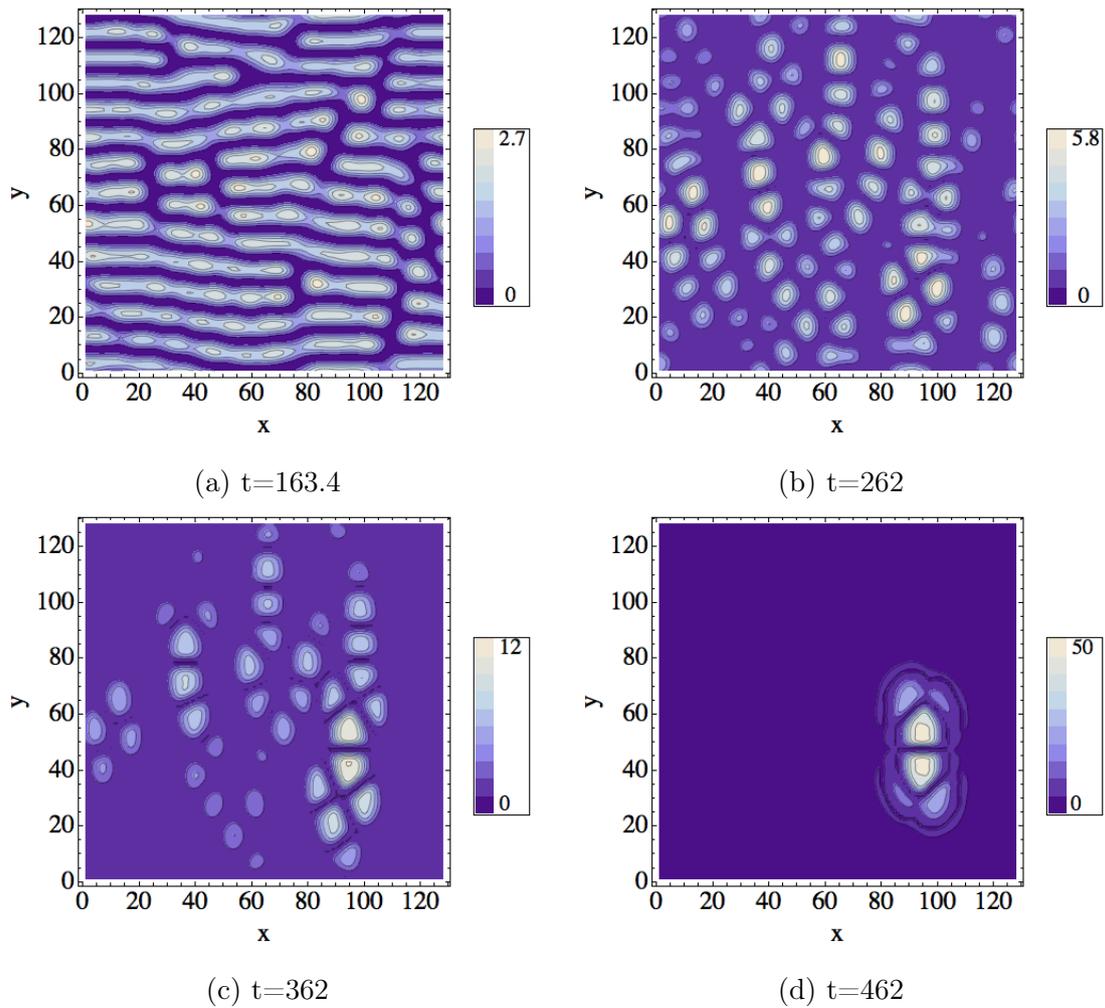


FIGURE 5.8 – Images d'un système avec évaporation avec une différence de désaccord de maille $\delta a = 18\%$ à quatre moments successifs d'un recuit, les paramètres étant identiques à ceux de la figure 5.5. Les longueurs sont en unités adimensionnées. Les couleurs correspondent à des variations de hauteurs relatives à chaque image (les îlots de la figure (d) sont plus hauts que ceux de la figure (a)).

les îlots allongés se forment par coalescence d'îlots plus petits. Dans le cas de notre modélisation, on est plutôt en présence d'une instabilité. De plus la résolution numérique du calcul non-linéaire donne des îlots qui mûrissent, ces îlots ont alors une forme allongée, mais dans une direction perpendiculaire aux îlots de l'instabilité linéaire.

5.5 Perspectives et ajouts possibles dans le modèle

Un ajout intéressant au calcul précédent serait l'inclusion de facettes, donc d'une anisotropie d'énergie de surface, comme cela a pu être fait pour d'autres systèmes [56]. Ceci pourrait permettre d'observer un mûrissement interrompu et d'influencer la forme finale des îlots. Dans le cas des nanostructures de GaN que nous cherchons à modéliser, des observations expérimentales par microscope électronique en transmission (TEM) et par RHEED ont permis de déterminer que les structures sont asymétriques [20]. Les facettes observées sont $\{11-20\}$ dans une direction et $\{11-23\}$ dans l'autre, sachant que les structures croissent sur le plan (11-22), qui est également la facette du dessus des îlots.

La connaissance assez précise de la valeur de la diffusion de surface permettrait de comparer l'évolution du système dans le temps par rapport aux expériences (on rappelle que l'adimensionalisation du temps utilise le coefficient de diffusion). Un calcul plus précis de l'effet de l'évaporation pourrait être utile, en pratique il faudrait rechercher une valeur de p_{eq} . L'évaporation/condensation ne donne qu'un effet sur la vitesse d'évolution, et celui-ci devrait être assez faible, on pourrait donc négliger cet effet supplémentaire, en particulier quand on cherche des effets indépendants de la vitesse d'évolution du système.

Deuxième partie

Simulations Monte Carlo cinétiques

Chapitre 6

Simulations Monte Carlo : le modèle

Sommaire

| | | |
|------------|---|-----------|
| 6.1 | Contexte expérimental | 80 |
| 6.2 | Bases des simulations Monte-Carlo cinétiques | 81 |
| 6.3 | Le modèle employé | 84 |
| 6.3.1 | Calcul de l'élasticité | 84 |
| 6.3.2 | Prise en compte de l'anisotropie cristalline | 87 |

Nous utilisons pour modéliser les effets de nucléation lors de la croissance d'îlots des simulations Monte Carlo cinétiques (Kinetic Monte Carlo). Cette technique permet la description d'un système hors-équilibre et des effets stochastiques [62]. Ce type de simulations est utilisé depuis les années 1990 pour étudier la croissance d'îlots 2D et 3D [63, 64].

Notre but ici est d'étudier la nucléation d'îlots 3D au cours de l'hétéroépitaxie, dans le cas où celle-ci est importante par rapport à l'instabilité ATG vue dans la première partie. Ceci est particulièrement vrai lors de la croissance de $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ sur Si pour $x > 0.5$. La nucléation d'îlots est un processus stochastique, les simulations Monte Carlo cinétiques sont donc une manière efficace d'étudier la dynamique de cette formation. Ces simulations ont été employées par le passé pour étudier la nucléation d'îlots bidimensionnels [6, 29]. Dans la suite de ce chapitre, nous allons généraliser ces simulations afin de décrire à la fois la diffusion de surface des atomes et leur dépôt mais aussi les interactions aux premiers voisins, l'élasticité et l'anisotropie cristalline. Dans nos simulations, nous calculons l'élasticité en utilisant un modèle basé sur les fonctions de Green d'un système semi-infini. Ce type de méthode permet de simuler des systèmes de grande taille dans un temps raisonnable. Ensuite nous avons introduit une anisotropie d'énergie de surface pour représenter les facettes (105) en utilisant des effets à courte portée.

En utilisant ce modèle, nous allons mesurer les densités d'îlots, leur distributions de volume ainsi que la rugosité du système en fonction de la température et du flux de déposition.

6.1 Contexte expérimental

Dans ce chapitre l'utilisation de simulations Monte Carlo cinétique va permettre la simulation de systèmes à fort désaccord de maille, ce qui rend la nucléation d'îlots incontournable. Nous allons plus particulièrement simuler la croissance d'îlots de Ge pur sur des substrats de Si, mais ce type de simulations peut également être modifié pour les systèmes similaires.

Expérimentalement, on constate la croissance d'îlots en forme de pyramides avec des facettes (105), de dômes et de superdômes [65]. Dans le cas du Ge sur Si les îlots forment des pyramides à faible volume et des dômes lorsqu'ils sont plus gros [66]. La composition peut aussi avoir une influence, mais dans ce chapitre nous négligerons son effet. La figure 6.1 montre une image STM des pyramides, dômes et superdômes (image tirée de [65]). Pour simplifier les simulations nous n'avons pris en compte que les pyramides et huttes possédant des facettes (105), ce qui permet de négliger la gestion des facettes supplémentaires qui apparaissent dans les dômes.

Expérimentalement, la croissance de Ge pur sur Si a été observée par STM [67], voir par exemple la figure 6.2 qui présente l'évolution d'un système de ce type. Cette évolution au cours de l'hétéroépitaxie commence par la formation d'une couche de mouillage (les trois premières monocouches déposées environ), avant de former des

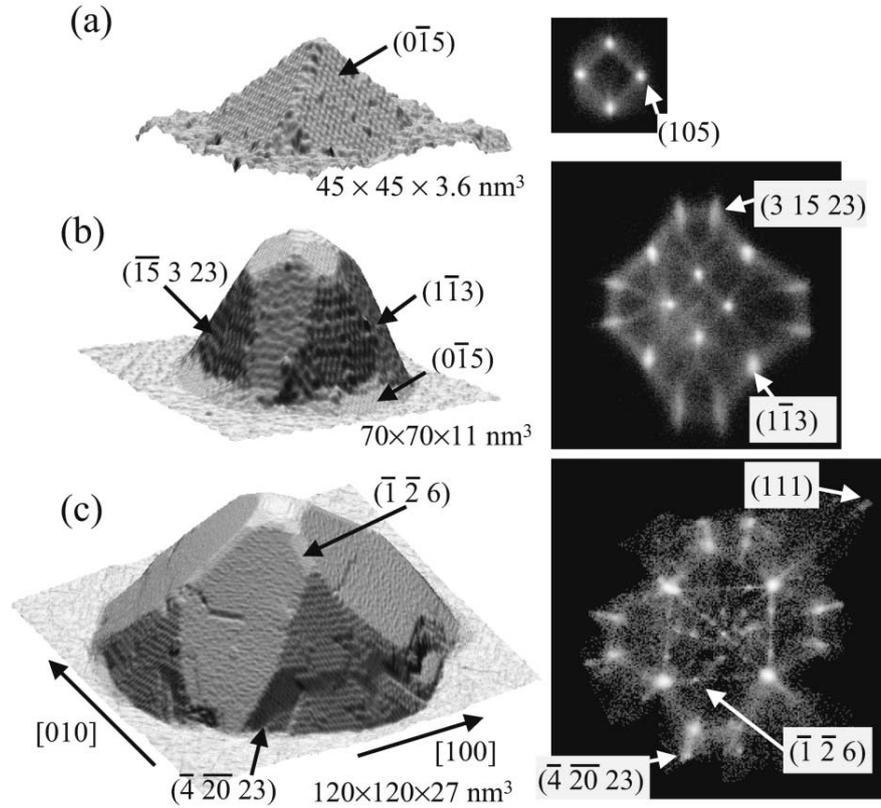


FIGURE 6.1 – Images STM de pyramides (a), dômes (b) et super dômes (c) de Ge sur Si, les images de droite correspondent à l’espace des phases et indiquent les facettes. Images tirées de [65].

îlots 3D, et en particulier des pyramides à facettes (105).

6.2 Bases des simulations Monte-Carlo cinétiques

Les premières simulations Monte Carlo datent de 1953 et de l’algorithme Metropolis [68]. Cette méthode permet de déterminer l’état d’équilibre d’un système (et par exemple de simuler le modèle d’Ising du magnétisme), avec à chaque étape un changement d’état dont la probabilité dépend de la différence d’énergie entre l’état de départ et l’état après le changement considéré. Le modèle de Monte Carlo cinétique (ou Kinetic Monte Carlo, KMC) permet, lui, d’étudier la dynamique de systèmes loin de l’équilibre. Contrairement au Monte Carlo “classique”, ce sont les barrières d’énergie à franchir qui sont considérées et ceci permet d’observer l’évolution temporelle, là où le Monte Carlo permet de déterminer l’état d’équilibre sans s’intéresser à la cinétique. On peut voir dans la figure 6.3 la barrière d’énergie δE (utilisée pour les probabilités du KMC) et la différence d’énergie ΔE (utilisée pour

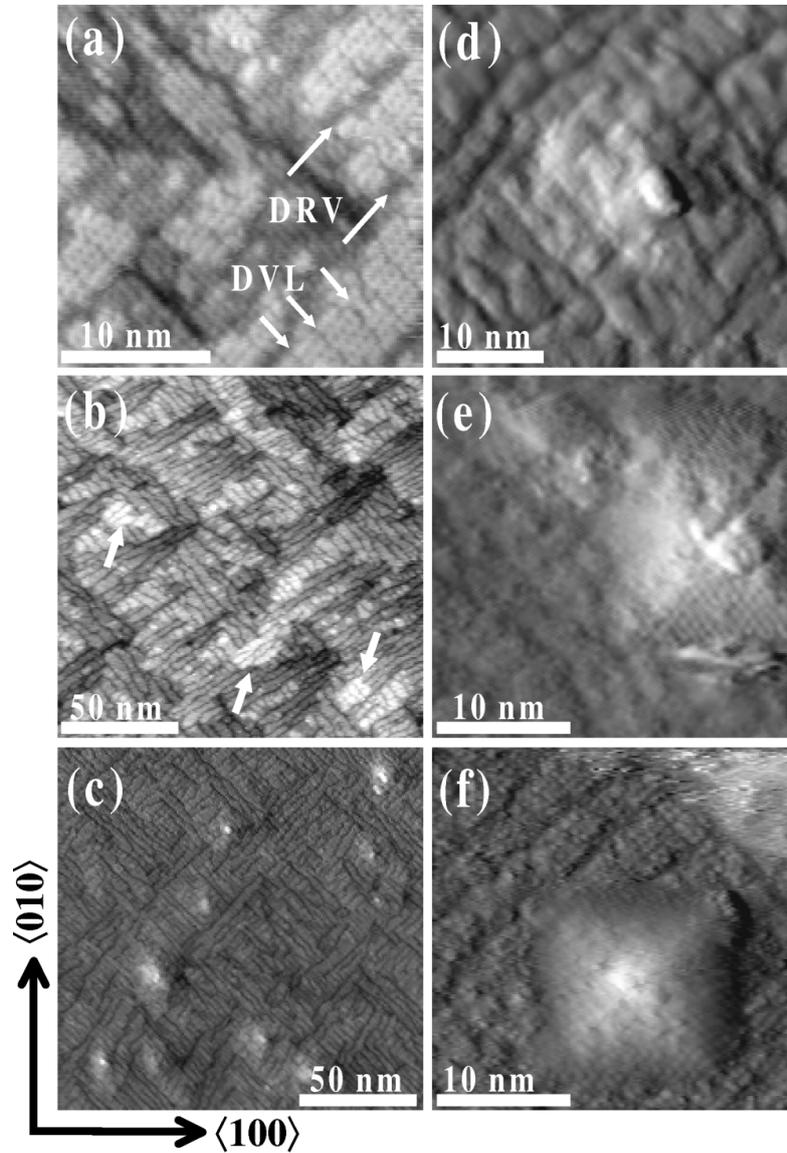


FIGURE 6.2 – Images STM d'un dépôt de Germanium sur du silicium (100). Les images (a) et (b) représentent les couches de mouillage (dépôt de 2,8 et 2,9 MC), (c) et (d) sont des prépyramides (dépôt de 3,55 MC), (e) est une pyramide tronquée (à 3,85 MC), enfin (f) est une pyramide à facettes (105) (dépôt de 4 MC). Les flèches de la figure (b) montrent des îlots 2D. Images tirées de [67].

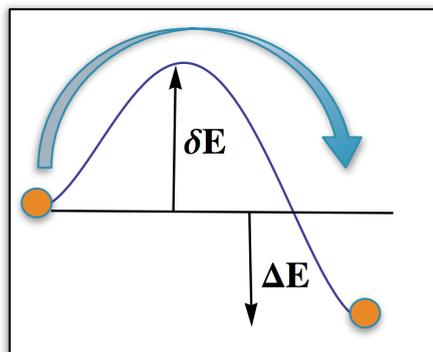


FIGURE 6.3 – Barrière et différence d'énergie entre deux états.

les probabilités du Monte Carlo).

Une simulation Monte Carlo cinétique, appliquée au cas de l'hétéroépitaxie, est une "expérience numérique" où on choisit aléatoirement un mouvement possible d'un atome sur la surface à chaque étape et on fait (ou non) passer cet atome sur un site voisin, avec une probabilité dépendant de la barrière d'énergie à franchir. Quand un nombre prédéterminé d'étapes s'est écoulé le dépôt d'un atome supplémentaire est effectué et simule le flux de déposition.

Il existe des méthodes Monte Carlo cinétiques "sans rejet", qui choisissent un évènement par étape du programme en fonction de sa probabilité (dépendante de la barrière d'énergie à franchir), et fait qu'à chaque itération du programme un évènement va se produire. Le temps écoulé durant cette itération dépendra des évènements possibles dans le système entier, par exemple de la fréquence à laquelle des atomes sur un site peuvent sauter sur un site voisin. Ce type de méthode appliqué à un modèle solide sur solide permet le déplacement systématique d'un atome à chaque étape du programme. Les algorithmes sans rejet sont malheureusement peu adaptés au cas d'un système incluant les interactions élastiques (ou de manière plus générale tout système incluant des interactions à longue portée) étant donné que la configuration énergétique dépend de la morphologie de l'ensemble de la surface et ne peut donc pas être prédéterminée simplement avant la simulation.

Les valeurs numériques des paramètres physiques utilisés dans les simulations Monte Carlo cinétiques sont obtenues expérimentalement ou par des calculs numériques (ab-initio en particulier). On peut ainsi utiliser des simulations à très petite échelle pour obtenir les données permettant d'utiliser des simulations adaptées à un système plus grand.

Plusieurs articles ont été publiés concernant des simulations Monte Carlo cinétiques dans le cas de l'hétéroépitaxie [69, 70, 71]. L'élasticité a été prise en compte par des modèles de type Frenkel-Kontorova [69, 71, 72, 73] (les interactions élastiques sont modélisées par des ressorts reliés aux atomes voisins) et par des modèles basés sur des fonctions de Green [70, 74]. Le modèle de base que nous avons employé est présenté dans [74]. Les facettes ont aussi été prises en compte [71], mais seulement

dans un modèle 2D. Elles sont décisives pour décrire l'apparition de structures anisotropes. Nous allons donc considérer le modèle développé dans [74] pour la partie élastique en lui adjoignant l'anisotropie d'énergie de surface.

6.3 Le modèle employé

Dans le cadre d'un modèle de type solide sur solide, les simulations utilisent un tableau à deux dimensions de la hauteur $h(x, y)$. À chaque étape on choisit aléatoirement un atome parmi ceux ayant moins de trois premiers voisins, les atomes ayant de nombreux voisins ayant une probabilité de changement de site négligeable. Ceci s'explique par les plages de température utilisées (avec $T \sim 500$ K) et les énergies de liaison aux premiers voisins typiques pour un semi-conducteur ($E_n \sim 0.3$ eV) telles que $3E_n \gg k_b T$.¹ Une fois l'atome choisi le tirage d'un nombre aléatoire permet de déterminer le déplacement ou non de l'atome.

Pour simplifier les simulations nous avons considéré une maille cristalline cubique simple. Ce changement de maille va négliger des effets à courte portée. Nous simplifions également le système en négligeant les effets d'intermixing et de diffusion de volume. Ces derniers sont faibles par rapport à la diffusion de surface, dans les conditions habituelles de croissance [14]. Les effets d'intermixing nécessiteraient une étude particulière, notre modèle ne s'applique donc que lorsque ceux-ci ne sont pas déterminants.

Le calcul de la barrière d'énergie se fait en considérant l'énergie du système avec et sans l'atome testé [70]. La barrière totale que nous considérons ici se décompose en :

$$\Delta E_i = E_S + n_i E_N - \Delta E_i^{el} + n_s (\delta E_S^f + n_i \delta E_N^f) - E_h. \quad (6.1)$$

E_S est l'énergie d'interaction avec le substrat, E_N l'énergie d'interaction avec un atome voisin, n_i le nombre d'atomes voisins, ΔE_i^{el} est la barrière due à l'élasticité qui est décrite dans la section 6.3.1. $n_s (\delta E_S^f + n_i \delta E_N^f)$ favorise l'apparition de facettes (105) et est expliquée dans la section 6.3.2. Enfin, E_h est un terme cinétique arbitraire qui empêche l'accumulation des atomes en bord de marche (voir figure 6.4 b)). Ce modèle est également présenté dans notre article [75].

6.3.1 Calcul de l'élasticité

Le modèle utilisé ici est décrit dans l'article de J.-N. Aqua et T. Frisch de 2008 [74]. Ce modèle se base sur le cas d'un film de paramètre de maille $a(1 + \epsilon)$ déposé de façon cohérente sur un substrat de paramètre de maille a . L'effet de l'élasticité est calculé avec la différence d'énergie élastique entre le cas où l'atome considéré est présent et le cas où on enlève cet atome

$$\Delta E_i^{el} = F^{el}[h(\vec{r}_i), \{h(\vec{r}_j), j \neq i\}] - F^{el}[h(\vec{r}_i) - 1, \{h(\vec{r}_j), j \neq i\}]. \quad (6.2)$$

1. Si on prend une probabilité de déplacement de 1 pour un atome isolé, la probabilité de déplacement est d'environ 10^{-4} pour deux voisins et 10^{-6} pour 3 voisins.

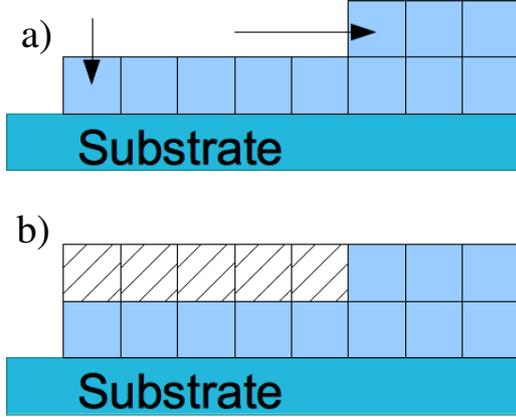


FIGURE 6.4 – Schéma représentant les termes supplémentaires inclus dans l'équation (6.1) : a) Les flèches montrent les positions où $n_s(\delta E_s + n\delta E_N)$ est non nul ; b) montre les positions où E_h est non nul : si un atome est dans la zone hachurée, sa probabilité de se déplacer est élevée.

Ce calcul surestime les effets élastiques en considérant que l'atome sort du cristal.

L'énergie libre élastique peut être déterminée à partir du calcul précédent au premier ordre de la modulation de $h(\vec{r})$ (voir section 2), qui donne :

$$F^{el} = \mathcal{E}^0 a^3 \int d\vec{r} h(\vec{r}) [1 - (1 + \nu) \mathcal{H}_{ii}(h)], \quad (6.3)$$

avec \mathcal{H}_{ij} l'opérateur non local défini en (3.9) (section 3). Pour modéliser l'élasticité dans nos simulations Monte Carlo, nous considérons une version discrétisée du modèle continu de l'énergie libre élastique :

$$F^{el} = \mathcal{E}^0 a^3 \sum_{\vec{r}} h(\vec{r}) [1 - (1 + \nu) \mathcal{H}_{ii}(h)], \quad (6.4)$$

avec $\mathcal{E}^0 = Y\eta^2/(1 - \nu)$ et $\mathcal{H}_{ii}(h) = \mathcal{F}^{-1} \left[\frac{k_i k_i}{k} \mathcal{F}(h) \right]$ (voir équation (3.9)), où la transformée de Fourier est ici discrète.

On considère des conditions aux limites périodiques et \vec{r}_1, \vec{r}_2 , des entiers entre 0 et $N - 1$ (N taille du système considéré). La transformée de Fourier de h s'écrit donc :

$$\mathcal{F}[h](\vec{k}) = \frac{1}{N^2} \sum_{\vec{r}_1, \vec{r}_2=0}^{N-1} h(\vec{r}) e^{-2i\pi\vec{k}\cdot\vec{r}/N}. \quad (6.5)$$

Dans la limite d'un système continu et infini, on note qu'en considérant la variable $\delta h(\vec{r}) = h(\vec{r}) - h'$ où h' est une constante, $\hat{\delta h}(\vec{k}) = \hat{h}(\vec{k}) - (2\pi)^2 \delta(\vec{k}) h'$ et $\mathcal{H}_{ii}(h) = \mathcal{H}_{ii}(\delta h)$. En prenant $h' = h_0$ et des fonctions à support borné, on a alors

$$\mathcal{H}_{ii}(\delta h)(\vec{r}) = \frac{1}{2\pi} \int d\vec{r}' \delta h(\vec{r}') \int d\vec{k} |\vec{k}| e^{i\vec{k}(\vec{r}' - \vec{r})}, \quad (6.6)$$

et en utilisant la transformée de Fourier au sens des distributions,

$$\int d\vec{k} |\vec{k}| e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} = -\frac{2\pi}{|\vec{r}|^3}, \quad (6.7)$$

on retrouve

$$\mathcal{H}_{ii}(\delta h)(\vec{r}) = -\frac{1}{2\pi} \int d\vec{r}' \frac{\delta h(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3}, \quad (6.8)$$

qui est la formule habituelle de l'énergie élastique d'un film contraint [4]. On voit donc que l'élasticité est modélisée par des interactions dipolaires proportionnelles à $h(\vec{r}) - \langle h \rangle$ et qui varient en $1/|\vec{r} - \vec{r}'|^3$, donc en fonction de la distance entre les dipôles. En faisant la transformée de Fourier \hat{h} de h dans le cadre d'un système de taille N , et en utilisant les notations suivantes :

$$h(r, s) = \sum_{t, u=-N/2+1}^{N/2} \hat{h}(t, u) e^{2i\pi(rt+su)/N} \quad (6.9)$$

$$\hat{h}(t, u) = \sum_{r, s=0}^{N-1} h(r, s) e^{-2i\pi(rt+su)/N}, \quad (6.10)$$

on obtient le potentiel chimique :

$$\mu^{el}(\vec{r}) = \sum_{t, u=-N/2+1}^{N/2} \frac{2\pi}{N} \sqrt{t^2 + u^2} \hat{h}(t, u) e^{2i\pi(rt+su)/N} \quad (6.11)$$

$$= \frac{2\pi}{N^3} \sum_{r', s'=0}^{N-1} h(r', s') \sum_{t, u=-N/2+1}^{N/2} \sqrt{t^2 + u^2} e^{\frac{2i\pi}{N}[(r-r')t+(s-s')u]} \quad (6.12)$$

$$= \sum_{r', s'=0}^{N-1} h(r', s') G(r - r', s - s'), \quad (6.13)$$

ou encore :

$$\mu^{el}(\vec{r}) = \mathcal{E}^0 \left[1 - 2(1 + \nu) \sum_{\vec{r}' \neq \vec{r}} h(\vec{r}') G(\vec{r} - \vec{r}') \right]. \quad (6.14)$$

Dans le cas étudié le tableau de taille $(2N-1)^2$ de la fonction de Green est symétrique dans l'échange $\vec{k} \leftrightarrow -\vec{k}$, ce qui permet d'écrire la fonction de la manière suivante :

$$G(\vec{r}) = \frac{2\pi}{N^3} \sum_{\vec{k}_1, \vec{k}_2=-N/2+1}^{N/2} |\vec{k}| \cos(2\pi \vec{k} \cdot \vec{r}/N). \quad (6.15)$$

Le calcul de la fonction de green G est effectué avant le début des simulations Monte Carlo. Le calcul de la transformée de Fourier étant optimisé, il est avantageux de calculer le produit de convolution (6.14) comme un produit dans l'espace de Fourier.

