

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
L'université Abou-Berk Belkaid de Tlemcen
Faculté des Sciences
Département de Physique

THÈSE

En vue l'obtention du

DOCTORAT EN SCIENCES PHYSIQUES

Discipline : Physique

Présenté par : KHACHAB Hamid

Modélisation de la croissance épitaxiale par jets moléculaires (MBE) avec la méthode de Monte Carlo Cinétique (KMC)

Soutenu en Juin 2010

Devant le jury d'examen

Président	BENOUAZ TAYEB	Professeur, Université de Tlemcen
Directeur de thèse	BELGHACHI Abderrahmane	Professeur, Université de Béchar
Examineur	HENINI Mohamed	Professeur, Université de Nottingham
Examineur	SAIDANE Abdelkader	Professeur, ENSET Oran
Examineur	HELMAOUI Abderrachid	Professeur, Université de Béchar
Examineur	MERAD Abdelkrim	Maître de Conférence, Université de Tlemcen

Année universitaire : 2009/2010

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au sein du département de physique de la faculté des sciences de l'université de Tlemcen et du laboratoire de physique des dispositifs à semiconducteurs (LPDS) de l'université de Béchar, dont je remercie les responsables des deux établissements pour m'avoir permis de travailler durant ces années .

Mes remerciements les plus chaleureux vont à mon directeur de thèse, professeur Abderrahmane BELGHACHI, avec qui j'ai eu le grand plaisir de travailler tout au long de cette thèse. Je lui adresse mon infinie gratitude pour cette vocation qu'il a fait naître en moi, sa disponibilité, les conseils, l'encouragement, la patience et l'amabilité dont il a fait preuve tout au long de notre collaboration.

J'exprime ma gratitude à Monsieur Tayeb BENOUAZ, Professeur à l'Université d'Abou Bekr Belkaid de Tlemcen, pour avoir assuré la présidence de mon jury de thèse.

Mes remerciements vont ensuite à l'ensemble des membres composant mon jury de thèse qui ont accepté à juger ce travail; Monsieur Abdelkarim MERAD, maître de conférence de l'Université d'Abou Bekr Belkaid de Tlemcen, Monsieur Abdelkader SAIDANE, professeur de l'ENSET Oran, Monsieur Abderrachid HELMAOUI, professeur de l'université de Béchar, et Monsieur Mohamed HENINI professeur de l'Université de Nottingham, qui, malgré son emploi du temps très chargé, a accepté de se déplacer à l'université de Tlemcen et a été très arrangeant pour fixer une date de soutenance.

L'intérêt et la richesse d'un travail de thèse ne peuvent se résumer à l'obtention de résultats scientifiques. C'est en particulier à travers la qualité et la sincérité des relations humaines que l'on ressent en travaillant avec l'équipe du laboratoire de mécanique et physique des matériaux de l'université de Moulay Slimane de Beni mellal au maroc. Notamment, je remercie également Professeur Nejma FAZOUAN, pour son aide si précieuse, ses conseils avisés ainsi que sa constante bonne humeur.

Je souhaite aussi remercier tous les personnes qui m'ont aidé et participé de près ou de loin au bon déroulement de cette thèse, particulièrement : Yamani ABDELKAFI, Laouari ALAL, Ismail Khalil BOUSERHANE et Boufeldja KADRI.

Enfin, Je remercie chaleureusement ma famille et mes amis pour avoir toujours cru en moi.

Abstract

Several methods have been introduced to study and simulate molecular beam epitaxy of III — V materials. GaAs (001) surface has widely been used in the last three decades due both to its importance as substrate and for characterization of epitaxial growth.

In this work, we firstly study the initial stage of homoepitaxial growth on a GaAs (001) $\beta_2(2 \times 4)$ reconstructed surface using As_2 . The simulation was carried out with Kinetic Monte Carlo simulations including the zinc blend structure $\beta_2(2 \times 4)$ reconstruction of GaAs surface.

Then we discuss results of the homoepitaxy GaAs on GaAs and InAs on InAs particularly morphological evolution of the two dimensional islands and observations were made in real-time at the growth temperature using reflection high energy electron diffraction (RHEED) and photoemission current.

Key words: MBE, growth, Kinetic Monte Carlo, GaAs, InAs, reconstruction, $\beta_2(2 \times 4)$, RHEED, roughness, photoemission, Surface morphology, coverage

Résumé

L'étude de la surface de GaAs (001) a fait l'intérêt de plusieurs études expérimentales et théoriques depuis les trois dernières décennies, car elle fait l'élément de base dans la structure de la plus part des composants électroniques. Notre étude a porté sur ce point, qui est la modélisation et la simulation de la croissance épitaxiale par jets moléculaires.

Pour cela, on présente dans un premier lieu le modèle de la reconstruction de la surface $\beta_2(2 \times 4)$ de GaAs(001). Ce modèle inclus tous les détails microscopiques de la croissance homoépitaxie par jets moléculaires tels que la reconstruction de surface et la structure zinc blende du cristal afin de déterminer la morphologie et la rugosité de la surface formée après une croissance cristalline.

Nous avons ensuite effectué une simulation de la croissance épitaxiale particulièrement la homoépitaxie de GaAs sur GaAs et InAs sur InAs à partir d'un flux de As_2 , en utilisant la méthode de monte carlo cinétique et la caractérisation in situ (en temps réel) par la diffraction RHEED et le courant de photoémission.

Mots clés : Epitaxie par jets moléculaires, Monte-Carlo Cinétique, GaAs, InAs, reconstruction, $\beta_2(2 \times 4)$, RHEED, photoémission, Rugosité, Morphologie de la surface, taux de couverture.

ملخص

أخذت دراسة سطح زرنيخ الغاليوم (001) في العقود الثلاثة الأخيرة باعا و نطاقا واسعين ، و ذلك نظرا لأهميته، بوصفه الركيزة الأساسية لغالبية المركبات الإلكترونية. في هذا الإطار تركز دراستنا هذه، التي هي النمذجة والمحاكاة لنمو الوضع الفوقي. لهذا فإننا قدمنا في بداية عملنا هذا نموذج إعادة تشكيل (بناء) السطح $\beta_2(2 \times 4)$ لمركب زرنيخ الغاليوم (GaAs). هذا النموذج يتضمن جميع التفاصيل المجهرية للنمو الفوقي بواسطة القذف الجزيئي مثل إعادة التشكيل وشكل تركيبية البلورة (الكريستال) و ذلك بغية تحديد تشكل و خشونة السطح المتشكل بعد نمو البلورات.

بعد ذلك، أجرينا محاكاة للنمو الفوقي لزرنيخ الغاليوم على زرنيخ الغاليوم و لزرنيخ الأنديموم (InAs) على زرنيخ الأنديموم ، مع الإعتماد على تدفق من النوع As_2 ، مستخدمين في ذلك طريقة مونتني كارلو الحركية و التحليل في الزمن الحقيقي بواسطة انعكاس انحراف الإلكترونات عالية الطاقة والانبعاث الضوئي للتيار.

كلمات السر الرئيسية: نمو الوضع الفوقي، طريقة مونتني كارلو الحركية، زرنيخ الغاليوم ، زرنيخ الأنديموم ، إعادة التشكيل (البناء)، $\beta_2(2 \times 4)$ ، انعكاس انحراف الإلكترونات عالية الطاقة،الانبعاث الضوئي، الخشونة، تغطية السطح.

Table de matières

Table de Matières

Liste de figures et tableaux

Nomenclatures

Introduction générale.....	1
----------------------------	---

Chapitre 1: Techniques d'Epitaxie

1.1. L'Epitaxie	6
1.2. Différentes Techniques d'Epitaxie	8
1.2.1. Techniques d'Epitaxies en Phase Vapeur (VPE)	8
1.2.1.1. La Technique de Dépôt physique en phase vapeur (PVD ou bien PVE)	10
a). Principe de la Technique	10
b). Appareillage de la Technique	10
c). Avantages et inconvénients de la technique	11
1.2.1.2. Dépôt Chimique en Phase Vapeur (CVD)	12
a). Principe de la CVD	12
b). Description du phénomène de croissance en CVD conventionnelle	14
b.1). Les différentes étapes d'un processus CVD.....	14
b.2). Applications	16
b.3). Avantages et inconvénients de la technique CVD	17
b.4). Exemples	17
1.2.1.3. Caractéristiques des Techniques d'Epitaxies en Phase Vapeur (VPE)	18
1.2.2. Techniques d'Epitaxies en Phase Liquide (LPE)	19
1.2.2.1. Introduction	19
1.2.2.2. Principe de la technique	19
1.2.2.3. Appareillage de la technique	21
1.2.2.4. Les Différentes méthodes de croissance LPE.....	21
1.2.2.5. Avantages et inconvénients de la technique.....	22

Chapitre 2: Epitaxie par jets moléculaires

2.1. Définition de l'Epitaxie par Jets Moléculaires.....	25
2.2. Avantages de la Technique EJM	25
2.3. Historique de l'Epitaxie par Jets Moléculaires	26
2.4. Principe.....	27
2.5. Description Générale d'un Bâti MBE	29
2.5.1. Les chambres	29
a). Chambre d'introduction	30
b). Chambre de transfert	30
c). Chambre de croissance	30
2.5.2. Les cellules d'effusion	30
2.5.3. Spectromètres	31
a). Spectromètre de masse.....	31
b). Spectromètre à électrons Auger	31

2.6. Etapes de croissance.....	31
2.6.1. Première étape (préparation du substrat)	31
2.6.2. Deuxième étape (Transfert de substrat jusqu'à la chambre d'épitaxie)	31
2.6.3. Troisième étape (la croissance moléculaire)	32
2.7. Théorie de la croissance	32
2.7.1. Modes de croissance	32
2.7.1.1 Croissance 3D ou Volmer-Weber	33
2.7.1.2. Croissance 2D ou Frank-van Der Merwe	34
2.7.1.3. Croissance mixte ou Stranski-Krastanov	34
2.7.2. Processus atomistiques de croissance	34
2.8. Analyses et Caractérisations Associées à la Croissance par EJM	35
2.8.1. Diffraction RHEED	36
2.8.1.1. Définition.....	36
2.8.1.2. Principe de RHEED.....	37
2.8.1.3. Calcul de l'intensité RHEED.....	38
2.8.2. La spectroscopie Auger.....	40
2.8.3. La spectroscopie de photoélectrons excités par rayons X : l'XPS.....	41
2.8.4. Microscopie à Force Atomique (AFM)	42
2.8.5. Microscopie à Effet Tunnel (STM)	42
2.8.6. Caractérisation ex situ par Microscopie Electronique à Transmission (MET)	43
2.8.7. Autres techniques de caractérisation	43

Chapitre 3: Méthodologie - Techniques de Simulation implémentées dans L'Épitaxie par Jets Moléculaires

3.1. Pourquoi la simulation numérique ?	46
3.1.1. Avantages.....	46
3.1.2. Inconvénients	46
3.2. Classification des méthodes de simulation.....	46
3.3. Méthode Microscopiques	47
3.2.1. Méthodes ab initio : Théorie de la Fonctionnelle de la Densité (DFT)	47
3.2.2. Equation de Schrödinger.....	48
3.2.3. Approximation de Born-Oppenheimer	48
3.2.4. Méthode basée sur la fonction d'onde	49
3.2.4.1. Méthode Hartree-Fock.....	49
3.2.5. Méthode basée sur la densité électronique.....	50
3.2.5.1- Théorèmes de Hohenberg et Kohn.....	50
b)- Equations de Kohn et Sham.....	50
c)- Les principales approximations	51
c.1)- Approximation Locale de la Densité (LDA)	51
c.2)- Approximation du Gradient Généralisé (GGA)	52
c.3)- Approximation de pseudopotentiel	52
3.2.5. Limites des méthodes quantiques	53
3.3. Méthodes Mésoscopiques (Macroscopique)	53
3.3.1. La méthode de Dynamique Moléculaire.....	53
3.3.1.1. Principe de la Dynamique Moléculaire	53
3.3.1.2. Intégration des équations du mouvement.....	54
3.3.1.3. Limites de la Dynamique Moléculaire	55
3.3.2. Méthodes de Monte Carlo.....	55

3.3.2.1 Pourquoi le nom : Monte Carlo ?	55
3.3.2.2. Définition	55
3.3.2.3. Variantes des méthodes Monte Carlo	56
3.3.2.4. Avantages des techniques Monte Carlo	56
3.3.2.5 Algorithme de Monte Carlo Metropolis	57
a)- Principe	57
b)- Algorithme de temps de résidence	58
3.3.2.6. Méthode de Monte Carlo Cinétique (KMC)	58
3.3.2.6. Algorithme de Monte Carlo cinétique	59
3.3.3. Inconvénients de la méthode KMC	63
3.3.4. Théorie de la croissance	63
3.3.4.1. Observation chronologique d'un dépôt	63
a)- Dépôts	63
b)- Diffusion	63
c)- Nucléation	64
d)- Croissance	64

Chapitre 4: Simulation de l'MBE avec DLA et SOS

4.1. Modèles de la croissance des fractals	67
4.1.1. Modèle EDEN	67
4.1.2 Modèle de la Diffusion Limitée par Agrégation (DLA)	68
4.1.2.1. Diffusion Limitée par Agrégation en 2D	69
a). Algorithme de Simulation	69
b). Résultats de Simulation	70
4.1.2.1. Diffusion Limitée par Agrégations en 3D	74
4.1.2.2. Algorithme de Simulation	75
4.1.2.3. Résultats de Simulation	75
4.2 Modèle Solide sur solide (Solid – On – Solid)	80
4.2.1 Définition	80
4.2.2. Modélisation de l'Épitaxie par Jets Moléculaires avec le modèle standard de SOS	81
4.2.2.1. Description du modèle standard de SOS	81
4.2.2.2 Algorithme de Calcul	83
4.2.2.3. Résultats de Simulation	84
a). Technique de représentation graphique	84
b). Morphologie de la surface	84
c). Rugosité de la surface	88

Chapitre 5: Simulation de la croissance homoépitaxiale par jets moléculaires des composés III-V

5.1. Structure de GaAs (001)	92
5.1.1. Cristallographie de la structure zinc blende	92
5.1.2. Surface (001)	92
5.2. Reconstructions de la surface de GaAs(001)	93
5.2.1. Reconstructions de Surfaces	93
5.2.2. Principes de reconstruction de la surface des composés semiconducteurs	93
5.2.3. Différentes Reconstructions de GaAs	94
5.2.4. Reconstruction β_2 (2×4) de GaAs(001)	99
5.3. Description du modèle de Simulation	100

5.3.1. Structure zinc-blende de GaAs	100
5.3.2. Les mécanismes élémentaires	102
a)- Adsorption des Atomes Ga	103
b)- Diffusion des Atomes Ga	103
c)- Incorporation des Atomes Ga	103
d)- Adsorption des Atomes As ₂	103
e)- Désorption des Molécules As ₂	103
5.3.3. Calcul énergétique	104
5.3.3.1. Interactions des Atomes Ga dans le Modèle	104
5.3.3.2. Interactions des Atomes As dans le Modèle	107
5.3.4. Déroulement de la croissance	110
5.3.5. Paramètres de simulation	111
5.4. Résultats obtenus	113
5.4.1. Homoépitaxie standard de GaAs(001)	113
5.4.1.1. Morphologie de la surface	114
5.4.1.2. Rugosité de la surface GaAs(001)	116
5.4.2. Reconstruction de la surface Bêta2(2x4) de GaAs(001)	117
5.4.2.1. Principe du modèle de la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) de GaAs(001) ...	117
5.4.2.2. Morphologie de la surface épitaxiée	118
a). Cas d'un substrat parfait (lisse)	118
b). Cas d'un substrat de type Bêta2(2x4) (non parfait)	122
5.4.2.3. Calcul de la Rugosité de Surface	124
5.4.2.4. Taux de couverture	126

Chapitre 6: Simulation in situ par RHEED et photoémission

6.1. Calcul de l'intensité RHEED et du courant de photoémission	132
6.1.1. Calcul de l'intensité RHEED	132
6.1.2. Phénomène de photoémission	132
6.1.2.1. Principe de photoémission	132
6.1.2.2. Calcul du courant de photoémission	133
6.2. Simulation in situ par RHEED et photoémission	133
6.2.1. Analyse de la surface par RHEED	133
6.2.2. L'Effet des paramètres de la croissance sur RHEED	136
6.2.2.1. L'Effet de flux As ₂	136
6.2.2.2. L'Effet de flux Ga	136
6.2.2.3 L'Effet de la température	138
6.3. Simulation in situ par photoémission	139
6.3.1. L'Effet de flux de Ga	141
6.3.2. L'Effet de flux d'As	142
6.3.3. L'Effet du rapport des flux (Ga/As)	142
6.3.4. L'Effet de la température	143

Chapitre 7: Reconstruction apha2(2x4) de InAs(001)

7.1. Homoépitaxie InAs(001)	147
7.1.1. Structure de InAs(001)	147
7.1.2. Paramètres de simulation	148
7.2. Résultats de simulation	150

7.2.1. Morphologie de la surface	150
7.2.3. Taux de couverture	151
7.2.4. Caractérisation in situ par RHEED	153
7.2.4. Caractérisation in situ par Photoémission.....	155
Conclusion générale	157
Annexe.....	160
Références bibliographies	163

Liste des figures

Chapitre 1: Techniques d'Épitaxie

- Figure 1.1 : Couche épitaxiée sur un substrat.
Figure 1.2 : Exemples d'épitaxies observées dans les minéraux.
Figure 1.3 : Techniques d'épitaxie en phase vapeur
La figure 1.4 présente un exemple plus simple d'un bâti d'épitaxie en phase vapeur (VPE)
Figure 1.6 : Domaines d'application des couches minces obtenues par CVD
Figure 1.6 : Principe d'une installation CVD
Figure 1.7 : Principaux étapes du procédé de dépôt chimique en phase vapeur (CVD)
Figure 1.8 : Schéma de principe d'une croissance épitaxiale en phase liquide.
Figure 1.9 : Dispositif multi bain d'épitaxie en phase liquide
Figure 1.9 : Dispositif multi bain d'épitaxie en phase liquide

Chapitre 2: Épitaxie par jets moléculaires

- Figure 2.2 : Disposition des cellules à effusion et recouvrement des flux d'atomes près du substrat.
Figure 2.3 : Schéma de principe d'un bâti d'épitaxie MBE de type RIBER 2300.
Figure 2.4 : Photographies du réacteur d'épitaxie avec les différents moyens d'élaboration, de contrôle et de caractérisation
Figure 2.5 : Schématisation des divers modes de croissance.
Figure 2.6 : Processus de base de la croissance épitaxiale.
Figure 2.7 : Schéma de la configuration du RHEED
Figure 2.8 : Image RHEED
Figure 2.9 : Variation de l'intensité RHEED en fonction du taux de couverture
Figure 2.10 : Image AFM d'une boîte quantique.
Figure 2.11 : Dépôt de 0,2 monocouche de cobalt à 130 K sur une surface Au(788).

Chapitre 3: Méthodologie - Techniques de Simulation implémentées dans L'Épitaxie par Jets Moléculaires

- Figure 3.1 : Classification des méthodes de simulation
Figure 3.2 : Organigramme de l'algorithme KMC
Figure 3.3: Schéma de la chronologie d'un dépôt d'atomes

Chapitre 4: Simulation de l'MBE avec DLA et SOS

- Figure 4.1 : Construction d'un cluster d'Eden sur un treillis carré.
Figure 4.1 : Construction d'un cluster d'Eden sur un treillis carré.
Figure 4.3 : Croissance d'un faisceau de atomes.
Figure 4.4 : Schéma représentatif des différentes étapes de la croissance de type DLA en 3d
Figure 4.4 : Amas de particules obtenu par simulation de DLA en 3D
Figure 4.8 : Nombre de particules (masses) on fonction de rayon du cluster formé en 2D et 3D.
Figure 4.9 : Structure d'une surface suivant le modèle Solide sur Solide (SOS).
Figure 4.10 : Processus cinétiques de croissance dans le modèle SOS.
Figure 4.10 : Schéma représentatif de la barrière d'Ehrlich-Schwoebel.

- Figure 4.11 : Technique de la représentation graphique des résultats obtenus par le modèle SOS.
 Figure 4.12 : Morphologie d'une surface de (40x40 atomes) après la simulation de Monte Carlo Cinétique
 Figure 4.13 : Evolution de la morphologie d'une surface de (100x100 atomes) durant la simulation de Monte Carlo Cinétique à partir du modèle (SOS)
 Figure 4.14 : Variation de l'intensité RHEED et de la rugosité de la surface en fonction du nombre de couches monoatomiques.
 Figure 4.15 : Variation de l'intensité RHEED et de la rugosité de la surface en fonction du temps

Chapitre 5: Simulation de la croissance homoépitaxiale par jets moléculaires des composés III-V

- Figure 5.1: Structure zinc blende (GaAs)
 Figure 5.2: Surface (001)
 Figure 5.3: Structure des modèles de reconstruction de la surface c(4x4) de GaAs riche en As.
 Figure 5.4: Structure des modèle de reconstruction de la surface c(8x2) de GaAs.
 Figure 5.5: Structure des modèles de reconstruction de la surface (6x6) de GaAs.
 Figure 5.6: Structure de modèles de reconstruction de la surface (2x4) de GaAs riche en As.
 Figure 5.7 : Reconstruction de la surface β_2 (2 × 4) de GaAs(001).
 Figure 5.8 : Image STM d'une reconstruction β_2 (2 × 4) de GaAs(001).
 Figure 5.9 : La structure zinc-blende de GaAs.
 Figure 5.10 : Modèle de croissance à partir d'un flux de Ga et d'un flux d'As₂
 Figure 5.11 : Interactions PBCIs des atomes Ga.
 Figure 5.12 : Interactions Ga-Ga
 Figure 5.13 : Possibilités de multiples interactions PBCIs. .
 Figure 5.14 : Représentation des états d'atome As dans un dimère As₂.
 Figure 5.15 : Interaction As-As dans la direction $[\bar{1}10]$ (*inter-dimer interactions*).
 Figure 5.16 : Interaction As-As dans la direction $[110]$ (*in-phase dimer interactions*).
 Figure 5.17 : Interaction répulsive coulombien entre deux paires As₂ (*Screened Coulomb repulsion*).
 Figure 5.18 : Interaction As-As répulsive dans la direction $[110]$ (*anti-phase dimer interactions*)
 Figure 5.19 : Principe de calcul de la simulation de la croissance homoépitaxiale de GaAs(001) par la méthode de Monte Carlo Cinétique (KMC)
 Figure 5.20 : Technique de représentation graphique.
 Figure 5.21 : Cluster formé après la déposition de deux couches diatomiques.
 Figure 5.22: Substrat GaAs(001)
 Figure 5.23: Substrat GaAs(001) de type β_2 (2x4)
 Figure 5.24: Morphologie de la surface d'un cluster de (40x40) obtenue par la méthode de Monte Carlo Cinétique pour un substrat parfait.
 Figure 5.25: Morphologie de la surface d'un cluster de (40x40) obtenue par la méthode de Monte Carlo Cinétique pour un substrat de type Bêta2(2x4)
 Figure 5.26 : Variation de la rugosité de surface du GaAs (001) en fonction du temps ; obtenus par simulation de Monte Carlo Cinétique (substrat parfait et Bêta2(2x4).
 Figure 5.27 : Variation de la rugosité de surface du GaAs (001) en fonction du nombre de couches diatomiques ; obtenus par simulation de Monte Carlo Cinétique (substrat parfait et Bêta2(2x4).
 Figure 5.28 : Vues du plan de la reconstruction β_2 (2x4) de l'arséniure de gallium (0 0 1)[6].
 Figure 5.29 : Morphologie de la surface d'un cluster de (50x50) obtenu par la simulation de Monte Carlo Cinétique à une température de 580 °c (surface parfaite);
 Figure 5.30 : Schéma de la reconstruction de la surface de GaAs (0 0 1) pour un substrat de type Bêta2(2x4) ;

- Figure 5.31 : Morphologie de la surface d'un cluster de dimensions (40x40) obtenu par la simulation de Monte Carlo Cinétique à une température de 580 °c (surface Bêta2(2x4)); (Formation de deux couches diatomiques)
- Figure 5.32 : Morphologie de la surface d'un cluster de dimensions (40x40) obtenu par la simulation de Monte Carlo Cinétique à une température de 580 °c (surface Bêta2(2x4)); (Formation de 10 couches diatomiques)
- Figure 5.33 : Variation de la rugosité de la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) de GaAs (001) en fonction du nombre de couches diatomiques ; obtenus par simulation de Monte Carlo Cinétique(substrat parfait et Bêta2(2x4)).
- Figure 5.34 : Variation de la rugosité de la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) de GaAs (001) en fonction du temps ; obtenus par simulation de Monte Carlo Cinétique (substrat parfait et Bêta2(2x4)).
- Figure 5.35 : Variation du taux de couverture des couches diatomiques déposées de GaAs(001)en fonction du temps pour un substrat parfait(substrat 80x80)
- Figure 5.36 : Variation du taux de couverture des couches diatomiques déposées de GaAs(001) en fonction du temps pour un substrat de type Bêta2(2x4).
- Figure 5.37 : Variation du taux de couverture des couches diatomiques (Ga + As) déposées de GaAs(001) en fonction du temps
- Figure 5.38 : Variation du taux de couverture des couches monoatomiques (Ga) déposées de GaAs(001) en fonction du temps
- Figure 5.39 : Variation du taux de couverture des couches monoatomiques (As) déposées de GaAs(001) en fonction du temps

Chapitre 6: Simulation in situ par RHEED et photoémission

- Figure 6.1 : Variation de l'intensité RHEED et de la rugosité de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) en fonction du nombre de couches diatomiques pour des substrats de dimensions (40x40)
- Figure 6.2 : Variation de l'intensité RHEED et de la rugosité de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) en fonction du temps pour des substrats de dimensions (40x40)
- Figure.6.3: variation de l'intensité RHEED en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes de flux de As_2
- Figure.6.4: variation de l'intensité RHEED en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs de flux de Ga
- Figure 6.5 : Variation de l'intensité RHEED de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) en fonction du nombre de couches diatomiques déposées
- Figure.6.8: variation de l'intensité RHEED en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs de température, obtenue par simulation Monte Carlo Cinétique
- Figure.6.9: variation de l'intensité RHEED et de photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs de température, obtenue par simulation Monte Carlo Cinétique (flux d' $As_2=0.4$ MI/s , flux de Ga=0.4 MI/s)
- Figure.6.10: Variation de l'intensité RHEED et de photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs de température, obtenue par simulation Monte Carlo Cinétique

- Figure.6.11: Variation des oscillations de photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs de flux de Ga
- Figure.6.12: Variation des oscillations de photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs de flux d'As
- Figure.6.13: Variation des oscillations de photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs du rapport des flux (Ga/As)
- Figure.6.14: Variation des oscillations de photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs de températures.

Chapitre 7: Reconstruction β_2 (2x4) de InAs(001)

- Figure 7.1 : Reconstruction de la surface β_2 (2 × 4) de InAs(001).
- Figure 7.2 : Evolution de la morphologie de la surface épitaxiée d'un cluster de (100x100) de InAs obtenu à une température de 385 °c.
- Figure 7.3 : Morphologie de la surface épitaxiée d'un cluster de (100x100) de InAs obtenu à une température de 420 °c.
- Figure 7.4 : Variation du taux de couverture des couches diatomiques déposées d'InAs (001) en fonction du temps à une température de 385 °c
- Figure 7.5 : Variation du taux de couverture des couches monoatomiques déposées d'InAs (001) en fonction du temps à une température de 385 °c
- Figure 7.6: Variation des oscillations RHEED et de la rugosité de la surface en fonction du nombre de couches diatomiques de la reconstruction de la surface α_2 (2x4) de InAs (001)
- Figure.7.7: Variation des scillations RHEED et de la rugosité de la surface en fonction du temps de la reconstruction de la surface α_2 (2x4) de InAs (001) (substrat de (50x50))
- Figure 78: Variation des oscillations RHEED et de photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface α_2 (2x4) de InAs (001)
- Figure7.9: Variation des oscillations RHEED et de photoémission en fonction nombre de couches diatomiques de la reconstruction de la surface α_2 (2x4) de InAs (001)

Liste des tableaux

- Tableau 1.1 : Avantages et inconvénients de la technique CVD
- Tableau 1.2 : Caractéristiques des techniques d'épitaxie en phase vapeur (VPE)
- Tableau 3.1 : Classification des méthodes de simulation de la croissance épitaxiale
- Tableau 4.1 : dépendance du nombre de particules de la DLA en trois dimensions en fonction du rayon et la dimension.
- Tableau 5.1 : Paramètres gammes employés dans notre simulation de Monte Carlo cinétique
- Tableau 7.1 : Paramètres gammes employées dans la simulation de la croissance de InAs(001).