On obtient alors une matrice carrée que l'on multiplie par le vecteur de la hauteur considérée pour obtenir le potentiel chimique élastique, puis l'énergie élastique $\Delta E_i^{el} = a^3 \mu^{el}(\vec{r}_i)$. La contribution de $\mathcal{E}^0 a^3$ est un terme constant qui renormalise simplement le coefficient de diffusion. Le modèle peut être présenté comme une version discrétisée du calcul à l'ordre 1 de l'élasticité et a donc les mêmes hypothèses, en particulier les faibles pentes de la surface du film et un substrat plan. L'adaptation d'un modèle de ce type, pour des substrats non plans par exemple, nécessite de recalculer les équations d'élasticité.

En pratique ce modèle de l'élasticité donne un effet de répulsion entre deux adatoms (proportionnel à l'inverse du cube de la distance qui les sépare). L'énergie élastique favorise la présence d'atomes au dessus des marches, là où l'atome est le plus relaxé, voir la figure 6.5 pour la modélisation de l'énergie élastique dans le cas d'une pyramide à base carrée. Ces résultats ne sont pas étonnants : on peut voir la relaxation élastique du système comme le positionnement des atomes tel qu'ils ont autant de place que possible, les atomes vont donc chercher à s'éloigner les uns des autres, et à se positionner de manière à ce qu'il ne soient pas contraints par des atomes voisins. Au dessus d'une marche l'atome sera relativement isolé et bien relaxé, alors qu'en faisant partie de la marche il sera contraint par ses voisins. On peut comparer grossièrement ce modèle à la figure 2 de l'article de Barabasi [73] (mais la forme de l'îlot est différente).

Quand on utilise seulement les effets élastiques, l'attachement en bord de marche (voir Fig. 6.5) est trop favorable et une accumulation d'atomes sur les bords de marche a lieu, mais elle n'est pas observée expérimentalement. On compense ce problème de façon ad-hoc en ajoutant un effet à courte portée modélisé par le facteur cinétique arbitraire E_h (voir la figure 6.6), que nous avons choisi comme valant $4k_b T$, et en interdisant les "sauts" trop importants d'atomes (les atomes peuvent passer de la hauteur h à la hauteur $h + 1$, mais pas à la hauteur $h + 2$). Plus précisément, si un adatome d'une hauteur h_i se situe trop près d'un site d'une hauteur $h_i - 2$, le facteur cinétique E_h va augmenter sa probabilité de déplacement.

Globalement, ce modèle n'est applicable que pour un système relativement plan, pour rester dans le cadre de notre approximation des faibles pentes, et avec un substrat plan correspondant à notre calcul élastique. L'avantage principal par rapport à d'autres calculs élastiques utilisés dans le cadre de simulations Monte Carlo est la rapidité d'exécution du code. La fonction de Green n'étant calculée qu'une fois par programme, la détermination de l'énergie élastique d'un atome a un temps de calcul faible correspondant simplement à une multiplication dans l'espace de Fourier et à deux transformations, mais celles-ci sont optimisées.

6.3.2 Prise en compte de l'anisotropie cristalline

La prise en compte de l'anisotropie cristalline consiste en la modification du programme pour inclure le fait que, dans le système physique, l'énergie de la surface (105) est inférieure de 1% à celle d'une surface (100) [55]. En utilisant un programme

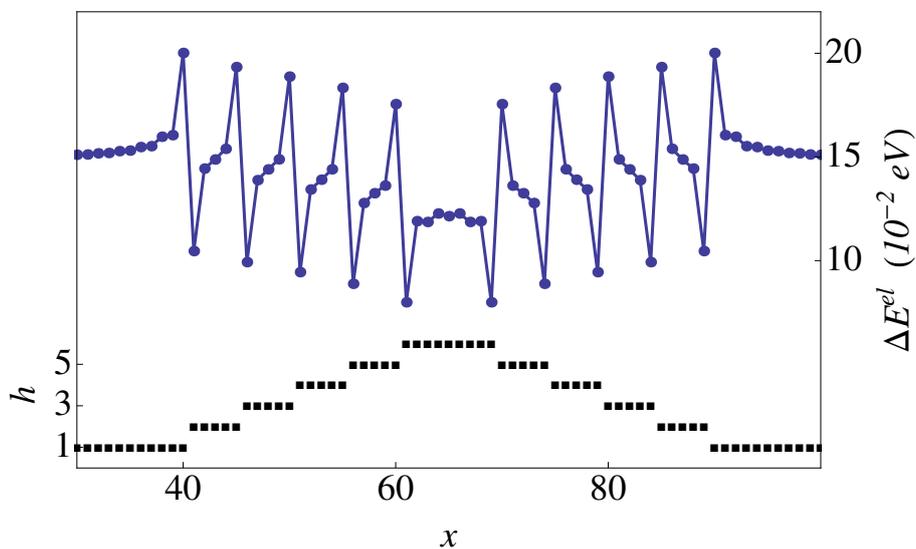


FIGURE 6.5 – Énergie élastique $\Delta E^{el}(\vec{r})$ d'un adatome (non représenté) en fonction de sa position au-dessus d'une pyramide à base carrée (profil de hauteur représenté par des carrés noirs). Les distances sont en unités de maille cristalline. La ligne bleue correspond au potentiel chimique élastique.

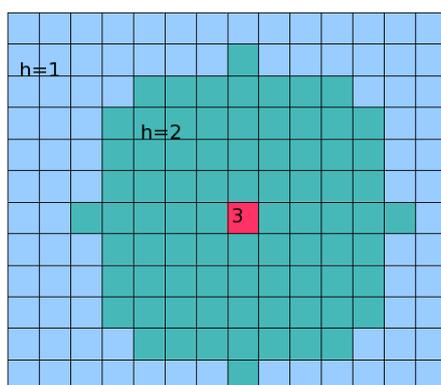


FIGURE 6.6 – On considère un atome à une hauteur de 3, en rouge au centre de la figure. Le facteur E_h appliqué pour compenser l'accumulation d'atomes en bord de marche est utilisé si au moins un des atomes en vert est à une hauteur plus faible que $h = 2$.

KMC “classique” avec des énergies d’interaction identiques pour tous les premiers voisins E_n plus une énergie d’interaction avec le substrat E_s cette relation est inversée : la surface (100) a une énergie inférieure à la surface (105).

En effet on peut calculer l’énergie d’une surface à partir des énergies d’interaction d’un atome avec ses voisins. Pour cela on considère le nombre de liaisons qu’il faut couper lorsque l’on crée une surface en clivant un solide (voir Fig. 6.7a). Ceci est décrit dans le chapitre 1 du livre de S. Andrieux et P. Müller [76] (pages 35-36). Dans le cas d’une surface (100) cubique simple on enlève une liaison (Fig. 6.7b), mais dans le cas (105) le nombre de liaisons à enlever est légèrement plus grand (Fig. 6.7c).

Le calcul précis de l’énergie de surface est :

$$\gamma_{jkl} = \frac{\sum_i n_i(jkl)E_i}{2A(jkl)}, \quad (6.16)$$

où E_i est l’énergie d’interaction avec le i ème voisin, $n_i(jkl)$ le nombre de liaisons rompues et $A(jkl)$ l’aire de la surface clivée.

Dans le cas de notre surface (100) on a

$$\gamma_{100} = \frac{E_s}{2a^2}, \quad (6.17)$$

avec a le paramètre de maille. Dans le cas (105) on trouve :

$$\gamma_{105} = \frac{5E_s + E_n}{2\sqrt{26}a^2}, \quad (6.18)$$

ce qui est plus grand que l’énergie de γ_{100} . Pour résoudre ce problème, nous avons introduit un facteur d’énergie de surface supplémentaire $n_s(\delta E_s + n\delta E_n)$, où n_s est le nombre de marches dont fait partie l’atome considéré et n est le nombre de voisins. δE_s et δE_n sont proportionnels à E_n et E_s , et nous allons les déterminer de la manière suivante : nous ajoutons un facteur $\psi = n_s(\delta E_s + n\delta E_n)$ à (6.18) tel que γ_{105} soit plus faible que γ_{100} , dans une proportion voulue (ici 1%). La version modifiée de l’équation (6.18) est alors :

$$\gamma_{105} = \frac{5E_s + E_n - \psi}{2\sqrt{26}a^2}. \quad (6.19)$$

La valeur de ψ peut donc être déduite simplement, en prenant $\gamma_{105}/\gamma_{100} = 0.99$. Il ne reste qu’à déduire la valeur de nos facteurs δE_n et δE_s , sachant que les atomes sur lesquels on applique ces termes supplémentaires sont indiqués sur la figure 6.4 a). Pour notre surface (105), on considère un atome situé au milieu d’une marche, et faisant partie d’une facette. Dans notre programme, l’appartenance à une facette pour un site (i, j) à hauteur h est déterminée si quatre des cinq sites entre $(i - 1, j)$ et $(i - 5, j)$ sont à une hauteur $h - 1$ et que le site $(i - 6, j)$ est à $h - 2$. Ce processus est répété dans les quatres directions et les diagonales, en considérant les marches

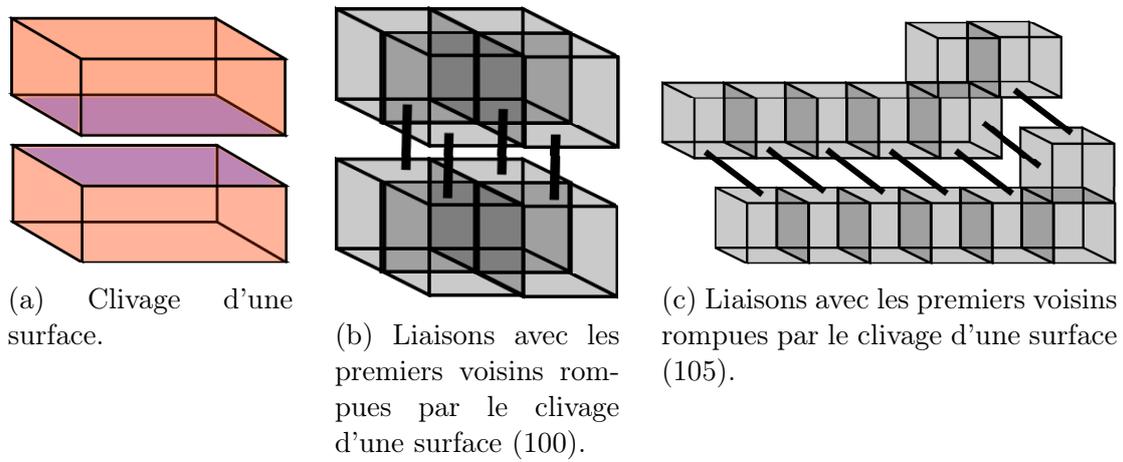


FIGURE 6.7 – Calcul des énergies de surface.

ascendantes et descendantes, voir la figure 6.8. Le nombre de marches n_s dont fait partie un atome situé au milieu d'une facette est 2 (une marche "vers le bas" et une autre "vers le haut"). La valeur de ψ est donc :

$$\psi = 2(\delta E_s + 3\delta E_s). \quad (6.20)$$

Au final la valeur de δE_s est approximativement $E_s/16$ et la proportion est la même pour δE_n pour assurer γ_{105} inférieur de 1% à γ_{100} .

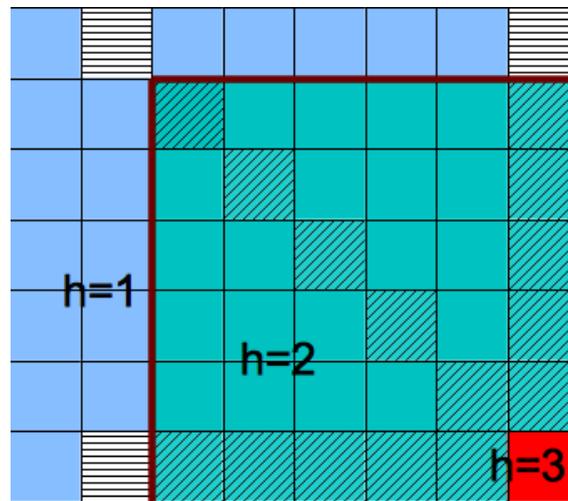


FIGURE 6.8 – Méthode de détermination de l'utilisation des termes supplémentaires des facettes. Si on considère l'atome en rouge (hauteur 3), on cherche si les atomes aux hachures obliques sont bien à la bonne hauteur (ici 2), puis si l'atome suivant aux hachures horizontales est bien à une hauteur plus faible (ici 1). Les termes supplémentaires d'anisotropie d'énergie de surface vont également s'appliquer aux atomes en bord de marche (ici les trois atomes hachurés de hauteur 2 en bord de marche).

Chapitre 7

Simulations Monte Carlo : résultats

Sommaire

| | | |
|-----|---|-----|
| 7.1 | Morphologie des îlots | 94 |
| 7.2 | Effets de la température et du flux de déposition | 98 |
| 7.3 | Distribution de taille des îlots | 103 |

Nos simulations permettent de modéliser la croissance d'îlots 3D à base carrée ou rectangulaire avec des facettes (105), conformément aux observations expérimentales. De plus nous avons observé un mûrissement interrompu de ces îlots, autre observation expérimentale dans les systèmes SiGe, dans le cas de ces pyramides. Le mouillage n'ayant pas été inclus pour accélérer le code, on ne peut donc pas observer la transition 2D-3D. Dans nos simulations des îlots 3D se forment presque immédiatement, il n'y a pas la phase où seuls des îlots 2D, puis un film 2D se forment.

Les simulations sont effectuées en prenant les paramètres tels que des îlots 3D se forment effectivement, sans temps de simulation excessif. Les résultats de ces simulations permettent d'observer les effets des différents paramètres de la croissance. Nous nous sommes particulièrement intéressés à la cinétique de croissance et aux densités d'îlots, en particulier les lois d'échelle et les effets attendus de la température et du flux de dépôt (voir partie 1.5 et annexe C).

Le modèle considère une maille atomique cubique de taille $a = 0,35$ nm (plutôt que la maille diamant du Si) et les énergies d'interaction sont $E_s = 0,8$ eV et $E_n = 0,2$ eV. Le coefficient de Poisson est $\nu = 0.279$ et le module d'Young est $Y = 130$ GPa (on prend les mêmes caractéristiques élastiques pour le substrat et le film). Les figures 7.1 et 7.2 représentent des simulations Monte Carlo cinétiques à deux températures différentes, à plusieurs étapes du dépôt (toutes les 0,375 MC de 0,375 à 1,5 MC).

7.1 Morphologie des îlots

Comme attendu, notre modèle donne bien lieu à la nucléation d'îlots à facette (105), même avec la faible anisotropie considérée ; la figure 7.3 montre une simulation Monte Carlo cinétique utilisant notre modèle dans une boîte de taille 256×256 avec les conditions aux limites périodiques avec des températures entre 500 et 600 K, ainsi que des flux entre 0.01 et 1 MC/s. Globalement on observe que la taille et le nombre des îlots dépendent de la température et du flux de déposition ; ces points seront discutés plus en détail dans la section 7.2.

Les mesures de rugosité sont également utiles pour déterminer l'état de la surface. La rugosité en fonction du temps est décrite dans la figure 7.4a pour la partie croissance. On peut voir que la rugosité augmente avec le temps de dépôt, et augmente beaucoup plus vite à plus haute température, cas où la densité d'îlots et leur taille moyenne sont, respectivement, beaucoup plus faible et très supérieure au cas à plus faible température (voir Fig. 7.4b). Cet effet de la température n'est pas étonnant, une température plus élevée permet essentiellement à un adatome de diffuser plus vite sur le substrat, les températures utilisées n'induisant que peu de détachement des atomes des îlots. Un atome peut donc parcourir une distance plus grande avant de s'incorporer dans un îlot déjà existant ou de former un nouvel îlot, ce qui va donc permettre d'obtenir des îlots plus gros. Ceci était déjà observé dans le cas des îlots 2D, tant que la taille des îlots est contrôlée par des effets cinétiques [29]. Cet effet

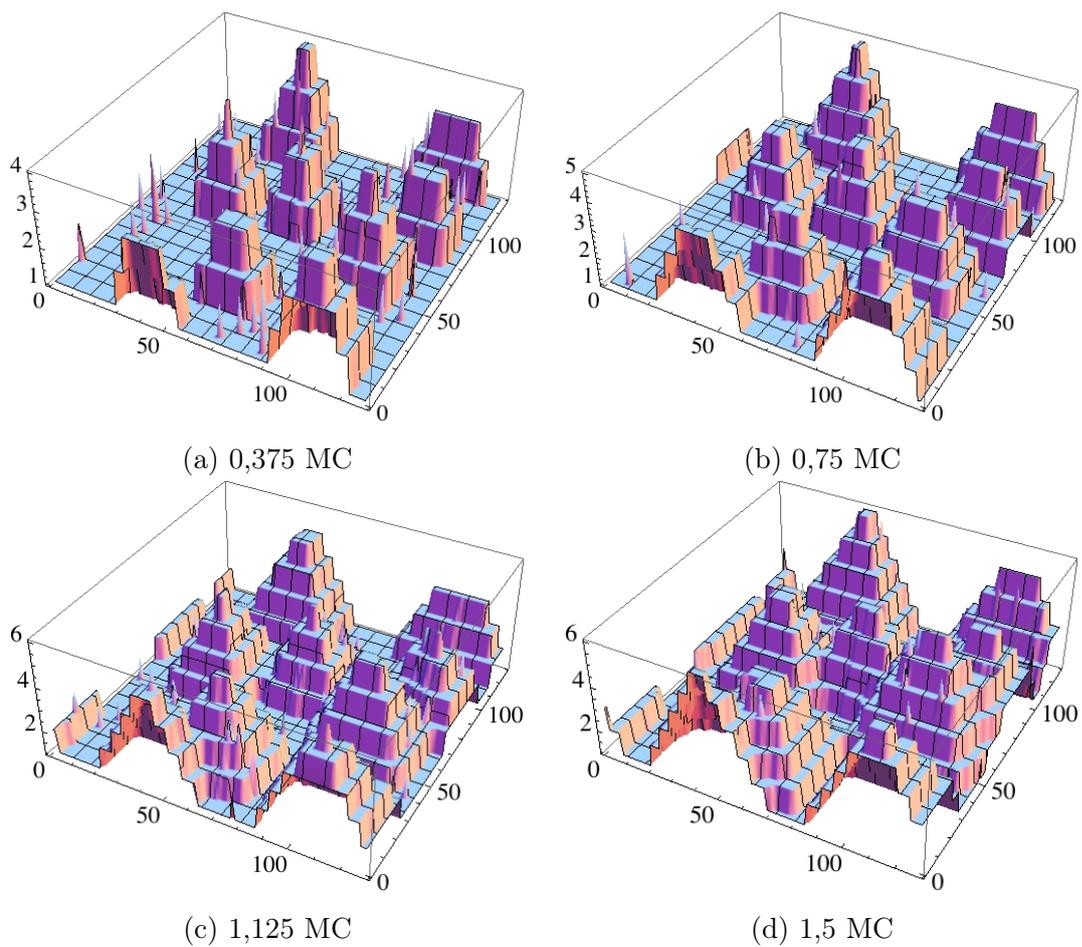


FIGURE 7.1 – Simulation KMC de croissance d'îlots, simulation de taille 128×128 atomes à $T=550$ K avec un flux de dépôt de $0,5$ MC/s à plusieurs moments du dépôt.

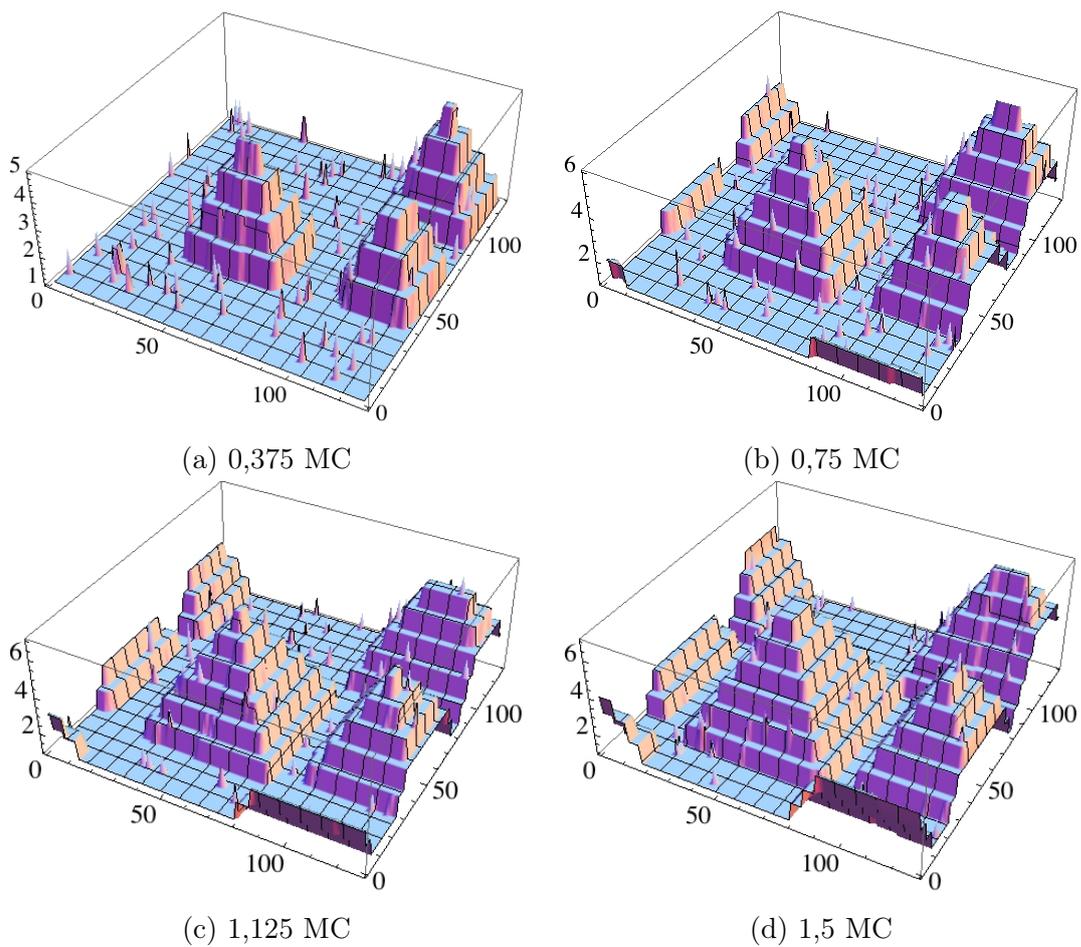


FIGURE 7.2 – Simulation KMC de croissance d'îlots, simulation de taille 128×128 atomes à $T=575$ K avec un flux de dépôt de $0,5$ MC/s à plusieurs moments du dépôt.

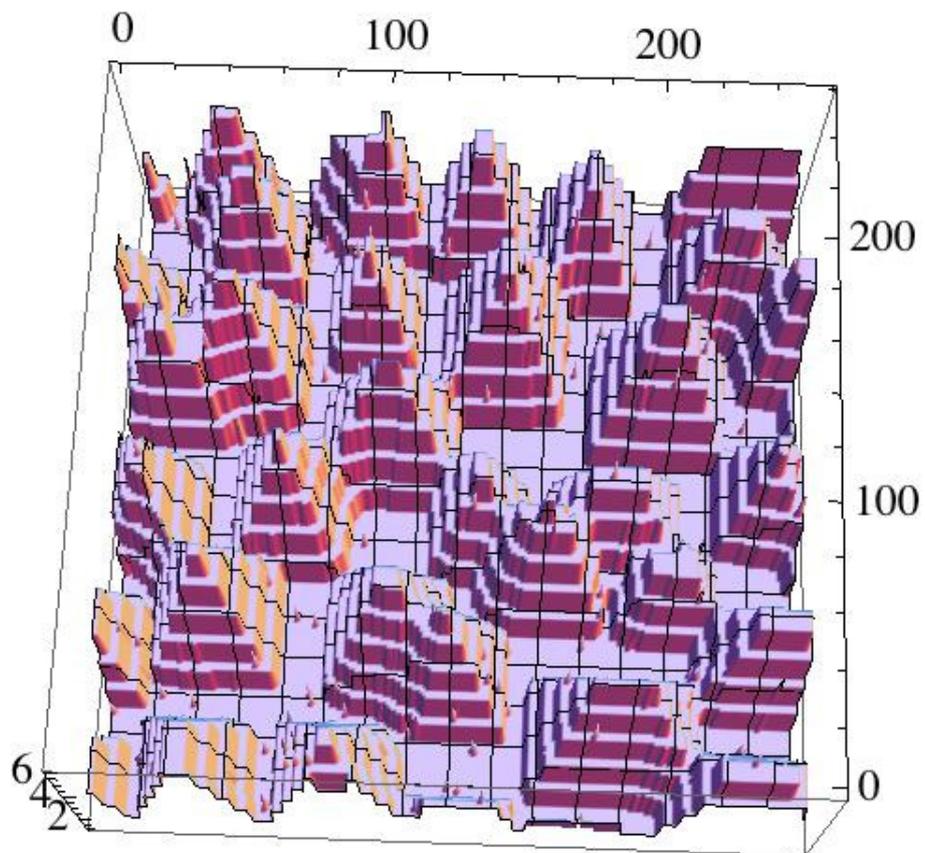
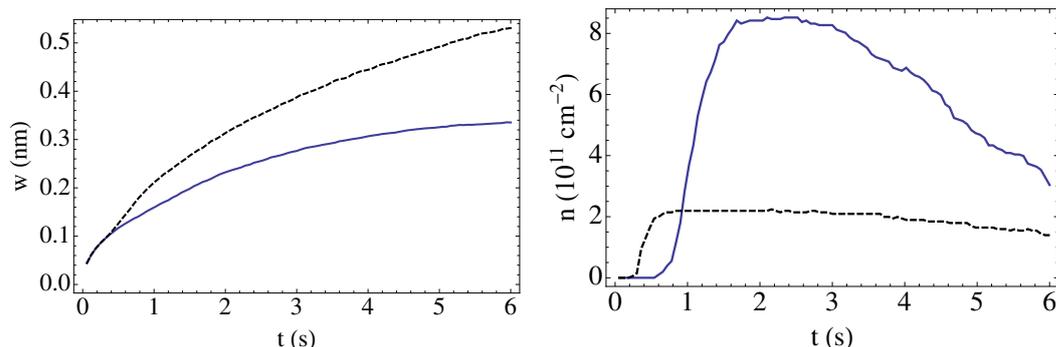


FIGURE 7.3 – Résultat de simulation Monte Carlo, $T=550$ K après un dépôt de 1,5 MC avec un flux de 0,5 MC/s, l'échelle est en unités de a .



(a) Rugosité en fonction du temps de dépôt (simulation 128×128).

(b) Densité d'îlots en fonction du temps de dépôt (moyenne de 10 simulations 128×128).

FIGURE 7.4 – Simulations Monte Carlo cinétique de dépôt de 1,5 MC après la fin du dépôt de la couche de mouillage. Dans les deux figures le dépôt s'effectue avec un flux de 0,25 MC/s. La courbe en pointillés représente une température de 550 K et la courbe pleine une température de 500 K.

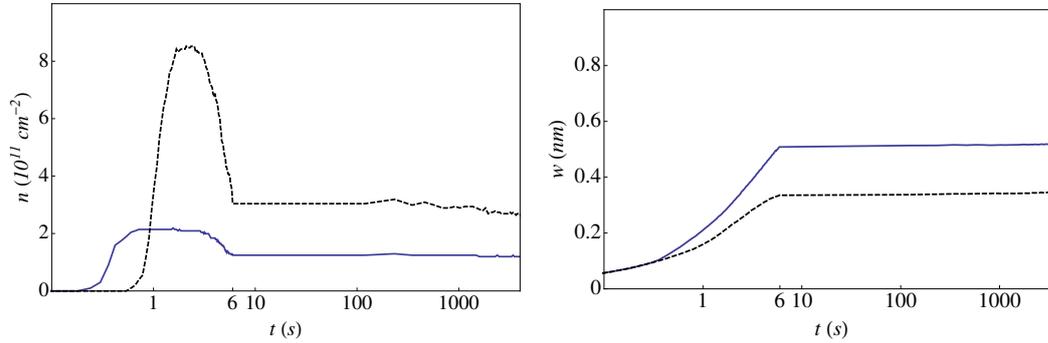
est visible rapidement, sachant que le point $t = 0$ des simulations correspond à la fin du dépôt des couches de mouillage.

De plus on peut voir que le nombre d'îlots augmente rapidement au début du dépôt avant d'atteindre un maximum puis de diminuer. Ceci peut s'expliquer par la fusion de certains gros îlots et la disparition progressive des îlots les plus petits qui vont soit être absorbés par des îlots plus gros, soit se décomposer (dans nos simulations nous avons observé que des îlots de plus d'une centaine d'atomes pouvaient se décomposer). On voit donc que l'on est en présence d'un mûrissement d'Ostwald : les petits îlots ont tendance à perdre de la matière qui est gagnée par les plus gros. Ceci rejoint les résultats expérimentaux observant ce phénomène.

Les effets d'un recuit sur la densité d'îlots et la rugosité sont présentés figure 7.5. On peut voir que le mûrissement des îlots est ralenti, voir interrompu, pendant le recuit. Expérimentalement cette interruption de mûrissement a été observée [18, 77, 78].

7.2 Effets de la température et du flux de déposition

Lorsque la température augmente ou le flux de déposition diminue, on observe dans nos simulations une diminution de la densité d'îlots (et en parallèle une augmentation de leur taille moyenne) dans une plage de température proche de 500 K. Nous avons essayé de déterminer la relation entre la densité d'îlots, la diffusion et le flux, sachant que la diffusion augmente avec la température. Dans le cas des îlots



(a) Rugosité en fonction du temps (simulation 128×128).

(b) Densité d'îlots en fonction du temps (moyenne de 10 simulations 128×128).

FIGURE 7.5 – Simulations Monte Carlo cinétiques avec un dépôt de 1,5 MC après la fin du dépôt de la couche de mouillage. Dans les deux figures le dépôt s'effectue avec un flux de 0,25 MC/s. La courbe en pointillés représente une température de 550 K et la courbe pleine une température de 500 K. Les 6 premières secondes correspondent au dépôt, le reste à un recuit.

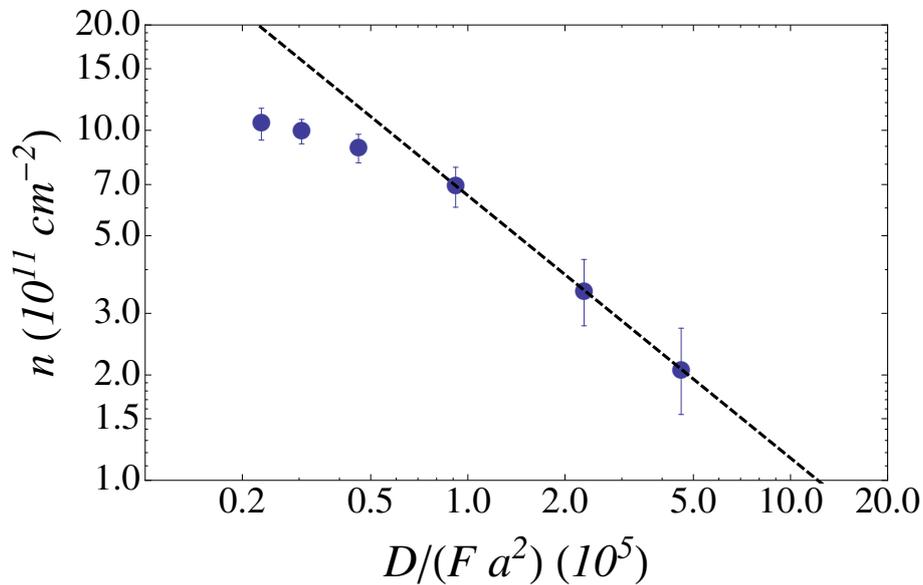


FIGURE 7.6 – Résultat de simulations Monte Carlo pour la densité d'îlots en fonction du paramètre cinétique adimensionné $D/(F \alpha^2)$, $T=500$ K après un dépôt de 1,5 MC. Le coefficient α est de $0,75 \pm 0,1$.

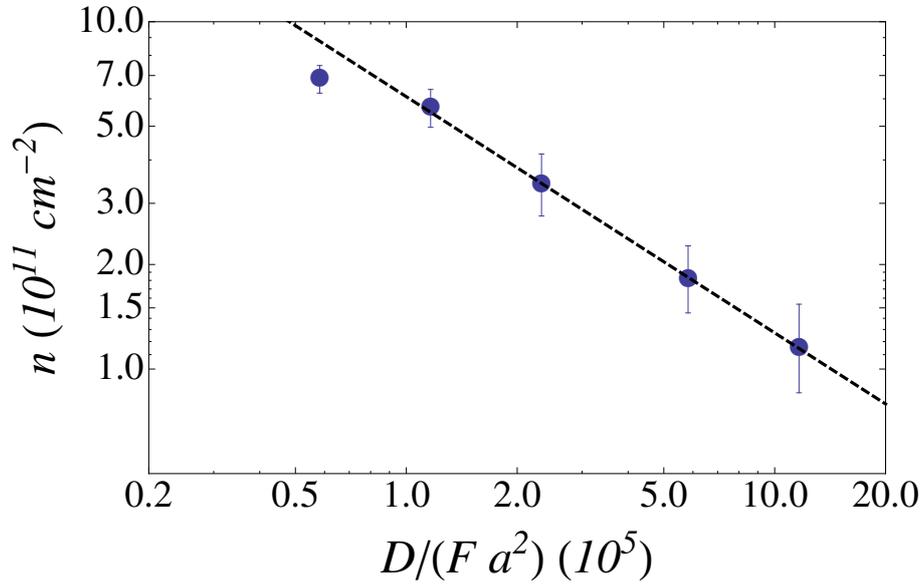


FIGURE 7.7 – Densité d’îlots en fonction de $D/(F a^2)$, $T=525$ K après un dépôt de 1,5 MC. Le coefficient α est de $0,68 \pm 0,05$.

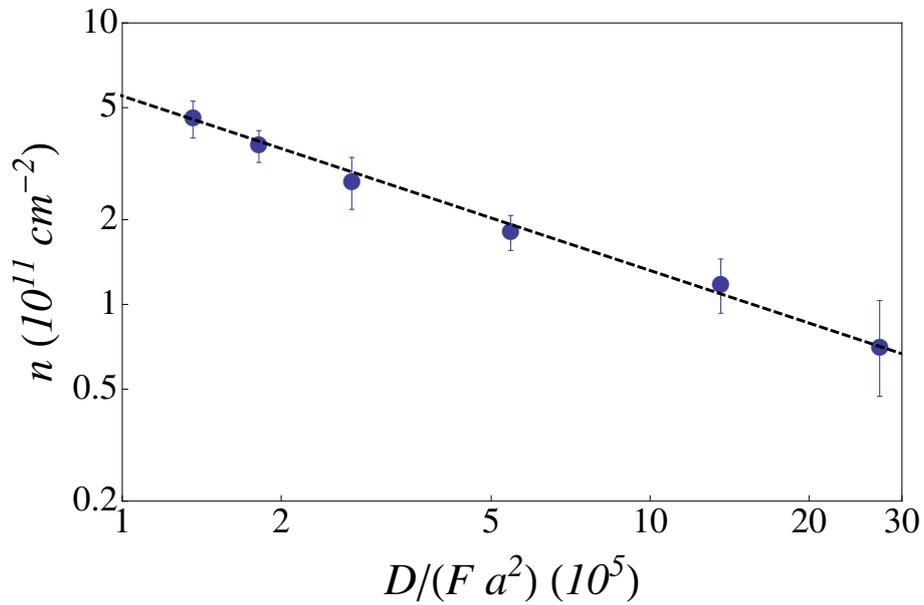


FIGURE 7.8 – Densité d’îlots en fonction de $D/(F a^2)$, $T=550$ K après un dépôt de 1,5 MC. Le coefficient α est de $0,62 \pm 0,05$.

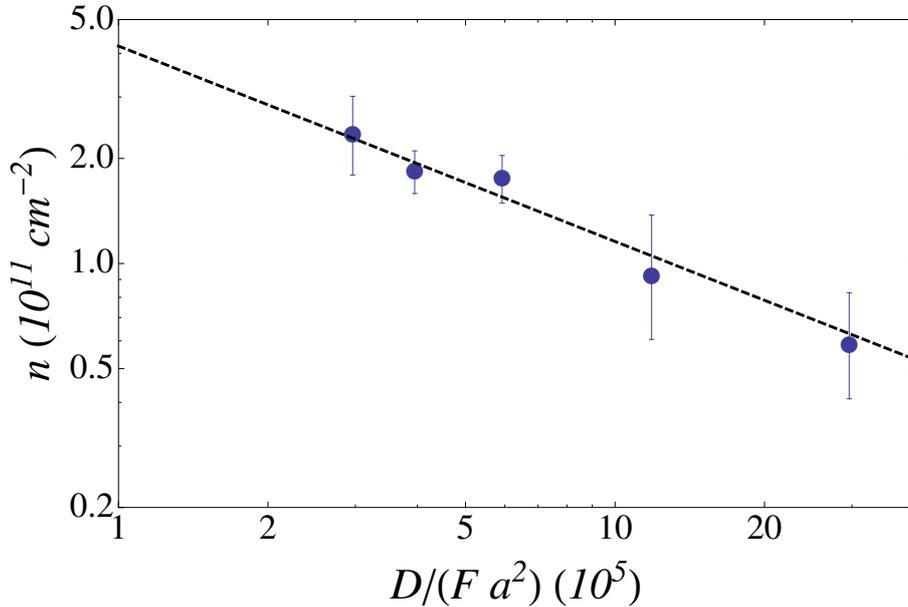


FIGURE 7.9 – Densité d’îlots en fonction de $D/(F a^2)$, $T=575$ K après un dépôt de 1,5 MC. Le coefficient α est de $0,56 \pm 0,05$.

2D, les simulations ont donné des lois d’échelle

$$n \sim \left(\frac{D}{F} \right)^\alpha, \quad (7.1)$$

où α est une constante, n la densité d’îlots, F le flux et D la constante de diffusion des adatoms (voir par exemple le chapitre 11 de [4]). Dans nos simulations qui ne comptent que des îlots 3D (ayant au moins deux couches d’atomes, avec 4 atomes sur la deuxième couche) nous trouvons un facteur α dépendant de la température. Les modèles d’atomes 2D font l’hypothèse d’un attachement irréversible des atomes aux îlots, hypothèse qui ne s’applique pas à notre modèle où on peut observer la dissolution d’îlots d’une taille supérieure à la centaine d’atomes. La dissolution d’îlots est effectivement observée expérimentalement [79], ce qui montre que la réversibilité de l’attachement des adatoms est pertinente pour ce type de système.

La relation inversement proportionnelle entre la taille des îlots et la température est connue dans le cas des îlots 2D, mais des simulations d’îlots 2D [29] ont aussi donné des densités plus fortes à haute température après un temps plus long. Ce comportement des îlots 2D a été interprété comme le passage d’un régime limité par les effets cinétiques (taille des îlots qui augmente avec la température) à un régime limité par la thermodynamique (taille des îlots qui diminue avec la température). L’augmentation de la température augmente la vitesse de diffusion, donc la longueur de diffusion, étant donné que

$$D = D_0 e^{-E_s/(k_b T)}. \quad (7.2)$$

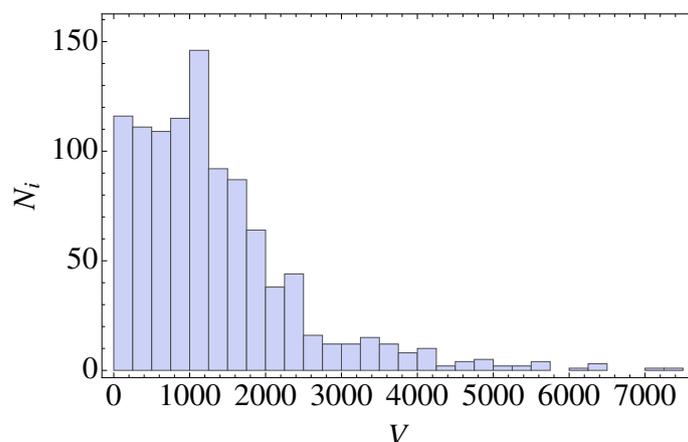


FIGURE 7.10 – Résultat de simulations Monte Carlo cinétiques pour la distribution des îlots formés à $T=500$ K après un dépôt de $1,5$ MC avec un flux de $0,5$ MC/s et un recuit. Les îlots de volume inférieur à 48 sont exclus. Le résultat est une somme de 90 simulations sur un système de taille 128×128 .

La distance qu'un atome peut parcourir avant d'être incorporé à un îlot augmente donc avec la température.

Il a été observé expérimentalement par Dobbs *et al* [28] que dans le cas d'îlots 3D l'augmentation de température diminue la densité d'îlots et que l'augmentation du flux augmente cette densité (un modèle par champ moyen est également inclus et donne les mêmes résultats), soit des résultats qualitativement similaires à ceux que nous avons obtenus dans nos simulations. Il faut tout de même noter que ces expériences sont sur un système un peu différent (InP) et à des températures plus élevées (autour de 850 K).

Parallèlement nous avons observé que la rugosité augmente avec la taille des îlots comme vu en partie 7.1, ce qui n'est pas surprenant si l'on considère la définition de la rugosité (5.1).

Il faut tout de même noter que, comme nos simulations considèrent une plage de températures assez réduite (entre 500 et 600 K), il est possible que le comportement soit différent à des températures plus élevées ou plus faibles. Les simulations à température inférieure à environ 500 K ont tendance à ne pas former d'îlots 3D, mais plutôt une rugosité cinétique, comportement que l'on peut supposer être présent pour les températures plus basses. La densité d'îlots 3D va donc tomber à zéro à faible température. À haute température des effets supplémentaires pourraient entrer en jeu, comme des effets d'évaporation/condensation que nous n'avons pas modélisés dans nos simulations Monte Carlo, ou encore des changements de phase.

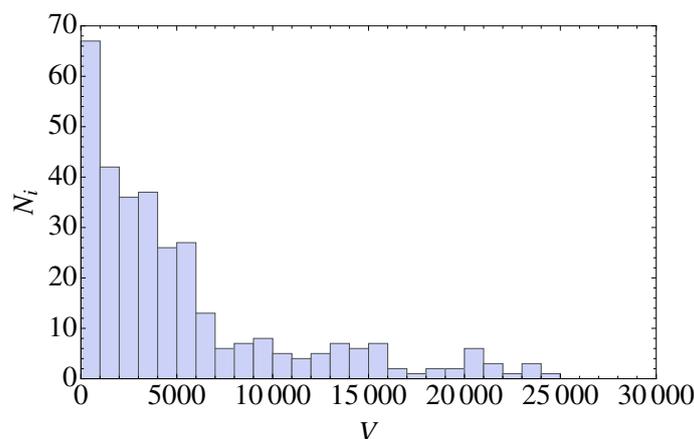


FIGURE 7.11 – Résultat de simulations Monte Carlo cinétiques, avec les mêmes paramètres que la Fig. 7.10, mais avec $T=550$ K. Le résultat est une somme de 70 simulations de taille 128×128 .

7.3 Distribution de taille des îlots

Les simulations permettent d'obtenir facilement la distribution de taille des îlots. Dans les graphiques on exclut tous les îlots de trop petite taille, et en particulier les adatoms, pour ne prendre en compte que les îlots 3D, ce qui rend les comparaisons avec les expériences plus faciles. Sur les figures 7.10 et 7.11 sont montrées les distributions de volume d'îlots (en nombre d'atomes) à deux températures différentes. On peut voir immédiatement qu'à plus haute température les îlots sont plus gros, comme vu dans la partie précédente. De plus les îlots les plus nombreux sont ceux de faible volume (~ 1000 atomes), avec une décroissance rapide du nombre d'îlots de plus grande taille.

Des distributions expérimentales de tailles d'îlots existent (figures 3 de [80] et 2 de [81]), mais les comparaisons ne sont pas faciles : expérimentalement les plus gros îlots sont des dômes que l'on n'a pas réellement modélisés et les plus petits îlots que nous pouvons compter dans les simulations ne sont pas forcément mesurables expérimentalement. Ces résultats expérimentaux donnent tout de même une distribution plus piquée du nombre d'îlots que nos simulations et le maximum de la distribution a une valeur pas vraiment comparable [81] : le volume correspondant au maximum de la distribution de pyramides est d'environ 500 nm^3 pour 600°C et 4,8 MC déposées, alors que nous obtenons un maximum autour de 100 nm^3 pour 277°C . Notre distribution de taille est plus proche de celle trouvée par McKay *et al* [82] en observant des îlots par STM (figure 4 de l'article), la mesure est également effectuée à 500°C . Reste que la faible densité d'îlots de petite taille observée expérimentalement n'est pas présente dans nos simulations.

Nous avons également essayé de chercher une loi d'échelle pour décrire les distributions de taille des îlots, comme vu dans le cas des îlots 2D (équation (1.5)). Comme proposé par Dobbs et Vvedensky, la loi d'échelle 2D peut se généraliser à

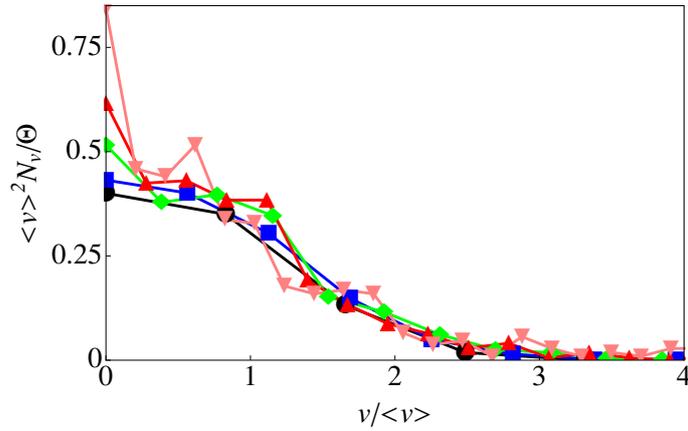


FIGURE 7.12 – Resultat de simulations Monte Carlo cinétiques sous forme de loi d'échelle, $T=500$ K avec des dépôts entre 0,9 MC et 1,5 MC avec un flux de 0,5 MC/s. Chaque courbe représente une quantité déposée différente. Le résultat est une somme de 90 simulations de taille 128 x 128

3D sous la forme :

$$N_v = \frac{\Theta}{\langle v \rangle^2} f\left(\frac{v}{\langle v \rangle}\right), \quad (7.3)$$

où v est le volume d'un îlot en nombre d'atomes. Cette loi d'échelle suppose que la seule longueur caractéristique du système est $\langle v \rangle$. Néanmoins l'élasticité ajoute une longueur caractéristique dans le système, et il n'est donc pas évident qu'une telle loi se retrouve dans nos simulations. On trouve alors les graphiques 7.12 et 7.13 pour les températures de 500 et 550 K correspondant à plusieurs moments du dépôt (entre 0,9 et 1,5 MC). Le recouvrement entre les courbes est plutôt bon et suggère que la loi de la nucléation 2D s'applique également au cas 3D (7.3). Dans nos systèmes, la longueur caractéristique est $l_0 \sim 0,8$ nm, pour les paramètres indiqués au début de ce chapitre. Cette longueur est petite comparée à la taille des îlots (une quarantaine d'atomes de côté pour un îlot de taille moyenne, soit ~ 14 nm) et à la distance entre îlots (souvent ~ 5 nm). Ceci permet de rationaliser la validité de la loi d'échelle en présence d'élasticité.

Le calcul de la dispersion de taille σ_r des îlots peut également être effectué en prenant

$$\sigma_r = \frac{1}{N} \sum \frac{|v - \bar{v}|}{\bar{v}}, \quad (7.4)$$

avec N le nombre total d'îlots, v le volume de l'îlot considéré et \bar{v} le volume moyen des îlots. En excluant les îlots de taille inférieure à 48, ce qui correspond à l'îlot 3D à facettes (105) de plus petit volume, la dispersion est proche de 1, ce qui est généralement considéré comme trop élevé pour les applications (une dispersion maximale de 20% est suggérée [14]).

En conclusion, nous avons montré dans ce chapitre que la méthode de Monte-Carlo cinétique que nous avons employée permet d'obtenir des îlots pyramidaux.

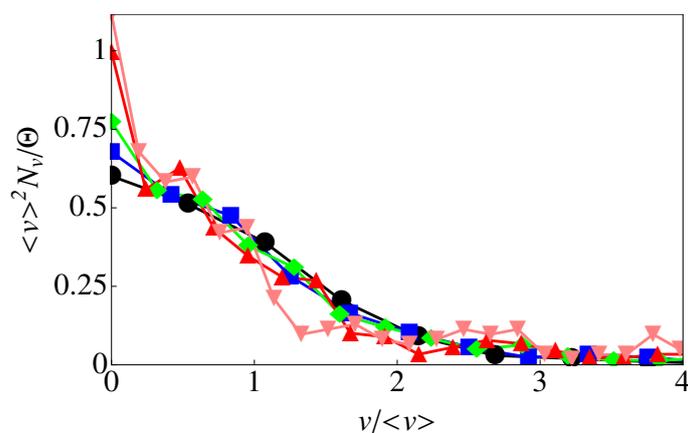


FIGURE 7.13 – Résultat de simulations Monte Carlo cinétique sous forme de loi d'échelle, avec les mêmes paramètres que la Fig. 7.12, mais avec $T=550$ K. Le résultat est une somme de 70 simulations de taille 128×128 .

Nous avons ensuite étudié la distribution de taille des îlots pour laquelle nous avons retrouvé une loi d'échelle fonction du volume des îlots. Plus spécifiquement, nous avons vu un mûrissement des îlots, qui est interrompu pendant le recuit. De plus la densité d'îlots a une dépendance en loi de puissance au rapport de la densité sur le flux de dépôt, comme dans le cas de la nucléation 2D.

Troisième partie
Conclusion et annexes

Conclusion

Mon travail de thèse a porté sur la modélisation de la croissance d'îlots sous contrainte élastique sur un substrat plan. Le premier chapitre introduit les notions de base sur la croissance d'îlots, le deuxième chapitre présente ensuite les bases de l'instabilité d'Asaro-Tiller-Grinfeld, qui sont approfondies dans le chapitre 3, avec le calcul non-linéaire pour le système modèle silicium-germanium. Le chapitre 4 présente un modèle d'instabilité dans le cas d'un désaccord de maille anisotrope, pertinent pour le système GaN sur AlGaIn. Le chapitre 5 décrit les résultats de la résolution numérique du calcul précédent. Enfin les chapitres 6 et 7 portent, respectivement, sur un modèle et les résultats de simulations Monte Carlo cinétiques d'un système de germanium sur silicium, où les effets de nucléation sont importants.

Tout d'abord nous avons étudié le cas de systèmes à faible désaccord de maille où la croissance des îlots est la conséquence d'une instabilité de type Asaro-Tiller-Grinfeld. Nous commençons par rappeler des résultats déjà connus, en particulier sur les systèmes silicium-germanium. Ensuite nous considérons la croissance d'îlots lorsque la contrainte élastique est issue d'un désaccord de maille anisotrope, ce qui s'applique dans le cadre de la croissance de nitrure de gallium sur un alliage de nitrure de gallium et de nitrure d'aluminium. Plus précisément nous avons réalisé un calcul linéaire, puis un calcul faiblement non-linéaire dans le cas où la contrainte est différente dans deux directions orthogonales dans le plan de croissance. La résolution numérique de cette équation non-linéaire a ensuite été faite par une méthode pseudo-spectrale. On notera en particulier que l'on obtient un mûrissement d'îlots anisotropes et que, pour deux systèmes ayant le même désaccord moyen, le système au désaccord de maille anisotrope croît plus vite que le système qui possède un désaccord isotrope.

D'autre part nous avons traité le cas de la nucléation d'îlots dans les systèmes à fort désaccord de maille, par exemple le germanium pur sur un substrat de silicium. Ce cas a été traité à l'aide de simulations Monte Carlo cinétiques, dont les résultats ont permis de faire des analogies avec le cas de la nucléation 2D. Plus spécifiquement, ces analogies portent sur l'existence d'une loi d'échelle vérifiée par les îlots 3D, et une dépendance en loi de puissance de la densité d'îlots en fonction du rapport de la diffusion de surface sur le flux de dépôt. De plus nous avons obtenu les distributions de taille d'îlots qui vérifient bien les lois d'échelle habituelles.

À l'avenir plusieurs phénomènes intéressants pourraient être étudiés suite à cette étude. D'une part les effets d'alliage (rapidement discutés dans l'annexe F) sont un

problème complexe, qui pourraient être étudiés, tant du point de vue des instabilités, avec un modèle continu, que du point de vue de la nucléation, à l'aide de simulations Monte Carlo cinétiques. En particulier on peut se poser la question des effets relatifs de la diffusion de surface différente pour deux types d'atomes et des effets élastiques de deux atomes différents. Ceci pourrait avoir un impact sur le champ de composition à l'intérieur des îlots. Ainsi il a été montré expérimentalement que la concentration en germanium augmente quand on se rapproche du sommet des îlots de SiGe. On pourrait ainsi généraliser les simulations Monte Carlo en prenant en compte deux espèces différentes, au lieu de simplement compter des hauteurs, avec des énergies d'interaction différentes avec les voisins suivant leur type. De plus il faudrait modifier le calcul de l'élasticité pour prendre en compte la concentration des deux espèces en chaque point. Du point de vue des instabilités, le calcul linéaire a été fait [48], et le calcul non-linéaire reste à faire.

D'autre part il reste à approfondir l'étude du cas de l'anisotropie de désaccord de maille. Du point de vue des résultats obtenus par le modèle, il reste des observations à effectuer, par exemple la présence de lois d'échelle pour les tailles d'îlots ou la présence de lois de puissance pour l'évolution de la rugosité en fonction du temps, et ce en présence et en l'absence des effets d'anisotropie de désaccord de maille. Du point de vue de l'amélioration du modèle, la prise en compte des facettes à travers une anisotropie d'énergie de surface, de la même manière que dans le cas du SiGe, pourrait rapprocher notre modèle des résultats expérimentaux. Le premier point à approfondir serait d'exploiter davantage le modèle existant et d'essayer de se rapprocher des paramètres expérimentaux. Ensuite il serait intéressant d'ajouter une modélisation des facettes à travers une anisotropie d'énergie de surface et d'observer les effets de ce paramètre supplémentaire.