Nomenclature

Symbole	Désignation
T	Température
T_V	Température du creuset d'Arсениc
T_{III}	Température de Gallium
T_s	Température du substrat
f_j	Facteur de forme atomique
\vec{r}_j	Position de la $j^{\text{ème}}$ atome
k	Vecteur d'onde
θ_n	Taux de couverture
σ_h	Rugosité de la surface
h_i	Hauteur du site i
$\langle h(t) \rangle$	Hauteur moyenne
H	Opérateur hamiltonien
E	Energie totale
Ψ	Fonction d'onde
T_n	Energie cinétique des noyaux
V_{nn}	Energie potentielle d'interaction noyaux-noyaux
V_{ne}	Energie potentielle d'attraction entre les noyaux et les électrons
V_{ne}	Energie potentielle de répulsion entre les électrons
T_e	Energie cinétique des électrons
$\rho(r)$	Densité électronique
$V_{ext}(r)$	Potentiel externe

$n(r)$	Densité électronique
$n_0(r)$	Densité de la particule dans son état fondamental
$\Phi_j(r)$	Fonction d'ondes mono particule
$V_H(r)$	Potentiel de Hartree ou potentiel d'interaction coulombien classique
$V_{XC}(r)$	Potentiel d'échange corrélation
V_{XC}^{LDA}	Fonctionnelle d'échange-corrélation
V_{XC}^{GGA}	Fonctions d'échange-corrélation du gradient généralisé
m_i	Masse de l'atome i
\vec{F}_i	Vecteur force agissant sur l'atome i
r_i	Position de l'atome i
\vec{a}_i	Vecteur accélération de l'atome i
t	Temps
$\rho_{C \rightarrow C'}$	Probabilité de transition
$W_{C \rightarrow C'}$	Fréquence de transition
T	Intervalle du temps
ΔE	Energie de déplacement
k_B	Constante de Boltzmann
$\bar{\rho}(C)$	Probabilité à l'équilibre thermodynamique
E_c	Energie du système dans la configuration C
Z	Fonction de partition du système
u	Nombre aléatoire uniforme entre 0 et 1
D_f	Dimension fractal
R_{max}	Rayon Maximal du cluster formé
E_B	Barrière de potentiel pour la diffusion
E_D	Barrière de potentielle pour la désorption

E_S	barrière de potentiel pour un saut vers une position plus bas
E_N	énergie de liaison entre les atomes
D_f	Dimension fractale
n^*	Densité des molécules As_2^* par site
E_S^{As}	Energie de surface pour un atome As
E_S^{Ga}	Energie de surface pour un atome Ga
$E_{[\bar{1}10]}^{PBCI}$	Interaction PBCI pour les atomes Ga dans la direction $[\bar{1}10]$
$E_{[110]}^{PBCI}$	Interaction PBCI pour les atomes Ga dans la direction $[110]$
$E_{[\bar{1}10]}^{Ga-Ga}$	Interaction Ga – Ga dans la direction $[\bar{1}10]$
$E_{[110]}^{Ga-Ga}$	Interaction Ga – Ga dans la direction $[110]$
$E_{[\bar{1}10]}^{As_2-As_2 \text{ inter dimer}}$	Interaction entre deux dimères As_2 dans la direction $[\bar{1}10]$ (<i>inter dimer interactions</i>)
$E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ in phase dimer}}$	Interaction entre deux dimères As_2 dans la direction $[110]$ (<i>in-phase dimer interactions</i>)
$E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ repulsive coulombien}}$	Interaction répulsive coulombien entre deux dimères As_2 (<i>Screened Coulomb repulsions</i>)
$E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ anti phase dimer}}$	Interaction répulsive entre deux dimères As_2 dans la direction $[110]$ (<i>anti-phase dimer interactions</i>)
$E_{incorporation}^*$	Barrière d'incorporation dans la surface pour les molécules As_2^*
$E_{désorption}^*$	Barrière de désorption du réservoir pour les molécules As_2^*
ν	Fréquence de vibration
I_{RHEED}	Intensité RHEED
I_0	Courant photoémis associé à une surface stabilisée arsenic
I_{PH}	Courant photoémis en cours de croissance
i_n	Nombre d'atomes de Ga attribués à la couche n
E_S^{As}	Energie de surface pour un atome As
E_S^{In}	Energie de surface pour un atome In

$E_{[\bar{1}10]}^{PBCI}$	Interaction PBCI pour les atomes In dans la direction $[\bar{1}10]$
$E_{[110]}^{PBCI}$	Interaction PBCI pour les atomes In dans la direction $[110]$
$E_{[\bar{1}10]}^{In-In}$	Interaction In – In dans la direction $[\bar{1}10]$
$E_{[110]}^{In-In}$	Interaction In – In dans la direction $[110]$
$E_{[\bar{1}10]}^{As_2-As_2 \text{ inter dimer}}$	Interaction entre deux dimères As_2 dans la direction $[\bar{1}10]$ (<i>inter dimer interactions</i>)
$E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ in phase dimer}}$	Interaction entre deux dimères As_2 dans la direction $[110]$ (<i>in-phase dimer interactions</i>)
$E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ repulsive coulombien}}$	Interaction répulsive coulombien entre deux dimères As_2 (<i>Screened Coulomb repulsions</i>)
$E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ anti phase dimer}}$	Interaction répulsive entre deux dimères As_2 dans la direction $[110]$ (<i>anti-phase dimer interactions</i>)
$E_{incorporation}^*$	Barrière d'incorporation dans la surface pour les molécules As_2^*
$E_{désorption}^*$	Barrière de désorption du réservoir pour les molécules As_2^*

Introduction Générale

Introduction générale

La recherche en physique des semiconducteurs et les développements qu'elle induit en matière de composants électroniques et microélectroniques incite à fabriquer des objets de taille micrométrique voir nanométrique et avec une excellente qualité. Pour cela, plusieurs techniques d'élaboration ont été mis en jeu afin de réaliser et croître des nano-objets de haute qualité, citons par exemple les techniques d'épitaxie ; en phase vapeur (physique et chimique), phase liquide, jets moléculaires,

Parmi ces techniques de croissance épitaxiale, et à part quelques inconvénients mineurs, l'épitaxie par jets moléculaires (ou MBE : Molecular Beam Epitaxy en anglais), observé à la première fois par Günther en 1958 sur InAs et InSb, présente la meilleur technologie qui permet d'élaborer des hétérostructures composées d'empilements de très faible épaisseurs (jusqu'à une fraction de monocouche atomique) de matériaux différents sous une forme cristalline pratiquement parfaite et de couches minces monocristallines très récente.

L'épitaxie MBE consiste à faire croître sur un substrat une couche monocristalline par interaction des jets moléculaires (ou atomiques) des éléments composant le cristal, avec la surface du substrat. L'épitaxie MBE présente plusieurs avantages, tels que : faible vitesse de croissance (de l'ordre de 1 micromètre par heure) et la possibilité d'arrêter rapidement les jets, ce qui permette le contrôle précis de l'épaisseur des couches épitaxiées et des interfaces. Par ailleurs, l'énorme avantage de l'MBE est la possibilité de suivi en temps (in situ) réel de la croissance grâce aux méthodes de caractérisation avec la technique de diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante RHEED : (en anglais reflexion High Energy Electron Diffraction). Cependant ces techniques d'analyse (Auger, XPS ,RHEED ...) permettent à l'étude des mécanismes mis en jeu, le contrôle des processus de croissance et la reconstruction de la surface. Compte – tenu de ces aspects, très intéressants, des efforts considérables ont été effectués dans ces dernières années afin de mieux comprendre les principaux processus microscopiques impliqués dans la croissance épitaxiale par jets moléculaires des composés III–V.

Le fil directeur de cette thèse s'inscrit dans ce cadre. où nous nous intéressons au stade de la modélisation à l'échelle atomique de la croissance homoépitaxiale par jets moléculaires et la caractérisation in situ par RHEED et photoémission des composées III–V, particulièrement le GaAs.

Le GaAs qui a vu ces premières utilisations à partir de 1952, a fait l'intérêt de plusieurs études expérimentales et théoriques depuis quelques années car il fait l'élément de base dans la structure de la plus part des composants électroniques multicouches.

Nous présentons les modèles d'homoépitaxie de GaAs(001). Ces modèles ont pour objet de simuler à la fois la croissance homoépitaxiale et la reconstruction de la surface β_2 (2×4) de GaAs(001) produits par jets moléculaires. Contrairement aux autres modèles, le modèle de la reconstruction de la surface β_2 (2×4) de GaAs(001) (proposé en détails par M.Itoh) inclus tous les détails microscopiques tels que : Les processus atomistique de la croissance (mode 2D), la structure zinc blende du cristal, et les différentes propriétés cinétiques de la croissance,

La quantification et l'énumération de ces processus tels que la déposition, la diffusion, absorption et la désorption des atomes Ga et As sur le substrat et la détermination des paramètres définissant la forme de cluster ; nécessitent une modélisation mathématique du comportement de la structure formée et une simulation qui s'effectueront avec la technique de Monte Carlo Cinétique.

L'utilisation de notre code de calcul, nous permettra d'étendre le modèle de la reconstruction de la surface β_2 (2×4) de GaAs(001) et de traiter d'autres types de substrat tel que $\beta_2(2 \times 4)$, et de voir l'application de notre programme de calcul sur la reconstruction $\alpha_2(2 \times 4)$ d'InAs.

Dans notre approche, les principes de base du modèle sont projetés pour un substrat restructif (non parfait) de type $\beta_2(2 \times 4)$ et mais avec quelques modification.

Ce manuscrit est organisé de manière suivante :

Une introduction générale.

Chapitre 1, après un bref historique sur la technique d'épitaxie, envisage les différentes techniques de croissance épitaxiale; épitaxie en phase vapeur EPV (physique et chimique) et épitaxie en phase liquide EPL, le principe, l'appareillage, l'avantage et l'inconvénient de chaque technique.

Chapitre 2 est consacré à la technique de croissance épitaxiale par jets moléculaires (MBE). Il dresse tout d'abord le principe de base de la technique MBE et les avantages par rapport aux autres techniques classiques, et se termine par un rappel sur les différentes méthodes d'analyse (in situ et ex situ).

Chapitre 3 expose les fondements théoriques des techniques de à l'échelle microscopique, en décrivant le principe de calcul de la méthode ab initio (DFT), ensuite il présentera l'art de cacul des méthodes mésoscopiques : la Dynamique Moléculaire et méthode de Monte Carlo Cinétique (KMC : Kinetic Monte Carlo), qui présente le principe de base de notre modélisation.

Chapitre 4 traite les différents modèles décrivant la croissance cristalline par jets moléculaires (Modèle EDEN, Diffusion limitée par agrégation (DLA) en deux et trois dimensions, Solide sur solide (Solid On Solid)) . on a présenté le principe de base de chaque modèle, ainsi que les résultats obtenus (morphologie de la surface).

Chapitre 5 constitue le cœur de cette thèse. Il décrit en détail le modèle de la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) de GaAs(001) proposé par M.Itoh. Ce modèle a été appliqué pour modéliser la croissance de GaAs(001) pour un substrat parfait (lisse : non restructif). Dans notre approche, les principes de base du modèle sont projetés pour un substrat restructif (non parfait) de type Bêta2(2x4) dans un premier lieu afin de décrire la statistique globale des îlots (tranches formées), et de déterminer la morphologie, le taux de couverture et la rugosité de la surface formée après une croissance cristalline.

Dans le **chapitre 6**, une caractérisation (simulation) in situ (en temps réel) avec la technique de diffraction RHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction) et la photoémission a été effectuée afin d'examiner la validité des résultats trouvés (morphologie de la surface).

Dans le **chapitre 7** et, pour évaluer le modèle de la reconstruction de la de la surface Bêta2(2x4) de GaAs(001), nous avons simulé la homoépitaxie de InAs(001) qui est défini par une reconstruction de la surface alpha2(2x4) dans les mêmes conditions de taille et des flux avec celles de GaAs. Nous examinons plus en détail la validité du modèle sur l'InAs en se basant sur une caractérisation in situ par RHEED et photoémission.

Finalement nous clôturons notre thèse par une conclusion générale.

Chapitre 1

Techniques d'Epitaxie

Techniques d'épitaxie

1.1 L'Épitaxie

La définition du mot « épitaxie » est variable mais généralement elle est définie comme la formation d'un cristal unique (couche épitaxiée) sur un substrat monocristallin[1] Figure 1.1; elle est utilisée dans la formation des structures en couches minces de haute qualité ainsi que la fabrication des composants électroniques[1,2].

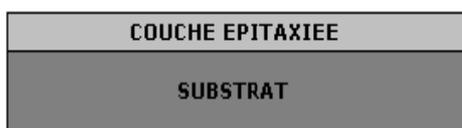


Figure 1.1 : Couche épitaxiée sur un substrat.

Le terme générique « épitaxie » est un mot composé de deux mots Grec [3]:

« Epi» (Ἐπι) qui signifie sur

« Taxie» (τάξις) qui signifie arrangement

Le concept d'épitaxie a été défini et établi expérimentalement par ROYER en 1928 afin de décrire le phénomène de croissance cristalline avec certaines orientations cristallographiques sur un cristal de faible indice de maille, appelé substrat. Cette opération de croissance exige que les propriétés cristallines sont les mêmes pour le substrat et le matériau déposé[1-2,4].

Ce phénomène a été observé pour la première fois dans les minéraux; la figure 1.2 montre quelques exemples de croissance épitaxiale. ROYER a utilisé les surfaces de clivage de cristaux minéraux comme substrat (cristaux d'accueil) puis il a examiné la relation entre les cristaux du substrat et les cristaux ioniques arrivant (déposant).

Il a remarqué l'existence des couches épitaxiales sous forme gouttelettes liquides, et enfin il a calculé la proportion du matériau déposé sur le substrat (taux de couverture)[5].

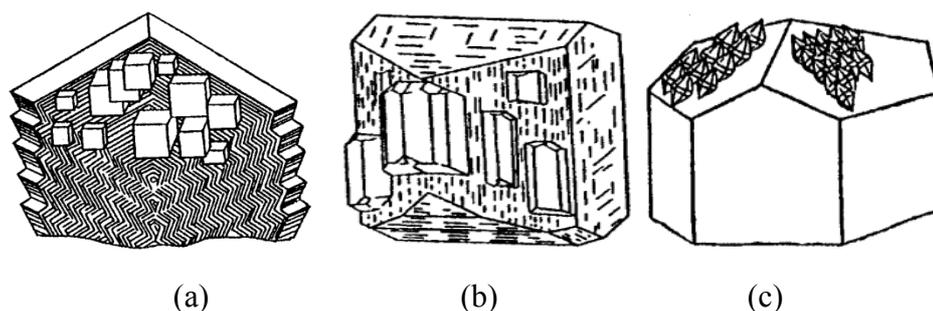


Figure 1.2 : Exemples d'épitaxies observées dans les minéraux.
 (a) onmarcasite Pyrite; (b) de quartz sur calcite; (c) albite sur orthose[5].

Actuellement la croissance épitaxiale est devenue largement utilisé dans les industries qui exigent des jonctions PN où cela fait des dispositifs de semi-conducteur.

Donc on peut dire que la croissance épitaxiale est l'opération consistant d'une croissance d'un cristal de semi-conducteur ou d'un autre matériau en déposant de très fines couches de matériaux à la surface d'un matériau cristallin appelé substrat, dont l'orientation et les autres propriétés cristallines sont les mêmes. La croissance épitaxiale exige que les propriétés cristallines (l'orientation, structure cristalline, paramètre de maille ...) doivent être les mêmes pour le substrat et le matériau déposé[6].

La couche épitaxiale peut être dopée ou non dopée ; on parlera dans le cas où :

- Les matériaux (substrat et matériau déposé) sont identiques c.à.d. le même matériau (homoépitaxie) : par exemple l'épitaxie d'une couche n^- sur une couche n^+ , impliquée dans la jonction collecteur-base d'un transistor bipolaire permettent une meilleure tenue en tension de cette jonction polarisée en inverse [7].
- Les matériaux sont différents (hétéroépitaxie) : par exemple la croissance d'une couche de $Ga_x Al_{1-x} As$ sur une couche de GaAs ou la croissance SiGe/Si, cette structure permet la fabrication des super-réseaux ou d'une couche à forte mobilité destinées aux transistors HEMT (High Electron Mobility Transistor) [1,3,6,7].

L'hétéroépitaxie a une grande importance technologique car elle est l'outil de base de fabrication des nanostructures telles que les puits, lignes ou boîtes quantiques.

Pour que ce type de croissance soit possible ; Il est trivial d'envisager une relation d'épitaxie entre les deux matériaux de même structure, avec un désaccord paramétrique faible (c.à.d. un faible désaccord de maille ne dépasse pas dans les mauvaises conditions 7% au maximum). La situation est par contre beaucoup moins évidente dans le cas de matériaux de structures cristallographiques volumiques différentes[7,8].

Lorsque le désaccord paramétrique n'est pas nul et que le cristal doit se déformer pour être accommodé sur son substrat, la contrainte imposée par le substrat peut conduire à la croissance de phases allotropiques ou des structures stables mais déformées. Les déformations peuvent être facilement calculées lorsque le matériau déposé adopte le paramètre du support (substrat). On dit alors qu'il y a une épitaxie cohérente.

Une présentation de toutes les techniques de croissance épitaxiale dépasserait le cadre de notre travail car il existe plusieurs variantes pour chaque technique. Nous nous bornerons donc à présenter les principes techniques de croissance[1-5].

On considère que l'écart de paramètre de maille doit être inférieur à 10^{-3} ' $\Delta a/a \leq 10^{-3}$ [7]

1.2. Différentes Techniques d'Epitaxie

Il existe aujourd'hui un grand nombre de techniques de croissance cristalline avec plusieurs variantes pour réaliser les films minces nécessaires à l'électronique, à l'optoélectronique, à l'optique, voire à la métallurgie[1-3]

Un procédé de croissance cristalline (épitaxie) doit satisfaire certaines conditions techniques minimales, dont : une vitesse effective de dépôt élevée, une homogénéité de la composition et des caractéristiques appropriées du matériau épitaxié.

La synthèse de couches minces consiste toujours en un dépôt d'un matériau précurseur sur un substrat . L'état physique sous lequel se trouve le précurseur et la manière dont il est transféré sur le substrat permettent de différencier les divers procédés[9].

Pour la plupart des matériaux connus, il existe déjà plusieurs méthodes de croissance souvent concurrentes, techniquement appropriées et économiquement viables, telles les techniques MBE, LPE, VPE, CVD, [1].

1.2.1. Techniques d'Epitaxies en Phase Vapeur (VPE)

Les procédés de croissance en phase vapeur (en anglais VPE : vapor Phase Epitaxy) regroupent différentes techniques permettant de réaliser un revêtement sous pression réduite, à relativement basse température (50 à 500°C) et des pressions de l'ordre de 10^{-5} bar[2,4,5].

L'épitaxie en phase vapeur est une technique de croissance où les espèces réactives sont transportées sous forme gazeuse à la surface d'un substrat. Cette technique permet d'obtenir des couches homogènes et de contrôler la croissance ainsi que le dopage de type n et p pour les semi-conducteurs[10].

L'évaporation joue un rôle très important dans la croissance cristalline. Dans ce type de croissance, l'espèce à cristalliser parvient dans la zone de condensation, sous forme gazeuse ; soit élémentaire ou bien composée

Cette technique consiste à chauffer le matériau que l'on veut déposer. Les atomes du matériau à évaporer reçoivent de l'énergie calorifique. Le matériau évaporé est alors recueilli par condensation sur le substrat à recouvrir. Il existe beaucoup de variantes améliorant cette technique de croissance épitaxiale (VPE) dont elles se différencient par le type de chauffage du matériau. ; Pour cela on peut citer :

- Evaporation par effet joule (résistance)
- Evaporation par bombardement d'électrons
- Evaporation par arc électrique
- Evaporation par induction
- Evaporation assistée par faisceau d'ions (Ion Beam Assited Deposition)

Donc on peut classer les techniques de déposition en phase vapeur en deux grandes catégories, selon Chapman et Anderson ; il existe deux grandes familles ; dépôt physique en phase vapeur (Physical Vapor Deposition ou bien Vapor Phase Epitaxy) ; générer par des processus physiques, et l'épitaxie par déposition chimique (Chemical Vapor Deposition) ; générer par des processus chimiques[1,2,11].

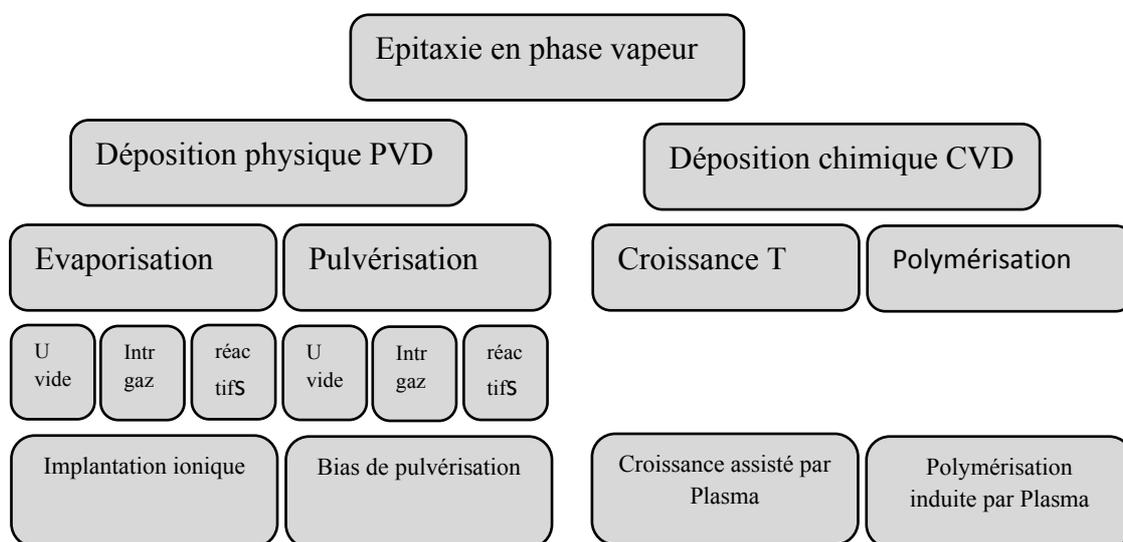


Figure 1.3 : Techniques d'épitaxie en phase vapeur

1.2.1.1. La Technique de Déposition physique en phase vapeur (PVD ou bien PVE)

a). Principe de la Technique

Cette technique consiste à faire croître le cristal à partir d'une source gazeuse contenant des éléments dopants. le substrat est de 1 à 1000 μm [13].

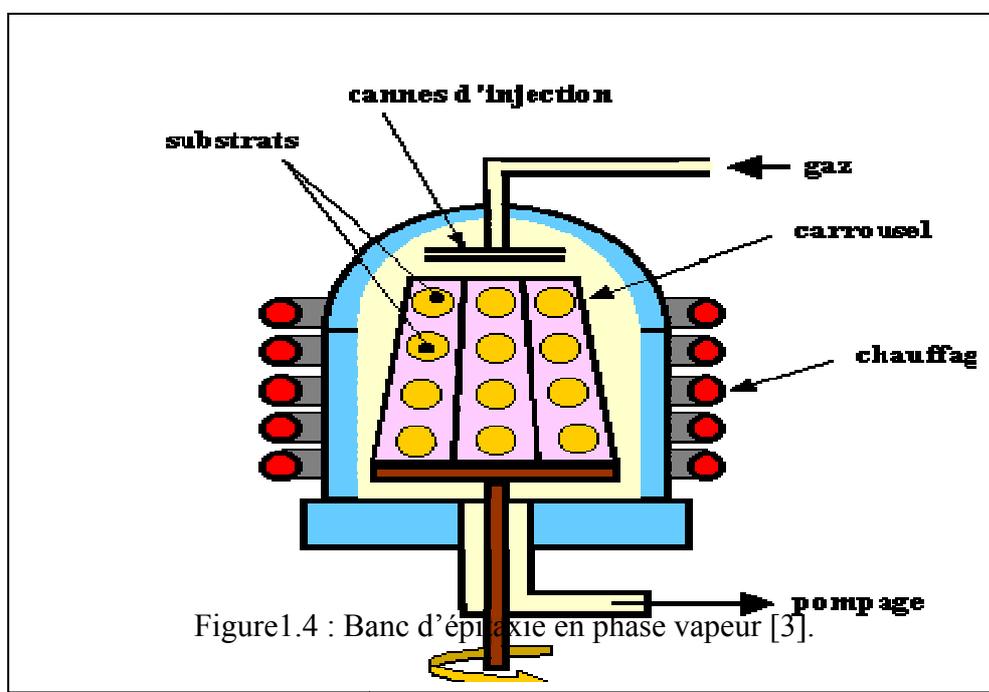
Dans le réacteur, les gaz se dissocient pour fournir par exemple le silicium qui se dépose à la surface des plaquettes chauffées afin d'assurer une bonne croissance [14].

Dans la technique VPE il faudra contrôler les équilibres de composition de la source. Les vitesses les plus courantes se situent entre 10 et 25 $\mu\text{m}/\text{h}$ [7].

b). Appareillage de la Technique :

A fin d'obtenir des couches épitaxiales avec un minimum de défauts cristallins, on utilise le réacteur présenté sur la figure 1.4.

Des précautions habituelles relatives à cette technologie de croissance doivent être prise en considération ; l'alimentation en hydrogène est purifiée par un filtre, le tube et les port-échantillons sont en quartz synthétique de haute pureté, on introduit le substrat de préférence après le réglage de la température du four de façons a réduire son temps de recuit .Le décapage in situ s'effectue en traitant l'échantillon [15,16].



La figure 1.4 présente un exemple plus simple d'un bâti d'épitaxie en phase vapeur [15]

c). Avantages et inconvénients de la technique

Les croissances cristallines obtenues par la méthode d'épitaxie par déposition physique présente plusieurs avantages [15]; tels que :

- Croissance de structures de petite taille.
- Faible épaisseur.
- Possibilité de réaliser des croissances de types Homoépitaxie ; par exemple Si sur Si et Hétéro épitaxie (par exemple le GaAs sur le Si).
- Les matériaux épitaxiés par cette technique ont de bonnes propriétés électriques, puisqu'on obtient des concentrations résiduelles en impuretés aussi faibles que 10^{13} cm^{-3} , mais la reproductibilité des résultats s'avère plus délicate [1-4,15].

D'autre part les méthodes d'élaboration de monocristaux en phase vapeur sont plus rarement utilisées pour faire croître des monocristaux massifs, car elles sont relativement lentes. Elles ont la réputation de ne conduire qu'à des cristaux de petites tailles et moins parfaits du point de vue chimique et structural [17].

Dans le cas des composants à basse pression de vapeur, le déroulement peut inclure une réaction chimique réversible ou irréversible [18].

L'idée de base est de produire des espèces instables qui se condenseront spontanément sur toute surface rencontrée: le substrat mais aussi les parois du réacteur. Les précurseurs sont produits en phase gazeuse

Il existe beaucoup de variantes améliorant cette technique, il est possible d'utiliser des substrats plus grands tout en gardant une bonne uniformité. L'évaporation permet d'atteindre des vitesses de croissance plus importantes. , il est plus difficile de contrôler la composition des couches, alors que cette technique tend à produire des flux de composés plus durables et ajustables par le choix de la source[19,20].

Ces méthodes ont été appliquées à la croissance d'oxydes à fortes permittivités. La plupart sont particulièrement sensibles aux défauts engendrés par la pulvérisation: celle-ci tend à augmenter de façon inacceptable la densité d'états d'interface.

Par exemple, la fabrication de mémoires implique un dépôt dans des tranchées dont le rapport d'aspect peut atteindre 10, voire 100, ce qui nécessite à la fois excellente uniformité et anisotropie optimale[15,19,20].

1.2.1.2. Dépôt Chimique en Phase Vapeur (CVD) :

a). Principe de la CVD [21]

Mis au point vers 1968, le CVD est un procédé fondamentalement basé sur une série de réactions chimiques dans une enceinte placée à haute température de l'ordre de 950 à 1000 °C.

Il se différencie des précédents par l'intervention de réactions chimiques.

Le procédé consiste à réaliser un dépôt sur un substrat (quelques nanomètres à quelques micromètres d'épaisseurs) à partir de composés volatils. Ces composés volatils contiennent un ou plusieurs éléments nécessaires à la formation du revêtement. Ainsi, le mélange de ces gaz appelés précurseurs peut se faire dans l'enceinte réactionnelle même ou bien être réalisé avant d'être injecté dans cette même enceinte.

D'une manière générale, la CVD consiste à décomposer un matériau composé à l'état gazeux (AX) en deux matériaux dont le premier est un solide et le deuxième se porte comme un gaz (produit gazeux de la réaction) ; suivant la réaction chimique suivant :



Il est relativement facile de comprendre qu'il faudra apporter de l'énergie pour que cette réaction chimique puisse se produire. Dans le cas de la CVD conventionnelle, l'ensemble de l'énergie est apporté sous forme de chaleur. Le substrat est chauffé jusqu'à des températures de l'ordre de 800 à 1300°C. De plus, des températures élevées favorisent une bonne adhésion du revêtement à la surface du substrat car à ces températures, les phénomènes de diffusion ne sont plus négligeables.