Annexe A

Rappels d'élasticité

Cette annexe va donner quelques rappels de base d'élasticité.

La théorie de l'élasticité traite de la déformation des solides soumis à une force lorsque le solide est considéré comme continu [83]. Le vecteur déplacement \vec{u} correspond à la différence entre la position d'un point situé en \vec{r} au repos et après une déformation (le point est alors en \vec{r}'), d'où

$$\vec{u} = \vec{r}' - \vec{r}. \quad (\text{A.1})$$

Le tenseur des déformations e est, pour des déplacements de faible amplitude :

$$e_{i,j} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right), \quad (\text{A.2})$$

où les i, j correspondent aux trois directions. Ce tenseur est symétrique.

Lorsqu'un solide est déformé il n'est plus dans son état d'équilibre mécanique et des contraintes internes vont tendre à le ramener vers son état d'équilibre. Si on nomme \vec{F} la force par unité de volume dV , l'intégrale $\int \vec{F} dV$ est alors la force totale exercée sur un volume considéré. Ces forces sont équivalentes à des forces exercées sur les surfaces du volume considéré, et l'intégrale précédente sur le volume est équivalente à une intégrale sur la surface du tenseur des contraintes σ , \vec{F} est donc la divergence du tenseur des contraintes :

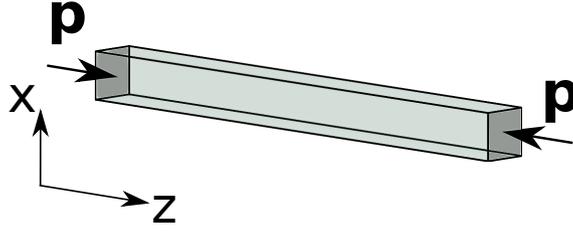
$$F_i = \frac{\partial \sigma_{i,j}}{\partial x_j}, \quad (\text{A.3})$$

et l'intégrale est alors :

$$\int F_i dV = \int \frac{\partial \sigma_{i,j}}{\partial x_j} dV = \oint \frac{\partial \sigma_{i,j}}{\partial x_j} dn_j. \quad (\text{A.4})$$

Dans un solide à l'équilibre les forces s'annulent, d'où :

$$\frac{\partial \sigma_{i,j}}{\partial x_j} = 0; \quad (\text{A.5})$$


FIGURE A.1 – Poutre comprimée par une pression \vec{p} .

dans le cas où une force \vec{P} est appliquée sur un élément de surface df du solide, on doit observer un équilibre entre cette force $\vec{P}df$ et les contraintes internes $-\sigma_{i,j}df_j$, le résultat est alors :

$$\sigma_{i,j}n_j = P_i. \quad (\text{A.6})$$

On nomme ν (noté σ dans certains livres et articles) le coefficient de Poisson, qui est sans dimension et compris entre -1 et $1/2$, et Y (en général noté E) le module d'Young, homogène à une pression. Pour décrire ces deux coefficients on peut prendre l'exemple d'une poutre selon \hat{z} (voir Fig. A.1) que l'on comprime (ou étire, ce qui revient à inverser le signe de la force appliquée) à partir des deux extrémités avec une pression p (voir §5 [83]). On prend un matériau homogène dont les tenseurs de contraintes et de déformations sont constants à l'intérieur de la poutre. Il suffit alors d'utiliser les conditions aux limites de la poutre pour déterminer ces contraintes et déformations

$$\sigma_{z,i}n_i = p, \quad (\text{A.7})$$

d'où

$$\sigma_{z,z} = p, \quad (\text{A.8})$$

et les déformations peuvent alors être déduites à l'aide du module d'Young :

$$e_{z,z} = p/Y, \quad (\text{A.9})$$

le coefficient de Poisson permettant de trouver les déformations longitudinales :

$$e_{x,x} = -\nu e_{z,z}. \quad (\text{A.10})$$

D'une manière générale la relation entre le tenseur des contraintes et celui des déformations est :

$$\sigma_{i,j} = \frac{Y}{1+\nu}e - \frac{Y\nu}{-1+\nu+2\nu^2}\text{Tr}(e)\mathbb{1}, \quad (\text{A.11})$$

avec $\text{Tr}(e)$ la trace de e et $\mathbb{1}$ la matrice unité.

Si on se place dans le cadre d'un solide isotrope et que l'on remplace (A.11) dans l'équation (A.5) on a une équation d'équilibre

$$(1-2\nu)\Delta\vec{u} + \nabla(\nabla\vec{u}) = \vec{0}, \quad (\text{A.12})$$

désignée sous le nom d'équation de Lamé.

Équation de Lamé pour un film de composition non homogène Si on prend le cas où un solide composé de deux espèces n'est pas homogène (la concentration des espèces varie dans l'espace), le tenseur des déformations causées par cet effet est :

$$e_{i,j}^c = \eta_0(c - C^*)\delta_{i,j}, \quad (\text{A.13})$$

où C^* est la concentration de référence d'une espèce, c la concentration d'une des espèces au point considéré et η_0 le désaccord de maille entre les espèces considérés (voir [48] partie 2-C). De même que précédemment, on reprend les équations (A.11) et (A.5) ce qui permet d'obtenir une nouvelle équation de Lamé :

$$(1 - 2\nu)\Delta\vec{u} + \nabla(\nabla\vec{u}) = 2(1 + \nu)\eta_0\nabla c, \quad (\text{A.14})$$

la valeur de C^* étant constante, elle n'est plus présente dans cette équation.

Constantes élastiques Dans certains documents, le coefficient de Lamé μ (ou module de cisaillement) est préféré au module de Young. Dans le cas d'un matériau isotrope il y a une relation entre ce coefficient, le module de Young et le coefficient de Poisson :

$$\mu = \frac{Y}{2(1 + \nu)}. \quad (\text{A.15})$$

Annexe B

Les équations d'évolution de la surface

Dans cette description on néglige la diffusion volumique, qui est faible aux températures considérées, ainsi que l'interdiffusion. On considère également le cas plus général de plusieurs espèces i déposées (cas de l'alliage).

On considère la surface entre α et β , respectivement la phase vapeur et la phase solide. On désigne sous le nom $a(t)$ la surface de l'interface entre α et β , \vec{n} est le vecteur normal à cette surface, le vecteur \vec{k} est la normale au contour de la surface (et est dans le plan tangent à cette surface), \vec{m} est la normale au volume total $V(t)$ considéré (voir le schéma B.1).

On prend \vec{F} le flux de dépôt et \vec{J}_s le flux de la diffusion de surface (qui appartient au même plan tangent à la surface que \vec{k}). N_i est le nombre d'atomes de l'espèce i contenus dans le volume $V(t)$ considéré. On a alors :

$$\frac{dN_i}{dt} = - \iint_{\delta V} \vec{J}_i \vec{m} d^2s - \iint_{\delta a} \vec{J}_i^s \vec{k} ds, \quad (\text{B.1})$$

en utilisant que $N_i^{volutot} = N_i^\alpha + N_i^\beta$ et que

$$N_i^\beta(t) = \iiint_{V^\beta} \rho_i(\vec{r}, t) d^3\vec{r}, \quad (\text{B.2})$$

avec $\rho_i(\vec{r}, t)$ la densité volumique de l'espèce i . On déduit :

$$\frac{dN_i^\beta}{dt} = \iiint_{V^\beta} d^3\vec{r} \frac{\partial \rho_i(\vec{r}, t)}{\partial t} + \iint_{a(t)} \rho_i^\beta(\vec{r}, t) \vec{v} \cdot \vec{n} d^2s \quad (\text{B.3})$$

$$\frac{dN_i^\alpha}{dt} = \iiint_{V^\alpha} d^3\vec{r} \frac{\partial \rho_i(\vec{r}, t)}{\partial t} + \iint_{a(t)} \rho_i^\alpha(\vec{r}, t) \vec{v} \cdot (-\vec{n}) d^2s. \quad (\text{B.4})$$

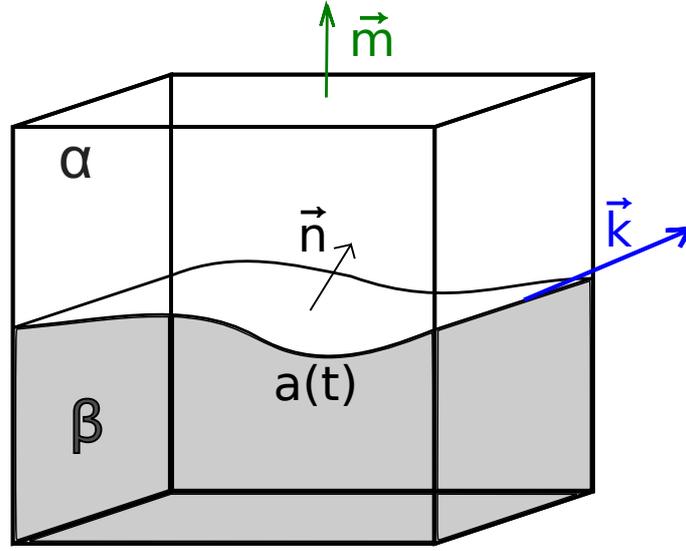


FIGURE B.1 – schéma de l'interface adsorbat-vapeur.

L'équation pour le volume total est alors :

$$\frac{dN_i^{vol}}{dt} = \iiint_V d^3\vec{r} \frac{\partial \rho_i(\vec{r}, t)}{\partial t} + \iint_{a(t)} (\rho_i^\beta - \rho_i^\alpha)(\vec{r}, t) \vec{v} \cdot \vec{n} d^2s \quad (\text{B.5})$$

$$\delta s = \iint dxdy \delta h \kappa. \quad (\text{B.6})$$

Pendant un intervalle de temps δt , l'interface se déplace d'une distance $v_n \delta t$ selon la direction \vec{n} et κ est la courbure de l'interface, où

$$\vec{n} = \frac{1}{\sqrt{1 + \nabla h^2}} \begin{pmatrix} -h_x \\ -h_y \\ 1 \end{pmatrix}. \quad (\text{B.7})$$

Si on prend δh le déplacement vertical (selon z), alors :

$$v_n \delta t = \vec{n} \cdot \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \delta h \end{pmatrix}, \quad (\text{B.8})$$

d'où

$$\delta h = v_n \delta t \sqrt{1 + \nabla h^2} \quad (\text{B.9})$$

$$\begin{aligned} \delta s &= \iint dxdy v_n \delta t \sqrt{1 + \nabla h^2} \kappa \\ &= \delta t \iint d^2s v_n \kappa. \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

Si on prend $\Gamma_i(t)$ la concentration de surface de l'espèce i , la quantité de l'espèce à la surface s'écrit :

$$N_i^{surf}(t) = \iint_{a(t)} d^2s \Gamma_i(t), \quad (\text{B.11})$$

que l'on peut différencier :

$$\frac{dN_i^{surf}}{dt} = \iint_{a(t)} d^2s \frac{\partial \Gamma_i(t)}{\partial t} + \iint_{a(t)} d^2s \kappa \Gamma_i(t) (\vec{v} \cdot \vec{n}), \quad (\text{B.12})$$

où le deuxième terme correspond à la variation de la surface en fonction du temps.

On peut déduire du calcul précédent la variation de la quantité d'éléments à la surface (voir les équations (B.11) et (B.12)) :

$$\frac{dN_i^{surf}}{dt} = \iint_{a(t)} d^2s \frac{\partial \Gamma_i(t)}{\partial t} + \iint_{a(t)} d^2s \kappa \Gamma_i(t) (\vec{v} \cdot \vec{n}). \quad (\text{B.13})$$

La conservation de la masse nécessite que les variations de concentration d'éléments à la surface et dans le volume soient égales au flux de déposition :

$$\frac{dN_i^{surf}}{dt} + \frac{dN_i^{vol}}{dt} = \frac{dN_i^{flux}}{dt}, \quad (\text{B.14})$$

l'équation précédente peut alors être développée à l'aide des équations (B.5) et (B.12).

$$\begin{aligned} \iiint_V d^3\vec{r} \frac{\partial \rho_i(\vec{r}, t)}{\partial t} + \iint_{a(t)} (\rho_i^\beta - \rho_i^\alpha)(\vec{r}, t) \vec{v} \cdot \vec{n} d^2s + \iint_{a(t)} d^2s \frac{\partial \Gamma_i(t)}{\partial t} \\ + \iint_{a(t)} d^2s \kappa \Gamma_i(t) (\vec{v} \cdot \vec{n}) = - \iint_{\delta V} \vec{J}_i \cdot \vec{m} d^2s - \int_{\delta a} \vec{J}_i^s \cdot \vec{k} ds. \end{aligned} \quad (\text{B.15})$$

On choisit alors le cas limite où le volume $V(t)$ est une petite bande d'épaisseur ϵ autour de l'interface (Fig. B.2) que l'on fait tendre vers 0. Dans ce cas

$$\vec{n} = \vec{m} \quad (\text{B.16})$$

dans la partie α , ou

$$\vec{n} = -\vec{m} \quad (\text{B.17})$$

dans la partie β .

Alors :

$$\iiint_V d^3\vec{r} \frac{\partial \rho_i}{\partial t} = \iint_a d^2s d\vec{n} \frac{\partial \rho_i}{\partial t} = \mathcal{O}(\epsilon), \quad (\text{B.18})$$

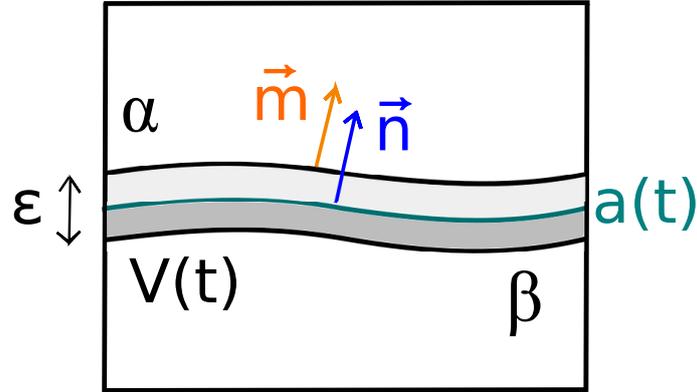


FIGURE B.2 – schéma de l'interface adsorbat-vapeur dans le cas limite d'une épaisseur ϵ .

qui tend vers 0 quand on fait tendre ϵ vers 0.

D'où :

$$\iint_a d^2s \left[(\rho_i^\beta - \rho_i^\alpha) v_n + \frac{\partial \Gamma_i}{\partial t} + \kappa \Gamma_i v_n + \vec{n} \cdot (\vec{J}_i^\alpha - \vec{J}_i^\beta) \right] + \int_{\delta a} \vec{J}_i^s \cdot \vec{k} ds = 0. \quad (\text{B.19})$$

D'après le théorème de Stokes

$$\int_{\delta a} \vec{J}_i^s \cdot \vec{k} ds = \iint_a d^2s \vec{\nabla}_s \cdot \vec{J}_i^s, \quad (\text{B.20})$$

où $\vec{\nabla}_s = \vec{\nabla} - \vec{n} \cdot (\vec{n} \cdot \vec{\nabla})$ est le gradient de surface.

Donc en modifiant (B.19) on obtient :

$$\iint_a d^2s \left[(\rho_i^\beta - \rho_i^\alpha) v_n + \frac{\partial \Gamma_i}{\partial t} + \kappa \Gamma_i v_n + \vec{n} \cdot (\vec{J}_i^\alpha - \vec{J}_i^\beta) + \vec{\nabla}_s \cdot \vec{J}_i^s \right] = 0, \quad (\text{B.21})$$

et donc

$$(\rho_i^\beta - \rho_i^\alpha) v_n + \frac{\partial \Gamma_i}{\partial t} + \kappa \Gamma_i v_n = -\vec{n} \cdot (\vec{J}_i^\alpha - \vec{J}_i^\beta) - \vec{\nabla}_s \cdot \vec{J}_i^s. \quad (\text{B.22})$$

On prend le cas limite où α est vide plutôt qu'une phase vapeur (l'hétéroépitaxie étant réalisée avec un vide poussé), $\rho_i^\alpha = 0$ et où il n'y a pas de diffusion de volume, $\vec{J}_i^\beta = \vec{0}$, tout en prenant un flux de déposition vertical $\vec{J}_i^\alpha = -F_i \vec{z}$. De plus on prend une bande à l'interface d'épaisseur δ , ce qui permet de noter $\Gamma_i = \rho_i \delta = c_i \delta / \Omega$ où Ω est le volume atomique et c_i est la proportion de l'espèce i dans le flux de dépôt ($0 \leq i \leq 1$).

Si on prend deux espèces A et B plus les sites vacants à la surface, on trouve

$$c_A + c_B + c_{vac} = 1, \quad (\text{B.23})$$

et en considérant que $c_{vac} \ll 1$, $c_A + c_B \simeq 1$.

En remplaçant tout cela dans l'équation (B.22) :

$$\delta \frac{\partial c_i}{\partial t} + c_i v_n (1 + \kappa \delta) = \Omega [F_i n_z - \vec{\nabla}_s \cdot \vec{J}_i^s], \quad (\text{B.24})$$

où n_z est la composante selon z de \vec{n} (voir (B.7)). On peut considérer que $\delta \kappa \ll 1$, δ étant une épaisseur microscopique qui est en général beaucoup plus faible que le rayon de courbure κ dans le cas d'un modèle continu à faibles pentes (de manière physique cela revient à estimer que la longueur d'onde des perturbations est longue par rapport à l'épaisseur de la surface ; dans nos simulations numériques on trouve des longueurs d'onde de l'ordre de la dizaine de nm, ce qui est largement supérieur à une surface considérée de quelques monocouches).

On peut également combiner l'équation (B.24) pour $i = A$ et $i = B$, ce qui, combiné à $c_A + c_B \simeq 1$ donne :

$$v_n = \Omega [F_{tot} n_z - \vec{\nabla}_s \cdot \vec{J}_{tot}^s], \quad (\text{B.25})$$

avec F_{tot} et J_{tot} la somme des flux A et B .

Dans le cas où l'on souhaite étudier l'évolution de la concentration à la surface (comme dans le chapitre F), il suffit de considérer l'une des espèces :

$$\delta \frac{\partial c_B}{\partial t} + c_B v_n = \Omega [F_B n_z - \vec{\nabla}_s \cdot \vec{J}_B^s], \quad (\text{B.26})$$

l'autre espèce se déduit étant donné que $c_A + c_B = 1$.

Les équations précédentes correspondent aux équations A.12 et A.13 de l'annexe A de l'article de Spencer *et al* [48].

Annexe C

Nucléation 2D

La théorie classique de la nucléation 2D (voir [5], chapitre 2-3 ou [4] chapitre 11 ou encore [6] chapitre 17) est basée sur des équations d'équilibre entre des densités n_s d'îlots de taille s (donc n_1 est la densité d'adatoms) et le taux auquel un adatome s'agrège à un îlot de taille s moins le taux auquel un adatome peut quitter cet îlot est Γ_s . Alors :

$$\frac{dn_s}{dt} = \Gamma_{s-1} - \Gamma_s, \quad (\text{C.1})$$

dans le cadre d'un modèle où les adatoms sont les seuls éléments qui diffusent (les îlots ne peuvent pas fusionner). Le taux de formation est :

$$\Gamma_s = DAt_s n_1 n_s - De_{s+1} n_{s+1}, \quad (\text{C.2})$$

où At_s est une probabilité qu'un îlot de taille s capture un adatome et De_s le taux de détachement d'adatoms d'un îlot de taille s . L'équation est légèrement différente dans le cas des adatoms, étant donné qu'ils peuvent se détacher où s'attacher à n'importe quel autre îlot ou adatome :

$$\frac{dn_1}{dt} = F - \Gamma_1 - \sum_{s \geq 1} \Gamma_s, \quad (\text{C.3})$$

où F est le flux de déposition (on suppose que tous les atomes déposés deviennent des adatoms).

Pour résoudre le problème de la nucléation, une taille critique d'îlot i^* est postulée, les îlots de taille supérieure étant supposés ne pas se désagréger. Donc pour $s \leq i^*$ on a $De_s \geq 0$, et pour $s > i^*$ $De_s = 0$. Si on prend alors N^{st} la densité d'îlots pour lesquels $s > i^*$,

$$\frac{dN^{st}}{dt} = DAt_{i^*} n_1 n_{i^*}. \quad (\text{C.4})$$

À l'équilibre thermique les taux de formation des îlots instables ($s \leq i^*$) s'équilibrent, ce qui donne la relation de Walton

$$\Omega n_s \approx (\Omega n_s)^s e^{E_s/(k_b T)} \quad (\text{C.5})$$

pour les îlots instables (hors adatoms), avec Ω la surface occupée par un adatome.

On peut simplifier les équations en utilisant un taux de capture moyen $\bar{A}t$ défini comme :

$$\bar{A}t = \frac{1}{N^{st}} \sum_{i^*+1}^{\infty} n_s At_s, \quad (\text{C.6})$$

ce qui simplifie l'équation (C.3) :

$$\frac{dn_1}{dt} = F - DAt_{i^*}n_1n_{i^*} - \bar{A}tDn_1N^{st}. \quad (\text{C.7})$$

On se place désormais dans le régime permanent de nucléation (dans le régime transitoire les densités d'îlots dépendent surtout du taux de couverture). La résolution de l'équation différentielle précédente permet d'obtenir

$$n_1 \approx \frac{F}{D\bar{A}tN^{st}}. \quad (\text{C.8})$$

On peut alors déterminer la densité d'îlots stables N^{st} en intégrant par séparation de variable l'équation (C.4) à l'aide de (C.5) :

$$(N^{st})^{i^*+1} \frac{dN^{st}}{dt} = \frac{At_{i^*}}{\bar{A}t\Omega} F\Omega \left(\frac{\Omega F}{D\bar{A}t} \right)^{i^*} e^{E_{i^*}/(k_b T)}, \quad (\text{C.9})$$

en prenant $\hat{N} = \Omega N$ une densité d'îlots par site considéré :

$$(\hat{N}^{st})^{i^*+1} d\hat{N}^{st} = \frac{At_{i^*}}{\bar{A}t} F\Omega \left(\frac{\Omega^2 F}{D\bar{A}t} \right)^{i^*} e^{E_{i^*}/(k_b T)} dt, \quad (\text{C.10})$$

ce qui s'intègre en :

$$(\hat{N}^{st}) = \left((i^* + 2) \frac{At_{i^*}}{\bar{A}t} \Theta \right)^{-(i^*+2)} \left(\frac{\Omega^2 F}{D\bar{A}t} \right)^{i^*/(i^*+2)} e^{E_{i^*}/((i^*+2)k_b T)}, \quad (\text{C.11})$$

en prenant la couverture totale $\Theta = \Omega Ft$.

Ce qui fait au final une loi d'échelle

$$N^{st} \sim \left(\frac{D}{F} \right)^\alpha. \quad (\text{C.12})$$

Le coefficient α existe pour plusieurs modèles, par exemple en considérant une surface vicinale ou la diffusion des îlots (voir par exemple le chapitre 11 de [4] ou le chapitre 2 de [5]).

L'hypothèse de loi d'échelle pour la distribution de taille des îlots (voir [64]) suppose que les tailles et densités d'îlots dépendent de la couverture Θ et de la taille moyenne des îlots :

$$\bar{s} = \frac{1}{N^{st}} \sum_{s=i^*+1}^{\infty} sn_s. \quad (\text{C.13})$$

La distribution de taille des îlots doit alors être une fonction de s/\bar{s}

$$n_s = \frac{\Theta}{\bar{s}^2} f\left(\frac{s}{\bar{s}}\right), \quad (\text{C.14})$$

avec f une fonction d'échelle telle que :

$$\int_0^\infty f(x) dx = 1. \quad (\text{C.15})$$

Annexe D

Calcul non linéaire de l'instabilité de Grinfeld

D.1 Calcul dans le cas du désaccord de maille isotrope

Cette annexe détaille le calcul évoqué au chapitre 3 (calcul démontré dans un article de 2007 [45]).

On reprend donc le calcul linéaire jusqu'au calcul des coefficients $C_{1,j}$, qui correspond à la continuité des contraintes à la surface du film, et on poursuit le calcul en conservant la partie en ϵ^2 en plus des parties à l'ordre linéaire en ϵ . Nous commençons par subdiviser les coefficients $C_{i,j}$ en une partie d'ordre 1 et une partie d'ordre 2 : $C_{i,j,k}$ avec k l'ordre du terme. Les termes $C_{i,j,1}$ sont connus du fait du calcul linéaire (2.30)(2.31)(2.32).

$$C_{i,j} = C_{i,j,1} + \epsilon C_{i,j,2}. \quad (\text{D.1})$$

Nous refaisons alors la condition de continuité des contraintes à la surface du film (2.28) en considérant les termes d'ordre 2. Pour cela nous développons le terme facteur de la hauteur h en $h(x, y) = h_0 + \epsilon h_k e^{-ik_x x - ik_y y}$ et le vecteur normal à la surface (2.29) en $\vec{n} = \frac{1}{\sqrt{1+h_x^2+h_y^2}} (-h_x, -h_y, 1)$.

On rappelle les résultats du calcul linéaire pour le film qui sont réutilisés ici (voir chapitre 2) :

$$A_{1,j} = \epsilon(B_{1,j} + C_{1,j}), \quad (\text{D.2})$$

pour $j = x, y, z$,

$$B_{1,j} = 0, \quad (\text{D.3})$$

$$C_{1,x,1} = -\frac{ie^{-h_0 k} h_k k_x (1 + \nu)(-2 + h_0 k + 2\nu)\eta}{k(1 - \nu)} \quad (\text{D.4})$$

$$C_{1,y,1} = -\frac{ie^{-h_0 k} h_k k_y (1 + \nu)(-2 + h_0 k + 2\nu)\eta}{k(1 - \nu)} \quad (\text{D.5})$$

$$C_{1,z,1} = -\frac{ie^{-h_0k}h_k(1+\nu)(1+h_0k+2\nu)\eta}{(1-\nu)}. \quad (\text{D.6})$$

À partir de ces valeurs, nous utilisons la condition d'absence de contrainte à la surface. Pour cela nous calculons le tenseur des contraintes σ en remplaçant tous les termes linéaires déjà calculés.

Les contraintes à la surface sont déterminées par $\sigma^f \cdot \vec{n} = \vec{0}$ où \vec{n} est le vecteur normal à la surface. On a trois équations couplées que l'on résout à l'aide l'une matrice M qui prend tous les termes des équations issues de $\sigma^f \cdot \vec{n} = \vec{0}$ facteurs de $C_{1,i,2}$ puis un second membre $\vec{M}_d = \sigma^f \cdot \vec{n}$ avec les $C_{1,i,2} = 0$. Les valeurs de $C_{1,i,2}$ sont alors données par $-\vec{M}_d M^{-1}$. Le calcul de \vec{M}_d est effectué en deux parties, la première est composée des termes issus du produit $\sigma^f \cdot (0, 0, 1)$ et développés autour de $h(x, y) = h_0 + \epsilon h_k e^{-ik_x x - ik_y y}$, la deuxième partie correspond aux termes restants, donc produit des $\epsilon k_i h_k$ par la partie à l'ordre 1 de σ^f . Dans les deux cas on a un produit de transformées de Fourier, ces termes correspondent donc à des produits de convolution de la forme :

$$\int dk_1 h(k_1) h(k - k_1). \quad (\text{D.7})$$

Les valeurs de l'inverse de la matrice M et de M_d sont :

$$M^{-1} = \begin{pmatrix} \frac{e^{-kh_0}(2k_y^2 - k_x^2)(h_0k + 2\nu - 2)}{2k^4(4\nu - 3)} & -\frac{e^{-kh_0}k_x k_y (h_0k + 2\nu)}{2k^4(4\nu - 3)} & -\frac{ie^{-kh_0}k_x (h_0k + 2\nu - 1)}{2k^3(4\nu - 3)} \\ -\frac{e^{-kh_0}k_x k_y (h_0k + 2\nu)}{2k^4(4\nu - 3)} & \frac{e^{-kh_0}(2k_x^2 - k_y^2)(h_0k + 2\nu - 2)}{2k^4(4\nu - 3)} & -\frac{ie^{-kh_0}k_y (h_0k + 2\nu - 1)}{2k^3(4\nu - 3)} \\ -\frac{ie^{-kh_0}k_x (h_0k - 2\nu + 1)}{2k^3(4\nu - 3)} & -\frac{ie^{-kh_0}k_y (h_0k - 2\nu + 1)}{2k^3(4\nu - 3)} & \frac{e^{-kh_0}(h_0k - 2\nu + 2)}{2k^2(4\nu - 3)} \end{pmatrix} \quad (\text{D.8})$$

en simplifiant par un facteur $\frac{2k(\nu+1)(4\nu-3)}{Y\epsilon}$ et, dans le cas de l'ordre 1 :

$$\vec{M}_{d1} = \left(\frac{2i\eta h_k k(\nu+1)(4\nu-3)k_x}{\nu-1}, \frac{2i\eta h_k k(\nu+1)(4\nu-3)k_y}{\nu-1}, 0 \right), \quad (\text{D.9})$$

auquel on applique le même facteur. Pour obtenir l'ordre 2 on doit utiliser une expression un peu plus complexe, avec des produits de convolution :

$$\begin{aligned} \vec{M}_{d2x} = & -\int \frac{2i\eta k(\nu+1)(4\nu-3)}{k_1(\nu-1)} \left(e^{-k_1 h_0} \left(\frac{k_{x1} - k_x}{4\nu-3} ((2\nu-3)k_{x1}^2 (h_0k_1 + 2\nu-2) \right. \right. \\ & - 2\nu k_{y1}^2 (h_0k_1 + 2\nu-2) + 2k_1^2 \nu (h_0k_1 - 2\nu+1)) \\ & \left. \left. + k_{x1} k_{y1} (h_0k_1 + 2\nu-2)(k_{y1} - k_y) + 2k_1^2 k_{x1} \right) dk_1 h(k_1) h(k - k_1) \right) \quad (\text{D.10}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \vec{M}_{d2y} = & -\int \frac{2i\eta k(\nu+1)(4\nu-3)}{k_1(\nu-1)} \left(e^{-k_1 h_0} (k_{x1} k_{y1} (h_0k_1 + 2\nu-2)(k_{x1} - k_x) \right. \\ & - \frac{(k_y - k_{y1})}{4\nu-3} (-2\nu k_{x1}^2 (h_0k_1 + 2\nu-2) + (2\nu-3)k_{y1}^2 (h_0k_1 + 2\nu-2) \\ & \left. \left. + 2k_1^2 \nu (h_0k_1 - 2\nu+1)) + 2k_1^2 k_{y1} \right) dk_1 h(k_1) h(k - k_1) \right) \quad (\text{D.11}) \end{aligned}$$

$$\vec{M}_{d2z} = \int \frac{2\eta k(\nu+1)(4\nu-3)e^{-k_1 h_0}}{\nu-1} \left((h_0 k_1 - 1) (-k_x k_{x1} - k_y k_{y1} + k_1^2) + k_1^2 e^{h_0 k_1} \right) dk_1 h(k_1) h(k - k_1). \quad (D.12)$$

Le calcul précédent permet d'obtenir les valeurs des $C_{1,i,2}$ (non rapportées ici), il ne reste alors plus qu'à les replacer dans le calcul du déplacement. On remet ici le résultat de ce calcul à 2D (vu dans le chapitre 3) :

$$u_x(k, z) = \eta \frac{1+\nu}{1-\nu} e^{k(z-h_0)} \int dk_1 i \frac{\hat{h}_1(k_1) \hat{h}_1(k-k_1)}{k} \left(k k_{x1} (1-2\nu + k(z-h_0)) + 2k_1 k_x (2(\nu-1) - k(z-h_0)) \right), \quad (D.13)$$

et dans la direction verticale :

$$u_z(k, z) = -\eta \frac{1+\nu}{1-\nu} e^{k(z-h_0)} \int dk_1 \frac{\hat{h}_1(k_1) \hat{h}_1(k-k_1)}{k} \left(k (k_x k_{x1} (z-h_0) + 2k_1 (1-2\nu) - 2k_x k_{x1} (1-\nu) + 2k^2 k_1 (h_0 - z)) \right). \quad (D.14)$$

Une fois la valeur du déplacement obtenue, on va chercher à calculer le potentiel chimique. Pour cela nous avons d'abord réalisé le calcul littéral en fonction des parties à l'ordre 0, 1 et 2 du déplacement :

$$u_i = u_{i,0} + \epsilon u_{i,1} + \epsilon^2 u_{i,2}, \quad (D.15)$$

où $i = x, y, z$. La valeur de l'énergie est alors :

$$E_{el0,1,2} = \frac{1}{2} \left(e_f^0 \sigma_f^0 + \epsilon (e_f^1 \sigma_f^0 + e_f^0 \sigma_f^1) + \epsilon^2 (e_f^0 \sigma_f^2 + e_f^1 \sigma_f^1 + e_f^2 \sigma_f^0) \right), \quad (D.16)$$

en fonction des tenseurs des contraintes et des déplacements, et

$$\begin{aligned} E_{el} = & \frac{Y\eta^2}{1-\nu} + \epsilon \frac{\eta Y (v1x^{(1,0,0)}(x, y, 0) + v1y^{(0,1,0)}(x, y, 0))}{\nu-1} \\ & + \frac{Y\epsilon^2}{2(\nu+1)(4\nu^2-6\nu+2)} (4\eta(2\nu^2+\nu-1)(H(v1x^{(1,0,1)}(x, y, 0) + v1y^{(0,1,1)}(x, y, 0)) \\ & + v2x^{(1,0,0)}(x, y, 0) + v2y^{(0,1,0)}(x, y, 0)) + (\nu-1)(-4\nu v1x^{(1,0,0)}(x, y, 0)v1y^{(0,1,0)}(x, y, 0) \\ & + 4\nu v1x^{(0,1,0)}(x, y, 0)v1y^{(1,0,0)}(x, y, 0) - 2v1x^{(0,1,0)}(x, y, 0)v1y^{(1,0,0)}(x, y, 0) \\ & + 2(2\nu-1)v1x^{(0,0,1)}(x, y, 0)v1z^{(1,0,0)}(x, y, 0) - 4\nu v1x^{(1,0,0)}(x, y, 0)v1z^{(0,0,1)}(x, y, 0) \\ & + (2\nu-1)v1x^{(0,0,1)}(x, y, 0)^2 + 2\nu v1x^{(0,1,0)}(x, y, 0)^2 + 2\nu v1x^{(1,0,0)}(x, y, 0)^2 \\ & - v1x^{(0,1,0)}(x, y, 0)^2 - 2v1x^{(1,0,0)}(x, y, 0)^2 - 4\nu v1y^{(0,1,0)}(x, y, 0)v1z^{(0,0,1)}(x, y, 0) \\ & + 2(2\nu-1)v1y^{(0,0,1)}(x, y, 0)v1z^{(0,1,0)}(x, y, 0) + (2\nu-1)v1y^{(0,0,1)}(x, y, 0)^2 \\ & + 2\nu v1y^{(0,1,0)}(x, y, 0)^2 + 2\nu v1y^{(1,0,0)}(x, y, 0)^2 - 2v1y^{(0,1,0)}(x, y, 0)^2 \\ & - v1y^{(1,0,0)}(x, y, 0)^2 + 2\nu v1z^{(0,0,1)}(x, y, 0)^2 + 2\nu v1z^{(0,1,0)}(x, y, 0)^2 \\ & + (2\nu-1)v1z^{(1,0,0)}(x, y, 0)^2 - 2v1z^{(0,0,1)}(x, y, 0)^2 - v1z^{(0,1,0)}(x, y, 0)^2) \end{aligned} \quad (D.17)$$

en fonction des valeurs du déplacement (les valeurs de $u_{i,0}$ sont remplacées pour simplifier le calcul), ici on fait un développement autour de $h = h_0 + \epsilon H$.

Comme vu précédemment au chapitre 3, on obtient au final le nouveau potentiel chimique élastique à l'ordre 2 (équation (3.10)) :

$$\begin{aligned} \mu_{el} = & 2h\Delta h + |\nabla h|^2 + 4(1 - \nu)\mathcal{H}_{xy}[h\mathcal{H}_{xy}[h]] + \mathcal{H}_{xx}[h]^2 + \mathcal{H}_{yy}[h]^2 \\ & + 2\mathcal{H}_{xx}[h(\mathcal{H}_{xx}[h] + \nu\mathcal{H}_{yy}[h])] + 2\mathcal{H}_{yy}[h(\mathcal{H}_{yy}[h] + \nu\mathcal{H}_{xx}[h])] \\ & + 2(1 - \nu)\mathcal{H}_{xy}[h]^2 + 2\nu\mathcal{H}_{xx}[h]\mathcal{H}_{yy}[h], \end{aligned} \quad (\text{D.18})$$

où

$$\mathcal{H}_{ij}(h) = \mathcal{F}^{-1} \left[\frac{k_i k_j}{k} \mathcal{F}(h) \right], \quad (\text{D.19})$$

avec \mathcal{F} la transformée de Fourier et \mathcal{F}^{-1} la transformée inverse.

D.2 Calcul dans le cas du désaccord de maille anisotrope

Le calcul du cas d'un désaccord de maille anisotrope en $\bar{\eta} + \delta\eta$ dans une direction et en $\bar{\eta} - \delta\eta$ dans la direction orthogonale, comme vu au chapitre 4, est détaillé ici dans sa partie non-linéaire. La méthode de calcul de la solution à l'ordre 2 est identique au cas du désaccord isotrope vu dans la section précédente.

Une nouvelle matrice inverse est calculée :

$$M^{-1} = \begin{pmatrix} \frac{e^{-kh_0}(2k_y^2 - (2\nu + kh_0 - 2)k_x^2)}{2k^2} & -\frac{e^{-kh_0}(2\nu + kh_0)k_x k_y}{2k^2} & -\frac{ie^{-kh_0}(2\nu + kh_0 - 1)k_x}{2k} \\ -\frac{e^{-kh_0}(2\nu + kh_0)k_x k_y}{2k^2} & \frac{e^{-kh_0}(2k_x^2 - (2\nu + kh_0 - 2)k_y^2)}{2k^2} & -\frac{ie^{-kh_0}(2\nu + kh_0 - 1)k_y}{2k} \\ -\frac{ie^{-kh_0}(-2\nu + kh_0 + 1)k_x}{2k} & -\frac{ie^{-kh_0}(-2\nu + kh_0 + 1)k_y}{2k} & \frac{1}{2}e^{-kh_0}(-2\nu + kh_0 + 2) \end{pmatrix} \quad (\text{D.20})$$

cette fois avec $\frac{2(\nu+1)}{kY\epsilon}$ en facteur. La nouvelle valeur de M_{d1} est :

$$\vec{M}_{d1} = \left(\frac{ih_k Y \epsilon k_x (\nu(\delta\eta + \bar{\eta}) - \delta\eta + \bar{\eta})}{\nu^2 - 1}, \frac{ih_k Y \epsilon k_y (\nu(\bar{\eta} - \delta\eta) + \delta\eta + \bar{\eta})}{\nu^2 - 1}, 0 \right). \quad (\text{D.21})$$

Ces deux équations précédentes permettent de déduire de nouvelles valeurs des $C_{1,i,1}$:

$$\begin{aligned} C_{1,x,1} = & \frac{ih_k e^{-kh_0} k_x}{k^3(\nu - 1)} [k_x^2(\nu(\delta\eta + \bar{\eta}) - \delta\eta + \bar{\eta})(h_0 k + 2\nu - 2) \\ & + k_y^2(h_0 k(\delta\eta(1 - \nu) + \bar{\eta}\nu + \bar{\eta}) - 2(\nu^2 - 1)(\delta\eta - \bar{\eta}))] \end{aligned} \quad (\text{D.22})$$

$$\begin{aligned} C_{1,y,1} = & \frac{ih_k e^{-kh_0} k_y}{k^3(\nu - 1)} [k_x^2(2(\nu^2 - 1)(\delta\eta + \bar{\eta}) + h_0 k(\nu(\delta\eta + \bar{\eta}) - \delta\eta + \bar{\eta})) \\ & - k_y^2(\delta\eta(\nu - 1) - \bar{\eta}(\nu + 1))(h_0 k + 2\nu - 2)] \end{aligned} \quad (\text{D.23})$$

$$C_{1,z,1} = \frac{h_k e^{-kh_0} (-h_0 k + 2\nu - 1) (\delta\eta(k_x^2 - k_y^2)(\nu - 1) + k^2 \bar{\eta}(\nu + 1))}{k^2(\nu - 1)}. \quad (\text{D.24})$$

Il ne reste alors plus qu'à calculer \vec{M}_{d2} (ici indiqués à 2D, avec $k_y = 0$) pour obtenir les $C_{1,i,2}$:

$$\vec{M}_{d2x} = - \int dk_1 \frac{2iY h_k(k_1) h_k(k - k_1) k_1 k_x (\delta\eta(\nu - 1) + \bar{\eta}(\nu + 1))}{\nu^2 - 1} \quad (\text{D.25})$$

$$\vec{M}_{d2z} = \int dk_1 \frac{Y h_k(k_1) h_k(k - k_1) k_x k_{x1} (\delta\eta(\nu - 1) + \bar{\eta}(\nu + 1))}{\nu^2 - 1} \quad (\text{D.26})$$

Une fois les $C_{1,i,2}$ calculés, on peut déduire l'expression du vecteur déplacement \vec{u} à l'ordre 2, ce qui permet enfin d'obtenir, de la même manière que dans le cas du désaccord isotrope, l'énergie élastique. Pour simplifier le calcul, on néglige la partie déjà calculée dans le cas isotrope (facteur de $\bar{\eta}^2$), et la partie facteur de $\delta\eta^2$.

Comme vu dans l'équation (4.17) la nouvelle énergie élastique est :

$$\begin{aligned} \mu_{el,anis}^{nl} = & \frac{2\delta\eta\bar{\eta}Y}{1-\nu} \left(- (h_x)^2 + (h_y)^2 + (1-2\nu)(\mathcal{R}_{xxx}(ihh_x) - \mathcal{R}_{yyy}(ihh_y)) \right. \\ & - 2(1-\nu^2)(\mathcal{H}_{xx}[h]^2 - \mathcal{H}_{yy}[h]^2) + h(3-2\nu)(h_{yy} - h_{xx}) - 2\nu(1-\nu)(\mathcal{T}_{yyyy}[h]^2 - \mathcal{T}_{xxxx}[h]^2) \\ & - 4\nu(1-\nu)(\mathcal{T}_{xyyy}[h]^2 - \mathcal{T}_{xxyy}[h]^2) - 8\nu(1-\nu)(\mathcal{T}_{xyyy}[h\mathcal{T}_{xyyy}[h]] - \mathcal{T}_{xxyy}[h\mathcal{T}_{xxyy}[h]]) \\ & - 4\nu(1-\nu)(\mathcal{T}_{yyyy}[h\mathcal{T}_{yyyy}[h]] - \mathcal{T}_{xxxx}[h\mathcal{T}_{xxxx}[h]]) \\ & \left. + 4(1-\nu^2)(\mathcal{H}_{yy}[h\mathcal{H}_{yy}[h]] - \mathcal{H}_{xx}[h\mathcal{H}_{xx}[h]]) \right), \quad (\text{D.27}) \end{aligned}$$

avec

$$\mathcal{H}_{ij}[h] = \mathcal{F}^{-1} \left[\frac{k_i k_j}{k} \mathcal{F}(h) \right] \quad (\text{D.28})$$

$$\mathcal{R}_{ijk}[h] = \mathcal{F}^{-1} \left[\frac{k_i k_j k_k}{k^2} \mathcal{F}(h) \right] \quad (\text{D.29})$$

$$\mathcal{T}_{ijkl}[h] = \mathcal{F}^{-1} \left[\frac{k_i k_j k_k k_l}{k^3} \mathcal{F}(h) \right]. \quad (\text{D.30})$$

Annexe E

Ajout de l'anisotropie d'énergie de surface

Lorsque l'on fait une résolution numérique des équations d'élasticité non-linéaires avec seulement des effets élastiques et de mouillage, comme vu au chapitre 3, les îlots formés sont isotropes. Ceci ne correspond pas vraiment aux expériences (voir par exemple la figure 2.1). Pour obtenir des îlots anisotropes on ajoute un terme d'anisotropie d'énergie de surface correspondant à l'énergie de surface respective des facettes les plus importantes.

Les facettes sont ajoutées en considérant une énergie de surface variable en fonction de l'orientation de la surface. Cet effet peut être décrit par l'équation suivante :

$$\gamma_n(\vec{n}) = \gamma^\alpha(\vec{n}) - \gamma^\alpha(\hat{z}), \quad (\text{E.1})$$

où les fonctions $\gamma^\alpha(\vec{n})$ représentent les minimums d'énergie de surface correspondant aux facettes dont les orientations sont privilégiées. Expérimentalement, on constate que les facettes (105) sont privilégiées dans le cas des îlots de SiGe, et ont une énergie de surface inférieure d'environ 1% à celle des facettes (100). La fonction est choisie comme :

$$\gamma^\alpha(\vec{n}) = - \sum_{\alpha} A_{\alpha} \exp \left[-\psi_{\alpha} \sqrt{1 - (\vec{n} \cdot \vec{n}_{\alpha})^2 + \zeta_{\alpha}} \right], \quad (\text{E.2})$$

avec A_{α} le minimum pour la direction \vec{n}_{α} et ψ_{α} un paramètre qui détermine la largeur du minimum autour de \vec{n}_{α} . Le paramètre ζ_{α} permet d'éviter une singularité lorsque \vec{n} et \vec{n}_{α} sont colinéaires, de plus ce terme donne un lissage thermique du bord des facettes.

Un exemple d'énergie de surface anisotrope dans le cas du SiGe est donné dans la figure E.1.

Si on considère à la fois les effets de mouillage et d'anisotropie d'énergie de surface, on obtient un potentiel chimique comportant deux termes supplémentaires issus de l'énergie de surface :

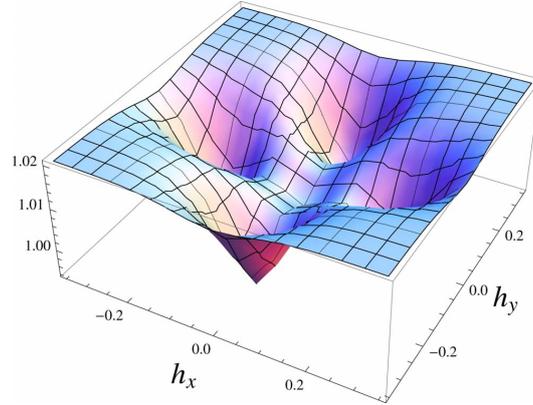


FIGURE E.1 – Énergie de surface en fonction de la pente locale. On observe 4 minima correspondant aux facettes (105) des îlots de SiGe. Figure tirée de [55].

$$\begin{aligned} \mu_s = & \gamma\kappa + \frac{\partial\gamma}{\partial h} \frac{1}{\sqrt{1+|\nabla h|^2}} - \frac{2}{\sqrt{1+|\nabla h|^2}} h_j h_{ij} \frac{\partial\gamma}{\partial h_i} \\ & - \sqrt{1+|\nabla h|^2} \left[h_{ij} \frac{\partial^2\gamma}{\partial h_i \partial h_j} + h_i \frac{\partial^2\gamma}{\partial h \partial h_i} \right], \end{aligned} \quad (\text{E.3})$$

toujours d'après [55]. κ est la courbure moyenne et les indices $i, j = x, y$ répétés dénotent les sommes. γ se décompose donc en trois termes en négligeant de possibles effets couplés :

$$\gamma = \gamma_f [1 + \gamma_n(\vec{n}) + \gamma_h(h)], \quad (\text{E.4})$$

où γ_f est l'énergie élastique à l'infini pour une surface (100).

La résolution numérique des équations auxquelles on a ajouté ces termes d'anisotropie d'énergie de surface donne des résultats bien différents du cas où ces termes ne sont pas présents. La figure 3.2 montre les îlots formés, ceux-ci ne sont plus isotropes comme dans le cas avec énergie de surface isotrope et leur mûrissement est interrompu.

Annexe F

Introduction à la croissance des alliages

La prise en compte des effets d'alliage est un problème important pour la fabrication de boîtes quantiques. Expérimentalement, on constate que la concentration respective de chaque espèce n'est pas du tout homogène, et ce à l'intérieur d'un seul îlot (voir figure F.1). Or la concentration d'une espèce influe sur les propriétés électriques et la croissance des îlots. De nombreuses études traitent du cas de nano-alliages, qui sont composés d'au moins deux types d'atomes distincts. En particulier du côté de la modélisation on peut trouver l'article de B. J. Spencer, P. W. Voorhees et J. Tersoff [48] qui présentent un modèle théorique que nous reprenons, ou un article plus récent sur la nucléation d'îlots de M. Einax *et al* [32]. L'alliage Silicium-Germanium est particulièrement étudié pour sa qualité de système modèle relativement simple [14].

Un effet important ajouté dans le cas des alliages est la concentration variable des espèces dans les îlots, par exemple dans le cas du SiGe on observe expérimentalement une concentration supérieure de Germanium au sommet des îlots comme on peut le voir figure F.1. Les expériences permettant d'observer la concentration de chaque espèce ont été réalisées par tomographie basée sur STM [84], par diffraction de rayons X [85, 86], par TEM [87] (modélisation de la composition 3D à partir de la composition projetée en 2D). Cet effet peut s'expliquer en première approximation par une tendance qu'ont les atomes de plus grande taille (Ge dans le cas SiGe) à migrer vers des positions plus favorables. De plus les mobilités respectives du Si et du Ge sont assez différentes, et ont également une influence sur la croissance et la concentration de chaque espèce à l'intérieur des îlots. Plusieurs modélisations ont permis de retrouver cette concentration élevée des plus gros atomes aux sommets des îlots, en particulier une approche par champ de phase [88], un calcul analytique [89] basé sur le modèle de [48], un autre résultat de calcul analytique [90] ou [91] (minimisation d'énergie élastique), ou encore [92] (éléments finis avec une forme arbitraire). Ces modélisations ont, entre autre, permis d'obtenir des profils de concentration pour des îlots de formes différentes (par exemple pyramides et dômes

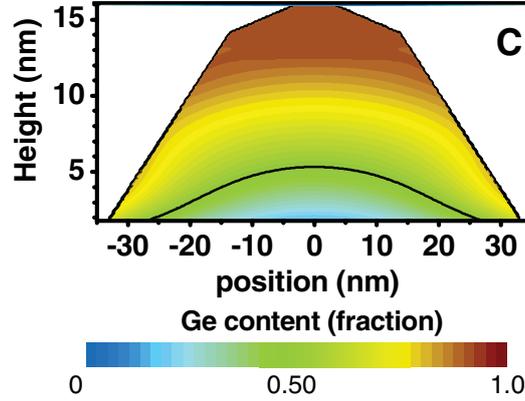


FIGURE F.1 – Concentration de Ge en fonction de la position dans l'îlot, d'après l'article de M. S. Leite *et al* [86]. Les résultats sont déduits de mesures par diffraction de rayons X.

dans [91]), et de montrer que ces profils de concentration permettent une meilleure relaxation des contraintes élastiques. Des tailles d'îlots en fonction de la composition du film ont également été prédites et comparées aux résultats expérimentaux [89].

Dans cette annexe, nous présentons rapidement un calcul d'instabilité de type ATG prenant en compte les effets élastiques pour servir d'introduction au problème des alliages. Le modèle développé ici est repris de l'article de Spencer *et al* [48]. Ce type de modèle pourrait être approfondi en faisant le calcul à l'ordre 2 en ϵ comme dans le cas d'une composition homogène, ce qui permettrait d'observer le mûrissement des îlots.

F.1 Calcul linéaire dans le cas d'un alliage

F.1.1 Déplacement élastique

Dans le cas d'un alliage à concentration non homogène, on doit prendre en compte la variation de la concentration. On reprend l'équation de Lamé du cas homogène (équation (2.2)), et on lui ajoute un terme dépendant de la concentration :

$$(1 - 2\nu)\Delta\vec{u} + \nabla(\nabla\vec{u}) = 2(1 + \nu)\eta_0\nabla c, \quad (\text{F.1})$$

où η_0 est le désaccord de maille entre les espèces et c la concentration au point considéré. La démonstration de cette équation de Lamé est présentée dans l'annexe A.

On considère que la concentration dans le film est :

$$c(x, y, z) = c_f + \epsilon c_k(z)e^{-ik_x x - ik_y y}, \quad (\text{F.2})$$

où c_f est la concentration d'une espèce déposée lors de l'hétéroépitaxie (par exemple la proportion de Ge). On a donc une approximation de faible gradient de concentration en plus de l'approximation de faibles pentes. Cette approximation permet une analyse linéaire des équations, et la transformation de Fourier est bien adaptée à la résolution du problème du film à faibles pentes. La concentration est considérée comme constante dans le substrat.

L'équation de Lamé est une équation différentielle linéaire que nous résolvons en prenant la somme d'une solution particulière et de la solution de l'équation homogène. Pour cela nous avons commencé par résoudre l'équation (F.1) avec des solutions sous la forme $\vec{u} = f_\alpha(z)e^{-ik_x x - ik_y y}$ comme dans le cas à concentration homogène vu au chapitre 2. La solution particulière est alors :

$$u_{k_x}^p = \int_0^z \frac{ik_x \eta_0 (1 + \nu)}{2k(1 - 3\nu + 2\nu^2)} \left[c_k(f) ((f - z) \cosh(k(f - z)) + (3 - 4\nu) \sinh(k(f - z))) + (f - z) \sinh(k(f - z)) c_k'(f) \right] df. \quad (\text{F.3})$$

La valeur est la même selon y en modifiant le facteur k_x en k_y .

$$u_{k_z}^p = \int_0^z \left[\frac{k(f - z) \eta_0 (1 + \nu) c_k(f) \sinh(k(f - z))}{2 - 6\nu + 4\nu^2} + \frac{\eta_0 (1 + \nu) c_k'(f)}{2k(1 - 3\nu + 2\nu^2)} \left(k(f - z) \cosh(k(f - z)) + (4\nu - 3) \sinh(k(f - z)) \right) \right] df, \quad (\text{F.4})$$

que l'on peut intégrer par partie pour obtenir :

$$u_{k_x}^p = \int_0^z c_k(f) \frac{ik_x \eta_0 (1 + \nu)}{k(1 - \nu)} \sinh(k(f - z)) df + c_k(0) \frac{ik_x \eta_0 (1 + \nu)}{2k(1 - \nu)(1 - 2\nu)} z \sinh(-kz), \quad (\text{F.5})$$

avec de nouveau u_{k_y} égal à u_{k_x} en remplaçant les k_x par des k_y et

$$u_{k_z}^p = (1 + \nu) \eta_0 \left[\int_0^z \frac{c_k(f)}{1 - \nu} \cosh(k(f - z)) df + \frac{c_k(0)}{k(2 - 6\nu + 4\nu^2)} (-kz \cosh(-kz) + (-3 + 4\nu) \sinh(-kz)) \right]. \quad (\text{F.6})$$

La solution particulière finale est, sous forme vectorielle :

$$\vec{u}^p = \begin{pmatrix} \left(\int_0^z \frac{ik_x \eta_0 (\nu + 1) c_k(z') \sinh(k(z' - z))}{k(1 - \nu)} dz' - \frac{ic_k(0) k_x z \eta_0 (\nu + 1) \sinh(kz)}{2k(1 - 2\nu)(1 - \nu)} \right) \\ \left(\int_0^z \frac{ik_y \eta_0 (\nu + 1) c_k(z') \sinh(k(z' - z))}{k(1 - \nu)} dz' - \frac{ic_k(0) k_y z \eta_0 (\nu + 1) \sinh(kz)}{2k(1 - 2\nu)(1 - \nu)} \right) \\ \eta_0 (\nu + 1) \left(\int_0^z \frac{c_k(z') \cosh(k(z' - z))}{1 - \nu} dz' - \frac{c_k(0) (-4\nu - 3) \sinh(kz) - kz \cosh(kz)}{2k(2\nu^2 - 3\nu + 1)} \right) \end{pmatrix}, \quad (\text{F.7})$$

en factorisant par $e^{-ik_x x - ik_y y}$.