Il existe deux grands types de réacteurs :

les réacteurs à murs froids où seul le substrat est chauffé, et les réacteurs à murs chauds où l'ensemble de l'enceinte est chauffé. Les réacteurs à murs chauds présentent des gradients thermiques moins élevés que ceux présents dans les réacteurs à murs froids. Ces forts gradients thermiques peuvent engendrer des circulations du mélange gazeux dues à la convection naturelle ainsi qu'à des effets de thermo-diffusion comme l'effet Soret (les espèces gazeuses les plus lourdes ont tendance à migrer vers les zones froides du réacteur) qui sont à l'origine des problèmes de reproductibilité.

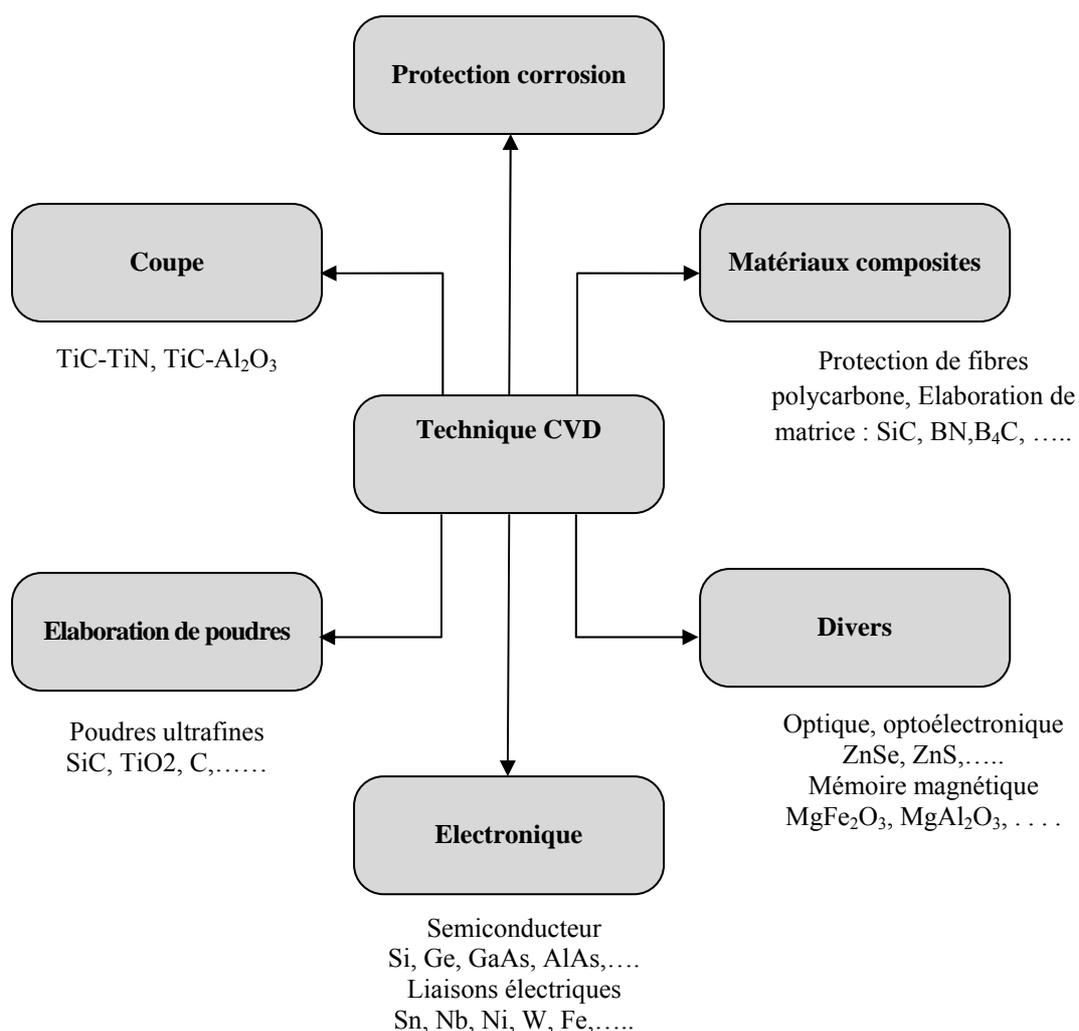


Figure 1.6 : Domaines d'application des couches minces obtenues par CVD

Le dispositif se compose de la façon suivante :

un générateur de gaz porteurs (1), une centrale de régulation des gaz comprenant un mélangeur (2), des débitmètres volumiques ou massiques, et un système de purification des gaz, forme de tamis moléculaires et d'assécheurs chimiques ;

- Un enceinte de dépôt à parois chaudes en acier réfractaire inoxydable (3).
- Un dispositif de chauffage régulé en plusieurs zones afin d'obtenir un contrôle et une homogénéité parfaite en température dans le réacteur du traitement (4).
- Un ensemble de distribution des gaz qui permet un écoulement laminaire sur la totalité des surfaces à revêtir (5).

- Un système de neutralisation des gaz corrosifs, ces produits pour la plupart chlorés sont issus des réactions chimiques. Ces gaz polluants sont piégés par des absorbants se trouvant à la sortie de l'installation (6)

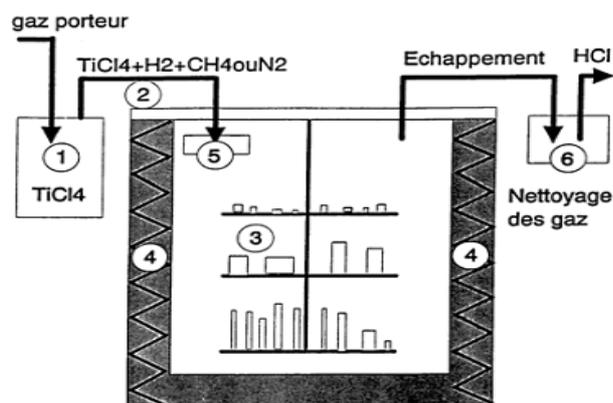


Figure 1.6 : Principe d'une installation CVD[21]

b). Description du phénomène de croissance en CVD conventionnelle

b.1). Les différentes étapes d'un processus CVD

Le dépôt chimique en phase vapeur de films minces fait appel nécessairement à des processus de transport de matière couplés à des réactions de surface présentées ci-dessous. Figure 1.7[21,22].

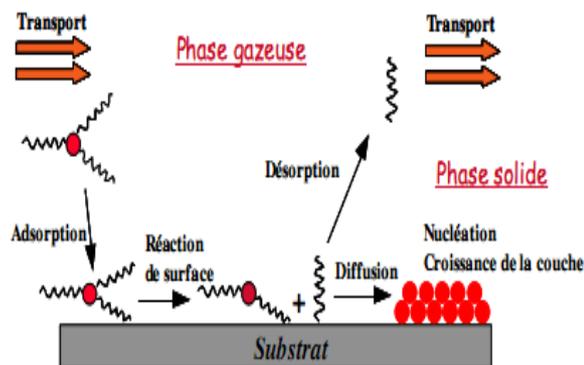


Figure 1.7 : Principaux étapes du procédé de dépôt chimique en phase vapeur[22]

Ce processus de déposition peut être décomposé en cinq étapes [1-4,21:

- Transport des réactifs vers la zone réactionnelle,
- Réactions en phase gazeuse conduisant à la formation d'espèces réactives et de produits secondaires,
- Transport des espèces réactives vers la surface en croissance,
- Réactions de surfaces (adsorption, diffusion en surface vers les sites de croissance, incorporation des constituants dans le film en croissance, désorption des produits résiduels de réactions de surface),
- Transport des produits résiduels vers la sortie du réacteur.

Les étapes du processus CVD décrites ci-dessus peuvent être regroupées en trois séquences majeures :

- l'introduction des précurseurs dans le réacteur,
- le transport des précurseurs vers la surface du substrat,
- les réactions de surface des réactifs.

Les étapes individuelles du procédé CVD sont indiquées sur la Figure 1.6 et résumées dans la séquence de dépôt suivante[22] :

1. transport des réactifs à proximité du substrat ;
2. diffusion des réactifs vers la surface du substrat ;
3. adsorption des réactifs sur la surface ;
4. réaction chimique sur la surface ;
5. migration sur la surface pour former des germes stables ;
6. désorption des produits de réaction ;
7. diffusion des produits volatils loin de la surface ;
8. transport des produits volatils hors de la zone de dépôt ;
9. réactions en phase gazeuse (sous certaines conditions).

Chacune des étapes apparaît consécutivement. La plus lente sera l'étape limitante du mécanisme de dépôt. Trois régimes principaux de fonctionnement d'un procédé CVD sont ainsi mis en évidence :

- Mécanisme contrôlé par le transport : l'étape d'alimentation en réactifs ou d'élimination des produits de réaction est l'étape la plus lente ;
- Mécanisme contrôlé par la diffusion à travers la couche limite : l'étape lente correspond à l'étape 2 ou 7 ;

- Mécanisme contrôlé par la cinétique chimique: l'étape limitante est un processus de surface (étape 3, 4, 5 ou 6).

Le régime de contrôle cinétique est le plus propice à l'obtention de dépôts uniformes. Les principaux paramètres sur lesquels on peut agir pour optimiser le procédé sont : i) la géométrie du four, ii) la nature chimique du précurseur gazeux, v) le débit des gaz (réactifs et dilution), vi) la pression totale, vii) la température des parois du four et du substrat. Le régime de contrôle chimique est généralement à basse température et pression pour des débits de gaz importants[21,22].

La vitesse de croissance sera donc limitée par l'étape la plus lente. En général, l'introduction des précurseurs dans le réacteur est réalisée en quantité suffisante ; la croissance du dépôt est donc limitée soit par la diffusion des espèces réactives à la surface soit par la ou les réactions de surface[7].

Il existe beaucoup de variantes améliorant la technique de croissance par déposition chimique [1-4,7];

- Réacteur opérant sous pression atmosphérique : APCVD ; Atmospheric Pressure Chemical Vapor Deposition
- Réacteur opérant sous pression réduite : LPCVD ; Low Pressure Chemical Vapor Deposition
- Réacteur opérant sous pression ultra vide : UHVCVD ; Ultra High Vacuum Pressure Chemical Vapor Deposition
- Procédés assistés par plasma : PACVD ; Plasma Assisted CVD
- Réacteur chimique en phase vapeur couplé par plasma : PECVD ; Plasma Enhanced CVD.
- Réacteur opérant des précurseurs organométallique : MOCVD ; Metal Organic CVD

b.2). Applications

La technique CVD est largement utilisée pour la réalisation de dépôts car elle est techniquement facile à mettre en œuvre. Elle permet le dépôt de tous les types de matériaux, sous forme polycristalline ou monocristalline (croissance épitaxiale). ; on peut citer par exemple [4]:

- Microélectronique industrielle : films diélectriques, conducteurs,
- Semiconducteur lasers : GaAs/(Ga,Al)As et InP/(In,Ga)As
- Fibre optique de télécommunications.
- Cellules solaires : particulièrement de type Si et de GaAs.

- Revêtements réduisant le frottement pour une utilisation dans de glissement et de contacts de roulement.
- Résistance à l'usure au frottement ou de corrosion.
- Revêtements résistant à la corrosion : Ta , Nb, Cr,...
- Films minces destinés à de nouvelles applications en catalyse, en optique et dans le développement des capteurs.

b.3). Avantages et inconvénients de la technique CVD

Le tableau 1.1 résume tous les avantages et les inconvénients de la technique CVD[21].

Avantages	Inconvénients
Technique relativement facile à mettre en œuvre	Le substrat doit être chauffé
Grande vitesse de dépôt	Toxicité et agressivité des précurseurs
Contrôle de la stœchiométrie, de la morphologie et de la structure cristalline des dépôts	Contamination en carbone (MOCVD)
Recouvrement uniforme de supports de grandes dimensions, de formes complexes et creuses	Prix élevé de certains précurseurs de pureté satisfaisante
Alimentation en continu sans interruption du vide dans l'enceinte de réaction	La CVD est une technique de dépôt onéreuse

Tableau 1.1 : Avantages et inconvénients de la technique CVD[21]

b.4). Exemples

Un exemple typique de fabrication par épitaxie en phase vapeur est la fabrication de couches minces de silicium. Le silicium est mis en vapeur sous forme de silane. Au contact du substrat, le Si se dépose et l'hydrogène reste dans la vapeur. On peut facilement faire croître des semi-conducteurs dopés par cette technique en ajoutant les vapeurs adéquates.

Pour les composés Semi -Conducteurs III-V, on utilise des vapeurs organiques (ou, plus précisément métallo-organiques). On parle alors de la technique MOCVD « Metal Organic Chemical Vapor Deposition»

Le problème majeur rencontré au cours de l'hétéroépitaxie est celui du désaccord de maille entre le substrat et la couche. D'après quelques études ; il est de l'ordre de 20 %. Ceci induit des contraintes intrinsèques lors de la croissance jusqu'à une certaine épaisseur ; appelée épaisseur critique pour laquelle les couches sont dites pseudo-morphiques. Passée cette profondeur limite, la couche relaxe une partie ou la totalité de ses contraintes en formant des dislocations au niveau de l'interface.

Un autre inconvénient apparaît au cours de l'épitaxie est celui de la différence de coefficient de dilatation thermique des deux matériaux qui est à l'origine à d'autres contraintes dites Thermo-élastiques.

1.2.1.3. Caractéristiques des Techniques d'Épitaxies en Phase Vapeur (VPE)

On peut schématiser les différentes caractéristiques des techniques d'épitaxie en phase vapeur selon le tableau suivant

	Epitaxie	PVD	CVD
Conditions thermodynamiques	Ultra vide (ou peu) de chauffage du substrat	Vide poussé pas (ou peu) de chauffage du substrat	De l'ultra vide à la pression atmosphérique, substrat à haute température
Morphologie du matériau	Monocristallin	Monocristallin à polycristallin	Polycristallin ou amorphe
Contrôle d'épaisseur	Excellent	Bon	Correct
Uniformité d'épaisseur	Excellente	Moyenne (possibilité de non uniformité locale si reliefs)	Bonne (uniformité locale mais possibilité de non – uniformité à l'échelle de la plaque)
Qualité de la couche	Excellente a priori (sensibilité à la qualité du substrat)	Bonne (possibilité de dommages si pulvérisation , possibilité de mauvaise composition si évaporation)	Correcte (possibilité de contamination par sous-produits de réaction)
Contrôle en cours de croissance	Oui	Oui	Non
Cout d'investissement	Très élevé	Elevé	Correct
Cout de fonctionnement	Elevé (mise en œuvre contraignante , faible rendement)	Correct (faible rendement mais budget thermique modeste)	Correct(fort rendement mais budget thermique important)

Tableau1.2 : Caractéristiques des techniques d'épitaxie en phase vapeur (VPE)[20]

1.2.2. Techniques d'Épitaxies en Phase Liquide (LPE)

1.2.2.1. Introduction

L'Épitaxie en Phase Liquide consiste à faire croître un cristal par la mise en contact d'un substrat et d'une source liquide d'espèces réactive [7] sous une pression atmosphérique normale, qui conduit par la suite à la formation d'une couche cristalline de même nature ou de réseau cristallin très voisin à celui du substrat (son orientation cristalline dépend du substrat). Ceci se produit aux températures au-dessous du point de fusion des matériaux déposés.

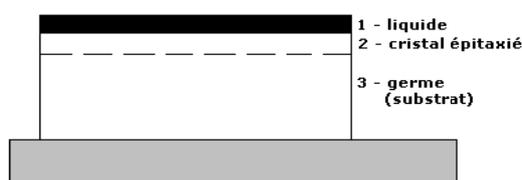


Figure 1.8 : Schéma de principe d'une croissance épitaxiale en phase liquide[6].

(1) : solution liquide, (2) : couche épitaxiée, (3) : substrat ou germe.

La croissance cristalline LPE (liquid phase epitaxy) déroule en équilibre thermodynamique par contre les autres techniques d'épitaxie, la composition de la couche épitaxiée dépend principalement de l'orientation du substrat et le diagramme de phase [23]. « Ces diagrammes sont déterminés empiriquement même si certaines règles de thermodynamique prévalent pour leur établissement [24] ».

L'épitaxie en phase liquide (Liquid Phase Epitaxy) consiste à faire croître le cristal par la mise en contact d'une source liquide d'espèces réactives. C'est le même principe que le tirage d'un lingot par la méthode Czocharski. LPE est principalement utilisée pour les semi-conducteurs binaires, ternaires et quaternaires. Elle présente l'avantage d'un faible coût et d'un appareillage simple.

« Nelson » est le premier avoir reporté la méthode d'épitaxie en phase liquide en 1963 pour la fabrication des jonctions PN dans l'Arséniure du Gallium (GaAs)[4,11].

LPE a été la technique la plus largement répondue dans les années 70 pour fabriquer les hétérostructures. Dès cette époque on a obtenu des couches de bonne qualité (grande pureté, bonnes propriétés électriques et optiques)[11].

1.2.2.2. Principe de la technique

L'épitaxie en phase liquide est également utilisée pour les dispositifs ne demandant pas trop de précision. Il s'agit de faire cristalliser successivement des composés semi-conducteurs

fondus dans des creusets séparés. Les différentes couches sont déposées par simple déplacement des creusets sur la surface du cristal. Cette technique a l'avantage d'être très simple et donc d'être peu coûteuse. La fabrication à grande échelle de diodes laser en GaAs est un exemple typique d'application de cette technique.

Le substrat va être mis en présence d'un bain constitué du matériau que l'on souhaite déposer, dont la température est maintenue par un système de chauffage, juste au-dessus de son point de fusion se cristallise la couche sur le substrat à condition que les températures soient bien contrôlées [15,25].

Les solutions peuvent être du même matériau ou de dopages différents pour réaliser une hétéroépitaxie (par exemple un hétéro transistor bipolaire) [17].

La cristallisation sur la surface du substrat en contact avec le liquide est essentiellement contrôlée par les échanges de matière à l'interface substrat-solution [26].

Le principe de la technique consiste, dans un premier temps, le dépôt d'une couche monocristalline (par exemple de SiC) sur un substrat Si. Dans un second temps, cette couche est utilisée comme creuset-germe et le Si du substrat fondu comme source de silicium.

La conversion se fait alors par apport de carbone par décomposition de propane et croissance de SiC à partir de l'interface SiC/Si. Cette technique supprime du même coup les problèmes de contrainte thermique et de désaccord de maille. En fin, les températures nécessaires pour la croissance LPE d'un monocristal sont inférieures de 300° environ à celles visitées pour l'épitaxie CVD[27].

Donc on peut dire qu'il y a quatre étapes essentielles de processus à suivre pendant la croissance de type EPL[1-4,11,15,25]

- a) Mouillage : contact entre le substrat de croissance et le solvant.
- b) Nucléation : c'est l'étape de formation du cristal sur un substrat.
- c) Croissance de non coalescence cristalline.
- d) Croissance de la couche mince cristalline.

1.2.2.3. Appareillage de la technique :

L'appareillage le plus répandu est un réacteur horizontal, comme le montre la figure 1.9.

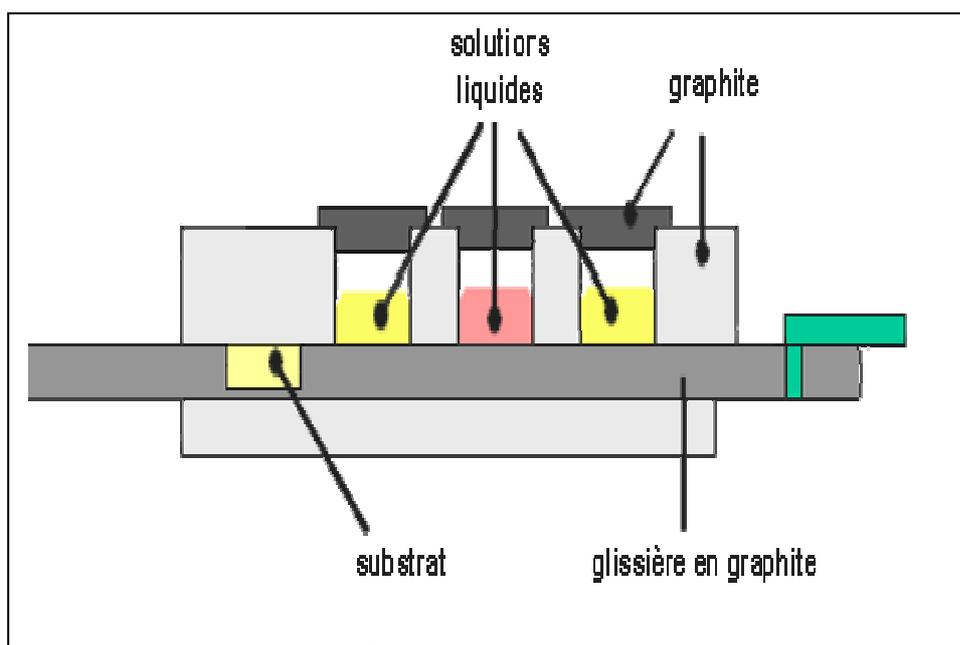


Figure 1.9 : Dispositif multi bain d'épitaxie en phase liquide [25]

Un creuset en graphite (ou bateau) contient des puits où l'on dépose les constituants des différents bains. En faisant coulisser le creuset sur un porte échantillon et on réalise des dispositifs à couches multiples [28].

Une fois la régulation du four effectuée ($\pm 0.1^\circ\text{C}$ par exemple), la croissance s'opère sous balayage d'hydrogène purifié [18].

1.2.2.4. Les Différentes méthodes de croissance LPE

La base de l'EPL est la production d'une sursaturation dans la solution de croissance tel que l'épitaxie de l'élément solide sur le substrat. Cette sursaturation peut être produite par différentes méthodes [11] :

- a)- Equilibrium cooling growth.
- b)- Step cooling growth.
- c)- Super cooling growth.

Dans tous ces cas, la qualité de matériau servant pour la croissance est limitée par la quantité de soluté qui peut dissoudre le solvant à la température de saturation. On peut aussi différencier les techniques LPE par le type de creuset utilisé.

1.2.2.5. Avantages et inconvénients de la technique

La déposition en phase liquide présente un large usage dans les productions des couches des composés (III-V) ; l'avantage d'être très rapide et la possibilité de grande production avec un coût réduit et des vitesses de croissance que l'on peut atteindre sont de l'ordre de $1\mu\text{m}/\text{min}$ et l'épaisseur nécessaire est de 1000\AA seulement par couche mais avec précision faible [17]. De plus, il n'était toute fois pas possible d'envisager des croissances de couches multiples dans la même opération, ni d'aboutir simplement à des épaisseurs de dépôt uniformes [15,25].

Pour minimiser les inconvénients des techniques d'épitaxie détaillées par avant (LPE et VPE) ; les recherches ont été consacrées afin de trouver une autre technique qui peut donner des solutions aux problèmes posés de réaliser et d'élaborer des matériaux de très faibles épaisseurs avec une parfaite qualité cristalline, pour cela ces travaux ont été orientés vers l'épitaxie par jets moléculaires (MBE : Molecular Beam Epitaxy) qui sera l'objectif du chapitre suivant.

Chapitre 2

Epitaxie par jets moléculaires (Molecular Beam Epitaxy)

Épitaxie par jets moléculaires

Parmi les différentes techniques de croissance en ultra vide, l'épitaxie par jets moléculaires est une technique pour la fabrication des matériaux sous forme cristalline pratiquement parfaite et de couches minces monocristallines très récente.

C'est une technologie à base température, ce qui limite les phénomènes de diffusion, et à faible vitesse de croissance.

Cette technologie touche beaucoup de domaines différents tels que les techniques de l'ultra vide, d'analyse des gaz, d'analyse de surfaces solides, d'étude de la structure cristalline, ...

Le but de ce chapitre est de donner les éléments essentiels nécessaires à la compréhension des différents aspects de cette technique.

Nous ferons d'abord la description du principe et de la mise en œuvre expérimentale, nous parlerons ensuite des divers aspects du processus, et des méthodes d'analyse « in situ » permettant de contrôler ces aspects.

2.1. Définition de l'Épitaxie par Jets Moléculaires

l'épitaxie par jets moléculaires (EJM, où en Anglais MBE :Molecular Beam Epitaxy) est une technique de croissance cristalline qui permet d'élaborer des hétérostructures composées d'empilements de très faible épaisseurs jusqu'à une fraction de monocouche atomique de matériaux différents avec une excellente qualité cristalline [29,30].

Cette technique a été développée pour la croissance des semiconducteurs III-V, elle permet de réaliser des homoépitaxie à basse température (400° a 600°) et avec une lente vitesse de croissance des couches typiquement 1 a 2 $\mu\text{m/h}$ ce qui correspond de une à deux mono couches par second [9,15,30].

On travail à des vides très poussés ($<10^{-11}$ Torr) UHV (Ultra High Vacuum) [28].

Pour obtenir un dépôt, on évapore le matériau que l'on veut déposer en le chauffant avec effet joule, par rayonnement ou par bombardement électronique.

Le flux d'atomes évaporés sous UHV est directionnel et les atomes se déposent sans choc sur le substrat [25,31].

Par rapport aux autres méthodes de croissance épitaxiale concurrentes, l'EJM présente un certain nombre de caractéristiques originales telles que [6,9,29,31]:

- a)- Faible vitesse de croissance (1 à 3 Monocouches / second typiquement);Contrôle aisé des épaisseurs .
- b)- Réalisation des structures de très basse dimensionnalité telles que les puits quantiques, ou les boîtes quantiques.
- c)- Situation de croissance hors équilibre; Possibilité de réalisation de composés métastables, maîtrise de la diffusion.
- d)- Arrêt et démarrage des croissances faciles ;Interfaces brutes .
- e)- Possibilités d'analyse in situ compatible avec l'ultravide ; Auger, XPS ,RHEED .
- f)- Rugosité de la surface de croissance de l'ordre de la monocouche.

2.2. Avantages de la Technique EJM

La technique d'épitaxie par jets moléculaires présente les avantages suivants [1-4,31,32]:

- Croissance lente qui permet les changements de composition et de profil de dopage au niveau des dimensions atomiques par simple utilisation d'un obturateur .
- Les températures de croissance sont relativement basses et l'inter diffusion entre les couches est négligeable.
- Un autre avantage de cette technique repose sur le contrôle et la possibilité de suivre la croissance en temps réel grâce a l'utilisation in situ du RHEED .

- L'EJM permet un très bon contrôle des épaisseurs des couches très minces.
- Toutes les étapes peuvent être automatisées.

2.3. Historique de l'Epitaxie par Jets Moléculaires

Les premières croissances par EJM de couches minces furent réalisées pour la première fois sur les composées III-V à la fin des années 50 par Günther. Celui ci réussit à la croissance de films minces stœchiométriques d'InAs et d'InSb sur un substrat en verre[9].

Grâce a ses expériences, Gunther a montré que la croissance des couches fines III-V était possible si on avait la relation $T_V < T_S < T_{III}$.

D'où :

T_V : température du creuset d'arsenic.

T_{III} : température de gallium .

T_S : température du substrat .

Si T_S est suffisante pour éliminer la condensation de l'excès d'arsenic à sa surface .

Dans le cas de GaAs, l'épitaxie est réalisée à une température de substrat environ 600°C, avec typiquement une source de Gallium portée à 900°C et une source d'Arsenic aux environs 250°C

Cependant Gunther n'a pas obtenu un très bon résultat, car d'une part ; il ne possédait pas le substrat monocristallin et d'autre part le vide de l'enceinte n'était pas assez poussé [31-33] .

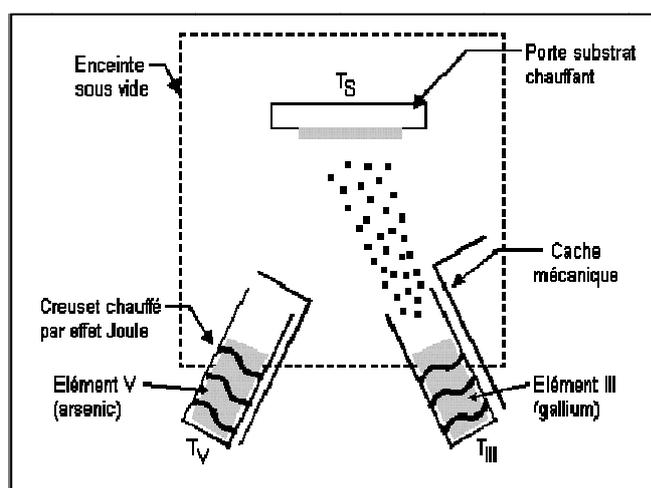


Figure 1.9 : Dispositif multi bain d'épitaxie en phase liquide [6]

Mais Il fallu attendre presque 10 ans avant que Davey et Pankey ne réalisent la croissance d'une couche mince monocristalline de GaAs sur un substrat monocristallin.

Au début des années 70, la technique EJM prend son essor avec les travaux de J.Arthur et A.Cho aux États-Unis sur le développement des techniques ultra-vide. Ces derniers ont montré la bonne qualité de la croissance sur des substrats monocristallins de GaAs dans une enceinte où règne un vide très poussé (10^{-9} - 10^{-11} Torr)[31,32].

Les flux atomiques (Ga) ou moléculaires (As_4) étaient obtenus avec chauffage par effet joule, des creusets contenant des sources pures de Ga et As sous forme solides [33].

En 1983, Neave et al. et van Hove et al. montrent l'intérêt d'utiliser les oscillations RHEED durant la croissance cristalline pour contrôler précisément l'épaisseur des films minces et des super-réseaux de semi-conducteurs[6].

2.4. Principe

L'épitaxie par jets moléculaires est une méthode de croissance sous ultravide de couches ; par réaction de flux atomiques ou moléculaires sur un substrat monocristallin porté à une température adéquate[31-34].

Le système d'épitaxie par jets moléculaires englobera les éléments suivants :

- Un bâti à ultra vide.
- Un ensemble de pompe à vide
- Une porte substrat chauffant.
- Des cellules d'évaporation pourvues de caches amovibles.
- Des systèmes d'analyse « in situ », permettant de contrôler la croissance et d'analyser la couche épitaxiée.
- Système d'introduction du substrat.
- Système de nettoyage (canon à ions Argon).

Il existe différentes variantes de bâti MBE selon la technologie des sources d'éléments III et V. Ces sources ont été le frein le plus sensible à l'essor de MBE, principalement pour les éléments V[34].

La croissance cristalline est réalisée sous ultravide (10^{-9} à 10^{-11} torr hors croissance, voisine de 10^{-6} torr en croissance pour limiter au maximum les risques de pollution) en faisant interagir à la surface du substrat des flux atomiques ou moléculaires obtenus à partir des sources solides ou gazeuses. Dans le cas des matériaux semiconducteurs III-V, la croissance est basée sur la méthode des trois températures, proposée par Günther[9,34].

L'épitaxie par jets moléculaires, passe tout d'abord par la production dans une enceinte à ultravide, de jets moléculaires, ajustées en flux et direction. Le flux moléculaire est faible et le

vide dans l'enceinte élevée. Dans ces conditions, les collisions entre les molécules ou atomes sont pratiquement nulles.

Les différents corps constituant la couche épitaxiée, sont évaporés sous forme de jets moléculaires, à partir de creusets que l'on chauffe à la température adéquate, pour obtenir le flux moléculaire désiré. Ces flux interagissent sur un substrat porté à une température du substrat, et par les différents flux incidents. Un cache amovible permet d'arrêter instantanément l'un quelconque des flux, et ce faisant la croissance[31-35]. Figure 2.2

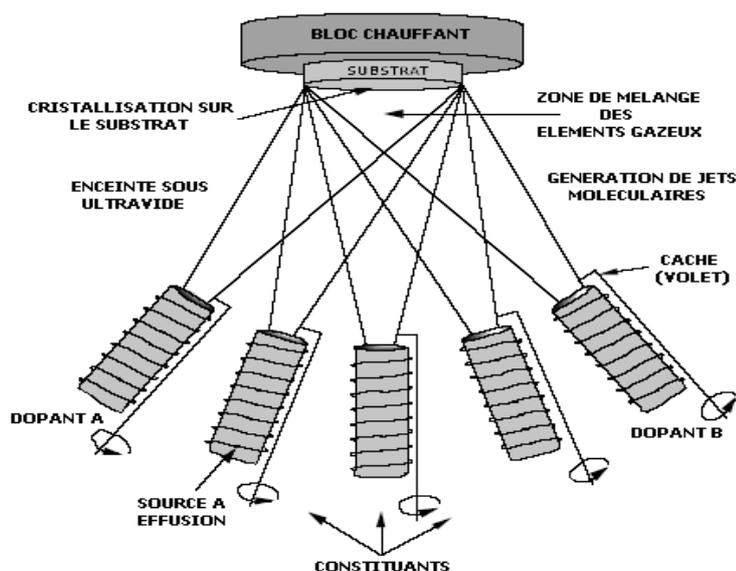


Figure 2.2 : Disposition des cellules à effusion et recouvrement des flux d'atomes près du substrat[6].

La figure 2.2 présente une vue schématique d'un bâti d'épitaxie. Un substrat monocristallin est porté à une température T_s déterminée et des flux atomiques ou moléculaires réagissant à la surface, menant si les conditions sont adéquates à la formation d'une couche de matériau semiconducteur de haute qualité cristallographique. Dans le Cas de GaAs, les atomes de Gallium se condensent au contact de la surface. Les atomes d'Arsenic se réévaporent et ne se fixent en surface que sur des atomes de Gallium. Cela permet d'obtenir un composé comportant autant d'atomes d'Arsenic que de Gallium tant que les éléments V sont en excès. La vitesse de croissance ne dépend alors que du flux d'élément III.

2.5. Description Générale d'un Bâti MBE

Quelque soit le type de bâti, on distingue trois zones importantes dans un réacteur d'épitaxie par jets moléculaires. Il s'agit de la zone de génération de flux moléculaires, la zone d'intersection des différentes sources qui se mélangent et forment une phase gazeuse spéciale en

contact avec la surface de substrat, et de la zone correspondante à la surface du substrat où la cristallisation a lieu[35,36]. La Figure 2.3 montre un schéma général d'un bâti RIBER 2300. Ses caractéristiques sont les suivantes[8,31,34,36] :

- Chambre d'introduction et de transfert des substrats. Les substrats font au maximum 2 pouces et sont soit collés à l'indium sur un support de molybdène, soit maintenus sur un support évidé
- Chambre d'épitaxie
- Système RHEED
- Sept cellules solides plus une cellule cracker

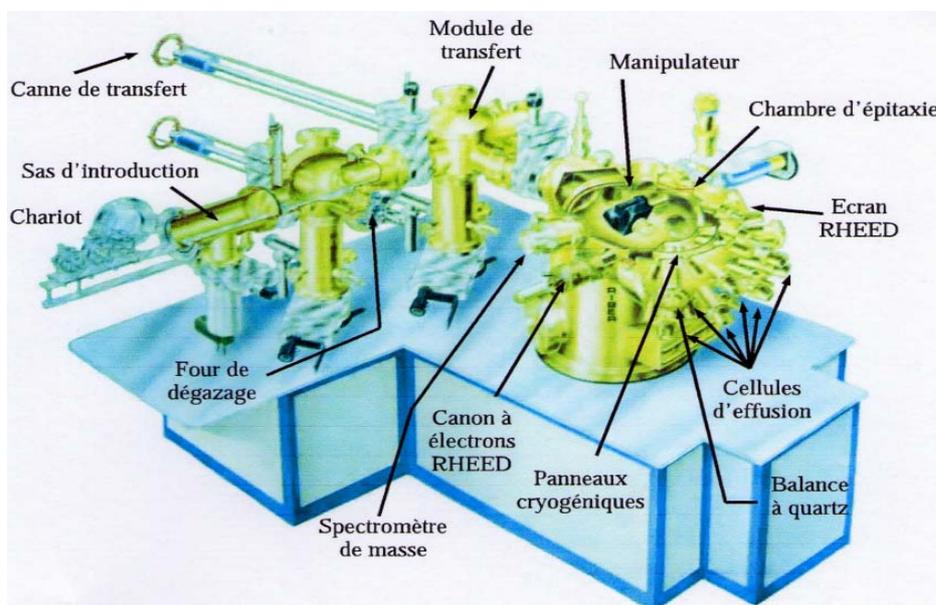


Figure 2.3 : Schéma de principe d'un bâti d'épitaxie MBE de type RIBER 2300[8].

L'appareillage consiste essentiellement en :

2.5.1. Les chambres

La nécessité de maintenir l'ultravide dans la chambre de croissance conduit à concevoir des systèmes à plusieurs chambres séparées par des vannes d'isolement.

Tous les équipements comportent au moins trois chambres :

a) Chambre d'introduction

Connecté à la boîte à gants ; sert à l'introduction des substrats dans la machine[37].

b) Chambre de transfert

Utilisée pour la préparation du substrat (dégazage, décapage ionique) ainsi que pour les analyses de surface[37]. Elle est située entre la chambre d'introduction et la chambre de croissance[9,29].

c) Chambre de croissance

Sa conception est imposée par la nature du matériau à déposer. La chambre de croissance est équipée pour [8,31,34,36]:

- Réaliser et contrôler l'ultravide.
- Chauffer le substrat par effet joule et contrôler sa température très précise (± 1).
- Générer les jets moléculaires et déterminer leurs intensités.
- Contrôler les profils de composition (en interrompant les jets).
- Etudier l'interface et la surface au cours de la croissance (RHEED).

2.5.2. Les cellules d'effusion

Le moyen le plus courant pour obtenir un jet moléculaire est la cellule à effusion de Knudsen. Dans une cellule de Knudsen idéale, l'orifice doit être inférieur au libre parcours moyen des molécules de la vapeur, et le flux peut alors être calculé à partir de la pression de vapeur à l'équilibre en utilisant la théorie cinétique des gaz[15,25,37].

Dans la pratique, les sources ne sont pas des cellules de Knudsen idéales, car elles ont des ouvertures plus larges afin d'obtenir des vitesses de croissance plus grandes et une meilleure homogénéité du dépôt.

Les flux sont alors mesurés par une jauge à ionisation placée au niveau du substrat. Les creusets placés dans les cellules d'effusion peuvent être de divers matériaux, (nitrure de bore pyrolytique : Matériaux préféré pour la croissance de composés III-V), la température du creuset est contrôlée à ($\pm 1^\circ$)[9,29].

Il y a d'autres types de sources pour créer des jets moléculaires :

Evaporation par faisceau d'électrons pour les matériaux à basse tension de vapeur comme le silicium où les matériaux réfractaires.

Sources gazeuses utilisent ; généralement des précurseurs qui se décomposent en donnant les molécules souhaitées.

Le contrôle de la composition de couche et du profil de dopage est obtenu par une simple utilisation d'un obturateur mécanique placé à la sortie de chaque source.

Les études de qualité de surfaces sont menées par la diffraction RHEED.

2.5.3. Spectromètres

L'enceinte comporte des appareils d'analyse :

a) Spectromètre de masse

Permettant d'étudier les gaz résiduels avant l'épitaxie, mais également pendant la croissance, de façon à régler les débits des jets moléculaires[38].

b) Spectromètre à électrons Auger

Renseignant sur la composition chimique en surface du cristal ; l'élimination des impuretés de surface peut dans certaines installations s'obtenir par bombardement ionique[38].

2.6. Etapes de croissance

La croissance MBE se fait en trois étapes [15,5]:

2.6.1. Première étape (préparation du substrat)

Le substrat est poli à une mono couche prête ; ce substrat est fixé sur un support à l'aide d'un métal liquide que fait office de colle, le substrat restera ainsi collé tout au long de la manipulation. Il faut nettoyer sa surface des impuretés tout d'abord en le chauffant et en l'oxydant pour le transporter jusqu'au dispositif d'épitaxie, on le place dans un bain de méthanol afin de l'isoler des impuretés de l'air ambiant[29,38].

2.6.2. Deuxième étape (Transfert de substrat jusqu'à la chambre d'épitaxie)

En premier lieu, on introduit le substrat et son support dans la boîte à gant qui est sous atmosphère d'azote (gaz inerte). Dans cette première chambre, on retire le substrat de la solution de méthanol, en suite le substrat passe dans la chambre d'introduction ; Il s'agit en fait d'un premier sas dans lequel en fait un vide poussé ; quand le vide est satisfaisant, on transfère le cristal dans le module de recuit puis on l'introduit dans le module de transfert[29,37].

On refait un vide encore plus poussé que dans la chambre d'introduction (c'est un second et dernier sas avant l'atteinte de la chambre d'épitaxie). Lorsque le vide est souhaité, le substrat passe dans la chambre d'épitaxie[15,38].

2.6.3. Troisième étape (la croissance moléculaire)

Dans la chambre d'épitaxie, le substrat est placé sur le manipulateur d'échantillon.

Avant le début de la manipulation, on crée un ultra vide ($P= 10$ mbar) de façon à ce que le flux moléculaire ne soit pas perturbé, les parois sont refroidies par l'azote liquide afin de fixer les dernières impuretés volatiles[15,25].

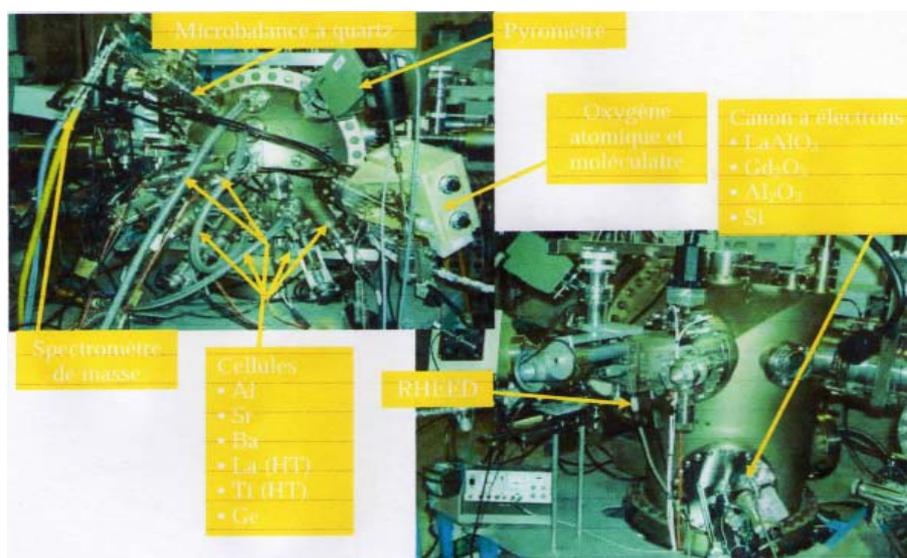


Figure 2.4 : Photographies du réacteur d'épitaxie avec les différents moyens d'élaboration, de contrôle et de caractérisation[8].

Après ces étapes intermédiaires, on commence le dépôt des couches atomiques.

La technique de diffraction RHEED permet de contrôler précisément le nombre de couches déposées sur le substrat et d'agir en conséquence sur les cellules d'effusion (Fermeture de cache mécanique)[35]. Lorsqu'on atteint le nombre de mono couches voulus on arrête le flux de la cellule d'effusion grâce à un cache mécanique qui est placé devant celle-ci. Après avoir réalisé la configuration souhaitée, on sort le substrat en passant par la chambre de transfert, la chambre d'introduction puis la boîte à gant[5,15,25,29,37-39].

2.7. Théorie de la croissance

2.7.1. Modes de croissance

Lorsqu'un matériau A croît sur un matériau B, la croissance de A peut revêtir trois différents modes de croissance cristalline. Ils dépendent principalement de la valeur relative des énergies d'interaction adatome-adatome (énergie de cohésion) et des énergies d'interactions adatome-substrat (énergie d'adhésion)[3,39]. La figure 2.5 schématise ces trois modes de croissance.

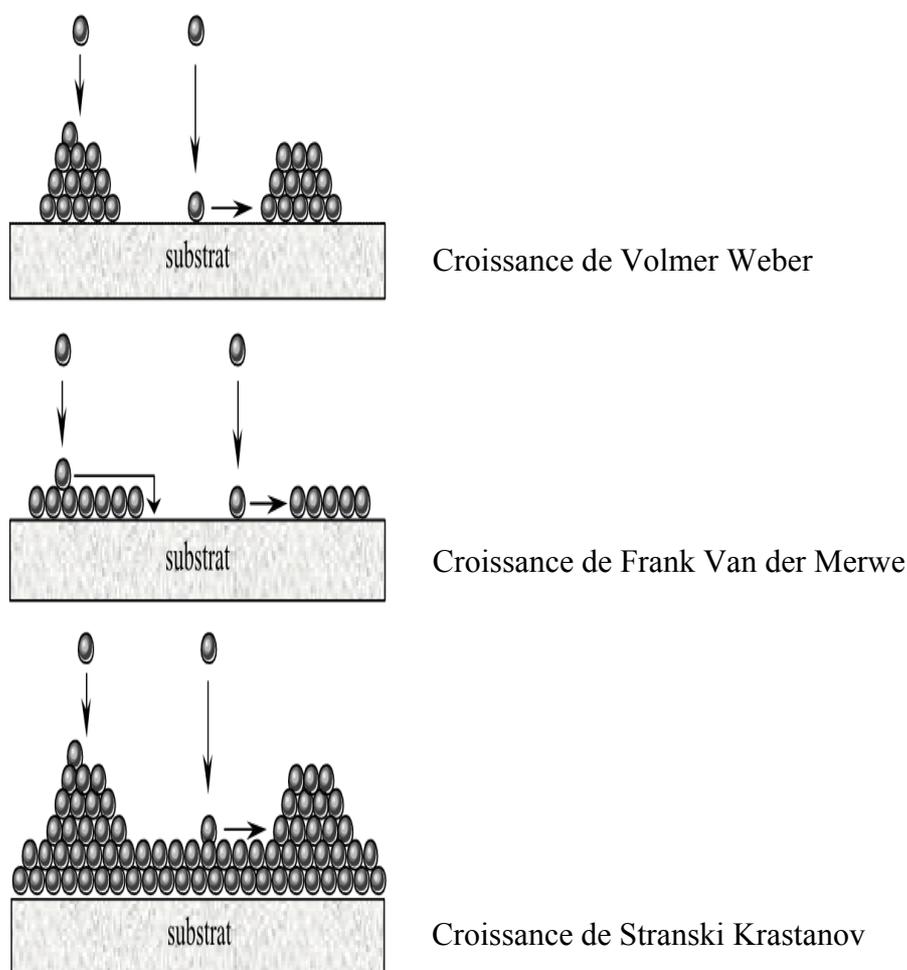


Figure 2.5 : Schématisation des divers modes de croissance[39].

2.7.1.1 Croissance 3D ou Volmer-Weber

Pendant la croissance tridimensionnelle (3D) ou croissance Volmer-Weber, de petits germes sont formés directement sur la surface et croissent pour former des îlots qui coalescent ensuite pour former une couche mince continue[41]. Ce mode de croissance est habituellement favorisé lorsque les atomes formant la couche déposée sont plus fortement liés entre eux qu'avec le substrat comme c'est le cas lors de la croissance des métaux sur des substrats isolants, sur des halogénures alcalins ou sur le graphite[39,41].

2.7.1.2. Croissance 2D ou Frank-van Der Merwe

La croissance bidimensionnelle (2D) couche par couche, ou croissance Frank-van der Merwe, est favorisée lorsque l'énergie de liaison entre les atomes déposés est inférieure ou égale à celle entre la couche mince et le substrat. En plus de la croissance homoépitaxiale (l'adsorbat et le substrat étant de même nature chimique)[36], on retrouve de nombreux exemples en hétéroépitaxie des semi-conducteurs (par exemple GaAlAs/GaAs) et

des métaux (par exemple Cd/W). Ce mode de croissance est également observé dans le cas de gaz rares déposés sur du graphite ou certains métaux[8].

2.7.1.3. Croissance mixte ou Stranski-Krastanov

Le troisième mode de croissance, nommé Stranski-Krastanov (SK), est une combinaison des deux modes précédents : après un début de croissance couche par couche, on observe un changement lorsque la formation d'îlots devient énergétiquement favorable. Cette transition d'un mode de croissance 2D vers 3D n'est pas encore complètement comprise bien qu'elle puisse être induite par la relaxation de l'énergie élastique emmagasinée dans une hétérostructure contrainte. Les prédictions du mode de croissance sont délicates car l'énergie d'interface est mal connue, de plus l'énergie libre de l'adsorbat est généralement fixée à l'énergie libre des matériaux massifs correspondants. Enfin dans beaucoup de cas, les modes de croissance généralement observés ne sont pas ceux attendus à cause des effets cinétiques [6,8,11,32].

Le mode de croissance est gouverné par deux paramètres importants ; Les énergies de surface et d'interface qui jouent un rôle important dans la détermination de la nature du mode de croissance pendant les étapes de croissance épitaxiale[8,49].

2.7.2. Processus atomistiques de croissance

D'un point de vue fondamental, une prédiction de la croissance cristalline passe par une connaissance détaillée des processus microscopiques mis en jeu. Les principaux processus impliqués dans la croissance cristalline des couches minces sont représentés schématiquement à la figure 2.6.

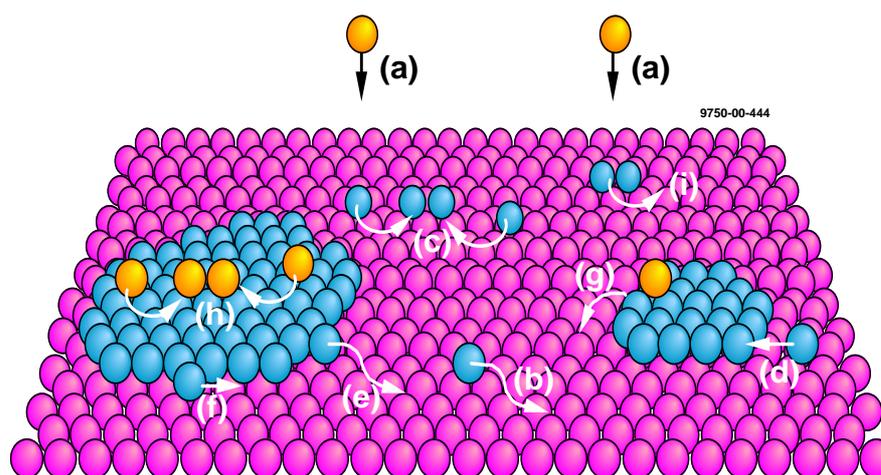


Figure 2.6 : Processus de base de la croissance épitaxiale[6].

- (a) dépôt, (b) Diffusion, (c) Nucléation, (d) Attachement, (e) Détachement, (f) diffusion edge, (g) diffusion par étape, (h) nucléation au – dessus des îlots, (i) diffusion en dimer

Des atomes arrivent d'une phase vapeur (a) avec un flux sur la surface du substrat puis, après l'adsorption, ils diffusent sur la surface (b) jusqu'à ce qu'ils rencontrent d'autres adatoms (c) pour former, en fonction de leur densité et des énergies de liaisons, des agrégats 2D ou 3D (d). Lors de leur diffusion, ces adatoms peuvent également s'incorporer dans les marches atomiques et défauts de surface. Inversement, le détachement d'atomes (e) peut se produire mais la désorption d'atomes est généralement négligeable pour les métaux. Une inter diffusion de surface peut également avoir lieu. Enfin les adatoms peuvent diffuser le long d'îlots (f), par dessus des îlots existants (g) et nucléer dessus. Même des dimères et de larges îlots peuvent diffuser (i).

2.8. Analyses et Caractérisations Associées à la Croissance par EJM

Le fait de devoir travailler dans des conditions d'ultravide est certes contraignant mais présente un avantage certain, celui de pouvoir l'utilisation des techniques de caractérisations in situ et ex situ pour le contrôle et l'analyse en temps réel de la croissance (mesure de la température, mesure de l'épaisseur de la couche, contrôle et mesure de la pression,...). ! Pour les mêmes raisons, s'il est possible d'utiliser comme sonde des faisceaux de particules, il est possible de détecter un faisceau d'électrons sortant de la matière afin d'étudier la chimie de la surface ou de faire des études de diffraction. Le nombre de possibilités (nature de l'excitation/nature des particules détectées) étant très important,

Parmi ces techniques, on trouve des méthodes de caractérisations structurales (La Diffraction d'électrons de Haute Energie en Incidence Rasante « RHEED », La Microscopie à Force Atomique « AFM », et La Microscopie Electronique à Transmission « MET »,...), ainsi que des méthodes de caractérisations chimiques (La Spectroscopie d'Electrons Auger « AES », La Spectroscopie de Photoélectrons Induits par Rayons X « XPS »,...). Néanmoins, certaines techniques sont largement plus utilisées que d'autres[41].

2.8.1. Diffraction RHEED

2.8.1.1. Définition

La technique de diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante RHEED : (en anglais reflexion High Energy Electron Diffraction) est une technique bien connue et largement utilisée dans le suivi de la croissance épitaxiale[39,40,42]. Il s'agit d'une méthode in situ d'obtenir des informations structurales et morphologique au cours de la croissance.

Le RHEED a été développée lors de l'élaboration de structures artificielles de semi-conducteurs (puits quantiques,...), afin de contrôler en temps réel le mode de croissance. Elle permet non seulement de connaître la structure d'une surface (monocristal, polycristal, amorphe,...), d'en apprécier la planéité mais également d'en suivre le mode de croissance au cours du dépôt, ainsi

que d'étalonner les flux d'évaporation grâce au phénomène d'oscillations d'intensité[41]. Les oscillations de paramètre fournissent des renseignements complémentaires sur la taille des îlots en cours de croissance[32].

Le RHEED nécessite un canon à électrons, un écran fluorescent, et une surface propre. L'interprétation des image de RHEED, cependant, est compliquée par une exceptionnellement géométrie asymétrique et par la dispersion de diffusion. Figure 2.7

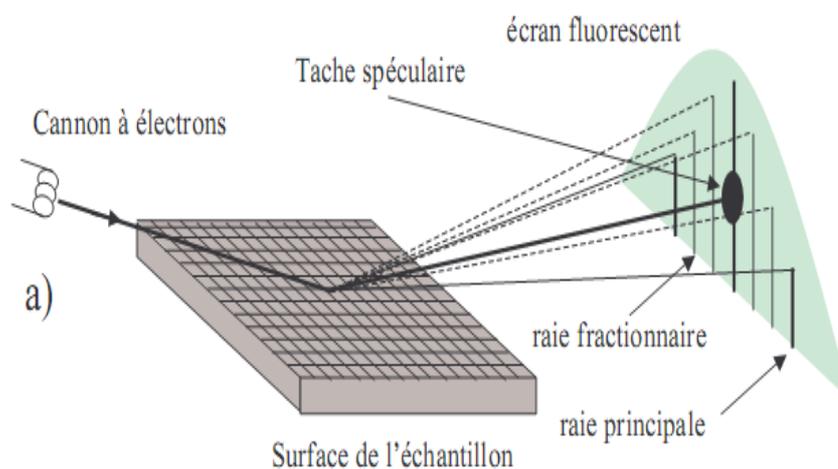


Figure 2.7 : Schéma de la configuration du RHEED : intersection de barres de diffraction avec la sphère d'Ewald

Le RHEED a vu ces premières utilisations avec Nishikawa et Kikuchi en 1928 au même moment que la découverte de la diffraction d'électrons par Davison et Germer (1927), RHEED a pris une importance moderne en raison de sa compatibilité avec les méthodes de dépôt de vapeur utilisée pour la croissance épitaxiale de films minces. Nous prenons RHEED pour englober la gamme d'énergie d'électrons environ 8 à 20 keV, mais elle peut être employée à des énergies plus élevées que 50 à 100 keV. Cependant le RHEED a vu ces premières utilisations dans la croissance épitaxiale dans les années 80, avec les travaux de Harris. Qui a indiqué que l'intensité RHEED oscille comme l'épaisseur d'un film épitaxié de GaAs dans la croissance MBE, et ils ont montré que la période coïncide avec la croissance des monocouches.

Comparant avec les autres techniques d'analyse, Le RHEED présente plusieurs avantages, on peut citer par exemple [8,32,42]:

- Orientation de la surface.
- Degré de rugosité de la surface.

- Reconstruction de la surface ; réaménagement de la surface afin de minimiser l'énergie minimal de la surface.
- Croissance des couches.
- Structure de surface cristalline (Mode de croissance, Taux de couverture,.....)
- Etalonnage des vitesses de croissance grâce au phénomène d'oscillations d'intensité.

2.8.1.2. Principe de RHEED

Le principe du RHEED repose sur l'utilisation d'un canon à électrons pour sonder les premières monocouches de la surface en cours de croissance. Le faisceau électronique de haute énergie (10 kV) est focalisé sur le substrat en incidence rasante ($\approx 1^\circ$) puis est réfléchi vers un écran fluorescent pour la visualisation. Figure 2.8. La profondeur de pénétration du faisceau sous la surface est de l'ordre de quelques dizaine d'Angströms[31].

L'image de diffraction obtenue par RHEED correspond à des bâtonnets verticaux d'épaisseur finie. Figure 2.8. présente une image (tache) RHEED pour le AlAs.