Le calcul des solutions de l'équation différentielle homogène est fait de la même manière que dans le cas de la concentration homogène, on reprend donc le calcul du chapitre 2 en y ajoutant les effets de concentration variable. Il ne reste plus qu'à utiliser les conditions aux limites. La condition à la limite adsorbat - substrat donne le même résultat que dans le cas homogène, la solution particulière étant nulle en $z = 0$.

$$A_{1,j} = \epsilon(B_{1,j} + C_{1,j}), \quad (\text{F.8})$$

pour $j = x, y, z$.

La continuité des contraintes en $z = 0$ permet d'obtenir $B_{1,x} = B_{1,y} = 0$ et

$$B_{1,z} = \frac{(1 + \nu)(-3 + 4\nu)c_k(0)\eta_0}{4k(1 - 3\nu + 2\nu^2)}. \quad (\text{F.9})$$

Enfin la continuité des contraintes à la surface permet de déduire les derniers coefficients :

$$\begin{aligned} C_{1,x} = & \int_0^z ie^{-fk}k_x \frac{(1 + \nu)(-1 + e^{2(f-h_0)k}(-3 + 2h_0k + 4\nu))}{2k(-1 + \nu)} c_k(f)\eta_0 df \\ & + ie^{-h_0k}h_kk_x \frac{(1 + \nu)(-2 + h_0k + 2\nu)}{k(-1 + \nu)} c_0\eta_0, \end{aligned} \quad (\text{F.10})$$

$C_{1,y}$ est de la même forme, en remplaçant seulement les k_x par des k_y

$$\begin{aligned} C_{1,z} = & \int_0^z e^{-fk}k_x \frac{(1 + \nu)(1 + e^{2(f-h_0)k}(-3 + 2h_0k + 4\nu))}{2(-1 + \nu)} c_k(f)\eta_0 df \\ & + e^{-h_0k}h_k \frac{(1 + \nu)(-1 - h_0k + 2\nu)}{-1 + \nu} c_0\eta_0 \\ & - \frac{(-3 + \nu + 4\nu^2)c_k(0)\eta_0}{4k(1 - 3\nu + 2\nu^2)}, \end{aligned} \quad (\text{F.11})$$

et le déplacement est alors :

$$\begin{aligned} u_x = & \int_0^{h_0} i\epsilon e^{k(z-f)}k_x \frac{(1 + \nu)(-1 + e^{2(f-h_0)k}(-3 + 2h_0k - 2kz + 4\nu))}{2k(-1 + \nu)} c_k(f)\eta_0 df \\ & + \epsilon \int_0^z \frac{ik_x(1 + \nu)c_k(f)}{k(1 - \nu)} \sinh(k(f - z))\eta_0 df, \end{aligned} \quad (\text{F.12})$$

de même selon y , en changeant les k_x en k_y , et

$$\begin{aligned} u_z = & \int_0^{h_0} \epsilon e^{k(z-f)} \frac{(1 + \nu)(-1 + e^{2(f-h_0)k}(-3 - 2h_0k + 2kz + 4\nu))}{2(-1 + \nu)} c_k(f)\eta_0 df \\ & + \epsilon \frac{1 + \nu}{1 - \nu} \eta_0 \int_0^z c_k(f) \cosh(k(f - z)) df + \frac{z(1 + \nu)}{1 - \nu} c_0\eta_0. \end{aligned} \quad (\text{F.13})$$

F.1.2 Détermination des équations de morphologie et de concentration

Le potentiel chimique élastique à l'ordre 1 est alors déduit de la même manière qu'en (2.34) et en (2.38) :

$$\begin{aligned} \mu_{el}^1 = & \int_0^{h_0} \frac{2c_0 k \epsilon \eta_0^2 Y(\nu+1) c_k(z) e^{k(z-h_0)}}{\nu-1} dz \\ & + \frac{2c_0 \eta_0^2 \mu(\nu+1) (c_0(2h_k k \epsilon(\nu+1) - 1) - 2\epsilon c_k(h_0))}{\nu-1}. \end{aligned} \quad (\text{F.14})$$

Le calcul du flux est légèrement différent du cas sans alliage (équation (2.39)), il faut désormais prendre en compte le potentiel chimique de chaque espèce considérée et leurs coefficients de diffusion respectifs. En prenant le cas d'un alliage SiGe sur un substrat de Si, avec une concentration de Ge dans le flux de dépôt notée c_0 , on a d'après le modèle de [48] :

$$\mu_{Ge} = \mu_{Ge}^0(c_{Ge}) + \Omega \left[\frac{1}{2} e_{ijkl} s_{ij} s_{kl} + \gamma \kappa + c_{Si} \eta_0 s_{kk} \right], \quad (\text{F.15})$$

et

$$\mu_{Si} = \mu_{Si}^0(c_{Si}) + \Omega \left[\frac{1}{2} e_{ijkl} s_{ij} s_{kl} + \gamma \kappa - c_{Ge} \eta_0 s_{kk} \right], \quad (\text{F.16})$$

le flux de diffusion quant à lui est :

$$\vec{J} = -(M_{Si} C_{Si} \nabla_s(\mu_{Si}) + M_{Ge} C_{Ge} \nabla_s(\mu_{Ge})), \quad (\text{F.17})$$

avec M_{Si} la mobilité des atomes de Si et ∇_s le gradient de surface. L'alliage donne donc deux effets : un effet élastique visible dans l'équation (F.14) et un effet de la différence de mobilité des deux espèces visible dans l'équation (F.17). L'équation qui régit la dynamique est par contre la même que dans le cas homogène :

$$\frac{dh}{dt} = \Omega(F n_z - \nabla_s \cdot J). \quad (\text{F.18})$$

On ajoute un terme d'entropie de mélange au potentiel chimique. Celui-ci s'exprime de la façon suivante :

$$\mu_S = k_b T \log(c_0) + \epsilon \frac{c_k^s k_b T}{c_0}, \quad (\text{F.19})$$

où c_k^s représente la variation de concentration à la surface.

En utilisant les flux respectifs de Ge et Si la concentration en surface peut être déterminée. On nomme δ l'épaisseur de la couche que l'on considère comme étant en surface. On trouve alors :

$$\delta \frac{\partial C_{Ge}^s}{\partial t} = -C_{Ge} \frac{dh}{dt} + \Omega[F - \nabla \cdot \vec{J}_{Ge}], \quad (\text{F.20})$$

où $\vec{J}_{Ge} = -M_{Ge}C_{Ge}\nabla_s(\mu_{Ge})$.

Pour simplifier les équations on prend l'adimensionalisation suivante :

$$t_0 = \frac{l_0^4}{\gamma\Omega^2(c_0(M_{Ge} - M_{Si}) + M_{Si})} \quad (\text{F.21})$$

$$l_0 = \frac{\gamma(1 - \nu)}{4\mu(1 + \nu)^2c_0^2\eta_0^2}. \quad (\text{F.22})$$

Au final les deux équations différentielles couplées de la concentration et de la hauteur du film sont :

$$\frac{\partial h_k}{\partial t} = \int_0^{h_0} \frac{A_{hh}e^{(z-h_0)k}c_k(z)k^3 dz}{c_0} - A_{hc}c_k^s(t)k^2 - C_hk^2 - h_kk^4 + A_{hh}h_kk^3 \quad (\text{F.23})$$

$$\delta \frac{\partial c_k^s}{\partial t} = -Fc_k^s(t) - \frac{A_{cc}k^2c_k^s(t)}{c_0^2} + \frac{1}{c_0}A_{ch}k^3 \int_0^{h_0} e^{k(z-h_0)}c_k(z)dz - B_ck^4h_k - C_ck^2c_k^s(t), \quad (\text{F.24})$$

où le terme δ est l'épaisseur de la couche de surface, étant donné que nos équations correspondent à l'évolution de la concentration de la couche de surface (voir [48]).

Les termes suivants sont utilisés dans les équations (avec $\beta = M_{Ge}/M_{Si}$) :

$$\begin{aligned} Ahh &= \frac{M_{Ge}}{c_0(M_{Ge} - M_{Si}) + M_{Si}} = \frac{\beta}{c_0(\beta - 1) + 1} \\ Ahc &= -\frac{(c_0 - 1)(M_{Ge} - M_{Si})}{c_0(\nu + 1)(c_0(M_{Ge} - M_{Si}) + M_{Si})} = -\frac{(c_0 - 1)(\beta - 1)}{c_0(\nu + 1)(c_0(\beta - 1) + 1)} \\ Ch &= -\frac{(c_0 - 1)c_0(G_V)''(M_{Ge} - M_{Si})}{c_0(M_{Ge} - M_{Si}) + M_{Si}} = -\frac{(c_0 - 1)c_0(G_V)''(\beta - 1)}{c_0(\beta - 1) + 1} \\ G_V'' &= \frac{l_0}{\gamma} \frac{1}{\Omega} \frac{k_b T}{c_0(1 - c_0)} \\ Ach &= \frac{(1 - c_0)M_{Ge}}{c_0(M_{Ge} - M_{Si}) + M_{Si}} = \frac{(1 - c_0)\beta}{c_0(\beta - 1) + 1} \\ Acc &= \frac{(c_0 - 1)c_0((c_0 - 1)M_{Ge} - c_0M_{Si})}{(\nu + 1)(c_0(M_{Ge} - M_{Si}) + M_{Si})} = \frac{(c_0 - 1)c_0((c_0 - 1)\beta - c_0)}{(\nu + 1)(c_0(\beta - 1) + 1)} \\ Bc &= \frac{(1 - c_0)c_0(M_{Ge} - M_{Si})}{c_0(M_{Ge} - M_{Si}) + M_{Si}} = \frac{(1 - c_0)c_0(\beta - 1)}{c_0(\beta - 1) + 1} \\ Cc &= \frac{(c_0 - 1)c_0((c_0 - 1)M_{Ge} - c_0M_{Si})}{c_0(M_{Ge} - M_{Si}) + M_{Si}}(G_V)'' = \frac{(c_0 - 1)c_0((c_0 - 1)\beta - c_0)}{c_0(\beta - 1) + 1}(G_V)'' \end{aligned}$$

L'intégrale selon dz peut être remplacée par une intégrale selon t en faisant un changement de variable utilisant la dépendance au flux et au temps de la hauteur moyenne du film $\hat{h} = Ft$ (dans le cas linéaire on peut faire l'approximation $z = Ft$). L'intégrale $\int_0^{h_0} e^{k(z-h_0)}c_k(z)dz$ devient par exemple $\int_0^t F e^{Fk(t'-t)}c_k^s(t')dt'$.

Le début du calcul non-linéaire dans le cas de l'alliage est dans l'annexe F.2.

F.1.3 Simulations numériques linéaires

Pour commencer on considère les cas où δ , épaisseur de la couche pour laquelle on fait l'hypothèse qu'il n'y a pas de variation de concentration, est nulle. L'équation (F.24) peut alors être simplifiée. Il ne reste plus qu'à résoudre le système des équations (F.23) et (F.24). Pour cela, après le changement de variable dans l'intégrale vue à la partie précédente, on va chercher à enlever la partie en intégrale des deux équations. L'intégrale de l'équation (F.23) est remplacée en utilisant l'équation (F.24), puis on dérive cette même équation avant d'ajouter cette version dérivée à l'équation de départ. Il ne reste alors qu'un simple système de deux équations différentielles en c_k^s et en h_k :

$$\frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} h \\ c_k^s \end{pmatrix} = \mathbf{M} \begin{pmatrix} h_k \\ c_k^s \end{pmatrix}, \quad (\text{F.25})$$

où \mathbf{M} est une matrice 2 x 2.

Au final

$$\begin{pmatrix} h_k \\ c_k^s \end{pmatrix} = A \begin{pmatrix} u_0 \\ 1 \end{pmatrix} e^{\sigma_1(k)t} + B \begin{pmatrix} v_0 \\ 1 \end{pmatrix} e^{\sigma_2(k)t}, \quad (\text{F.26})$$

avec $\begin{pmatrix} u_0 \\ 1 \end{pmatrix}$ et $\begin{pmatrix} v_0 \\ 1 \end{pmatrix}$ les vecteurs propres, puis en utilisant la condition limite en $t = 0$:

$$c_k^s(0) = h_k(0) \frac{A_{ch}k^3 - B_c k^4}{A_{cc}k^2/c_0^2 + k^2 C_c + F} = h_k(0)\alpha, \quad (\text{F.27})$$

d'où

$$A \rightarrow h_k(0) \frac{1 - v_0\alpha}{u_0 - v_0}, B \rightarrow h_k(0) \frac{u_0\alpha - 1}{u_0 - v_0}. \quad (\text{F.28})$$

Contrairement au cas sans alliage (section 2) on trouve deux solutions possibles pour le taux de croissance $\sigma(k)$, mais la figure F.2 montre que seule l'une des deux à un maximum positif. Le maximum du taux de croissance donne la longueur d'onde dominante qui peut être comparée avec les expériences¹ (Fig. F.3) faites sur SiGe [93]. On constate que les valeurs de longueur d'onde de Grinfeld données par le modèle sont assez proches des expériences, sachant que les paramètres utilisés ici (module de Young, coefficient de Poisson, énergie de surface, mobilité des atomes et paramètre de maille) sont raisonnables.

De plus la figure F.4 montre l'effet de la différence entre les mobilités respectives du Si et du Ge sur les longueurs d'onde maximum. On peut voir que la longueur d'onde maximale de l'instabilité varie en $1/c$ pour une différence de mobilité élevée, et en $1/c^2$ pour une différence faible. La simple différence de mobilité, donc les effets de la diffusion des atomes a un effet important sur l'instabilité, malgré le fait que celle-ci soit causée par les effets élastiques dus au désaccord de maille.

Dans le cas plus général où $\delta \neq 0$, la valeur de δ correspond à l'épaisseur de la couche de surface, elle correspond donc à la partie du système où les atomes vont

1. Les concentration supérieures à environ 50 % induisent des nucléations d'îlots et les longueurs d'ondes données pour ces concentrations ne sont là qu'à titre indicatif.

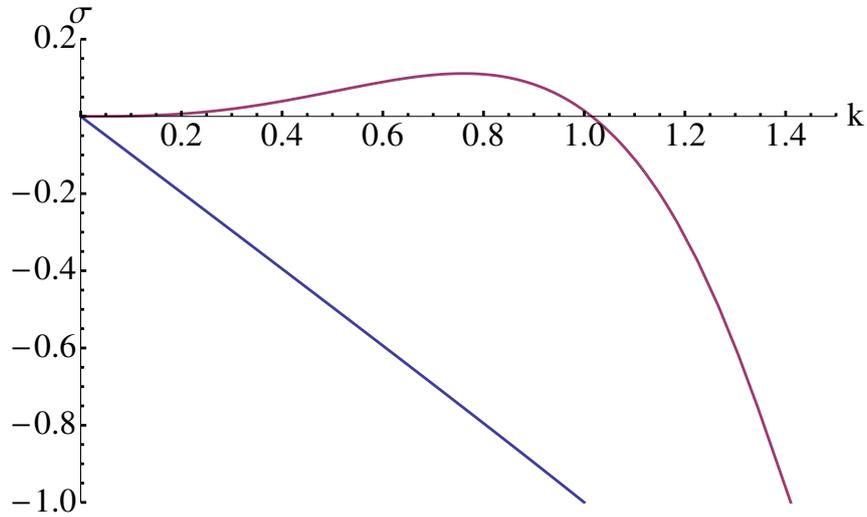


FIGURE F.2 – Taux de croissance σ_1 et σ_2 en fonction du vecteur d'onde k pour $\beta = 1$ (système d'unités adimensionné).

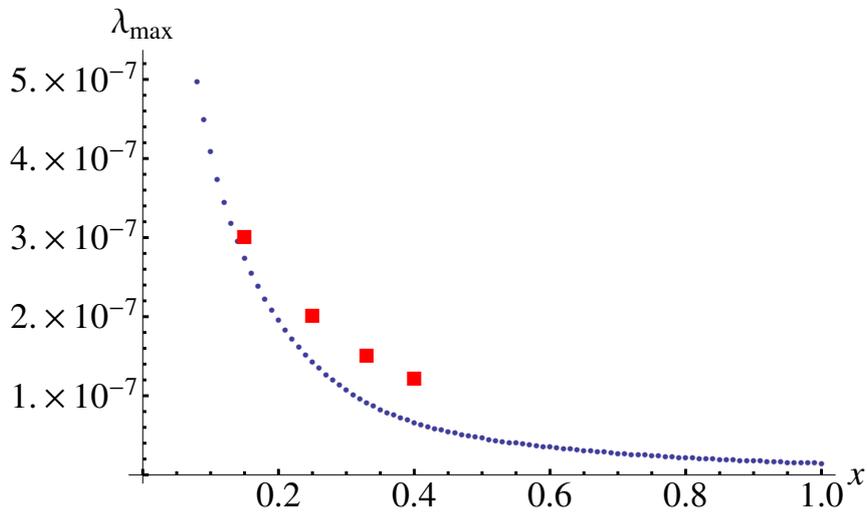


FIGURE F.3 – Longueur d'onde maximum de l'instabilité (en nm) en fonction de la concentration en Germanium x . Les carrés rouges représentent les expériences de [93] et les points bleus le calcul numérique.

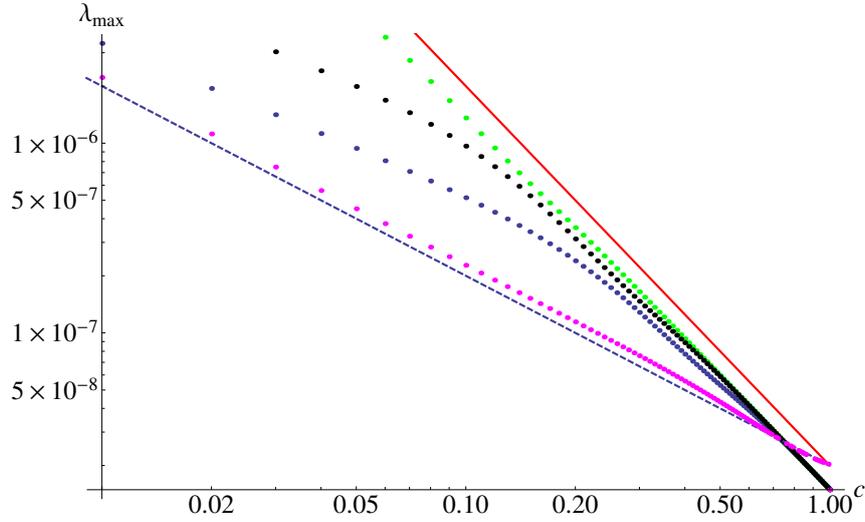


FIGURE F.4 – Longueur d’onde maximum de l’instabilité (en nm) en fonction de la concentration en Germanium c . Les droites correspondent à $1/c$ et $1/c^2$ et les points à des valeurs de $\beta = M_{Ge}/M_{Si}$ qui varient de 10 (courbe verte qui décroît le plus vite) à 10^7 (courbe violette proche de la droite en pointillés qui correspond à $1/c$).

diffuser, soit quelques monocouches en général. On sait également que la concentration en un point \vec{r} au temps t à la hauteur située entre $h(\vec{r}) - \delta$ et $h(\vec{r})$ est la concentration de surface en \vec{r} au temps t . En faisant l’hypothèse que la diffusion de surface est beaucoup plus rapide que la diffusion de volume, et donc que la concentration à l’intérieur du film ne varie pas au cours du temps, on peut déterminer la concentration dans le film.

Pour ces simulations on a pris :

- Le coefficient de Poisson $\nu = 0,27$
- Le module d’Young $Y = 100$ GPa
- Une différence de paramètre de maille de 4,2 %
- Un paramètre de maille équivalent de 0,5 nm

sans différencier ces paramètres entre adsorbat et substrat.

F.2 Calcul non-linéaire d’un alliage

Pour déterminer les équations du système à l’ordre 2 il faut prendre en compte les parties négligées précédemment, en particulier pour les produits $h_k \times h_k$, vus dans le cas sans alliage (chapitre 3), ainsi que toute la partie dépendante de la concentration c_k .

À 1D (pas de termes en k_y), on trouve un potentiel chimique élastique égal à :

$$\begin{aligned}
 \mu_{el} = & \mu\eta_0^2 \frac{(\nu+1)^2}{(\nu-1)} \left[4c_0^2 (\nabla h)^2 + 8c_0^2 h \Delta h + 8c_0^2 \mathcal{H}[(h\mathcal{H}(h_x))_x] + 4c_0^2 \mathcal{H}(h_x)^2 + \right. \\
 & \frac{4c_0\nu}{(1-2\nu)} c(x, h_0) \mathcal{H}(h_x) + \left(\frac{2\nu}{(1-2\nu)} - 8c_0 \right) \mathcal{H}^{b.d.}(c) \mathcal{H}(h_x) - 4\mathcal{H}^{b.d.}(c)^2 \\
 & - 2\frac{\nu}{(2\nu-1)} c(x, h_0) \mathcal{H}^{b.d.}(c) + \frac{1}{(2\nu-1)} c(x, h_0)^2 \\
 & - 8c_0^2 \mathcal{H}^{b.d.}(c) h_x + 4c_0 \mathcal{H}[\mathcal{H}^{b.d.}(c)_x] \cdot h - 8c_0 \mathcal{H}[h \cdot \mathcal{H}^{b.d.}(c)_x] \\
 & \left. + 4c_0^2 \mathcal{H}[(h \cdot c(x, h_0))_x] + 4c_0 \mathcal{H}(h \cdot c(x, h_0)_x) (1 - c_0) \right], \tag{F.29}
 \end{aligned}$$

avec

$$\mathcal{H}^{b.d.}(c) = \int_0^{h_0} k c_k(f) e^{k(f-h_0)} df, \tag{F.30}$$

et

$$\mathcal{H}(h) = \mathcal{F}^{-1}\left(\frac{k_x}{k} \mathcal{F}(h)\right). \tag{F.31}$$

Le potentiel chimique d'une espèce est toujours :

$$\mu_A = \mu_A^0(C_A) + \Omega[E + \gamma\kappa + C_B\eta_0\sigma_{kk}], \tag{F.32}$$

avec $\gamma\kappa$ la courbure et σ_{kk} la trace de σ . Reste donc à calculer σ_{kk} à 1D, puis à reprendre le calcul pour avoir le résultat à 2D pour réaliser le calcul numérique de la même manière que dans le cas du désaccord de maille anisotrope.

Glossaire

ν coefficient de Poisson 31

AFM Microscope à force atomique 30, 72

ATG Asaro-Tiller-Grinfeld 10, 11, 22, 30, 36, 53, 78, 130

EJM épitaxie par jet moléculaire 15

GaN nitrure de gallium 16, 52, 60

Ge germanium 11, 14, 16, 18, 22, 30, 78, 129, 131, 133, 135

III-V Alliage de semi-conducteurs composé d'un élément de la 3e colonne du tableau périodique et d'un autre de la 5e colonne de ce tableau (par exemple GaN) 15

KMC Monte-Carlo cinétique 22

MC mono-couche 22, 90, 99, 100

Si silicium 11, 16, 18, 22, 30, 78, 90, 133, 135

SiGe silicium-germanium 11, 14, 16, 30, 31, 42, 58, 90, 106, 127, 129, 133, 135

STM Microscopie à effet tunnel 19, 78, 99, 129

Y module de Young 32

Bibliographie

- [1] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, and E. Weibel, “Tunneling through a controllable vacuum gap,” *Applied Physics Letters*, vol. 40, no. 2, pp. 178–180, 1982.
- [2] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, and E. Weibel, “Surface studies by scanning tunneling microscopy,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 49, pp. 57–61, Jul 1982.
- [3] G. Binnig, C. F. Quate, and C. Gerber, “Atomic force microscope,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 56, pp. 930–933, Mar 1986.
- [4] A. Pimpinelli and J. Villain, *Physics of Crystal Growth*. Cambridge University Press, 1998.
- [5] T. Michely and J. Krug, *Islands, Mounds and Atoms*. Springer, 2003.
- [6] A.-L. Barabási and H. E. Stanley, *Fractal concepts in surface growth*. Cambridge university press, 1995.
- [7] I. V. Markov, *Crystal growth for beginners*. World Scientific, 2003.
- [8] C. Misbah, O. Pierre-Louis, and Y. Saito, “Crystal surfaces in and out of equilibrium : A modern view,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 82, pp. 981–1040, Mar 2010.
- [9] P. Rauter, T. Fromherz, N. Q. Vinh, B. N. Murdin, G. Mussler, D. Grützmacher, and G. Bauer, “Continuous voltage tunability of intersubband relaxation times in coupled SiGe quantum well structures using ultrafast spectroscopy,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 102, p. 147401, Apr 2009.
- [10] V. Jovanović, C. Biasotto, L. Nanver, J. Moers, D. Grützmacher, J. Gerharz, G. Mussler, J. Van der Cingel, J. Zhang, G. Bauer, O. Schmidt, and L. Miglio, “n-channel MOSFETs fabricated on SiGe dots for strain-enhanced mobility,” *Electron Device Letters, IEEE*, vol. 31, no. 10, pp. 1083–1085, 2010.
- [11] F. A. Zwanenburg, A. S. Dzurak, A. Morello, M. Y. Simmons, L. C. L. Hollenberg, G. Klimeck, S. Rogge, S. N. Coppersmith, and M. A. Eriksson, “Silicon quantum electronics,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 85, pp. 961–1019, Jul 2013.
- [12] A. A. Khajetoorians, B. Chilian, J. Wiebe, S. Schuwalow, F. Lechermann, and R. Wiesendanger, “Detecting excitation and magnetization of individual dopants in a semiconductor,” *Nature*, vol. 467, pp. 1084–1087, October 2010.
- [13] I. Berbezier and A. Ronda, “SiGe nanostructures,” *Surface Science Reports*, vol. 64, pp. 47–98, 2009.