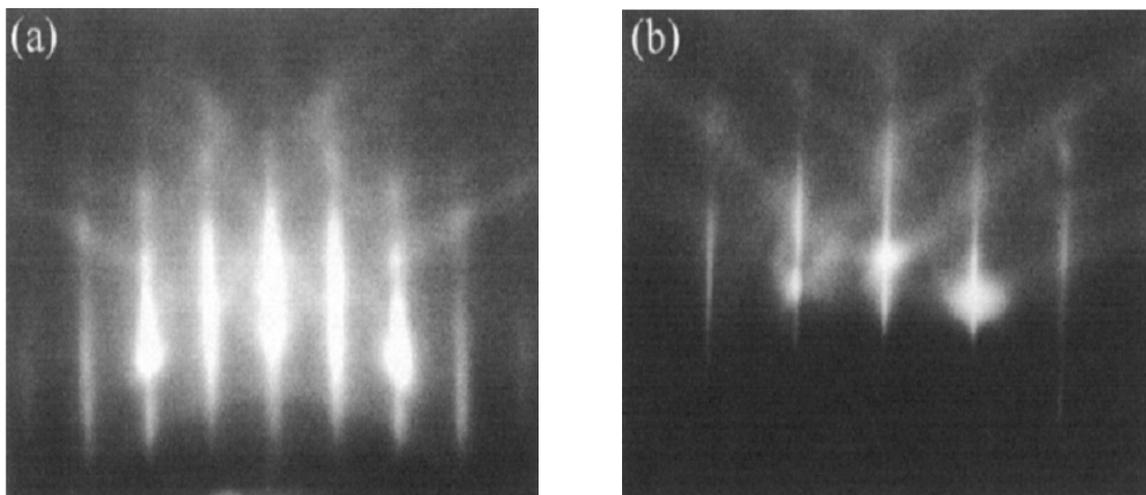


Figure 2.8 : Image RHEED : (a) surface C(4x4) de AlAs, (b) surface de (110) sous ultraviolette[42]

En fonction du cliché RHEED obtenu, nous pouvons extraire quelques informations relatives au mode de croissance et à la surface du matériau[6,8,31,32,34,39,40,41,42] :

- Si on obtient des anneaux, cela signifie que la surface est polycristalline.
- Dans le cas d'un polycristal texturé, on observe le même cliché de raies verticales suivant tous les azimuts
- les azimuts

- Si la figure de diffraction se brouille très rapidement de manière à ne plus former qu'un fond diffus dans tous les azimuts, alors cela signifie qu'il y a formation d'une interface amorphe.
- Si les clichés de diffraction sont constitués de bâtonnets fins et bien allongés, cela signifie que la croissance est bidimensionnelle, dit mode de croissance Franc-Van der Merwe.
- Si les clichés de diffraction sont constitués de points ou de taches plus ou moins allongées, cela signifie que la croissance est tridimensionnelle, dit mode de croissance Volmer-Weber.
- S'il y a des bâtonnets qui laissent la place à des taches au bout d'une certaine épaisseur critique, alors il s'agit d'une croissance 2D suivie d'une croissance 3D, dit mode de croissance Stranski-Krastanov.

2.8.1.3. Calcul de l'intensité RHEED

La modélisation des images RHEED s'appuie sur la théorie cinématique de la diffraction d'électrons, et peut être exprimée selon les deux suppositions suivantes qui sont basées sur l'interaction électrons – atome[42].

- les interactions atome d'électrons sont élastiques,
- un électron interagit qu'une seule fois avec un atome.

Ces deux hypothèses conduisent à l'expression suivante pour l'amplitude de faisceau d'électrons diffractés.

Pour calculer l'intensité de la raie 00, On utilise la théorie cinématique de la diffraction.

Dans les conditions de la théorie cinématique, l'amplitude de l'onde diffusée s'écrit sous la forme [39]:

$$F(q) = \sum_{j \text{ atom}}^N f_j \exp(i\vec{q}\vec{r}_j) \quad (2.1)$$

D'où :

f_j est le facteur de forme atomique, \vec{r}_j : position de la j ème atome, $q = k - k_0$: est la différence entre le vecteur d'onde k du faisceau diffracté et le vecteur d'onde k_0 du faisceau d'électrons incident.

Si on suppose que la pénétration des électrons est nulle alors on peut exprimer $F(q)$ en fonction des positions r_p (dans le plan de la surface) et r_z (selon la direction de croissance) sous la forme :

$$F(\vec{q}, q_z) = \sum_{\text{atom}(j)} f_j \exp(i\vec{q}_p \vec{r}_p(j)) \exp(i\vec{q}_z \vec{r}_z(j)) \quad (2.2)$$

Le facteur de structure le long d'une raie (00) s'écrit donc (en notant que $rz = nh$ où h est l'épaisseur d'une couche et n le numéro de la couche la plus extérieure) :

$$F(\vec{q} = 0, q_z) = \sum_{\text{atom}(j)} f_j \exp(iq_z nh) = Nf(\theta_n - \theta_{n+1}) \exp(iq_z nh) \quad (2.3)$$

Avec θ_n, θ_{n+1} représentent les taux de couverture des couches n et $n+1$ (respectivement).

Dans ces conditions l'intensité s'écrit[42,43] :

$$I = |F(q_z)|^2 \quad (2.4)$$

Au cours de la croissance, l'intensité RHEED varie comme sinusoïde dont la période correspond au temps de croissance d'une monocouche. Figure 2.7

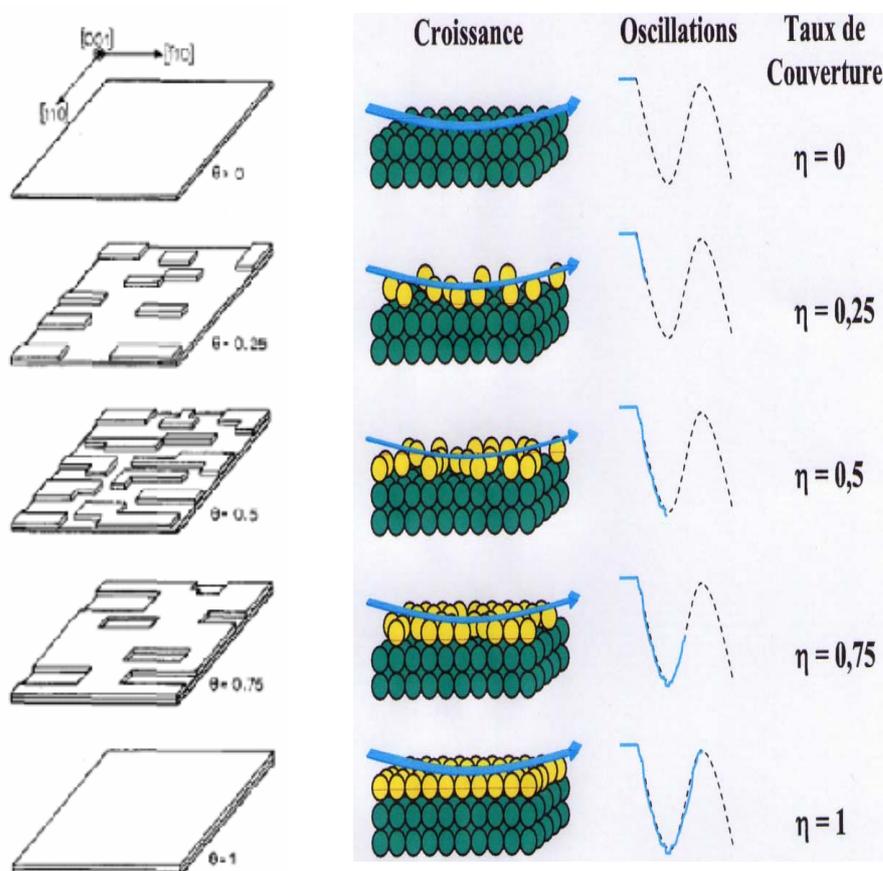


Figure 2.9 : Variation de l'intensité RHEED en fonction du taux de couverture[8].

La figure 2.9 montre que la période d'oscillation RHEED correspond à une monocouche épitaxiée qui est l'unité minimale maintenant la neutralité de la charge électrique ainsi que la stœchiométrie chimique. Elle correspond alors à une demi-maille de matériaux type III-V. on remarque qu'avant le dépôt, la surface est lisse et sa réflectivité est maximale. Lorsqu'une fraction de monocouche est déposée, les îlots de hauteur atomique qui recouvrent la surface

diffusent une partie des électrons : l'intensité chute puis passe par un minimum pour un taux de couverture d'une demi monocouche[39,42]. Lorsqu'une monocouche est entièrement déposée, l'intensité du RHEED retrouve un maximum. Une période correspond donc à la croissance d'une monocouche atomique. La mesure des oscillations du RHEED au cours du temps permet, par conséquent, de contrôler la vitesse de croissance et l'épaisseur des couches déposées[8].

2.8.2. La spectroscopie Auger

La spectroscopie des électrons Auger (AES : Auger electron spectroscopy) induite par les électrons est une technique d'analyse des surfaces qui permet d'identifier les éléments (sauf H et He) constituant les toutes premières couches atomiques (quelques nanomètres) de la surface des solides avec une résolution latérale qui peut atteindre quelques nanomètres et une limite de détection de quelques dizaines ou moins d'atomes identiques[39,42].

Son principe repose sur le mécanisme de l'effet Auger avec l'émission d'électrons ayant des énergies cinétiques caractéristiques des éléments dont ils sont issus et indépendantes de l'énergie des particules excitatrices incidentes[41]. Aux fins de microanalyse des surfaces, le processus Auger est généralement induit par un faisceau finement focalisé d'électrons incidents de quelques kilo électronvolts (5 à 25 keV) dans un équipement spécifique. La sonde électronique incidente est focalisée sur le détail à analyser et le spectre des électrons, émis entre 50 eV et 2,5 keV est acquis. La position énergétique des raies Auger permet de déterminer la nature des éléments constituants et la mesure de l'intensité des raies[44]. Les limites de la technique sont liées aux effets perturbateurs du faisceau électronique incident qui rendent sa mise en œuvre délicate sur des matériaux isolants (effets de charge) et sur les matériaux fragiles comme par exemple les polymères (effets thermiques)

2.8.3. La spectroscopie de photoélectrons excités par rayons X : l'XPS

La diffraction de rayons X est un outil peu utilisé pour l'étude des surfaces parce qu'elles pénètrent profondément dans la matière et que la contribution de surface est faible. Ajoutons de plus que l'asservissement de la trajectoire d'un faisceau X est complexe et coûteuse. Les électrons ou atomes légers ne présentent pas ces inconvénients, puisqu'ils interagissent beaucoup plus fortement avec la matière. Pour la même raison, ils pénètrent donc très peu dans la matière, ce qui en font des outils privilégiés d'étude des surfaces[45].

Cette technique est plus communément appelée XPS, initiale de X-Ray photoelectron spectroscopy. Néanmoins, cette technique est aussi appelée ESCA, initiale de electron spectroscopy chemical analysis. Cette dénomination, qui est de moins en moins utilisée, vient du fait qu'en XPS, on peut avoir des renseignements sur l'environnement chimique de l'atome, car

les énergies des différents niveaux électroniques sont affectées par cet environnement par rapport à l'atome libre[39].

Le cliché de diffraction obtenu par cette technique peut être mesuré en fonction de l'angle d'émission, ainsi l'environnement local de chaque atome peut être résolu spatialement. Cette technique permet d'évaluer la cristallinité d'une couche, son orientation par rapport au substrat, ainsi que le degré de relaxation des couches épitaxiées[7,45].

2.8.4. Microscopie à Force Atomique (AFM)

La microscopie à force atomique (AFM pour Atomic Force Microscopy) est une méthode à sonde locale permettant d'obtenir des informations comme la topographie de surface[31].

l'AFM est un outil indispensable pour obtenir des informations structurales à trois dimensions. La mesure se fait d'une façon très rapide car aucun traitement particulier n'est requis pour les échantillons. Le principe de l'AFM consiste à mesurer les déplacements verticaux d'une pointe montée sur un micro-levier (cantilever) déformable qui balaie la surface à étudier. Ce microscope permet l'utilisation de plusieurs modes d'acquisition de la topographie de la surface. La figure 2.10 présente une image d'une boîte quantique obtenue par la microscopie AFM[31,39,41].

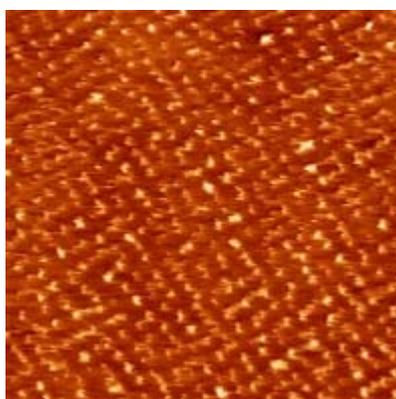


Figure 2.10 : Image AFM d'une boîte quantique[31].

2.8.5. Microscopie à Effet Tunnel (STM)

Le principe de la technique (STM : Scanning Tunneling Microscopy) consiste à mesurer le courant tunnel qui passe entre une pointe métallique qui se déplace à quelques dixièmes de nanomètres au-dessus de la surface d'un échantillon conducteur porté un potentiel[6,39,46].

Le STM permet d'étudier la structure des surfaces à l'échelle atomique. Leur fonctionnement topographique consiste à balayer la surface en ajustant le déplacement vertical de la pointe pour

garder un courant tunnel constant[46]. Le STM donne alors la possibilité d'obtenir des images de résolution atomique comme dans le cas de la figure 2.11.

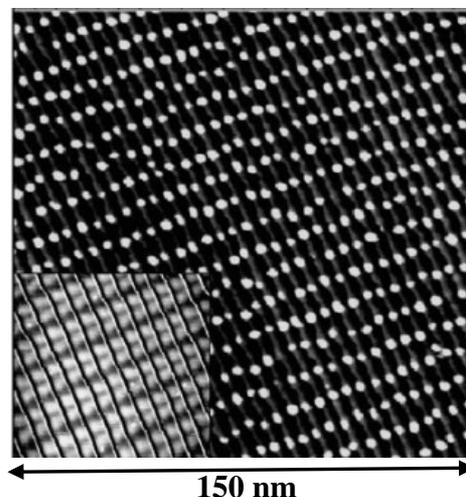


Figure 2.11 : Dépôt de 0,2 monocouche de cobalt à 130 K sur une surface Au(788). Les plots apparaissent en blanc. En bas à gauche, vue STM de la surface vicinale d'Au(788)[39]

Le STM peut aussi être utilisé comme un manipulateur d'atomes ou de molécules. Il est ainsi possible de modifier localement la structure d'une surface en créant des structures atomiques artificielles

2.8.6. Caractérisation ex situ par Microscopie Electronique à Transmission (MET)[32]

La microscopie électronique en transmission (MET) permet l'observation et la caractérisation de la structure interne des matériaux. Cette méthode s'avère très précieuse dans l'étude de multicouches car elle fournit de nombreuses informations sur la structure locale des échantillons (orientation cristallographique, voisinage cristallographique et chimique, continuité de la barrière, rugosité, dislocations, défauts localisés dans la barrière,...).

L'échantillon à analyser doit être aminci de manière à le rendre transparent aux électrons. L'image est traduite par des contrastes d'absorption ou de diffraction. Cependant, il ne s'agit pas proprement de parler d'images d'atomes, mais d'une projection du potentiel créé par ces atomes.

2.8.7. Autres techniques de caractérisation

En plus des techniques de caractérisation précédemment présentées, il existe une large palette de techniques de caractérisations, on peut citer par exemple LEED, XPD,

Chapitre 3

**Méthodologie : Techniques de
Simulation implémentées dans
L'Épitaxie par Jets Moléculaires**

Techniques de simulation

La modélisation et la simulation occupent une place de plus importante dans la recherche de matière et des matériaux, elles deviennent un outil à la fois de plus en plus indispensable mais aussi de plus en plus complexe. Ceci s'explique non seulement par l'amélioration continue des performances des calculateurs, mais aussi par la disponibilité de nouvelles techniques de calculs. Certains types de simulations nécessitent un certain professionnalisme, d'autres sont d'une mise en œuvre assez facile ; cependant, même dans ce cas, il est bon de savoir s'en servir et de savoir ce que l'on peut en attendre.

Il est désormais possible de déterminer les propriétés d'une large gamme de matériaux avec une précision suffisante pour être confrontée à l'expérience, à la fois à une échelle microscopique (méthodes *ab initio*) mais aussi méso et macroscopique (méthodes stochastiques, dynamique moléculaire, ...).

Le but de ce chapitre est de fournir le contexte nécessaire à la compréhension des méthodes présentées par la suite, utilisées pour la simulation de la croissance épitaxiale par jets moléculaires. Nous débutons ce chapitre par un rappel concernant les fondements théoriques des techniques du à l'échelle microscopique, en décrivant le principe de calcul de la méthode *ab initio* ; particulièrement la théorie de la Fonctionnelle de la Densité (DFT). Nous présentons ensuite l'art de calcul des méthodes mésoscopiques (macroscopiques) tels que : la Dynamique Moléculaire et méthode de Monte Carlo; Nous terminons ce chapitre par un rappel sur la méthode de Monte Carlo Cinétique (KMC : Kinetic Monte Carlo), qui présente le principe de base de notre modélisation

3.1. Pourquoi la simulation numérique ?

La simulation numérique consiste à reproduire par le calcul le fonctionnement d'un système, préalablement décrit par un ensemble de modèles. Elle s'appuie sur des méthodes mathématiques et informatiques spécifiques.

Pour le cas d'une simulation numérique de la croissance cristalline, permet de tenir compte explicitement des processus atomiques sur la surface (dépôt, diffusion, agrégation, désorption...)[15].

3.1.1. Avantages

- Avoir un accès direct à tout instant des grandeurs d'intérêt
- Compréhension détaillée des effets liés aux changements des paramètres physiques
- Comparaison directe avec l'expérience
- Possibilité de modifier le modèle plus simplement sans chambouler toute la théorie mise en œuvre

3.1.2. Inconvénients

- Construire des programmes performants
- Gestion du temps machine

3.2. Classification des méthodes de simulation de la croissance épitaxiale par Jets Moléculaires

En raison de la complexité de la croissance cristalline, plusieurs méthodes ont été développées pour simuler cette croissance à différentes échelles et durées. On peut classer ces méthodes en trois grandes catégories : microscopique, mésoscopique et macroscopique. La Figure 3.1 montre une classification schématique des différentes méthodes [29,47].

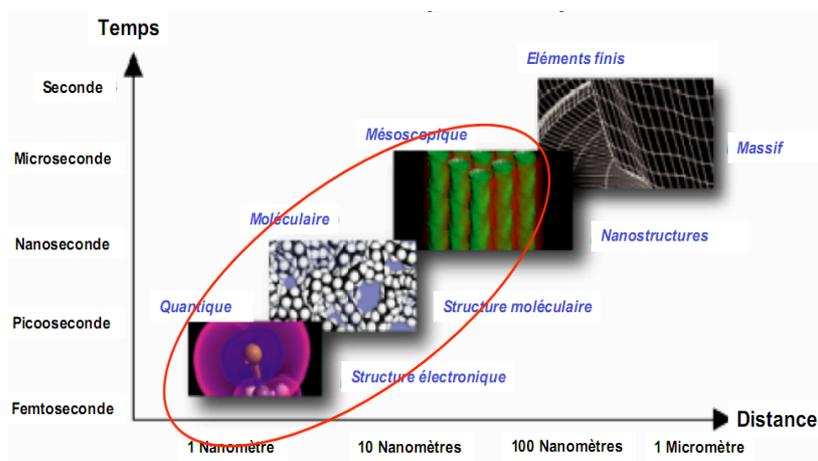


Figure 3.1 : Classification des méthodes de simulation.

On peut aussi schématiser ces méthodes comme suit :

Méthode	Taille
Monte Carlo quantique	~ 100 atomes
DFT	~ 1000 atomes
Dynamique moléculaire ab initio	~ 500 atomes
Dynamique moléculaire	~ 10 ⁹ atomes
Monte Carlo Cinétique	~ micromètre

Tableau 3.1 : Classification des méthodes de simulation de la croissance épitaxiale

3.3. Méthode Microscopiques

Les études de chimie théorique sont devenues, depuis quelques dizaines d'années, un complément aux méthodes expérimentales en termes de validation, de prédiction et de caractérisation des propriétés physico-chimiques se déroulant à l'échelle atomique[48].

Les méthodes quantiques sont dites ab initio par opposition aux méthodes empiriques et semi empiriques. Effectivement, ces méthodes à l'échelle atomique sont basées sur les propriétés fondamentales des atomes. Seul le numéro atomique des atomes constituant le matériau y est a priori pris en compte et est introduit dans les équations régissant ces méthodes. Les méthodes ab initio traitent explicitement les électrons et permettent d'obtenir ainsi les propriétés de structure électronique des systèmes étudiés[25]. Dans cette partie, on essaye de resituer brièvement l'évolution des méthodes quantiques ab initio vers la Théorie de la Fonctionnelle de la Densité (DFT).

3.2.1. Méthodes ab initio : Théorie de la Fonctionnelle de la Densité (DFT)

Ab initio provient de l'expression latine "de la première principe"[49], ou, plus simplement, "from. Scratch". Méthodes ab initio sont incontestablement les plus exactes, ainsi que le plus difficile, de toutes les techniques actuellement en utilisation dans le domaine de la modélisation moléculaire.

Les méthodes ab initio cherchent à prédire les propriétés des matériaux par la résolution des équations de la mécanique quantique, sans utiliser de variables ajustables. Parmi les méthodes ab initio, la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) est une reformulation du problème quantique à N corps en un problème portant uniquement sur la densité électronique, la théorie de DFT permet de traiter tous les éléments du tableau périodique, incluant les métaux de transition.

La Théorie de la Fonctionnelle de la Densité ou DFT (en anglais : Density Functional Theory) constitue actuellement l'une des méthodes les plus utilisées dans les calculs quantiques de la structure électronique de la matière (atomes, molécules, solides) aussi bien en physique de la matière condensée qu'en chimie quantique[50].

3.2.2. Equation de Schrödinger

le principe de base des calculs ab initio est de résoudre, plus ou moins efficacement suivant la méthode, l'équation de Schrödinger[48-50].

L'équation indépendante du temps dans le cas stationnaire s'écrit :

$$H\psi = E\psi \quad (3.1)$$

D'où :

H est l'opérateur Hamiltonien du système.

E est l'énergie totale du système.

ψ est la fonction d'onde du système.

L'élément capital et primordial du calcul théorique est l'atome. Il faut par conséquent le modéliser le plus correctement possible. Un atome étant composé de noyaux et d'électrons, on peut donc considérer et interpréter convenablement ces deux composants en des termes bien distincts[50].

L'hamiltonien exact du système étudié comportant n noyaux et N électrons, se formule alors suivant l'expression :

$$H = T_n(P) + V_{nn}(R) + V_{ne}(r, R) + V_{ee}(r) + T_e(P) \quad (3.2)$$

Avec :

T_n , l'énergie cinétique des noyaux

V_{nn} , l'énergie potentielle d'interaction noyaux-noyaux

V_{ne} , l'énergie potentielle d'attraction entre les noyaux et les électrons

V_{ee} , l'énergie potentielle de répulsion entre les électrons

T_e , l'énergie cinétique des électrons

3.2.3. Approximation de Born-Oppenheimer

Une première simplification peut être effectuée en adoptant l'approximation de Born-Oppenheimer qui consiste à découpler le mouvement des électrons de celui des noyaux. En fait, vu le rapport des masses, il est raisonnable de négliger T_n en comparaison avec T_e de sorte que l'énergie des noyaux se réduit à l'énergie d'interaction électrostatique classique V_{nn} [50,51]. L'Hamiltonien se réduit donc à l'expression suivante [51]:

$$H = T_n(P) + V_{ne}(r, R) + V_{ee}(r) + T_e(P) \quad (3.3)$$

Le terme qui rend la résolution directe du problème très difficile est l'énergie de répulsion entre électrons V_{ne} qui dépend des positions relatives de toutes les paires d'électrons et qui requiert la connaissance de la fonction d'onde à N corps. La DFT et l'approche Kohn-Sham permettent de reformuler le problème sous une forme pouvant être traitée en pratique.

Pour résoudre l'équation de Schrödinger, deux approches peuvent être distinguées [25,48-52]

- les méthodes utilisant la fonction d'onde ψ ,
- les méthodes basées sur la densité électronique $\rho(r)$.

3.2.4. Méthode basée sur la fonction d'onde[52]

Bien que les degrés de liberté des ions et des électrons soient à présent découplés par l'approximation de Born-Oppenheimer, la fonction d'onde $\psi(r_j)$ dépend de la position de chaque électron dans le système ce qui ne permet pas une résolution numérique simple du problème. Une méthode astucieuse fut proposée au milieu des années soixante par Kohn et Sham suite aux travaux de Hohenberg et Kohn

3.2.4.1. Méthode Hartree-Fock

Une des premières tentatives fut celle de Hartree qui exprima la fonction d'onde globale comme un produit de fonctions mono-électroniques. Les mouvements des électrons dans cette approximation ne sont pas corrélés : chacun des électrons est décrit dans le champ moyen créé par les autres électrons. Le comportement d'un seul électron est ainsi soumis à un potentiel électronique moyen reproduisant l'effet de tous les autres électrons sur cet électron.

Le système électronique dans l'approximation de Hartree est incomplètement décrit. Ainsi peut-on présenter la différence entre l'énergie du système multiélectronique réel et celle obtenue dans l'approximation de Hartree comme celle qui représente le restant des interactions électroniques.

La méthode Hartree-Fock est une méthode variationnelle de résolution de l'hamiltonien [48]:

$$\langle H \rangle = \frac{\langle \psi | H | \psi \rangle}{\langle \psi | \psi \rangle} \quad (3.4)$$

Elle consiste à proposer des orbitales initiales, introduites dans les équations d'Hartree-Fock. Si les nouvelles orbitales améliorées sont différentes des précédentes, la procédure est répétée avec ces nouvelles orbitales jusqu'à la convergence. Quand la convergence est atteinte la méthode s'arrête : c'est une méthode auto-cohérente[48,53].

Malgré les résultats très convaincants obtenus grâce à cette méthode. La limite de la méthode Hartree-Fock est en fait due à l'absence de prise en compte des effets de la corrélation électronique. En plus les méthodes sont cependant très coûteuses en temps et en puissance de calculs et sont applicables uniquement pour le cas de petits systèmes[48].

3.2.5. Méthode basée sur la densité électronique

La DFT trouve ses origines dans le modèle développé par Llewellyn Thomas et Enrico Fermi à la fin des années 1920. Néanmoins il faudra attendre le milieu des années 1960 et les contributions de Pierre Hohenberg, Walter Kohn et Lu Sham pour que soit établi le formalisme théorique sur lequel repose la méthode actuelle[48,49].

La DFT a déjà été détaillée dans de nombreux ouvrages, thèses et mémoires, de sorte que nous allons nous contenter de donner ici la plupart des résultats sans démonstration et insister surtout sur la signification des concepts qu'elle introduit[48-53].

3.2.5.1- Théorèmes de Hohenberg et Kohn[25,54]

La DFT s'articule autour des deux théorèmes démontrés par Hohenberg et Kohn et qui s'énoncent comme suit :

Premier Théorème : Pour tout système de particules en interaction dans un potentiel externe $V_{ext}(r)$, le potentiel $V_{ext}(r)$ est uniquement déterminé, à une constante additive près, par la densité $n_0(r)$ de la particule dans son état fondamental

Second Théorème : Il existe une fonctionnelle universelle $E[n]$ exprimant l'énergie en fonction de la densité électronique $n(r)$, valide pour tout potentiel externe $V_{ext}(r)$. Pour chaque $V_{ext}(r)$ particulier, l'énergie de l'état fondamental du système est la valeur qui minimise cette fonctionnelle, la densité $n(r)$ qui lui est associée correspond à la densité exacte $n_0(r)$ de l'état fondamental.

b)- Equations de Kohn et Sham

L'approche proposée par Kohn et Sham en 1965 suite aux travaux de Hohenberg et Kohn peut être résumée par l'idée suivante :

{ Le gaz électronique peut être décrit par des particules fictives sans interactions, représentées par des fonctions d'ondes mono particules, $\phi_j(r)$, telles que le gaz de particules fictives présente à l'état fondamental la même densité électronique, donc la même énergie $E[n]$ que le gaz électronique réel.

Cette idée constitue la base des calculs ab initio par la théorie de la fonctionnelle de la densité.

Pour un gaz de N électrons, représenté par N particules fictives, Les fonctions d'ondes $\phi_j(r)$ sont solutions des équations de Kohn-Sham

$$[\hat{T}_e(r) + V_{eff}(r)]\phi_j(r) = \varepsilon_j \phi_j(r) \quad (3.5)$$

Avec $\hat{T}_e(r)$ est l'opérateur énergie cinétique des particules fictives sans interaction et ε_j l'énergie de l'état $\phi_j(r)$. Les particules fictives subissent un potentiel effectif $V_{eff}(r)$, somme de trois potentiels :

$$V_{eff}(r) = V_{ext}(r) + V_H(r) + V_{XC}(r) \quad (3.6)$$

Avec $V_H(r)$ le potentiel de Hartree ou potentiel d'interaction coulombien classique entre les particules de gaz électronique et $V_{XC}(r)$ le potentiel d'échange corrélation.

Ces deux termes s'expriment très simplement en fonction de la densité électronique

$$V_H(r) = e^2 \int \frac{n(r')}{|r-r'|} d^3r' \quad (3.7)$$

$$V_{XC}(r) = \frac{\delta E_{XC}[n]}{\delta n(r)} \quad (3.8)$$

A ce stade, la résolution des équations de Kohn-Sham est impossible puisque le potentiel $V_{XC}(r)$ ne présente pas de formulation explicite.

c)- Les principales approximations

il existe de nombreuses approximations de la fonctionnelle d'échange-corrélation ; elles sont désignées par un groupe de lettres (souvent les initiales des auteurs) dont la première partie désigne la méthode de calcul de l'échange et la deuxième celle de la corrélation

Les fonctionnelles les plus répandues sont la LDA, l'Approximation de la Densité Locale et la GGA, l'Approximation du Gradient Généralisé[48].

c.1)- Approximation Locale de la Densité (LDA)

Dans un seul cas modèle, celui du gaz uniforme d'électrons (correspondant assez bien aux électrons de la bande de conduction d'un métal), on connaît les expressions exactes ou avec une excellente approximation des termes d'échange et de corrélation respectivement[56]. Dans cette approximation LDA (Local Density Approximation), la densité électronique est supposée localement uniforme et la fonctionnelle d'échange-corrélation est de la forme :

$$V_{XC}^{LDA}[\rho] = \int \rho(\vec{r}) \varepsilon_{xc}(\rho(\vec{r})) dv \quad (3.9)$$

Son extension aux systèmes sans contrainte de spin (unrestricted) prend le nom de LSD (Local Spin Density). La fonctionnelle d'échange-corrélation distingue les densités α et β sous la forme[55,56]:

$$V_{XC}^{LDA}[\rho_\alpha, \rho_\beta] = \int \rho(\vec{r}) \varepsilon_{xc}(\rho_\alpha(\vec{r}), \rho_\beta(\vec{r})) dv \quad (3.10)$$

Ces méthodes fournissent souvent d'assez bonnes propriétés moléculaires (géométrie, fréquences) mais conduisent généralement à de très mauvaises données énergétiques telles que énergies de liaison etc[52-54].

c.2)- Approximation du Gradient Généralisé (GGA) [57]

La manière la plus naturelle d'améliorer la LDA est de tenir compte de l'inhomogénéité de la densité électronique en introduisant dans l'énergie d'échange et corrélation des termes dépendant du gradient de la densité.

La GGA (Generalized Gradient Approximation) permet d'introduire une combinaison entre les termes locaux et des termes dépendant du gradient. Elle donne de bons résultats et permet d'améliorer les énergies de cohésion et les paramètres de maille.

L'approximation du gradient généralisé considère les fonctions d'échange-corrélation dépendant non seulement de la densité en chaque point, mais aussi de son gradient, de la forme générale :

$$V_{XC}^{GGA}[\rho_\alpha, \rho_\beta] = \int f(\rho_\alpha, \rho_\beta, \nabla\rho_\alpha, \nabla\rho_\beta) dv \quad (3.11)$$

c.3)- Approximation de pseudopotentiel

Jusqu'ici en résolvant l'équation de Schrödinger, nous nous sommes intéressés à un système d'atomes interagissant entre eux. Reste à savoir maintenant comment nous allons représenter chacun de ces atomes. Pour cela, nous allons utiliser ce que l'on appelle des pseudopotentiels[59].

Un atome est constitué de noyaux et d'électrons, ces derniers sont divisés en deux catégories[48-59]:

- Les électrons de cœur : proches du noyau et fortement liés au noyau, aux orbitales très localisées et basses en énergie, peu sensibles à l'environnement et par conséquent ne participent pas dans la plupart des cas aux liaisons chimiques.
- Les électrons de valence : loin du noyau, aux orbitales peu localisées participent pleinement aux liaisons chimiques et de ce fait elles déterminent les propriétés physico-chimiques du système.

Ces électrons n'ayant ni les mêmes caractéristiques, ni la même fonction, Fermi eut l'idée de les distinguer pleinement et de se « débarrasser » des électrons de cœur pour ne considérer que les électrons de valence pour la participation à la liaison chimique. Ainsi, seules les orbitales les plus éloignées du noyau seront prises en compte pour la liaison chimique et les orbitales des électrons du cœur les plus proches du noyau sont incluses dans le potentiel du noyau : c'est le pseudopotentiel.

3.2.5. Limites des méthodes quantiques

Les simulations quantiques sont limitées en taille, quelques centaines d'atomes au mieux et en temps de simulation (quelques picosecondes). Elles ne permettront donc que de décrire des mécanismes « locaux », c'est-à-dire par exemple un événement particulier au cours d'une réaction. Pour décrire un événement sur des tailles et des échelles de temps plus importantes, le passage à une méthode moins précise est obligatoire.

3.3. Méthodes Mésooscopiques (Macroscopique)

Lorsque le nombre d'atomes à simuler devient trop important, il n'est plus possible de calculer la densité électronique locale. On se contente donc de prédire les positions des atomes ; l'interaction entre ces atomes est engendrée par les électrons, mais il est souvent possible de l'approcher par des potentiels interatomiques.

L'aspect quantique n'apparaît plus explicitement et on parle de dynamique moléculaire classique. Les atomes évoluent sous l'effet des forces inter atomiques. Un des points cruciaux est déterminé au mieux le potentiel d'interaction dynamique moléculaire classique[59].

Les propriétés calculées grâce aux outils présentés précédemment (calcul ab initio) ne peuvent pas toujours être associées directement à des grandeurs macroscopiques accessibles dans des expériences. C'est pourquoi des techniques heuristiques, conjuguant considérations à l'échelle atomique et atteinte de propriétés macroscopiques, doivent être mises à contribution. De plus, dans le cadre de l'étude d'un procédé de croissance cristalline, les techniques permettant l'étude de l'évolution d'un système au cours du temps sera des outils particulièrement intéressants[6,60].. On situer deux méthodes de simulations principales a cette échelle : Dynamique Moléculaire (MD en anglais Molecular Dynamics) et la Monte Carlo Cinétique (KMC).

3.3.1. La méthode de Dynamique Moléculaire

La Dynamique Moléculaire simule, à partir des lois de la mécanique classique, les trajectoires des atomes en phase cristalline, en solution ou en phase gazeuse. Elle donne l'évolution d'un système dans l'espace conformabilité au cours du temps[20]. Une résolution numérique des équations classiques du mouvement est utilisée pour calculer l'énergie du système le long de son parcours sur la surface du potentiel de système.

3.3.1.1. Principe de la Dynamique Moléculaire

Les simulations de dynamique moléculaire consistent à calculer les positions et les vitesses d'un système d'atomes. En dynamique moléculaire classique, chaque atome de la molécule est considéré comme une masse ponctuelle dont le mouvement est déterminé par l'ensemble des forces exercées sur lui par les autres atomes en fonction du temps[61]. A une température donnée, une vitesse initiale est attribuée à chaque atome. A partir de ces vitesses, considérées

constantes, la position des atomes change en $v_i \partial t$ où v_i est la vitesse de l'atome i et ∂t est l'incrément de temps. Avec ces nouvelles coordonnées, on détermine les forces qui agissent sur chaque atome selon le champ de force et le potentiel utilisé, et selon La seconde loi de Newton, on attribue les nouvelles vitesses et positions[62].

$$\vec{F}_i = m_i \vec{a}_i = m_i \frac{\partial^2 \vec{r}}{\partial t^2} \quad i \in [1, n] \quad (3.12)$$

Où :

n est le nombre d'atomes dans le système.

m_i : Masse de l'atome i .

r_i : Position de l'atome i

\vec{a}_i : Vecteur accélération de l'atome i .

\vec{F}_i : Vecteur force agissant sur l'atome i .

Comme la montre l'équation de Newton, la vitesse et le sens du mouvement atomique dépendent des forces qui s'exercent sur les atomes.

On suppose que l'expression analytique de la force qui s'applique à chaque atome est connue :

$$F_i = - \sum_j \nabla V(r_{ij}) \quad (3.13)$$

Dans le cas d'un potentiel à deux corps, les expressions de $V(r_{ij})$ peuvent être assez variées.

L'intérêt de la DM est de donner une dépendance temporelle réaliste des grandeurs que l'on veut étudier.

3.2.1.2. Intégration des équations du mouvement

Les méthodes numériques pour résoudre des systèmes d'équations différentielles du type de l'équation (3.10) présentent une zoologie plutôt abondante : toutes approximent l'intégration sur une variable continue par une sommation sur une variable qui prend des valeurs discrètes du type[62]:

$$t_i = (i - 1)dt \quad (3.14)$$

Où dt est le pas d'intégration dont la valeur est petite mais finie. Ainsi, on part d'un instant t où les positions et vitesses des atomes sont connues et par application d'un pas d'intégration l'on obtient les positions et vitesses des atomes à l'instant $t + dt$. En appliquant de nouveau la même opération un grand nombre de fois on obtient finalement la liste des positions et des vitesses des atomes au cours du temps.

Les méthodes les plus simples et les plus utilisées dans ce genre de calcul sont : Méthode d'Euler, méthode de Runge – Kutta, l'algorithme de Verlet, méthode de prédicteur – correcteur[62].

3.3.1.3. Limites de la Dynamique Moléculaire

Par rapport aux autres méthodes de simulation, la dynamique moléculaire présente deux inconvénients majeurs[62,64,65] :

- Limitation du nombre d'atomes traité.
- Le cout en termes de temps de calcul est très important.

Les ordres de grandeurs raisonnables sont [62] :

- ✓ $N \cong 10^4 - 10^5$ *atomes*
- ✓ $\lambda \leq 10$ *nm*
- ✓ $\delta_t \cong 10^{-3}$ *ps*
- ✓ 10^{-2} *THz* $\leq \nu \leq 10$ *THz*

3.3.2. Méthodes de Monte Carlo

La méthode de Monte Carlo est une méthode numérique, qui utilise des tirages aléatoires pour réaliser le calcul d'une quantité déterministe.

3.3.2.1 Pourquoi le nom : Monte Carlo ?

Le nom Monte Carlo a été mis en exergue durant le projet Manhattan durant la 2^{ème} guerre mondiale à cause des similitudes entre les simulations statistiques mises au point à cette occasion et les jeux de hasard dont ville de Monte-Carlo était la capitale à cette époque[48,65].

La méthode de Monte Carlo repose sur la théorie des probabilités dans laquelle, mathématiquement, le hasard est absent. Elle est utilisée dès la fin du dix neuvième siècle pour calculer numériquement des intégrales. Dans le cadre de la physique statistique et plus précisément du calcul de grandeurs thermodynamiques, elle est utilisée pour la première fois en 1953 par Metropolis et al[41].

La description des algorithmes qui traitent et résolvent d'une manière exacte les problèmes cinétiques ont été développé par Bortz, Kalos et Lebowitz en 1975 ; avec l'invention de l'algorithme de temps de résidence. Cette approche on introduisant une nouvelle approche permet d'interpréter les algorithmes statiques en terme cinétique (algorithme BKL : Bortz, Kalos et Lebowitz) [41,48,65].

3.3.2.2. Définition

La méthode de Monte Carlo est une méthode de simulation probabiliste (non déterministe comme la Dynamique Moléculaire) qui se fonde sur l'échantillonnage aléatoire et l'analyse statistique. La MC utilise des tirages aléatoires pour réaliser le calcul d'une quantité déterministe.

La MC est une approche pour résoudre le problème de Transport d'électrons et d'ions basés sur la simulation numérique du mouvement pour un grand ensemble de particules ou les processus de collision sont présentes par tirage des nombres aléatoires distribués uniformément

La méthode de Monte Carlo a été utilisée depuis des siècles, mais ce n'est que durant les dernières décennies qu'elle a gagné le statut de méthode numérique à part entière, capable de résoudre les applications les plus complexes.

La méthode de Monte-Carlo est utilisée aujourd'hui dans des champs d'applications aussi variés et complexes afin de résoudre des systèmes de manière stochastique aléatoire

Les méthodes Monte Carlo peuvent servir pour [65,66]:

- Calcul d'intégrale.
- Résolution d'équations aux dérivées partielles.
- Résolution de système linéaire.
- Résolution de problèmes d'optimisation.

3.3.2.3. Variantes des méthodes Monte Carlo

Il existe plusieurs variantes des méthodes de Mont, selon le domaine d'application. On peut citer par exemple : Metropolis Monte Carlo, Thermodynamics Monte Carlo, Lattice Monte Carlo, Quantum Monte Carlo, Monte Carlo Cinétique[6,65,66],

3.3.2.4. Avantages des techniques Monte Carlo

Le principal avantage de ces méthodes est de couvrir des échelles de temps et de taille plus grandes que les méthodes quantiques et la méthode de la Dynamique Moléculaire, tout en étant de faibles consommatrices de temps de calculs.

Les techniques Monte Carlo reflètent l'évolution exacte d'un système : à condition que la simulation soit réalisée de façon correcte et précise, le résultat final peut être comparé de façon directe à des expériences réelles et quelquefois peuvent s'avérer être non distinguables[66].

Le caractère stochastique du Monte Carlo peut être discutable dans le sens où le nombre aléatoire nécessaire à la conduite d'une bonne simulation Monte Carlo est généré par un ordinateur, par conséquent de manière intrinsèquement déterministe[67]! Cependant, l'utilisation de ces nombres pseudo-aléatoires présente un grand avantage : ils permettent de pouvoir

reproduire exactement une même simulation à condition que les paramètres d'entrée restent inchangés d'une simulation à l'autre. Plus que tout autre argument, ces nombres aléatoires permettent de manière très précise de pouvoir sonder et étudier l'influence d'un seul paramètre sur un système.

Précédemment, nous avons abordé avec les calculs *ab initio* le concept de mécanismes élémentaires. Pour qu'une simulation Monte Carlo cinétique soit la plus réaliste possible, il convient de connaître tous ces mécanismes élémentaires susceptibles de se produire dans un système donné. Les mécanismes élémentaires doivent par conséquent être connus et minutieusement caractérisés.

3.3.2.5 Algorithme de Monte Carlo Metropolis

La méthode de Monte Carlo (MC) Metropolis a été introduite en physique de la matière condensée par Metropolis en 1953[69].

a)- Principe

A partir d'une configuration initiale C , une configuration C' vers laquelle une transition est physiquement possible est choisie de façon aléatoire. Pour un mécanisme d'échange lacunaire, cela revient donc à choisir une lacune et un atome voisin avec lequel, cette lacune peut s'échanger. La probabilité $\rho_{C \rightarrow C'}$ d'effectuer cette transition est calculée en multipliant la fréquence $W_{C \rightarrow C'}$ par l'intervalle de temps τ associé à un pas Monte Carlo, cet intervalle de temps étant une constante choisie a priori. Un nombre aléatoire est alors tiré dans l'intervalle $[0 : 1]$ et suivant, ce nombre est inférieur ou supérieur à $\rho_{C \rightarrow C'}$, la transition est effectuée ou non. Dans tous les cas, le temps est incrémenté de l'intervalle τ et la procédure est répétée[70].

Cet algorithme présente l'inconvénient de devoir choisir a priori l'incrément de temps τ associé à chaque pas Monte Carlo. Celui-ci doit être choisi de façon à ce que pour toutes les transitions réalisables par le système les probabilités $\rho_{C \rightarrow C'} = \tau W_{C \rightarrow C'}$ soient inférieures à 1.

Cependant le choix d'une valeur trop petite pour τ est à prohiber également car les probabilités de transition deviennent alors si faibles que tous les essais de transition sont rejetés et l'algorithme devient inefficace[65,70].

L'algorithme d'échantillonnage de Monte Carlo Metropolis procède comme suit [71]:

- a. Sélectionner au hasard un site sur la surface.
- b. Générer un nombre aléatoire pour déterminer une tentative : absorption ou désorption d'un atome
- c. Calculer la variation d'énergie de déplacement ΔE .

- d. Si $\Delta E \leq 0$, accepter le déplacement, et aller à l'étape (e); si non générer un nombre aléatoire r tel que : $0 < r < 1$.
 If $r \leq \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_b T}\right)$, accepter le déplacement, et aller à l'étape (e).
 If $r \geq \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_b T}\right)$, refuser la configuration (le déplacement), et aller à l'étape (a)
- e. Mise la hauteur de site de la surface.
- f. calculer et enregistrer des valeurs d'intérêt tels que la hauteur moyenne de la surface, énergie,...
- g. Retourner à (a) selon les besoins.

b)- Algorithme de temps de résidence[70]

Il n'y a visiblement pas de temps dans la méthode de Monte Carlo Metropolis. Il y a seulement des observables moyennées sur un échantillon de configurations. Pour cela plusieurs travaux ont tenté de donner une interprétation dynamique à la méthode de Metropolis, afin qu'à chaque pas de la chaîne est associé à un intervalle de temps constant et proportionnel à $1/n$ (d'où n est le nombre de configurations possibles) et c'est ce qui définit la cinétique du procédé.

D'autre part, en 1975; Bortz, Kalos et Lebowitz ont proposé un autre algorithme qui se base sur l'amélioration du calcul de la quantité statique, dans lequel le système change de configuration à chaque pas mais où les moyennes se font par intégration sur une variable aléatoire, temps.

3.3.2.6. Méthode de Monte Carlo Cinétique (KMC)

La méthode de Monte Carlo cinétique (Kinetic Monte Carlo en anglais), ou bien la méthode de Monte Carlo d'équilibre, est une technique de simulation d'un système de N particules. La MCC se base sur l'algorithme du temps de résidence inventé par Bortz, Kalos et Lebowitz, et connue par l'algorithme BKL qui est définit comme un outil bien adapté pour étudier les cinétiques de transformation de phase à l'échelle atomique[72,73].

L'utilisation de la méthode de Monte Carlo pour l'étude des processus cinétiques a été débutée depuis plus 35 ans. Mais l'évolution de programmes de croissance cinétique par base sur cet algorithme s'est alors développée en 1994. Ces simulations, appelées à partir de cette date (1994) simulation KMC l'évolution de programmes de croissance cinétique sont alors développées depuis 1994 (Monte Carlo Cinétique ou bien Kinetic Monte Carlo) prennent en compte également tous les ingrédients physique essentiels à la croissance (dépôt, diffusion, absorption, désorption, ...) d'un point de vue atomique[64-74].

La méthode de MCC est une procédure de résolution des équations cinétiques. Elle s'inspire du Monte Carlo Metropolis et possède surtout un grand avantage de n'oublier aucun mécanisme, car même ceux possédant les plus faibles probabilités sont testés. Ces

techniques sont très utilisées pour suivre des mécanismes physiques comme l'épithaxie, l'évolution, la croissance de couches, la diffusion des atomes, ...

les simulations de Monte Carlo cinétique permettent de reproduire et également de prédire une large variété de comportements cinétiques à une échelle mésoscopique. La méthode KMC (Kinetic Monte Carlo) a comme but[74]:

- Résoudre les équations cinétiques de croissance
- Reproduire des processus hors-équilibre
- Avoir une évolution correcte en temps du système simulé par une procédure MC simple.

Dans la méthode de MCC les changements de configuration doivent correspondre aux événements réels. Chacun de ces événements peut se produire avec une certaine probabilité par unité de temps.

3.3.2.6. Algorithme de Monte Carlo cinétique

Comme toute simulation Monte Carlo, les simulations Monte Carlo cinétique consistent à générer une chaîne de configurations possibles pour le système étudié. Cependant, dans le cas d'un algorithme cinétique, cette chaîne est générée de façon à correspondre à un chemin cinétique ayant un sens physique alors que dans le cas d'un algorithme thermodynamique, on cherche seulement à faire converger le système vers son état d'équilibre thermodynamique et à échantillonner cet état d'équilibre pour en déduire des moyennes thermodynamiques[70].

Partant d'un état initial connu, l'algorithme de Monte Carlo cinétique revient donc à générer des trajectoires dans l'espace des phases de façon à ce que l'ensemble de ces trajectoires reproduit l'évolution moyenne du système ainsi que les fluctuations autour de cette évolution moyenne. Les probabilités associées aux différentes configurations définissant chacune de ces trajectoires doivent respecter l'équation maîtresse

$$\frac{d\rho(C,t)}{dt} = \sum_{C'} [\rho(C',t)W_{C' \rightarrow C} - \rho(C,t)W_{C \rightarrow C'}] \quad (3.15)$$

où nous avons défini $\rho(C,t)$ comme la probabilité d'observer le système dans la configuration C à l'instant t connaissant la distribution des probabilités à l'instant initial et $W_{C \rightarrow C'}$ comme la probabilité de passer de la configuration C à C' par unité de temps[72,73].

Afin que le système converge vers son état d'équilibre thermodynamique, il faut imposer que les lois de probabilité $W_{C \rightarrow C'}$ vérifient la condition de bilan détaillé

$$\bar{\rho}(C')W_{C' \rightarrow C} = \bar{\rho}(C)W_{C \rightarrow C'} \quad (3.16)$$

D'où :

$\bar{p}(C)$ est la probabilité à l'équilibre thermodynamique d'observer le système dans la configuration C . Le bilan détaillé constitue en fait une condition suffisante mais pas forcément nécessaire. Il impose l'absence de flux à l'équilibre entre les différentes configurations du système : à l'équilibre, il y a autant de transitions de la configuration C vers C' que de C' vers C . Dans ce cas, la probabilité de transition est donnée par la statistique de Boltzmann,

$$\bar{p}(C) = \frac{1}{Z} \exp(-E_c/kT) \quad (3.17)$$

D'où :

E_c est l'énergie du système dans la configuration C .

Z est la fonction de partition du système, est une constante de normalisation qui se définit comme :

$$Z = \sum_C \exp\left(-\frac{E_c}{kT}\right) \quad (3.18)$$

La mise en œuvre de l'algorithme de Monte Carlo Cinétique nécessite donc tout d'abord de définir l'ensemble des configurations accessibles au système et également de connaître pour chacune de ces configurations l'énergie associée.

On passe donc d'une configuration C à une configuration C' par échange d'une lacune avec un de ses voisins, échange qui se limite en général aux atomes premiers voisins de la lacune. La fréquence à laquelle un tel échange a lieu est une grandeur thermiquement activée et peut donc s'écrire sous la forme :

$$W_{C \rightarrow C'} = v_{C \rightarrow C'} \exp\left(-\frac{E_{C \rightarrow C'}^a}{kT}\right) \quad (3.19)$$

Avec :

$v_{C \rightarrow C'}$: est la fréquence d'essai.

$E_{C \rightarrow C'}^a$: Energie d'activation associée à la transition. Elle est définie comme la différence d'énergie entre la configuration initiale C et la position de col, c'est-à-dire la configuration où le système est à son maximum d'énergie au cours de la transition pour aller de C à C' .

Donc, on peut résumer une simulation Monte Carlo Cinétique en dix étapes, répétées plusieurs fois jusqu'au le temps de simulation s'atteint [6] :

- a. Ajuster le temps $t = 0$.
- b. Recensement des taux r_i de toutes les transitions possibles W_i du système, d'où $i = 1, \dots, N$ (avec N est le nombre total des transitions).
- c. Calculer la fonction de cumulation $R_i = \sum_{j=1}^i r_j$.

- d. Générer un nombre aléatoire uniforme $u \in [0,1]$.
- e. Trouver l'événement i qui s'est produite est tiré aléatoirement et uniformément selon les probabilités r_i . Cet événement est donc choisi comme : $R_{i-1} < u R \leq R_i$ (avec $R = R_N$).
- f. Exécuter l'événement i .
- g. Trouvez tous les W_i et recalculer tous r_i qui se changent durant la transition.
- h. Générer un nouveau nombre aléatoire uniforme $u \in [0,1]$.
- i. Incrémenter le temps $t = t + \Delta t$ avec $\Delta t = -\frac{\log(u)}{R}$.
- j. Revenir à l'étape b.

Tous ces étapes sont schématisées dans la figure 3.2 qui représente l'organigramme de l'algorithme de Monte Carlo cinétique (KMC)

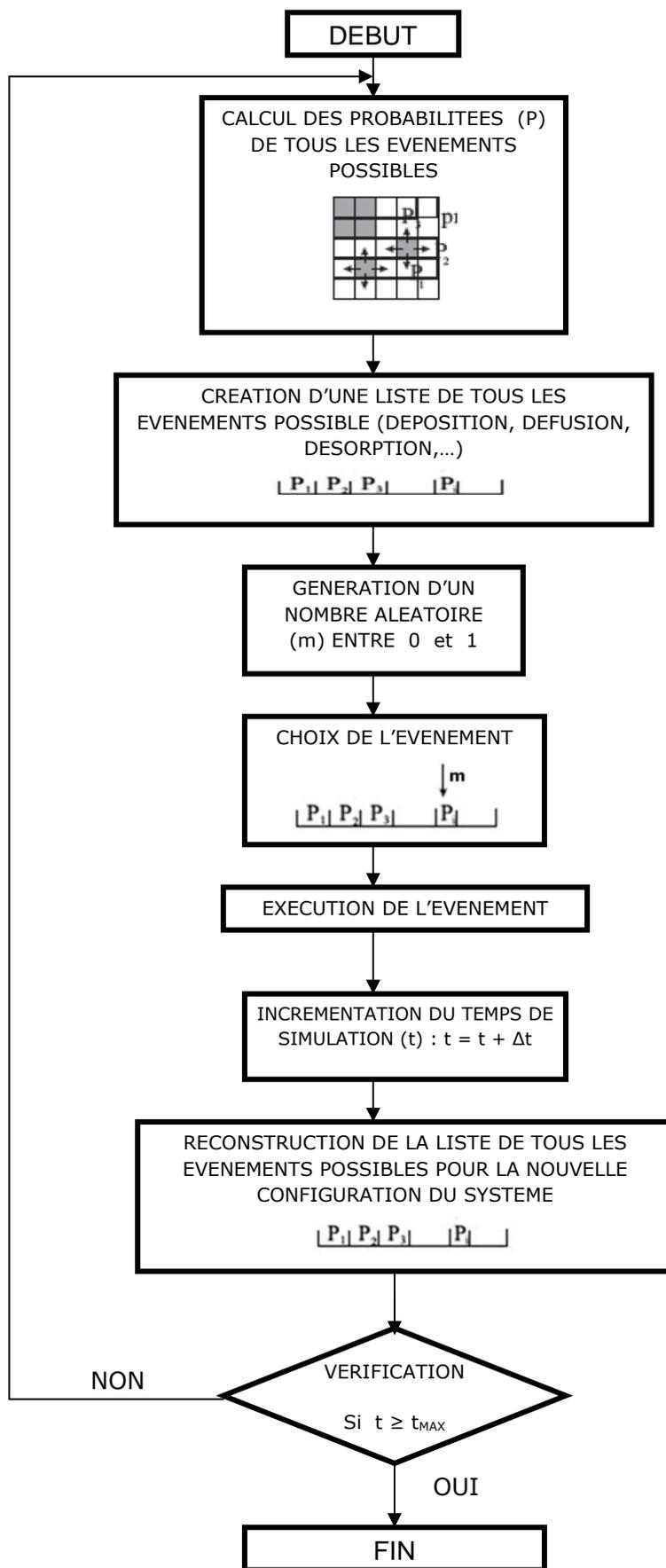


Figure 3.2 : Organigramme de l’algorithme KMC [6].

3.3.3. Inconvénients de la méthode KMC[63-66]

- La détermination de tous les événements possibles de réactions avant de commencer la simulation.
- Classement de la liste des événements possibles.

3.3.4. Théorie de la croissance

Les étapes de la croissance cristalline sont

- Dépôts
- diffusion
- Nucléation
- Croissance des îlots

3.3.4.1. Observation chronologique d'un dépôt[15,25]

Les étapes de croissance cristalline citées par avant sont représentées sur la figure 3.3

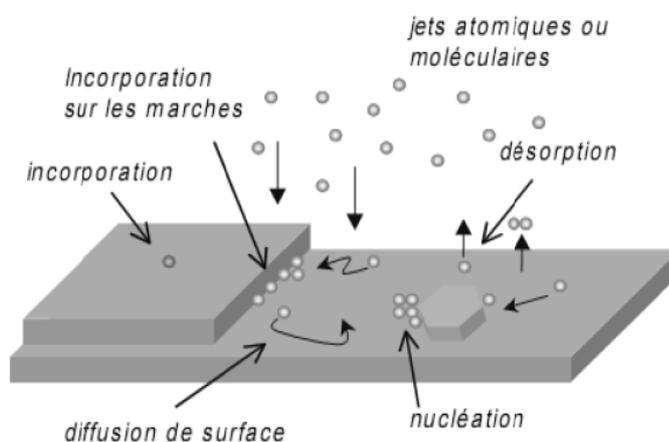


Figure 3.3: Schéma de la chronologie d'un dépôt d'atomes

a)- Dépôts

C'est le dépôt des atomes des jets moléculaires sur les sites vacants admissibles.

b)- Diffusion

Après le dépôt, les atomes migrent ensuite, selon un mouvement brownien au cours du quels les atomes passent d'un site atomique a un site voisin. Il se forme alors sur le substrat un gaz bidimensionnel d'atomes en mouvement : les adatoms.

c)- Nucléation

On entre ensuite dans la phase de nucléation pendant laquelle ce gaz se condense en particules polyatomiques (îlots), autour de germes qui se créent quand certains adatoms s'immobilisent sur la surface.