- [14] J.-N. Aqua, I. Berbezier, L. Favre, T. Frisch, and A. Ronda, "Growth and self-organization of SiGe nanostructures," *Physics Reports*, vol. 522, no. 2, pp. 59 – 189, 2013.
- [15] G. Nicolis and I. Prigogine, *Self-Organization in Nonequilibrium Systems : From Dissipative Structures to Order Through Fluctuations*. Wiley-Interscience, New York, 1977.
- [16] J. Tersoff, C. Teichert, and M. G. Lagally, "Self-organization in growth of quantum dot superlattices," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 76, pp. 1675–1678, Mar 1996.
- [17] J. Stangl, V. Holy, and G. Bauer, "Structural properties of self-organized semiconductor nanostructures," *Reviews of modern physics*, vol. 76, 2004.
- [18] I. Berbezier, A. Ronda, F. Volpi, and A. Portavoce, "Morphological evolution of SiGe layers," *Surf. Sci.*, vol. 531, p. 231, 2003.
- [19] B. Voigtländer, "Fundamental processes in Si/Si and Ge/Si epitaxy studied by scanning tunneling microscopy during growth," *Surface Science Reports*, vol. 43, pp. 127–254, 2001.
- [20] A. Kahouli, N. Kriouche, J. Brault, B. Damilano, P. Venegues, P. de Mierry, M. Leroux, A. Courville, O. Tottereau, and J. Massies, "GaN/Al_{0.5}Ga_{0.5}N (11-22) semipolar nanostructures : A way to get high luminescence efficiency in the near ultraviolet range," *Journal of Applied Physics*, vol. 110, no. 8, p. 084318, 2011.
- [21] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics*. Holt-Sauders International Editions, 1981.
- [22] M. Opel, "Spintronic oxides grown by laser-MBE," *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 45, no. 3, p. 033001, 2012.
- [23] V. A. Shchukin, N. N. Ledentsov, and D. Bimberg, *Epitaxy of nanostructures*. Springer, 2004.
- [24] D. J. Eaglesham and M. Cerullo, "Dislocation-free Stranski-Krastanov growth of Ge on Si(100)," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 64, pp. 1943–1946, Apr 1990.
- [25] M. M. R. Evans, J. C. Glueckstein, and J. Nogami, "Epitaxial growth of manganese on silicon : Volmer-Weber growth on the Si(111) surface," *Phys. Rev. B*, vol. 53, pp. 4000–4004, Feb 1996.
- [26] Y. L. Wang, H.-J. Gao, H. M. Guo, H. W. Liu, I. G. Batyrev, W. E. McMahon, and S. B. Zhang, "Tip size effect on the appearance of a STM image for complex surfaces : theory versus experiment for Si(111)-(7 × 7)," *Phys. Rev. B*, vol. 70, p. 073312, Aug 2004.
- [27] A. E. Romanov, T. J. Baker, S. Nakamura, J. S. Speck, and E. U. Group, "Strain-induced polarization in wurtzite III-nitride semipolar layers," *Journal of Applied Physics*, vol. 100, no. 2, p. 023522, 2006.
- [28] H. T. Dobbs, D. D. Vvedensky, A. Zangwill, J. Johansson, N. Carlsson, and W. Seifert, "Mean-field theory of quantum dot formation," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 79, pp. 897–900, Aug 1997.

-
- [29] M. Meixner, E. Schöll, V. A. Shchukin, and D. Bimberg, “Self-assembled quantum dots : Crossover from kinetically controlled to thermodynamically limited growth,” *Physical review letters*, vol. 87, p. 236101, Dec 2001.
- [30] M. Körner, M. Einax, and P. Maass, “Capture numbers and island size distributions in models of submonolayer surface growth,” *Phys. Rev. B*, vol. 86, p. 085403, Aug 2012.
- [31] H. Brune, H. Röder, C. Boragno, and K. Kern, “Microscopic view of nucleation on surfaces,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 73, pp. 1955–1958, Oct 1994.
- [32] M. Einax, W. Dieterich, and P. Maass, “*Colloquium* : Cluster growth on surfaces : Densities, size distributions, and morphologies,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 85, pp. 921–939, Jul 2013.
- [33] IUPAC, “<http://goldbook.iupac.org/o04348.html>.”
- [34] C. Clarke, *The Science of Ice Cream*. RSC paperbacks, Royal Society of Chemistry, 2004.
- [35] K. Morgenstern, G. Rosenfeld, and G. Comsa, “Decay of two-dimensional Ag islands on Ag(111),” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 76, pp. 2113–2116, Mar 1996.
- [36] R. Asaro and W. Tiller, “Interface morphology development during stress corrosion cracking : Part i. via surface diffusion,” *Metallurgical Transactions*, vol. 3, no. 7, pp. 1789–1796, 1972.
- [37] M. A. Grinfeld, “Instability of the separation boundary between a nonhydrostatically stressed elastic body and a melt,” *Sov. Phys. Dokl.*, vol. 31, no. 831, 1986.
- [38] M. Grinfeld, “The stress driven instability in elastic crystals : Mathematical models and physical manifestations,” *Journal of Nonlinear Science*, vol. 3, no. 1, pp. 35–83, 1993.
- [39] M. Thiel, A. Willibald, P. Evers, A. Levchenko, P. Leiderer, and S. Balibar, “Stress-induced melting and surface instability of 4He crystals,” *Europhys. Lett.*, vol. 20, pp. 707–713, 1992.
- [40] S. Balibar, H. Alles, and A. Y. Parshin, “The surface of helium crystals,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 77, pp. 317–370, May 2005.
- [41] I. Cantat, K. Kassner, C. Misbah, and H. Müller-Krumbhaar, “Directional solidification under stress,” *Phys. Rev. E*, vol. 58, pp. 6027–6040, Nov 1998.
- [42] K. Y. Suh and H. H. Lee, “Dynamic instability of strongly confined thin polymer films in spinodal dewetting,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 87, p. 135502, Sep 2001.
- [43] A. Pidduck, D. Robbins, A. Cullis, W. Leong, and A. Pitt, “Evolution of surface morphology and strain during SiGe epitaxy,” *Thin Solid Films*, vol. 222, pp. 78–84, 1992.
- [44] Y. W. Mo, D. E. Savage, B. S. Swartzentruber, and M. G. Lagally, “Kinetic pathway in Stranski-Krastanov growth of Ge on Si(001),” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 65, p. 1020, Aug 1990.
-

- [45] J.-N. Aqua, T. Frisch, and A. Verga, “Nonlinear evolution of a morphological instability in a strained epitaxial film,” *Phys. Rev. B*, vol. 76, p. 165319, Oct 2007.
- [46] B. J. Spencer, P. W. Voorhees, and S. H. Davis, “Morphological instability in epitaxially strained dislocation-free solid films,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 67, pp. 3696–3699, Dec 1991.
- [47] R. Bergamaschini, *Continuum models of heteroepitaxial growth on patterned substrates*. Doctorate in materials science, Università degli studi di Milano-Bicocca, jan 2013.
- [48] B. J. Spencer, P. W. Voorhees, and J. Tersoff, “Morphological instability theory for strained alloy film growth : The effect of compositional stresses and species-dependent surface mobilities on ripple formation during epitaxial film deposition,” *Phys. Rev. B*, vol. 64, Nov 2001.
- [49] G.-H. Lu and F. Liu, “Towards quantitative understanding of formation and stability of Ge hut islands on Si(001),” *Physical review letters*, vol. 94, p. 176103, May 2005.
- [50] A. A. Golovin, S. H. Davis, and P. W. Voorhees, “Self-organization of quantum dots in epitaxially strained solid films,” *Phys. Rev. E*, vol. 68, p. 056203, Nov 2003.
- [51] Y. Pang and R. Huang, “Nonlinear effect of stress and wetting on surface evolution of epitaxial thin films,” *Phys. Rev. B*, vol. 74, p. 075413, Aug 2006.
- [52] C.-H. Chiu and Z. Huang, “Common features of nanostructure formation induced by the surface undulation on the Stranski-Krastanov systems,” *Applied Physics Letters*, vol. 89, no. 17, 2006.
- [53] Y. W. Zhang, “Self-organization, shape transition, and stability of epitaxially strained islands,” *Phys. Rev. B*, vol. 61, pp. 10388–10392, Apr 2000.
- [54] W. H. Yang and D. J. Srolovitz, “Cracklike surface instabilities in stressed solids,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 71, pp. 1593–1596, Sep 1993.
- [55] J.-N. Aqua and T. Frisch, “Influence of surface energy anisotropy on the dynamics of quantum dot growth,” *Physical review B*, vol. 82, no. 085322, 2010.
- [56] J.-N. Aqua, A. Gouyé, A. Ronda, T. Frisch, and I. Berbezier, “Interrupted self-organization of SiGe pyramids,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, p. 096101, Feb 2013.
- [57] S. M. Cox and P. C. Matthews, “Exponential time differencing for stiff systems,” *Journal of computational physics*, vol. 176, pp. 430–455, 2002.
- [58] A. Kassam and L. Trefethen, “Fourth-order time-stepping for stiff PDEs,” *SIAM Journal on Scientific Computing*, vol. 26, no. 4, pp. 1214–1233, 2005.
- [59] Y. Saito, *Statistical Physics of Crystal Growth*. World Scientific, 1996.
- [60] P. Bigenwald, B. Gil, F. Benharrats, K. Zitouni, and A. Kadri, “The calculation of semipolar orientations for wurtzitic semiconductor heterostructures : application to nitrides and oxides,” *Semiconductor Science and Technology*, vol. 27, no. 2, p. 024009, 2012.

- [61] U. Grossner, J. Furthmüller, and F. Bechstedt, “Bond-rotation versus bond-contraction relaxation of (110) surfaces of group-III nitrides,” *Phys. Rev. B*, vol. 58, pp. R1722–R1725, Jul 1998.
- [62] M. Breeman, G. Barkema, M. Langelaar, and D. Boerma, “Computer simulation of metal-on-metal epitaxy,” *Thin Solid Films*, vol. 272, no. 2, pp. 195 – 207, 1996.
- [63] C. Ratsch, A. Zangwill, P. Šmilauer, and D. D. Vvedensky, “Saturation and scaling of epitaxial island densities,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 72, pp. 3194–3197, May 1994.
- [64] M. C. Bartelt and J. W. Evans, “Scaling analysis of diffusion-mediated island growth in surface adsorption processes,” *Phys. Rev. B*, vol. 46, pp. 12675–12687, Nov 1992.
- [65] A. Rastelli and H. von Känel, “Surface evolution of faceted islands,” *Surface Science Letters*, 2002.
- [66] M. Stoffel, A. Rastelli, J. Stangl, T. Merdzhanova, G. Bauer, and O. G. Schmidt, “Shape oscillations : A walk through the phase diagram of strained islands,” *Physical review B*, vol. 75, p. 113307, 2007.
- [67] A. Vailionis, B. Cho, G. Glass, P. Desjardins, D. G. Cahill, and J. E. Greene, “Pathway for the strain-driven two-dimensional to three-dimensional transition during growth of Ge on Si(001),” *Physical review letters*, vol. 80, p. 3672, Oct 2000.
- [68] N. Metropolis, A. W. Rosenbluth, M. N. Rosenbluth, A. H. Teller, and E. Teller, “Equation of state calculations by fast computing machines,” *The Journal of Chemical Physics*, vol. 21, no. 6, pp. 1087–1092, 1953.
- [69] A. Baskaran and P. Smereka, “Mechanisms of Stranski-Krastanov growth,” *Journal of applied Physics*, vol. 111, Feb 2012.
- [70] C.-H. Lam, C.-K. Lee, and L. M. Sander, “Competing roughening mechanisms in strained heteroepitaxy : A fast kinetic Monte Carlo study,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 89, p. 216102, Nov 2002.
- [71] C.-H. Lam, “Kinetic Monte Carlo simulation of faceted islands in heteroepitaxy using a multistate lattice model,” *Physical Review E*, vol. 81, no. 021607, 2010.
- [72] G. Russo and P. Smereka, “Computation of strained epitaxial growth in three dimensions by kinetic Monte Carlo,” *Journal of computational physics*, pp. 809–828, 2006.
- [73] A.-L. Barabasi, “Self-assembled island formation in heteroepitaxial growth,” *Applied Physics Letters*, vol. 70, no. 19, pp. 2565–2567, 1997.
- [74] J.-N. Aqua and T. Frisch, “Elastic interactions and kinetics during reversible submonolayer growth : Monte Carlo simulations,” *Physical review B*, vol. 78, p. 121305, 2008.

- [75] P. Gaillard, J.-N. Aqua, and T. Frisch, “Kinetic Monte Carlo simulations of the growth of silicon germanium pyramids,” *Phys. Rev. B*, vol. 87, p. 125310, Mar 2013.
- [76] S. Andrieu and P. Müller, *Les surfaces solides : concepts et méthodes*. EDP sciences, 2005.
- [77] M. Kästner and B. Voigtländer, “Kinetically self-limiting growth of Ge islands on Si(001),” *Physical review letters*, vol. 82, p. 2745, Mar 1999.
- [78] M. R. McKay, J. A. Venables, and J. Drucker, “Kinetically suppressed Ostwald ripening of Ge/Si(100) hut clusters,” *Physical review letters*, vol. 101, Nov 2008.
- [79] D. E. Jesson, M. Kästner, and B. Voigtländer, “Direct observation of subcritical fluctuations during the formation of strained semiconductor islands,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 84, pp. 330–333, Jan 2000.
- [80] S. Miyamoto, O. Moutanabbir, E. E. Haller, and K. M. Itoh, “Spatial correlation of self-assembled isotopically pure Ge/Si(001) nanoislands,” *Physical review B*, vol. 79, 2009.
- [81] R. E. Rudd, G. A. D. Briggs, A. P. Sutton, G. Medeiros-Ribeiro, and R. S. Williams, “Equilibrium model of bimodal distributions of epitaxial island growth,” *Physical review letters*, vol. 90, p. 146101, April 2003.
- [82] M. R. McKay, J. Venables, and J. Drucker, “Kinetic frustration of Ostwald ripening in Ge/Si(100) hut ensembles,” *Solid state Communications*, vol. 149, 2009.
- [83] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Theory of elasticity*, vol. 7 of *Course of Theoretical Physics*. Pergamon Press, 3rd edition ed., 1970.
- [84] A. Rastelli, M. Stoffel, A. Malachias, T. Merdzhanova, G. Katsaros, K. Kern, T. H. Metzger, and O. G. Schmidt, “Three-dimensional composition profiles of single quantum dots determined by scanning-probe-microscopy-based nanotomography,” *Nano Letters*, vol. 8, no. 5, pp. 1404–1409, 2008. PMID : 18376870.
- [85] G. Medeiros-Ribeiro and R. S. Williams, “Thermodynamics of coherently-strained $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ nanocrystals on si(001) :, alloy composition and island formation,” *Nano Letters*, vol. 7, no. 2, pp. 223–226, 2007. PMID : 17253759.
- [86] M. S. Leite, A. Malachias, S. W. Kycia, T. I. Kamins, R. S. Williams, and G. Medeiros-Ribeiro, “Evolution of thermodynamic potentials in closed and open nanocrystalline systems : Ge-Si :Si(001) islands,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 100, p. 226101, Jun 2008.
- [87] L. A. Montoro, M. S. Leite, D. Biggemann, F. G. Peternella, K. J. Batenburg, G. Medeiros-Ribeiro, and A. J. Ramirez, “Revealing quantitative 3D chemical arrangement on Ge,Si nanostructures,” *The Journal of Physical Chemistry C*, vol. 113, no. 21, pp. 9018–9022, 2009.
- [88] X. Liang, Y. Ni, and L. He, “Shape-dependent composition profile in epitaxial alloy quantum dots : A phase-field simulation,” *Computational Materials Science*, vol. 48, no. 4, pp. 871 – 874, 2010.

- [89] B. J. Spencer and M. Blanariu, "Shape and composition map of a prepyramid quantum dot," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 95, p. 206101, Nov 2005.
- [90] G. Vastola, V. B. Shenoy, J. Guo, and Y.-W. Zhang, "Coupled evolution of composition and morphology in a faceted three-dimensional quantum dot," *Phys. Rev. B*, vol. 84, p. 035432, Jul 2011.
- [91] D. Digiuni, R. Gatti, and F. Montalenti, "Aspect-ratio-dependent driving force for nonuniform alloying in Stranski-Krastanow islands," *Phys. Rev. B*, vol. 80, p. 155436, Oct 2009.
- [92] N. V. Medhekar, V. Hegadekatte, and V. B. Shenoy, "Composition maps in self-assembled alloy quantum dots," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 100, p. 106104, Mar 2008.
- [93] P. Sutter and M. G. Lagally, "Nucleationless three-dimensional island formation in low-misfit heteroepitaxy," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 84, no. 20, 2000.

Quatrième partie

Article Monte Carlo Cinétique

Kinetic Monte Carlo simulations of the growth of silicon germanium pyramidsPhilippe Gaillard,¹ Jean-Noël Aqua,² and Thomas Frisch³¹*Institut Matériaux Microélectronique Nanosciences de Provence, UMR CNRS 7334, Aix-Marseille Université, Faculté des Sciences et Techniques, Marseille, France*²*Institut des Nanosciences de Paris, Université Pierre et Marie Curie Paris 6, UMR CNRS 7588, Paris, France*³*Institut Non Linéaire de Nice, Université de Nice Sophia Antipolis, UMR CNRS 7735, Valbonne, France*

(Received 5 July 2012; revised manuscript received 18 December 2012; published 25 March 2013)

We investigate the nucleation and growth of anisotropic and strained quantum dots in heteroepitaxy by means of kinetic Monte Carlo simulations. Surface energy anisotropy is introduced in order to depict Ge-like dots with (105) facets growing on a Si (100) substrate. Three dimensional islands, mainly in the form of square-base pyramids, are reported and their coarsening is found to be interrupted during annealing. The resulting island density follows the scaling law $\rho \sim (D/F)^{-\alpha}$ with $\alpha \simeq 0.6$ as a function of the diffusion D to flux F ratio. The island size distribution follows the scaling law resulting from the assumption of a single length scale.

DOI: [10.1103/PhysRevB.87.125310](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.87.125310)

PACS number(s): 81.15.Aa, 81.15.Hi, 68.35.Ct, 81.10.Aj

I. INTRODUCTION

The growth of germanium on a silicon substrate and of various SiGe alloys by molecular beam epitaxy or chemical vapor deposition is known to permit self-organization of quantum dots.^{1,2} Their formation is driven by the partial relaxation of the elastic strain resulting from the 4% lattice mismatch between Si and Ge.^{3–5} The growth of these islands follows the Stranski-Krastanov mode where a 2D wetting layer a few atoms thick covers the system before 3D islands may grow.⁴ Experimental observations^{6,7} have shown that 3D islands can be observed quickly (less than 1 ML) after the deposition of a wetting layer. The islands grown on Si (100) display various morphologies such as prepyramids, pyramids, huts, domes, superdomes.^{8,9} When the film thickness is sufficiently small, square and rectangular pyramids are formed, and display (105) facets stabilized by elasticity and surface reconstruction.^{10,11} When all the islands of the system are of pyramidal shape, they depart from the usual Ostwald ripening scenario, as their coarsening is interrupted during annealing.⁹

The 2D–3D transition was first rationalized by equilibrium calculations which computed the decrease in energy introduced by islands.^{12–14} However, in experiments, islands are mainly ruled by the growth kinetics that involve adatom displacement along facets, steps, and kinks. These kinetic effects are complex since they involve many atomic processes. Therefore it has been important to develop simple tools to model the growth of islands, such as mean-field rate equations⁶ which described the atomic detachment from islands by a strain-dependent rate. A more detailed analysis can be done by taking into account atomic processes using KMC simulations¹⁵ or level-set methods.¹⁶ The 2D–3D transition was demonstrated in Frenkel-Kontorova models above a critical level of strain^{17–20} and in models with effective elastic barriers at the island edges.^{21,22} Elastic computations based on the film/substrate Green function^{23,24} were used to corroborate two regimes at high and low strain which are indeed observed experimentally.^{23,25} In this article we focus on islands that nucleate at high misfit and moderate temperature T . Even though the surface energy anisotropy is a crucial parameter, few studies have considered this effect coupled to elasticity.^{26,27} Yet this anisotropy is crucial to render the

experimental shapes and can lead to dramatic changes in the growth kinetics.^{28,29} We have thus developed a model which takes into account the presence of facets, strain, and the kinetics linked to the deposition flux.

We present here KMC simulations of a 3D solid-on-solid (SOS) model which accounts both for elasticity and surface energy anisotropy. We aim to describe the growth kinetics of the first pyramidal islands in the nucleation regime of Ge on Si (100). Elasticity is computed thanks to a Green function²⁸ which allows us to consider large scale systems and to derive the islands statistical properties. As seen in real-time measurements, the model exhibits large scale fluctuations which lead to 3D islands during a transition that spans over less than one monolayer. On larger times, we find that the coarsening of the subsequent islands is interrupted when anisotropy, coupled to elasticity, dictates the islands shapes. We characterize the scaling law followed by the island density as a function of the kinetic ratio D/F for different temperatures. Finally we find that the island size distribution also obeys a general scaling law. These results, which are based on a simple model and compare favorably with experiments, show the critical coupling between long range elastic forces and anisotropy.

II. MODEL

In order to investigate the coupling between elasticity and anisotropy, we supplement with anisotropic terms a model that was developed to treat long range elastic interactions using Green functions.³⁰ We attempt to simulate the system at the simplest level which corresponds to atom diffusion on a strained substrate, nearest neighbor bonding, and elastic interactions, together with facetting along the (105) orientations. We consider a SOS model on a square lattice of spacing a and size $(Na)^2$ with periodic boundary conditions where each column $\mathbf{r} = (x, y)$ has a height $z = a h(\mathbf{r})$. Atoms can diffuse from their current position to any of the nearest neighbor sites,³¹ and jump up or down a terrace. The energy barrier to move an atom from a site i with n_i nearest neighbors is decomposed as

$$\Delta E_i = E_s + n_i E_N - \Delta E_i^{\text{el}} + n_s (\delta E_s^f + n_i \delta E_N^f) - E_h, \quad (1)$$

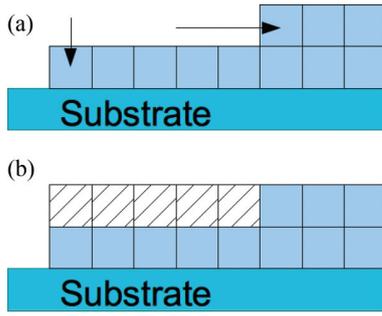


FIG. 1. (Color online) Sketches of the additional terms used for the energy barrier (1). (a) the arrows show the two positions where $n_s(\delta E_s + n\delta E_N)$ is nonzero; (b) shows the positions where E_h is nonzero. If an atom is added to the hashed positions, the factor E_h is added to increase the probability it moves.

where E_s is the energy barrier for diffusion of a single atom on the (100) orientation, while E_N is the nearest neighbor interaction energy. The elastic contribution ΔE^{el} is the energy difference between the two configurations with and without the atom under consideration,²³ see below. Anisotropy and facets are associated with a minimum in the surface energy plot as a function of the orientation. As the surface energy is proportional to the binding energies E_N and E_s , we introduce facets into the model by simply changing these bonds by δE_s^f and δE_N^f when the atom belongs to one of the four (105) facet orientations while the factor n_s is the step number. To calculate this factor we probe the height of the neighboring lattice sites in the four directions a step may take. For example, if the site (i, j) has a height h , we check if four or five of the sites $(i-1, j)$ up to $(i-5, j)$ have a height $h-1$ and that the site $(i-6, j)$ has a height $h-2$. If these conditions are fulfilled, we increase n_s by 1. We repeat this process in all directions or until $n_s = 2$. These extra barriers cause atoms that are part of a (105) facet to have a lower probability of moving. Finally, we add an extra barrier E_h to balance the effect of elasticity which is maximum on an island edge as explained below (see Fig. 1).

As regards elasticity, we use the Green function calculation detailed in Ref. 30 using the assumption of small slopes, which is relevant since islands will display at most (105) orientations. We consider a Ge film in the $0 \leq z \leq h(\mathbf{r})$ slab coherently deposited on a semi-infinite Si substrate in the $z \leq 0$ region, with the same elastic constants. The latter approximation simply renormalizes the coefficients of the elastic Green function.²⁸

Up to a constant term embedded in the diffusion barrier, the resulting elastic energy difference ΔE^{el} between a film with an atom at \mathbf{r} and the same film without this atom reads

$$\Delta E^{\text{el}}(\mathbf{r}) = -2(1 + \nu)\mathcal{E}_0 a^3 \sum_{\mathbf{r}'} h(\mathbf{r}') G(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (2)$$

with $\mathcal{E}_0 = Y\epsilon^2/(1 - \nu)$ being the flat film elastic energy density, Y the film Young modulus, and ν its Poisson ratio, while $\epsilon = a^f/a^s - 1$ is the misfit between the film and substrate lattice parameters. The Green function matrix is

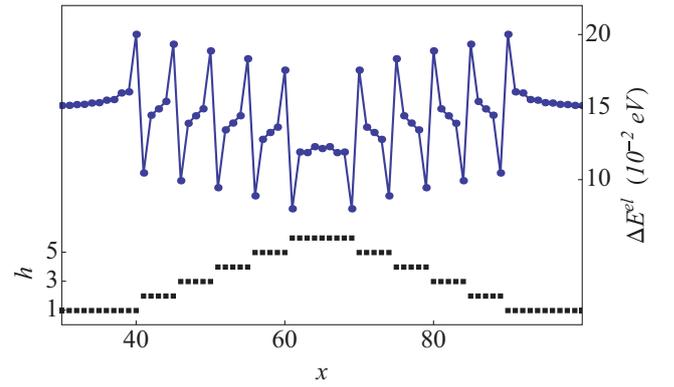


FIG. 2. (Color online) Elastic energy $\Delta E^{\text{el}}(\mathbf{r})$ of an adatom as a function of its location on top of a square-base pyramid whose profile is plotted in black squares. Distances are given in lattice units. The dashed line corresponds to the height and the full line to the elastic chemical potential.

defined in Fourier space in the (x, y) plane, with

$$G(\mathbf{r}) = \frac{2\pi}{N^3} \sum_{\mathbf{k}_x, \mathbf{k}_y = -N/2+1}^{N/2} |\mathbf{k}| \cos(2\pi \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}/N). \quad (3)$$

The influence of elasticity is exemplified in Fig. 2. We consider a single adatom on top of a given square-base pyramid, and plot the energy barrier ΔE^{el} , equal to the adatom elastic chemical potential μ^{el} , as a function of its location on the pyramid. Due to the square geometry of the SOS model, the (105) facets are described by successions of steps with one step in the z direction every five moves in the x or y directions. Far from the pyramid, this chemical potential in fact behaves as $1/r^3$ (not shown on the figure) as expected for dipolar elastic interactions.³² However this effect is weak compared to the elastic chemical potential near and on the island. At the lower side of a step edge, the chemical potential rises steeply, showing the maximum compressive stress at this location. Elasticity therefore favors the detachment of atoms from the lower step edge of islands, with a driving force which increases with the island size due to the long-range character of elasticity, as was basically described in Ref. 21. Conversely, the adatom has a lower μ^{el} at the upper edge of the step where elastic relaxation is increased. This effect increases as the adatom rises up the pyramid and is maximum on top of the pyramid, where stress relaxation is known to be maximum. However, this effect clearly favors adatoms accumulating at the upper step edges therefore building steep slopes (walls), which is clearly an undesirable feature as regards the comparison with experiments. To avoid this spurious effect and favor the (105) orientations, we introduce a kinetic factor E_h which decreases the energy barrier for diffusion [Eq. (1)] and thus effectively forces adatoms at the first five lattice sites from a step edge to move with a high probability. This reduction is at work for an atom when a hole (a site that has a height two atomic sizes below the atom) is present at a distance of less than $5a$ in the x or y directions, see Fig. 1. We used an arbitrary value $E_h = 4k_b T$, which corresponds to 0.17 eV for the temperatures under scrutiny—a value that is close to E_N but higher than the elastic term ΔE^{el} (see Fig. 2). Moreover,

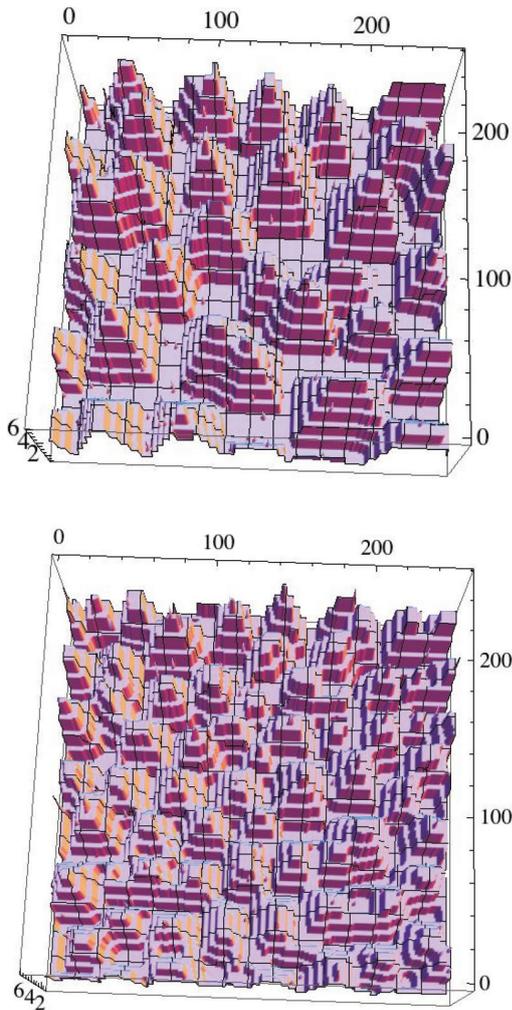


FIG. 3. (Color online) KMC simulations of the SOS model ruled by (1) showing as grown islands after deposition of 1.5 ML with $T = 550$ K, $F = 0.5$ ML/s (top figure) and $T = 500$ K, $F = 0.25$ ML/s (bottom figure). Scale in units of a .

the surface energy of the reconstructed (105) facet of Ge under strain is known to be more stable than the (100) orientation, and a difference of up to 7% between their surface energies can be found.³³ Consequently, we choose $\delta E_S^f = 0.05$ eV and $\delta E_N^f = 0.0125$ eV, which is enough to find the stabilization of the (105) orientation as shown below.