Il y a sur la surface des défauts qui sont des sites d'accueil possible, parce qu'ils présentent un puit potentiel plus profond dont l'origine est varié : atomes manquants (lacunes), marches, impuretés adsorption,...

Quand un adatome tombe dans un défaut, il y est en général piège indéfiniment, il se forme alors une molécule à deux atomes dont le coefficient de diffusion est considérablement réduit par rapport à celui du monomère, de sorte que l'on peut considérer ce dernier comme immobile, le processus alimente une voie de nucléation dite (homogène) ; dans la quelle le dimère constitue le germe initial.

d)- Croissance

Après la nucléation, on passe à l'étape de croissance où les adatoms libres s'agrègent aux germes fixes créés. La thermodynamique nous assure que dans la majorité des conditions expérimentales les molécules de plus de atomes ne se dissocient pas. Ainsi, les germes grossissent irréversiblement et la proportion de la phase condensée s'accroît. Dans le cas des surfaces, le terme de nucléation regroupe une notion de fixation des germes, ainsi qu'un concept thermodynamique de transition de phase.

Chapitre 4

Modélisation de la croissance épitaxiale par Jets Moléculaires (DLA et SOS)

Modélisation de la Croissance Epitaxiale par Jets Moléculaires

La modélisation de la croissance est fondamentale puisqu'elle permet d'une part de confirmer les expériences effectuées par jets atomiques, et d'autre, d'analyser les phénomènes microscopiques responsables de l'apparition d'un mode de croissance particulier. Et en fin elle possède un caractère prédictif.

Dans cette partie, nous présentons les différents modèles décrivent la croissance cristalline par jets moléculaires (Modèle EDEN, Diffusion limitée par agrégation (DLA), Solide sur solide (Solid On Solid).

4.1. Modèles de la croissance des fractals

Dans un premier temps, nous nous proposons d'étudier les croissances des fractales tel que : la croissance de EDN et la diffusion limitée par agrégation[75].

4.1.1. Modèle EDEN

Le modèle EDEN est le premier modèle de réaction limitée par agrégation, développé pour la simulation de la croissance des colonies de cellule en 1958 [78]. Ce modèle est schématisé dans la figure (IV-1) qui représente la construction d'un cluster d'Eden sur un treillis carré.

Dans sa version la plus simple, Eden a proposé en 1961 le modèle original; Un emplacement occupé de périmètre a été choisi aléatoirement et un de ses emplacement inoccupés de périmètre de proche voisin a été alors choisi aléatoirement et rempli [75,76].

Une autre variante simple du modèle d'Eden, des emplacements inoccupés de périmètre sont choisis aléatoirement et remplis de probabilité proportionnelle aux nombres des plus proches voisins occupés[75].

Le modèle simule la prolifération des cellules malveillantes (en noir) à partir d'une cellule simple par la contamination des plus proches voisins (emplacements de croissance, en blanc) ; figure 4.1.

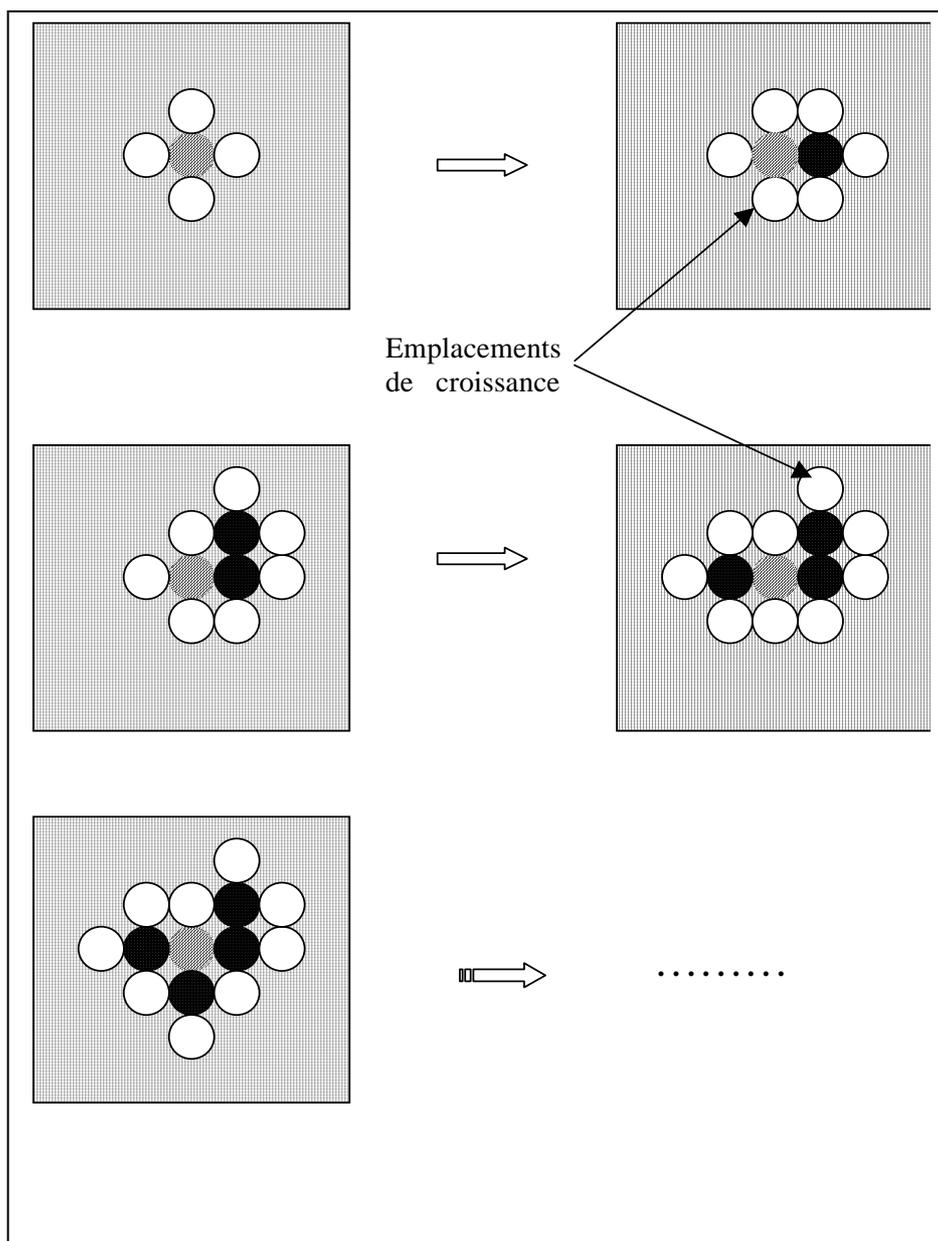


Figure 4.1 : Construction d'un cluster d'Eden sur un treillis carré [15].

La figure 4.1 montre le mécanisme de croissance d'un fractal à partir du modèle de Eden ; cette figure montre l'existence d'un seul centre de nucléation

4.1.2 Modèle de la Diffusion Limitée par Agrégation (DLA)

L'objectif de cette partie de ce chapitre est d'étudier les processus de croissance épitaxiale (Déposition, Diffusion et Agrégation) ; on doit aboutir après résolution aux résultats suivant avec le modèle de la diffusion limitée par agrégation en deux et trois dimensions (2D et 3D):

- Dimension fractale.
- Rayon du cluster.

- Forme dendritique du cluster.

Le modèle DLA (Diffusion Limited Aggregation) est un modèle numérique. Son but est de modéliser puis simuler sur ordinateur la génération de formes fortement ramifiées observées dans la nature : Décharge électrique, en étoiles, croissance de cristaux, de polymères et de colonies de bactéries. C'est un phénomène limitant la formation du cluster est donc la diffusion des particules qui alimentent sa croissance [77,78,79].

Pourquoi le DLA ?

Le modèle DLA semble comme un modèle très simple, pourtant, il a produit beaucoup de problème embrassant pour des mathématiciens et des physiciens.

le DLA est un modèle mathématique qui nous permet d'analyser et d'étudier certains phénomènes réels de croissance dans la nature ; y compris la croissance bactérienne, dépôt électrolytique, gisement et l'épitaxie des couches minces, dissolution des matériaux poreux[77].

4.1.2.1. Diffusion Limitée par Agrégation en 2D

L'algorithme de simulation est basé sur le modèle DLA proposée par Witten et Sander,[80] à son tour leur modèle est basé sur le modèle Eden.

a). Algorithme de Simulation [6]

Initialement, le programme pose une particule « atome » (représenté graphiquement dans le programme par un cercle de rayon a) dans le centre du cluster qui est considéré comme centre de nucléation. Après une autre particule lancé d'une position choisit aléatoirement a une distance circonférentielle de rayon R du centre de nucléation, la particule diffuse aléatoirement dans les quatre directions de la grille (haut, bas, a gauche, a droite), dans ce cas deux événements sont possible : si elle atteint une position proche du centre de nucléation, elle est stoppé est ajouté au agrégat Si elle dépasse une certaine distance R_{final} du cluster, elle est retirée de la simulation. Une autre particule est lancée, elle est ajouté ou cluster si elle prend une position proche des particules du cluster ou elle est retiré du cluster si elle dépasse une distance R_{final} . On répète la procédure plusieurs fois jusqu'on obtient un cluster de masse M prédéfini par l'utilisateur.

Les procédures de simulation peuvent être groupées en quatre étapes :

- **Initialisation :**

Déposition d'une particule au centre de la grille (centre de nucléation), (la masse du cluster : $M = 1$, rayon de l'amas $R_{MAX} = 1$).

- **Génération d'une nouvelle particule**

Lancement d'une nouvelle particule à une distance R_{debut} , typiquement R_{debut} prend des valeurs entre $R_{MAX} + 2$ et $R_{MAX} + 10$. Dans notre simulation on prend $R_{debut} = R_{MAX} + 12$.

- **La Diffusion**

Déplacement aléatoire de la particule d'une position courante à une des quatre plus proches voisines positions. Le programme répète cette étape jusqu'à où la condition d'agrégation est vérifiée.

- **L'Agrégation**

Addition d'une nouvelle particule au cluster, la masse du cluster incrémenté par 1 ($M = M + 1$), réévaluation de R_{debut} et R_{MAX} , et interruption de l'exécution de programme si le nombre max de particules prédéfini au début de simulation atteint. Si non le programme refaire la deuxième étape.

Pour minimiser le temps d'exécution du programme de simulation, en ajoute la condition suivante à la troisième étape : si la distance r de la particule au centre de nucléation est supérieure a une distance R_{final} ($r > R_{final}$), en interrompte l'exécution de la procédure (la diffusion) et le programme passe a la deuxième étape ($R_{final} = R_{debut} + 5$). figure 4.2

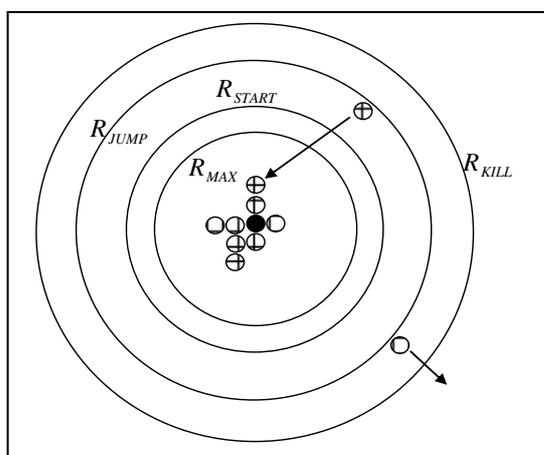


Figure 4.2 : Schéma représentatif des différentes étapes de la croissance de type DLA[75].

b). Résultats de Simulation

Les figures (4.3a, 4.3.b, 4.3c, 4.3d, 4.3e et 4.3f) représentent respectivement la forme dendritique d'un îlot de 10, 50, 100, 500, 1000 et 5000 atomes générés par notre programme de simulation à base du modèle DLA sur un réseau carré.

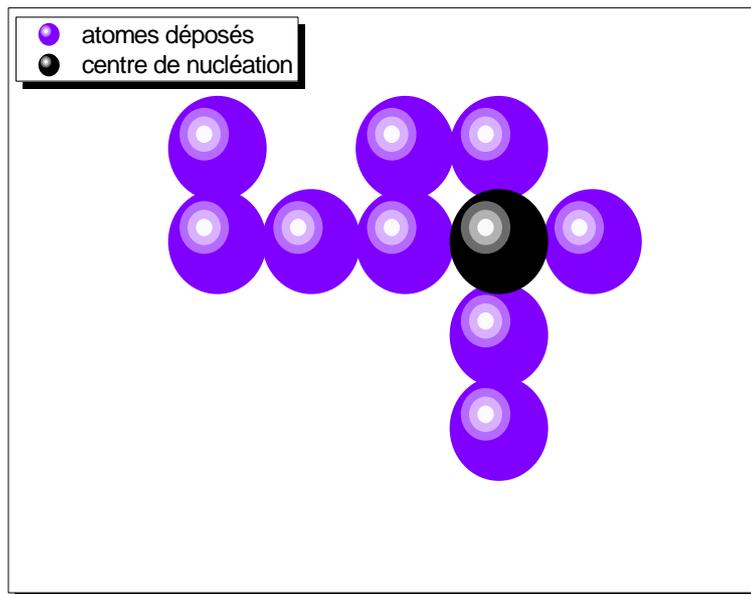


Figure 4.3a : Croissance d'un faisceau de 10 atomes ; D_f (dimension fractal) = 2.09, $R_{max} = 4$

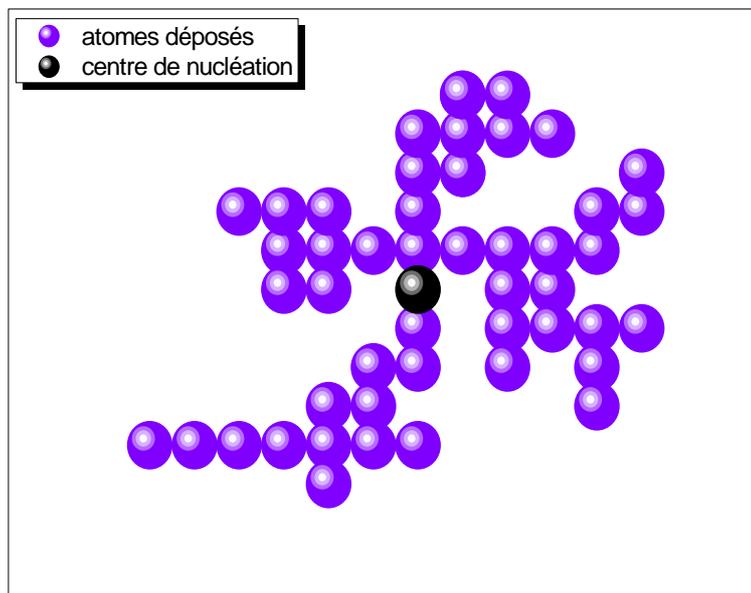


Figure 4.3b : Croissance d'un faisceau de 50 atomes ; D_f (dimension fractal) = 1.78, $R_{max} = 9$

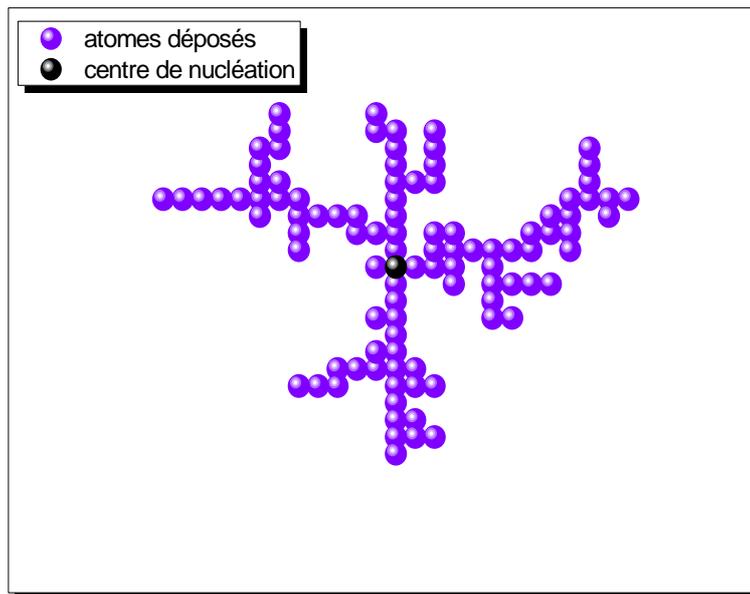


Figure 4.3c : Croissance d'un faisceau de 100 atomes ; D_f (dimension fractal) = 1.63, $R_{max} = 17$

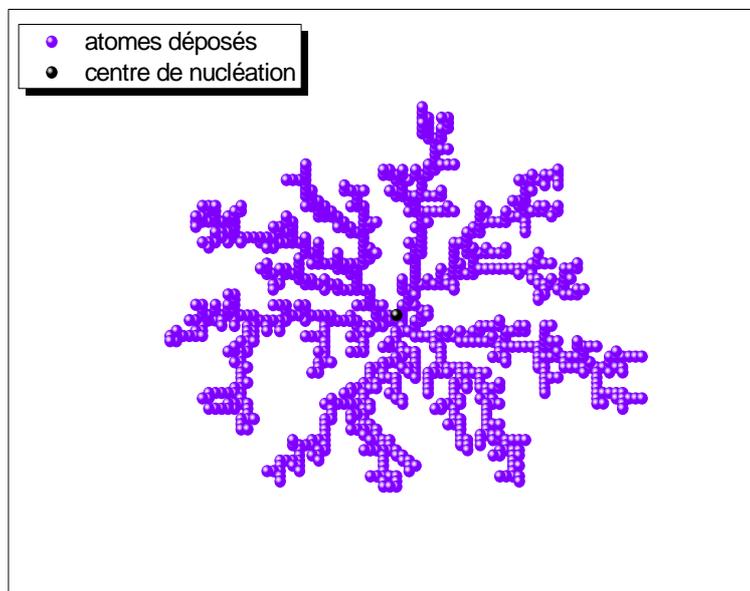


Figure 4.3d : Croissance d'un faisceau de 500 atomes ; D_f (dimension fractal) = 1.72, $R_{max} = 37$

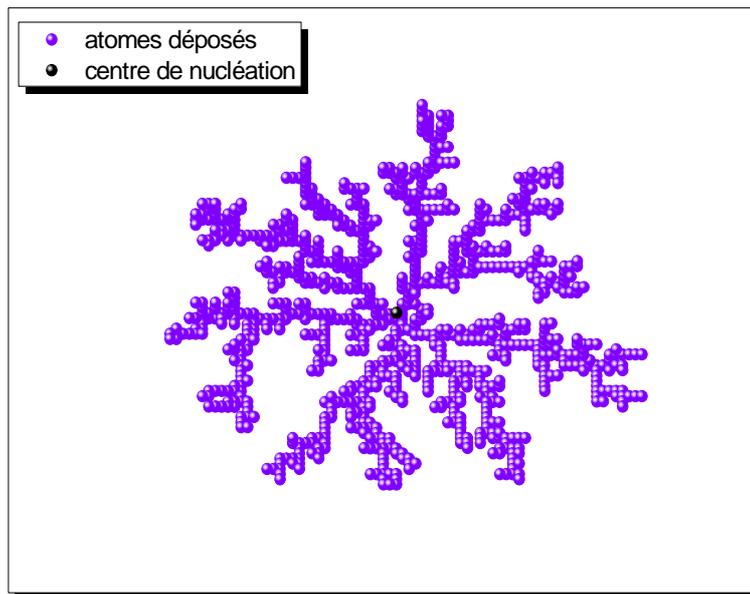


Figure 4.3e : Croissance d'un faisceau de 1000 atomes ; D_f (dimension fractal) = 1.76, $R_{max} = 47$

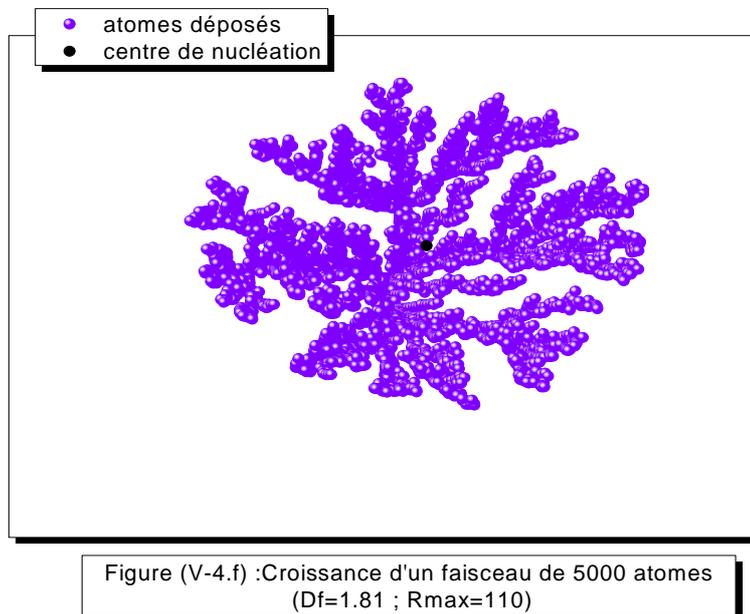


Figure 4.3a : Croissance d'un faisceau de 5000 atomes ; D_f (dimension fractal) = 1.81, $R_{max} = 110$

Les Figures (4.3 : a – f) montrent :

- Existence d'un seul centre de nucléation.

- Le modèle de la diffusion limitée par agrégation ne permet l'obtention que, d'un unique cluster d'atomes et aucune réorganisation des atomes autour du cluster n'est autorisée à cause de l'agrégation irréversible[76-80].
- Quelque soit le nombre d'atomes déposés, la forme du cluster est la même.
- Pour un grand nombre de particules, des bras d'une largeur atomique poussent alors sur l'atome central, puis des bras sur les bras, et ainsi de suite, les terminaisons de chaque branche (bras) du cluster croissent beaucoup plus vite que les parties internes de ces branches car les atomes diffusants sont capturés essentiellement par les extrémités avant même d'atteindre une position plus profonde dans le cluster[6].

4.1.2.1. Diffusion Limitée par Agrégations en 3D

Usuellement la Diffusion Limitée par Agrégation a été étudiée en deux dimensions (2D) [75 ;78], dans cette approche le principe de base de la simulation en 2D s'étend en trois dimensions (3D). Ce modèle est utilisé pour simuler autres phénomènes naturels particulièrement en biologie et en médecine, l'un des avantages de la simulation DLA en 3D et dans leur compatibilité directe avec les modèles réelles. La simulation DLA en 3D nous permet de déterminer la forme, la structure des amas en 3D, et la statistique global des amas[81].

L'Algorithme de simulation DLA en 2D peut être appliqué à une simulation 3D mais avec quelques améliorations exigées par l'espace de simulation.

Dans la modélisation en 3D, on a supposé que la diffusion des particules se fuaient dans une demie sphère caractérisée par un rayon R , Figure 4.4.

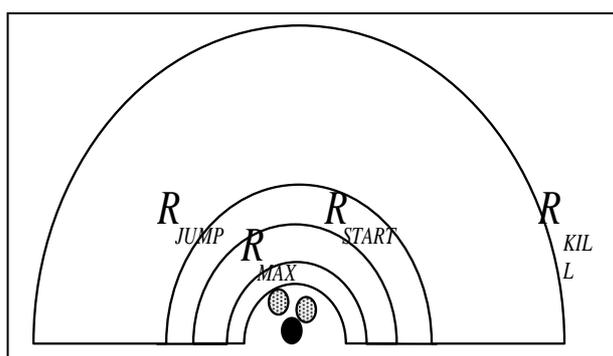


Figure 4.4 : Schéma représentatif des différentes étapes de la croissance de type DLA en 3 dimensions[6].

4.1.2.1. Algorithme de Simulation

Les particules sont lancés d'une position choisie aléatoirement à une distance semi-sphérique de rayon R du centre de nucléation. La diffusion est aléatoire, et elle ce fait sur six directions (quatre directions en 2D), la particule est considérée adhééré ou cluster, si elle prend une des six proches voisines positions d'une particule d'amas.

4.1.2.2. Résultats de Simulation

Les figures (4.4a, 4.4.b, 4.4c, 4.4d, 4.4e et 4.4f) représentent respectivement la forme dendritique d'un îlot de 10, 50, 100, 500, 1000 et 5000 atomes générés par notre programme de simulation à base du modèle DLA sur un réseau carré

Les Figures 4.4.a – 4.4.f montrent des amas DLA en 3 dimensions obtenues par notre programme de simulation.

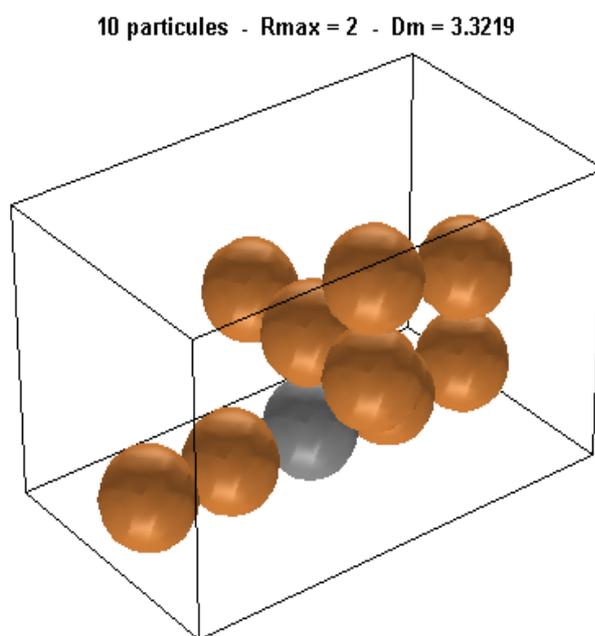


Figure 4.4a : Amas de 10 particules obtenu par simulation de DLA en 3D ; $D_f = 3.32$, $R_{max} = 2$

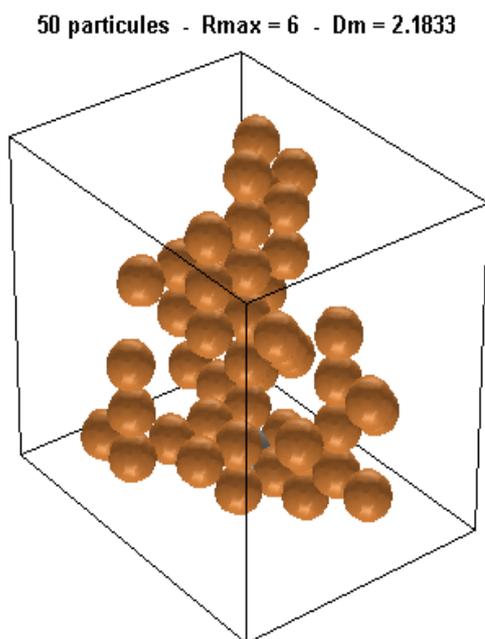


Figure 4.4b : Amas de 50 particules obtenu par simulation de DLA en 3D ; $D_f = 2.18$, $R_{\max} = 6$.

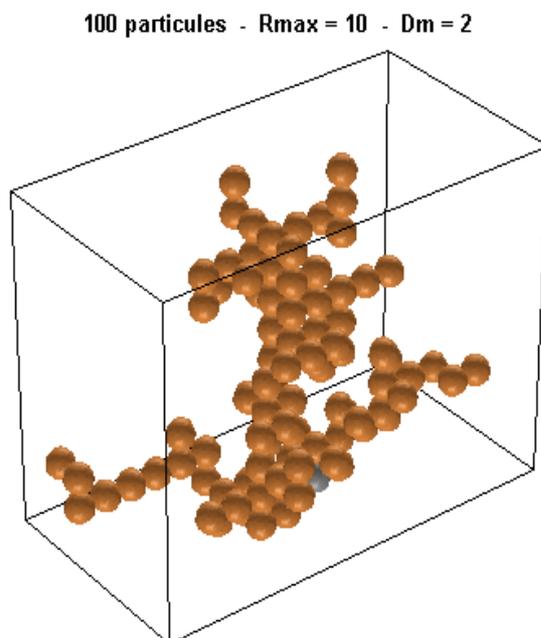


Figure 4.4c : Amas de 100 particules obtenu par simulation de DLA en 3D ; $D_f = 2$, $R_{\max} = 10$.