Finally we choose parameters appropriate to usual SiGe systems with $E_S = 0.8$ eV and $E_N = 0.2$ eV, associated with the diffusion constant $D = \frac{1}{4h} a^2 k_B T e^{-E_S/k_B T}$, where h is the Planck constant. Elasticity is described by the Si elastic constant, $\nu = 0.279$, and $Y = 130$ GPa, and we consider $a = 0.35$ nm in between the lattice parameter of the Ge diamond structure and the lattice parameter of a mass-equivalent cubic crystal.

III. RESULTS AND DISCUSSION

Using the previously defined model, we performed a set of kinetic Monte Carlo simulations of the growth and annealing of quantum dots. In all the simulations we deposited

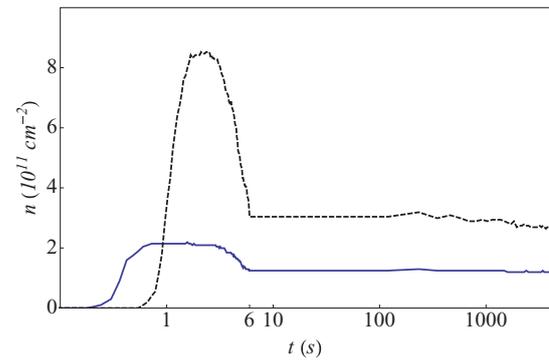


FIG. 4. (Color online) Plot of the density of 3D islands n as a function of time. Deposition of 1.5 ML with flux $F = 0.25$ ML/s at $T = 500$ K (dashed) and $T = 550$ K (full line). After $t = 6$ s annealing is performed.

1.5 monolayers (ML) of matter, an amount that is sufficient to obtain 3D islands as we did not take into account wetting effects.

A. Surface morphology

We first depict the generic surface morphology at $T = 550$ K after deposition with a flux $F = 0.5$ ML/s and at $T = 500$ K after deposition with a flux $F = 0.25$ ML/s in Fig. 3. Islands quickly develop 3D geometries which display pyramidal shapes with pseudo (105) facets (no surface reconstruction).³⁴ 3D islands are less numerous but bigger at higher temperatures. This may be rationalized by the increase in the diffusion length with temperature, as found in submonolayer growth where the diffusion length of a monomer before incorporation into the crystal is $l_s \sim (D/F)^\gamma$ which increases with T .³²

We characterize the dynamics of the surface evolution by plotting the island density as a function of time. In the following “3D island” denotes islands that possess at least two layers and have at least four atoms on the second layer. Figure 4 shows the 3D island density as a function of time for $T = 500$ K and $T = 550$ K during growth up to $t = 6$ with $F = 0.25$ ML/s and subsequent annealing. The data is obtained by averaging over 10 simulations of size 128×128 . The density increases quickly at the beginning of deposition,

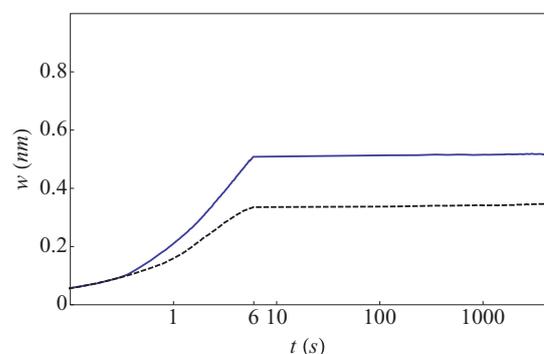


FIG. 5. (Color online) Plot of the roughness w as a function of the deposition time during growth and annealing, the parameters are the same as those of Fig. 4.

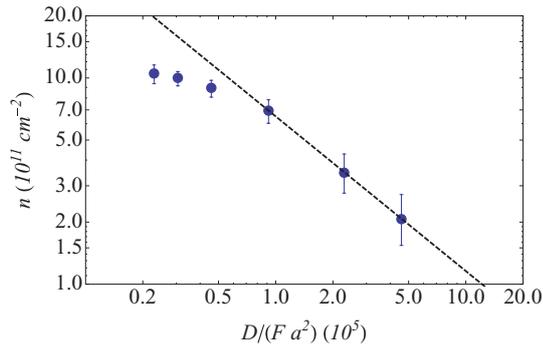


FIG. 6. (Color online) 3D island density as a function of the diffusion constant over the deposition flux at $T = 500$ K after deposition of 1.5 ML and scaling law from Eq. (4) with $\alpha = 0.75 \pm 0.1$.

before decreasing due to island coarsening and merging, especially in the lower temperature case. However the island density is almost constant during annealing and coarsening is therefore interrupted when islands display their pyramidal shapes.

The dynamics of the transition to 3D islands may also be studied by means of the surface roughness $w = (\langle h^2 \rangle - \langle h \rangle^2)^{1/2}$ which is plotted as a function of time in Fig. 5 during deposition and subsequent annealing at $T = 500$ K and $T = 550$ K. The roughness w increases continuously during deposition and slows down during annealing.

Islands appear to evolve much slower once the pyramidal island shape is fully developed, as shown both by the island density and roughness. This result compares favorably with the experimental findings which demonstrated the interruption of coarsening in SiGe pyramidal islands both in the low³⁵ and high strain^{36,37} regimes. This interruption was rationalized by the vanishing of the coarsening driving force in the low strain regime³⁸ and by kinetic barriers in the high strain regime.^{36,37,39} Note that our model leads directly to 3D islands instead of the layer-by-layer growth that occurs without elasticity. The real 2D–3D transition at work in experiments is governed by wetting effects that we did not include in our model in order to simplify the analysis and to focus solely on the coupling between elasticity and surface energy anisotropy. Even though our model is simplified and does not describe the complexity of island growth (surface reconstruction, segregation, intermixing, wetting, etc.), we argue that the

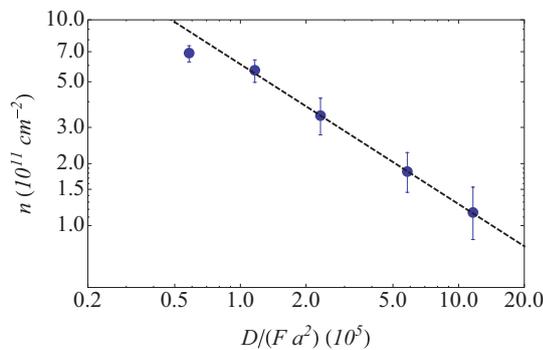


FIG. 7. (Color online) Same as Fig. 6 but $T = 525$ K and $\alpha = 0.68 \pm 0.05$.

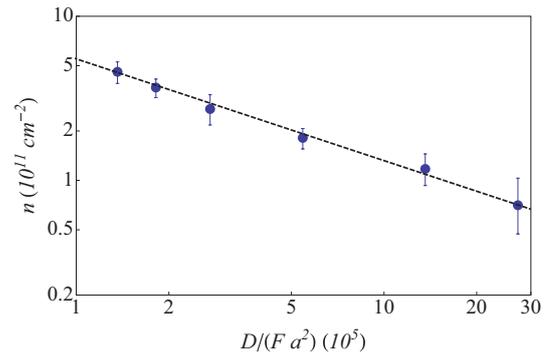


FIG. 8. (Color online) Same as Fig. 6 but $T = 550$ K, $\alpha = 0.62 \pm 0.05$.

coarsening interruption is a generic effect of the interplay between elastic and anisotropic effects.

B. Dependence on the flux and the temperature

To further study the growth dynamics, we analyze the island density as a function of the growth parameters: the temperature T (which rules the diffusion D) and the deposition flux F . Similarly to the dependence observed in submonolayer islands without³² or with⁴⁰ strain, the density of 3D islands is found to decrease when the temperature increases and to increase when the flux increases (see Figs. 6–9). It is also inversely proportional to the mean island size. To further draw the comparison between the submonolayer and 3D cases, we plot the island density as a function of the kinetic ratio D/F at different temperatures in Figs. 6–9. We find that the basic scaling law which relates the as-grown island density as a function D/F ³² is again satisfied in our model

$$n \approx \left(\frac{D}{F} \right)^{-\alpha}. \quad (4)$$

Here the exponent α varies between 0.75 and 0.55 as T increases from 500 K to 575 K. This variation involves many mechanisms like atom diffusion, elasticity, attachment, and detachment. The fact that a critical size computed via the dependence of the island density on the scaling factor D/F gives unphysical results is a strong indication that the simple theoretical analysis with a critical nucleus does not apply here,

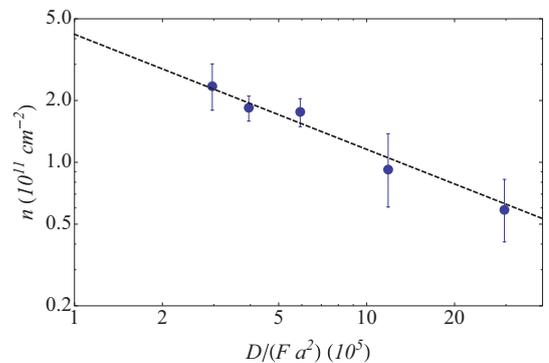


FIG. 9. (Color online) Same as Fig. 6 but $T = 575$ K, $\alpha = 0.56 \pm 0.05$.

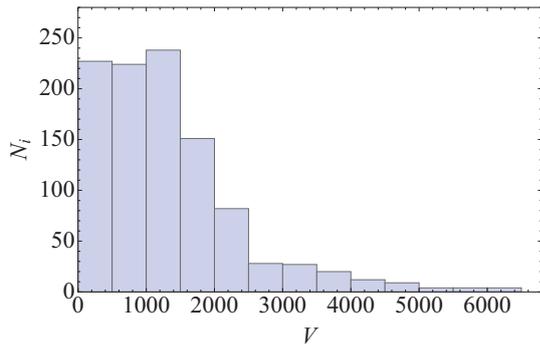


FIG. 10. (Color online) Histogram of the island size distribution (expressed in number of atoms) found by numerical simulations (excluding the islands that are composed of less than 48 atoms, which corresponds to our definition of 3D islands) calculated with a coverage of 1.5 ML from a deposition flux of 0.5 ML/s at a temperature of 500 K after 1.26 hours of annealing at the same temperature. Result of 90 simulations of size 128×128 .

underlying the crucial role of reversible attachment. As a result, a simplistic theoretical description considering only adatom diffusion and irreversible attachment to 2D islands³² is not applicable here since reversible attachment and detachment is strongly present in our model. Indeed, we observed in our simulations the dissolution of islands consisting of about hundred atoms; this is consistent with the experiments where large embryos (about 300 atoms) form and decay even at relatively low temperatures.⁴¹

C. Island size distribution

Besides island density, island size homogeneity is a key issue regarding the application of self-organized islands. We plot the island size distribution for $T = 500$ K in Fig. 10 and for $T = 550$ K in Fig. 11. Both are characterized by a noticeable dispersion with a relative width $\Delta v / \langle v \rangle$ of order unity (e.g., 1.1 for $T = 500$ K and $F = 0.25$ ML/s or 1.2 for $T = 550$ K at the same flux), where Δv and $\langle v \rangle$ are the standard deviation and mean island volume. They are larger than experimental values, but note that experimental islands are larger than those we obtain with our model.

Scaling arguments may provide valuable information as regards the island size dispersion. It is well known⁴² that when

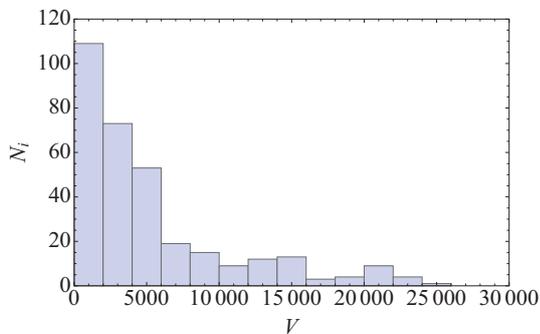


FIG. 11. (Color online) Same figure as Fig. 10 with $T = 550$ K and as grown (minimum size of 48 atoms). Result of 70 simulations of size 128×128 .

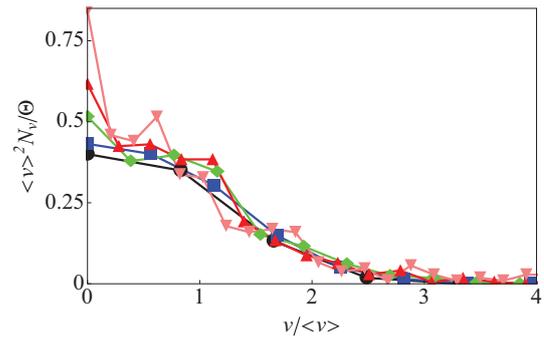


FIG. 12. (Color online) Rescaling of numerical simulations at $T = 500$ K and $F = 0.5$ ML/s taking deposition levels of 0.9 to 1.5 ML, using the rescaled island size distribution N_i ; each line represents a different amount of deposited matter. Result of 90 simulations of size 128×128 .

the system has no characteristic length scale besides the mean island size $\langle v \rangle$, the island size distribution follows the scaling law

$$N_v = \frac{\Theta}{\langle v \rangle^2} f\left(\frac{v}{\langle v \rangle}\right), \quad (5)$$

where N_v is the number density of islands of volume v , while Θ is the deposited coverage measuring the total amount of matter in the islands. It was originally derived for 2D islands⁴³ and was extended to 3D islands provided one considers Θ as the amount of matter after the 2D–3D transition.⁴⁴ We plot in Figs. 12 and 13 the island size distribution rescaled according to Eq. (5) for different film thicknesses above 0.9 ML. We find that the scaling form is still valid despite the presence of long-range elastic interactions, similarly to the submonolayer case.³⁰ We find here that the rescaled island size distribution is rather similar at different temperatures when using the rescaling from (5) as opposed to the initial values from Figs. 10 and 11. Note that one could define a characteristic length scale in our model by the ratio between the surface energy density and the elastic energy density $l_0 = E_n / (\mathcal{E}_0 a^2)$. Given the values used in our simulations, we would find $l_0 = 0.8$ nm, which is small compared to the island size and interisland distance, a small size that could be at the origin of the validity of the scaling law in this system.

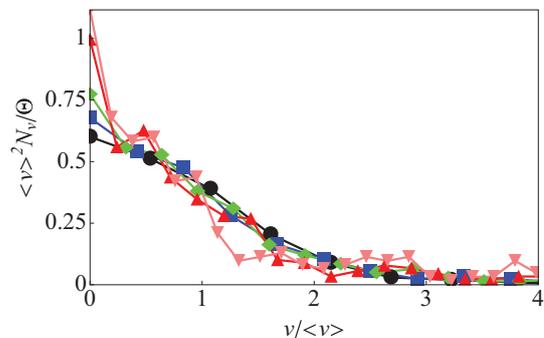


FIG. 13. (Color online) Same as Fig. 12 except with at $T = 550$ K. Result of 70 simulations of size 128×128 .

IV. CONCLUSION

In conclusion, we have devised a simple solid on solid model including both elastic interactions and an anisotropy which favors facets, in order to describe the nucleation and evolution of strained heteroepitaxial islands. Kinetic Monte Carlo simulations of the model lead to the formation of square base pyramids. Ostwald coarsening, which should occur for islands with different sizes, is found here to be interrupted due to the coupling between elasticity and surface energy anisotropy after annealing, as observed in experiments.^{36–38} We show that the island density follows a scaling law as a function of the kinetic ratio D/F . Similarly, the island size distribution follows the scaling derived from the hypothesis of no characteristic length scale besides the mean island size. This model could be made to include additional ingredients known to be relevant, such as the extra facets which occur

in domes or superdomes. Wetting interactions could also be included by a dependence of the binding energies on the film thickness. *Ab initio* methods could be exploited to calculate some of the activation barriers.⁴⁵ More importantly, intermixing requires the description of two atomic species in the film and their possible exchange.⁴⁶ Generalization to similar systems such as III-V alloys, e.g., AlGaIn light-emitting quantum dots, could also be done by considering different microscopic details. Finally, as expected from the experiments, we found a high relative dispersion, and we believe that a patterning of the substrate could be an interesting route to control the self-organization of quantum dots. A generalization of our numerical methods to the case of patterned substrates will be addressed in a future work. Ostwald coarsening, which should occur for islands with different sizes, is found here to be interrupted due to the coupling between elasticity and surface energy anisotropy.

-
- ¹K. Brunner, *Rep. Prog. Phys.* **65**, 27 (2002).
²J.-M. Baribeau, X. Wu, N. L. Rowell, and D. J. Lockwood, *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, 139 (2006).
³D. J. Eaglesham and M. Cerullo, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1943 (1990).
⁴Y. W. Mo, D. E. Savage, B. S. Swartzentruber, and M. G. Lagally, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 1020 (1990).
⁵I. Berbezier and A. Ronda, *Surf. Sci. Rep.* **64**, 47 (2009).
⁶H. T. Dobbs, D. D. Vvedensky, A. Zangwill, J. Johansson, N. Carlsson, and W. Seifert, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 897 (1997).
⁷See, e.g., S. Miyamoto, O. Moutanabbir, E. E. Haller, and K. M. Itoh, *Phys. Rev. B* **79**, 165415 (2009).
⁸J. Stangl, V. Holý, and G. Bauer, *Rev. Mod. Phys.* **76**, 725 (2004).
⁹J.-N. Aqua, I. Berbezier, L. Favre, T. Frisch, and A. Ronda, *Phys. Rep.* **522**, 59 (2013).
¹⁰P. Raiteri, D. B. Migas, L. Miglio, A. Rastelli, and H. von Känel, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 256103 (2002).
¹¹G.-H. Lu and F. Liu, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 176103 (2005).
¹²C. Ratsch and A. Zangwill, *Surf. Sci.* **293**, 123 (1993).
¹³C. Priester and M. Lannoo, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 93 (1995).
¹⁴P. Müller and R. Kern, *Appl. Surf. Sci.* **102**, 6 (1996).
¹⁵A. Baskaran and P. Smereka, *J. Appl. Phys.* **111**, 044321 (2012).
¹⁶C. Ratsch, J. DeVita, and P. Smereka, *Phys. Rev. B* **80**, 155309 (2009).
¹⁷B. G. Orr, D. Kessler, C. W. Snyder, and L. Sander, *Europhys. Lett.* **19**, 33 (1992).
¹⁸A.-L. Barabasi, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 2565 (1997).
¹⁹G. Russo and P. Smereka, *J. Comput. Phys.* **214**, 809 (2006).
²⁰R. Xiang, M. T. Lung, and C.-H. Lam, *Phys. Rev. E* **82**, 021601 (2010).
²¹C. Ratsch, P. Smilauer, D. D. Vvedensky, and A. Zangwill, *J. Phys. I (France)* **6**, 575 (1996).
²²K. E. Khor and S. Das Sarma, *Phys. Rev. B* **62**, 16657 (2000).
²³C.-H. Lam, C.-K. Lee, and L. M. Sander, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 216102 (2002).
²⁴R. Zhu, E. Pan, and P. W. Chung, *Phys. Rev. B* **75**, 205339 (2007).
²⁵M. T. Lung, C.-H. Lam, and L. M. Sander, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 086102 (2005).
²⁶C.-H. Lam, *Phys. Rev. E* **81**, 021607 (2010).
²⁷C. H. Lam, *J. Appl. Phys.* **108**, 064328 (2010).
²⁸J.-N. Aqua, T. Frisch, and A. Verga, *Phys. Rev. B* **76**, 165319 (2007).
²⁹J.-N. Aqua and T. Frisch, *Phys. Rev. B* **82**, 085322 (2010).
³⁰J.-N. Aqua and T. Frisch, *Phys. Rev. B* **78**, 121305(R) (2008).
³¹We checked that the movement of atoms with three and four neighbors has a high probability of rejection (their probability of movement is $\sim 10^{-5}$ compared to $\sim 10^{-2}$ for lower-coordinated atoms) as elasticity is still a correction compared to 3 or 4 E_N , and we subsequently discard these atoms from the Monte Carlo attempts.
³²See, e.g., A. Pimpinelli and J. Villain, *Physics of Crystal Growth* (Cambridge University Press, Cambridge, 1998).
³³See, e.g., V. B. Shenoy and L. B. Freund, *J. Mech. Phys. Solids* **50**, 1817 (2002).
³⁴Note that some islands also merge with neighboring islands at higher temperatures.
³⁵I. Berbezier, A. Ronda, F. Volpi, and A. Portavoce, *Surf. Sci.* **531**, 231 (2003).
³⁶M. Kästner and B. Voigtländer, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2745 (1999).
³⁷M. R. McKay, J. A. Venables, and J. Drucker, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 216104 (2008).
³⁸J.-N. Aqua, A. Gouyé, A. Ronda, T. Frisch, and I. Berbezier, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 096101 (2013).
³⁹B. Voigtänder, *Surf. Sci. Rep.* **43**, 127 (2001).
⁴⁰M. Meixner, E. Schöll, V. A. Shchukin, and D. Bimberg, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 236101 (2001).
⁴¹D. E. Jesson, M. Kästner, and B. Voigtländer, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 330 (2000).
⁴²A.-L. Barabási and H. E. Stanley, *Fractal Concepts in Surface Growth* (Cambridge University Press, Cambridge, 1995).
⁴³M. C. Bartelt and J. W. Evans, *Phys. Rev. B* **46**, 12675 (1992).
⁴⁴T. J. Krzyzewski, P. B. Joyce, G. R. Bell, and T. S. Jones, *Phys. Rev. B* **66**, 201302 (2002).
⁴⁵G. Chen, B. Sanduijav, D. Matei, G. Springholz, D. Scopece, M. J. Beck, F. Montalenti, and L. Miglio, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 055503 (2012).
⁴⁶A. Baskaran, J. Devita, and P. Smereka, *Continuum Mech. Thermodyn.* **22**, 1 (2010).

La formation et la morphologie des boîtes quantiques est un sujet d'un grand intérêt, ces structures ayant de nombreuses applications potentielles, en particulier en microélectronique et optoélectronique. Le contrôle de la taille, de la forme et de la distribution de ces boîtes est critique pour les applications envisagées. Cette thèse porte sur l'étude théorique et numérique de la croissance d'îlots par épitaxie par jet moléculaire. Pour cela nous avons utilisé deux modèles : une étude non-linéaire de l'instabilité de type Asaro-Tiller-Grinfeld, et des simulations Monte Carlo cinétiques. La première modélisation convient pour les systèmes à faibles désaccords de maille, et est plus spécifiquement appliquée au cas où le désaccord de maille est anisotrope. Expérimentalement, ceci est observé dans le cas du dépôt de GaN sur AlGa_N. Le calcul de l'instabilité que nous avons effectué prend en compte les effets élastiques causés par le désaccord de maille, les effets de mouillage et les effets d'évaporation. Les résultats de la résolution numérique de l'instabilité nous permettent de constater une croissance plus rapide dans le cas anisotrope comparé au cas isotrope, ainsi que la croissance d'îlots fortement anisotropes.

Le deuxième modèle est basé sur des simulations Monte Carlo cinétiques, qui permettent de décrire la nucléation d'îlots 3D. Ces simulations sont utilisées pour les systèmes à fort désaccord de maille, comme Ge sur Si. Nos simulations prennent en compte la diffusion des adatoms, les effets élastiques, ici calculés à l'aide d'une fonction de Green discrétisée, et un terme simulant la présence de facettes (105). Les simulations aboutissent à la formation d'îlots pyramidaux, conformément aux expériences, dont le mûrissement d'Ostwald est interrompu. Les résultats obtenus ont été comparés au cas de la nucléation 2D, et on retrouve en particulier une densité d'îlots en loi de puissance par rapport au rapport D/F du coefficient de diffusion et du flux de déposition.

Modélisation de la croissance de boîtes quantiques sous contrainte élastique

Modeling the growth of quantum dots under elastic strain

The growth and morphology of quantum dots is currently a popular subject as these structures have numerous potential uses, specifically in microelectronics and optoelectronics. Control of the size, shape and distribution of these dots is of critical importance for the uses that are being considered. This thesis presents a theoretical and numerical study of the growth of islands during molecular beam epitaxy. In order to study these dots, we used two models : a nonlinear study of an Asaro-Tiller-Grinfeld like instability, and kinetic Monte Carlo simulations. The first model is appropriate for low misfit systems, and is detailed in the case where misfit is anisotropic. Experimentally, this is the case when depositing GaN on AlGa_N. In this case we took into account elastic effects, wetting effects and evaporation. Numerical calculations show faster growth, compared to the isotropic misfit case, and the growth of strongly anisotropic islands.

The second model is based on kinetic Monte Carlo simulations that can describe 3D island nucleation. We use these simulations to study systems with high misfits, specifically Ge on Si. Adatom diffusion on a surface is considered and takes into account elastic effects, through a Green function model, and surface energy anisotropy, that allows us to stabilize (105) facets. Simulation results show the growth of pyramid-shaped 3D islands, as observed in experiments, and their Ostwald ripening is interrupted. The results of these simulations are then compared to the case of 2D nucleation, and we find that several of the known 2D properties also apply to 3D islands. Specifically, island density depends on a power law of D/F , the diffusion coefficient divided by the deposition flux.

MOTS CLÉS: Hétéro-épitaxie, Nanostructures, Simulations Monte Carlo cinétiques, Instabilités, contraintes élastiques