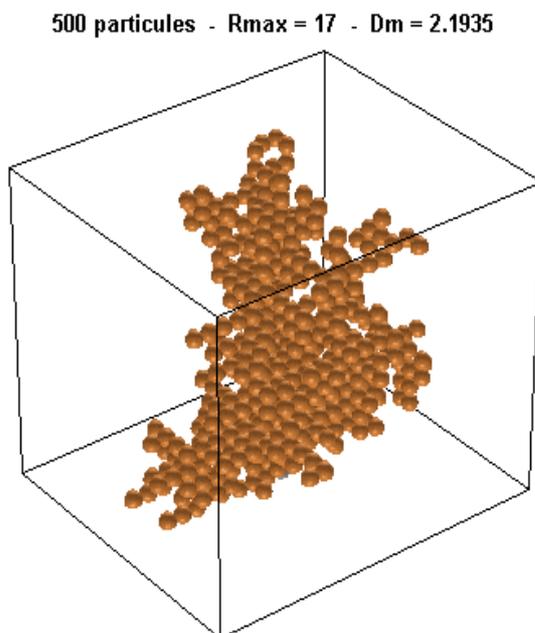


Figure 4.4d : Amas de 500 particules obtenu par simulation de DLA en 3D ; $D_f = 2.19$, $R_{\max} = 17$.

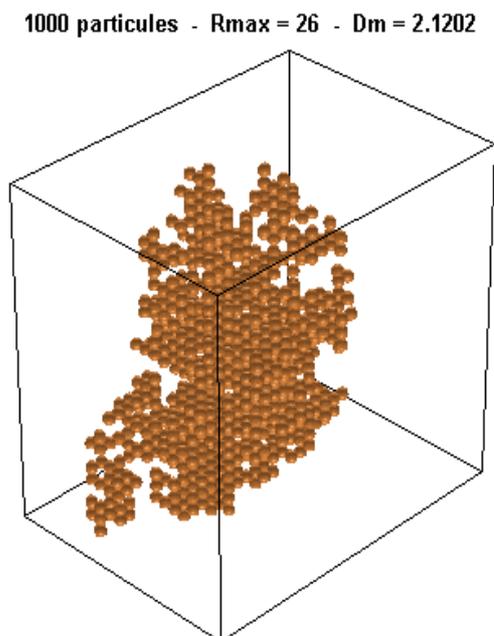


Figure 4.4e : Amas de 1000 particules obtenu par simulation de DLA en 3D ; $D_f = 2.12$, $R_{\max} = 26$.

20000 particules - $R_{max} = 131$ - $D_m = 2.0314$

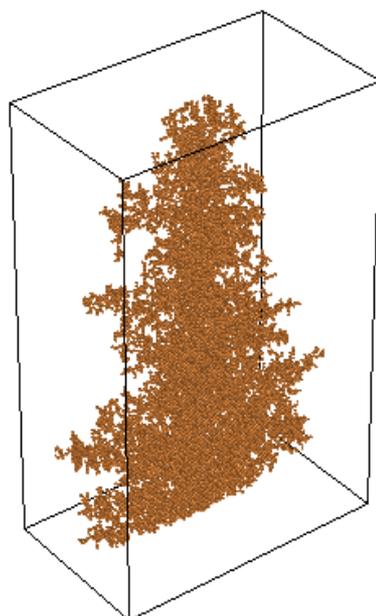


Figure 4.4f : Amas de 2000 particules obtenu par simulation de DLA en 3D ; $D_f = 2.03$, $R_{max} = 131$.

Le tableau suivant regroupe les valeurs de R_{MAX} et la dimension fractale de simulation faite par notre programme.

Masse (nombre de particule)	R_{MAX}	D_f
10	2	3.32
50	6	2.18
100	10	2.00
500	19	2,19
1000	26	2.12
5000	65	2.04
10000	83	2.08
20000	131	2.03

Tableau 4.1 : dépendance du nombre de particules de la DLA en trois dimensions en fonction du rayon et la dimension.

Ces résultats sont obtenus par la simulation de la croissance cristalline avec le model DLA en trois dimensions pour différentes valeurs de nombre de masses (10, 50, 100, 500, 1000, 5000, 10 000 et 20 000 particules).

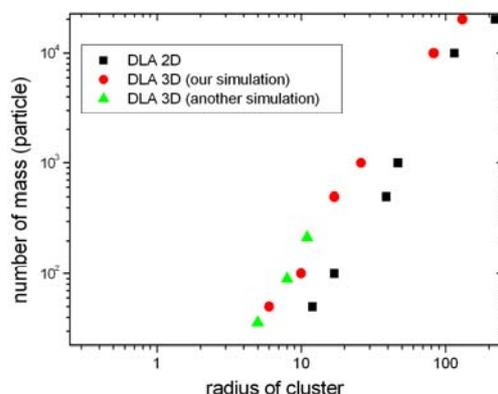


Figure 4.8 : Nombre de particules (masses) on fonction de rayon du cluster formé en 2D et 3D.

La Figure 4.8 représente la variation du nombre de masses (nombre de particules) du cluster formé en fonction de la dimension fractale en deux et trois dimensions dans une échelle logarithmique.

Dans le cas de deux dimensions, la figure montre que la valeur approximative de la dimension fractale est de 1,75 [6]. En cas tridimensionnelles, on présente deux graphes; le premier correspond à notre simulation (cas d'une demi – sphère) et le deuxième correspond à une autre simulation (cas d'une sphère), en trois dimension la valeur calculée de la dimension fractale est de 2.2. Cette valeur montre une bonne concordance avec d'autres résultats.

4.2 Modèle Solide sur solide (Solid – On – Solid)

Dans cette partie, on utilise le modèle de solide sur solide (Solid – On – Solid) , en se basant sur la méthode de Monte Carlo Cinétique (KMC) défini dans le chapitre 3.

Le modèle SOS n'est qu'un des nombreux modèles de la mécanique statistique utilisée dans la recherche fondamentale et appliquée dans l'étude de la surface. Le SOS présente plusieurs avantages tel que [82,]:

- Considération des effets atomistiques tels que : dépôt, diffusion, nucléation,
- Plus rapide de point de vue calcul par rapport aux autres modèles comme la dynamique moléculaire.

4.2.1 Définition

Dans cette partie, la simulation est faite, en se basant sur un modèle simple de la croissance cristalline dans l'EJM (Modèle SOS) afin de décrire la morphologie de la surface épitaxiée.

Le modèle consiste à la considération d'un substrat semi – infini lisse (parfait). L'atome occupe des sites sur un cristal cubique simple. Par conséquent, la hauteur de la surface est une fonction de la coordonnée horizontale. Chaque atome dans le réseau est lié à ses plus proches voisins (4 voisins possibles).[83,84]

Le modèle SOS est un modèle de réseau atomique, développé initialement par Button. Ce modèle est fondé sur le modèle de cristal simple connu depuis 1927 sous le nom du cristal de Kossel[83,85].

Le SOS considère un cristal constitué d'un empilement d'atomes cubiques mis les uns à côté des autres, avec des liaisons possibles sur les six faces assurant l'interconnexion avec les plus proches voisins. La construction de cristal est possible c'est – à – dire qu'une configuration de réseau est permise (emplacement possible), seulement si le site qui se trouve au dessous du nouvel emplacement est occupé aussi, C'est – à – dire ; pour déposer un atome (cube) il faut que le site (cube) au dessous doit être occupé (rempli)[84,86].

Par conséquent, le modèle SOS ignore complètement les vibrations du réseau, structure électronique, les dislocations et les autres caractéristiques essentielles de cristal réaliste, mais malgré ceci, il produit une bonne image qualitative de surfaces de cristal réaliste dans certains cas[87].

La figure 4.9 montre un exemple de modèle SOS. Ce modèle présente l'avantage de modéliser les interfaces fluide – solide en deux dimensions au lieu de trois dimensions

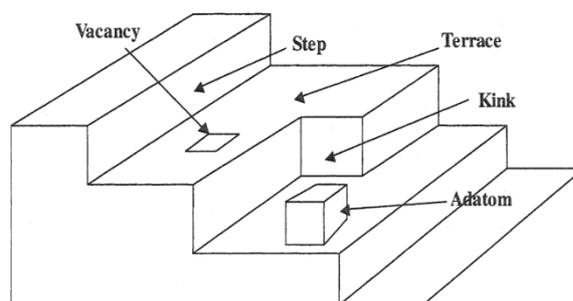


Figure 4.9 : Structure d'une surface suivant le modèle Solide sur Solide (SOS).

L'état fondamental de la surface de cristal se présente comme des blocs formés par des cubes d'une façon compacte et arrangé. Les diverses excitations (processus) définissant l'état de la surface dans le modèle SOS sont : adatome, nœud, vide (emplacement libre), marche et ranger. Ces étapes sont schématisés sur a figure 4.9[88,89].

4.2.2. Modélisation de l'Épitaxie par Jets Moléculaires avec le modèle standard de SOS

4.2.2.1. Description du modèle standard de SOS

En 1987, Clarke et Vvedensky ont présenté le modèle de la diffusion solide – sur – solide (SOS) afin des simuler des résultats expérimentaux de la croissance MBE des couches minces[2]. Ce modèle simule l'esprit réel de la croissance MBE, y compris les effets de la température influant sur la diffusion des adatoms selon la dépendance des taux de configurations[90].

Les atomes sont déposés sur la surface avec un taux de dépôts F par site et par unité de seconde. Les atomes déposés diffusent avec un taux de diffusion (saut). Figure 4.10.

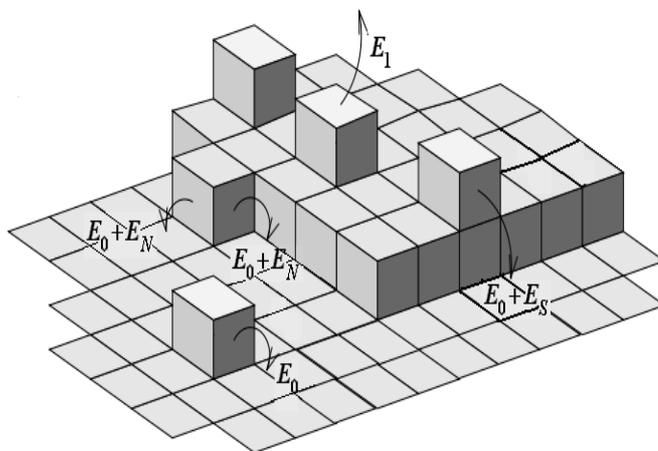


Figure 4.10 : Processus cinétiques de croissance dans le modèle SOS.

Positionnement des atomes dans un modèle SOS (représentation trois dimensions).

La Figure 4.10 représente un schéma descriptif des différents processus de croissance suivant le modèle SOS ; tel que : diffusion, absorption, désorption,

E_B : est la barrière de potentiel pour la diffusion,

E_D : est la barrière de potentiel pour la désorption,

E_S est la barrière de potentiel pour un saut vers une position plus bas,

E_N : est l'énergie de liaison entre les atomes.

Le taux de diffusion (saut) est défini par l'expression [91,92]:

$$R_N = k_0 \exp(-E/k_B T) \quad (4.1)$$

D'où :

k_B est la constante de Boltzmann.

T : Température de croissance.

k_0 : Fréquence de vibration de l'atome à la surface (10^{13} Hz).

E : Barrière d'énergie de diffusion, cette forme d'énergie se compose de trois composantes ;

$$E_B = E_0 + n E_N + E_S \quad (4.2)$$

E_0 : Energie de la surface (barrière de diffusion pour un atome libre).

E_N : Energie d'interaction avec le proche voisin (énergie de liaison entre deux atomes).

n : Nombre des proches voisins ($n=0,1,2,3,4$)

E_S : Barrière d'Ehrlich-Schwoebel (barrière de diffusion sur les marches).

Dans ce modèle (SOS), on prend en compte l'effet de la barrière d'Ehrlich-Schwoebel pour la diffusion des atomes sur les marches, qui est le paramètre le plus important[92].

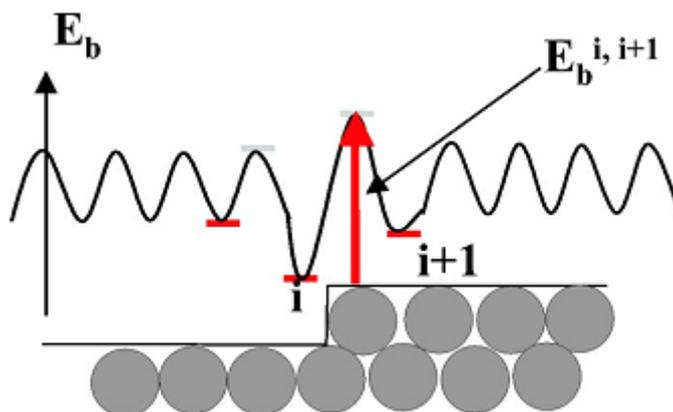


Figure 4.10 : Schéma représentatif de la barrière d'Ehrlich-Schwoebel[92].

Dans le cas de simulation homoépitaxiale de GaAs (comme notre cas), les paramètres de simulation sont définis comme suit[6,25] :

Température : $T = 560 \text{ }^\circ\text{C}$.

Fréquence de vibration de l'atome : $k_0 = 10^{13} \text{ S}^{-1}$

Energie de surface : $E_0 = 0.9 \text{ eV}$ (pour l'absorption) et $E_0 = 0.9 \text{ eV}$ pour la désorption

Barrière de diffusion (énergie d'Ehrlich-Schwobel) : $E_S = 0.1 \text{ eV}$.

Energie d'interaction avec les proches voisins : $E_N = 0.25 \text{ eV}$

4.2.2.2 Algorithme de Calcul

Dans le programme de simulation le cluster est représenté par une matrice tridimensionnelle, les positions vacantes dans le cluster sont symbolisées par des zéros dans la matrice, et les positions occupées sont repérées par des entiers, l'emplacement (i, j, k) d'une position non vacante dans la matrice représente les coordonnées (x, y, z) d'un atome dans le cluster[6,88,89].

L'algorithme de simulation suivant résume toutes les étapes parcouru par le programme de simulation suivant le modèle SOS:

- a. Création de la matrice du cluster et initialisation de toutes les variables
- b. Dépôt aléatoire des atomes : 10 % à 20 % de la surface de la première couche (dans notre cas on a supposé une déposition initiale de 20%)
- c. Création d'une liste de tous les événements possibles (déposition, diffusion, désorption,..) et calcul des taux associés à chaque événement $T_{\text{evenement}}$.
- d. Calcul du taux total T_{total} , et détermination de $P_{\text{evenement}} = \frac{\sum_i^N T_{\text{evenement}-i}}{T_{total}}$.

Avec : N est le nombre total des événements possibles.

- e. Génération d'un nombre aléatoire r .
- f. Sélection de l'événement de vérification : $P_{i \rightarrow N} \geq r$; suivant le type d'événement.

Pour cela, on distingue trois cas possibles ;

- **Dépôt** : le programme localise tous les sites possibles pour le dépôt des atomes (les sites vacantes admissibles par le modèle SOS), est choisit aléatoirement pour la déposition.
- **Diffusion** : l'atome et leur site de déplacement sont déjà établis dans l'étape (c), donc le programme fait un changement d'état des deux positions (le site vacant devient occupé, et le site occupé devient vacant).
- **Désorption** : c'est l'événement inverse du premier cas, donc l'atome choisit est retiré du cluster (remplacement de l'état de son site).

- g. Incrémentation du temps de simulation : $t = t - \left(\frac{\ln(r_0)}{T_{total}} \right)$
- h. Vérification, si $t \geq t_{max}$ interrompt l'exécution du programme est affichage des résultats, si non allez ou étape (c).

4.2.2.3. Résultats de Simulation

Les simulations basées sur ce modèle ont permis d'étudier la rugosité de la surface et l'évolution de la configuration d'une couche par germination et formation d'amas. Ils ont pu aussi prendre en compte le mouvement atomique sur la surface et étudier la stabilité et l'instabilité des atomes déposés.

a). Technique de représentation graphique

Dans la représentation graphique des clusters, on a utilisé des divers couleurs afin de mieux présenter la position de chaque atome dans le cluster :

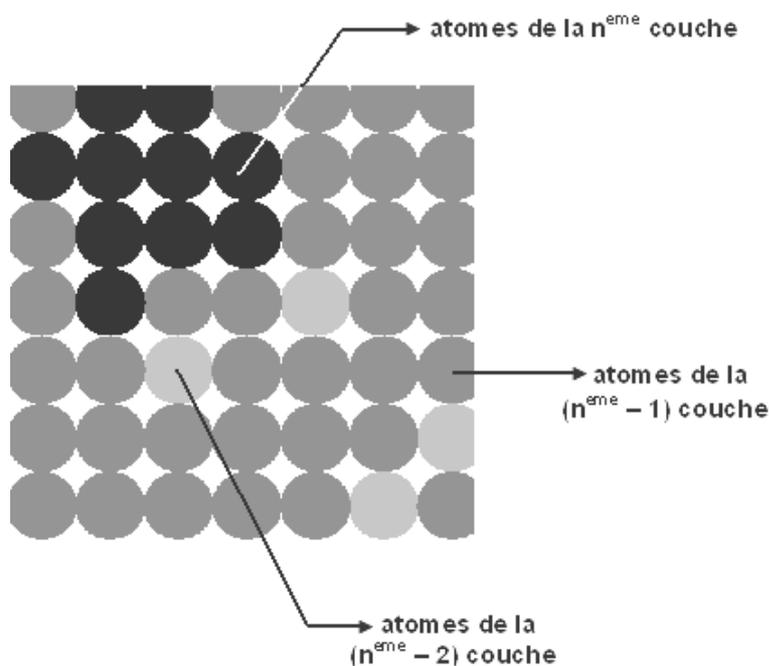


Figure 4.11 : Technique de la représentation graphique des résultats obtenus par le modèle SOS.

b). Morphologie de la surface

La morphologie d'une surface cristalline est décrite à l'aide de peu d'éléments structuraux de base : les terrasses, les marches, les crans et les adatoms, qui sont définis par le réseau de Bravais du cristal. Expérimentalement, une surface coupée perpendiculairement à

un axe cristallographique de haute symétrie, a souvent tendance à s'organiser en terrasses atomiquement plates, à l'équilibre thermodynamique.

La figure 4.12 représente la morphologie d'un cluster de (40x40) de dimension obtenu par notre programme de simulation suivant le modèle solide – sur – solide. Ce résultat a été obtenu dans les conditions suivants : Flux=1ML/S, T=560°C, Eb=0.9 eV, En=0.25eV, Es=0.1eV et Ed=1.1eV

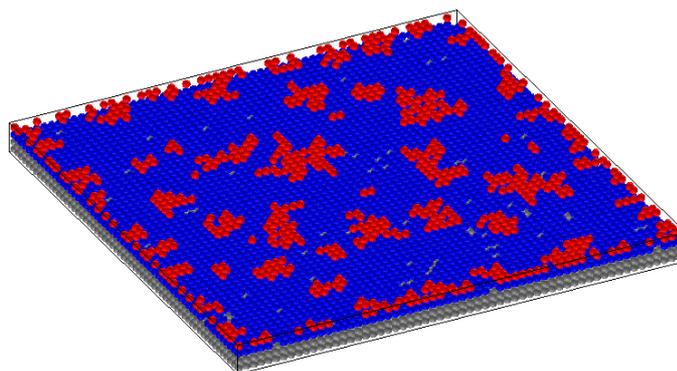
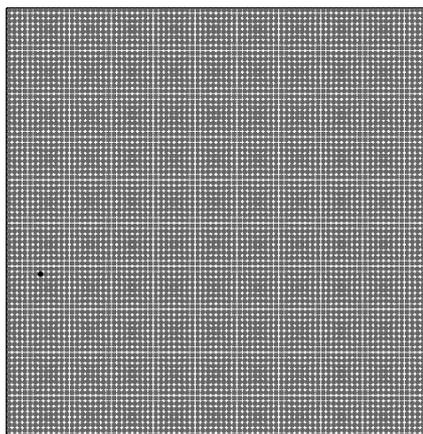


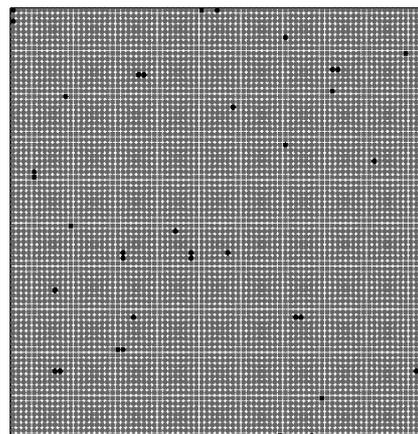
Figure 4.12 : Morphologie d'une surface de (40x40 atomes) après la simulation de Monte Carlo Cinétique

La figure 4.12 montre que la surface se compose de plusieurs îlots de tailles différents. Avec le dépôt, le nombre et la taille des îlots augmentent afin de former une couche et ainsi de suite pour les autres couches. Ce qui est bien remarqué sur les figure 4.13(a) – (h) qui représentent l'évolution de la morphologie d'une surface de (100x100) atomes à partir une simulation de Monte Carlo Cinétique à partir du modèle (SOS)



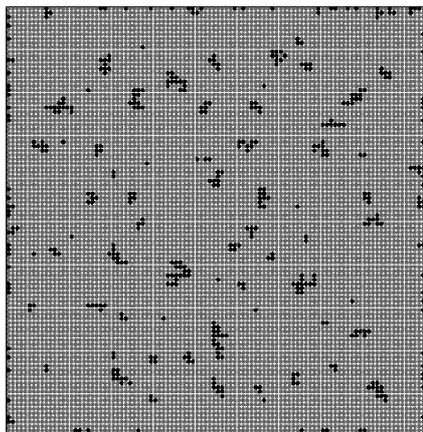
(a): Nombre de couches déposées= 1

Nombre d'atomes sur la dernière couche = 1

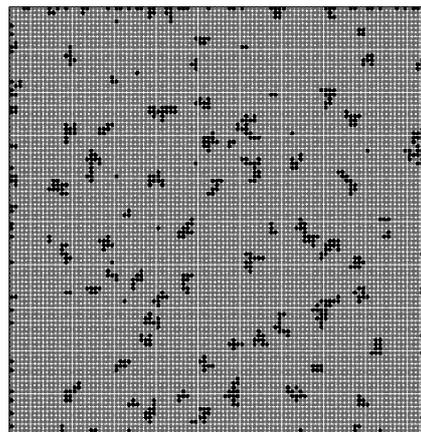


(b): Nombre de couches déposées= 1

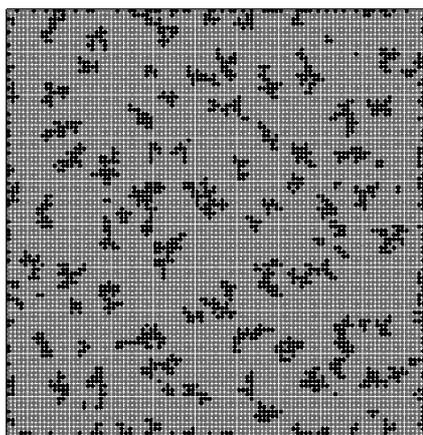
Nombre d'atomes sur la dernière couche = 38



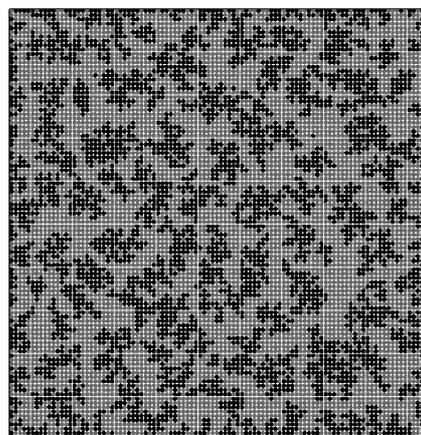
(c): Nombre de couches déposées= 1
 Nombre d'atomes sur la dernière couche=498



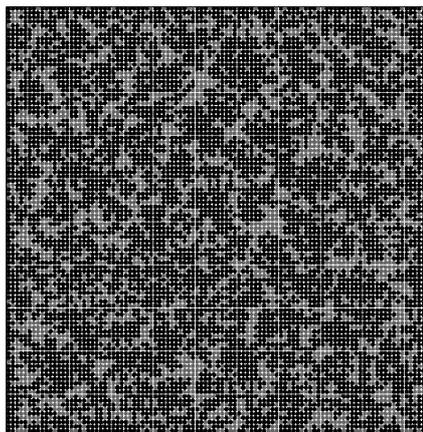
(d): Nombre de couches déposées= 1
 Nombre d'atomes sur la dernière couche=722



(e): Nombre de couches déposées= 1
 Nombre d'atomes sur la dernière couche=1632

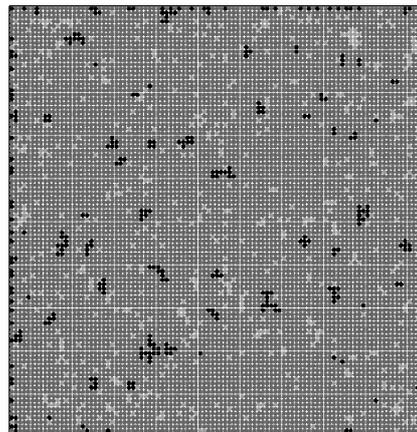


(f): Nombre de couches déposées= 1
 Nombre d'atomes sur la dernière couche=4177



(g): Nombre de couches déposées= 1

Nombre d'atomes sur la dernière couche=6832



(h): Nombre de couches déposées= 2

Nombre d'atomes sur la dernière couche=19775

Figure 4.13 : Evolution de la morphologie d'une surface de (100x100 atomes) durant la simulation de Monte Carlo Cinétique à partir du modèle (SOS)

Les figures 4.13 (a)-(h) montre les mécanismes initiaux de formation des îlots dans les premières étapes de la croissance cristalline à partir du modèle solide sur solide (Solid-On-Solid), donc la procédure de nucléation commence au premier lieu par le dépôts d'atomes (la figure 4.13(a) montre une surface lisse qui contient un seul atome avec un temps de déposition de 0,001 S, Cependant à $t=0.006$ S, la figure 4.13(b) représente la morphologie de la surface après la déposition de 38 atomes),

à $t=0,07$ S, on remarque le début de formation des petits îlots (figure 4.13(c),(d), c'est la diffusion puis l'agrégation des atomes déposés sur la surface. Après la formation des petits îlots, la déposition d'autres atomes, permet d'augmenter les tailles des îlots formés afin de construire une agrégation de plusieurs îlots. Figures 4.13.(e)-(g).

Après l'agrégation des îlots, on découvre un début de formation d'une nouvelle couche à $t=1.1$ S. figure 4.13(h), à cause d'agrandissement de volume des îlots, par conséquence ces îlots peut acquérir des nouvelle atomes au dessus suivant une opération de déposition et aussi la diffusion sur les marches. L'évolution de cette première couche se poursuit même après le départ de formation d'une seconde couche, ce qui est bien observé dans la dernière figure (h).

Ces images sont capturées à des intervalles de temps différents pour montré les mécanismes associés dans la formation des couches atomiques dans une croissance épitaxiale par jets moléculaire en se basant sur le modèle (SOS),

c). Rugosité de la surface[83]

La mesure de la rugosité de la surface est l'écart à la moyenne des fluctuations de la hauteur, à laquelle le cristal croît dans une région locale donnée, donc elle est définie comme :

$$\sigma_h(t) = \sqrt{\left(\frac{1}{N} \sum_i (h_i(t) - \langle h(t) \rangle)\right)^2} \quad (4.3)$$

Avec :

N est le nombre total de sites à la surface,

$h_i(t)$ est la hauteur du site i

$\langle h(t) \rangle$ est la hauteur moyenne des atomes exprimée en monocouche, donnée par :

$$\langle h(t) \rangle = \frac{1}{N} \sum_i h_i(t) \quad (4.4)$$

La rugosité de la surface nous donne des informations sur le taux de remplissage de surface, c'est-à-dire, si la surface épitaxiale est rugueuse ou non ?

Sur les figures 4.41 et 4.15, nous présentons la variation de la rugosité de la surface ainsi que les oscillations RHEED en fonction du nombre de couches monoatomiques et du temps (respectivement).

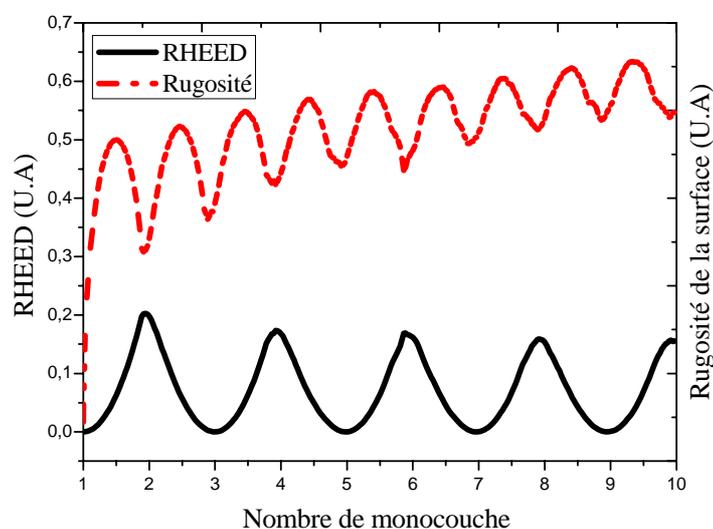


Figure 4.14 : Variation de l'intensité RHEED et de la rugosité de la surface en fonction du nombre de couches monoatomique (pour un cluster de 80x80) .

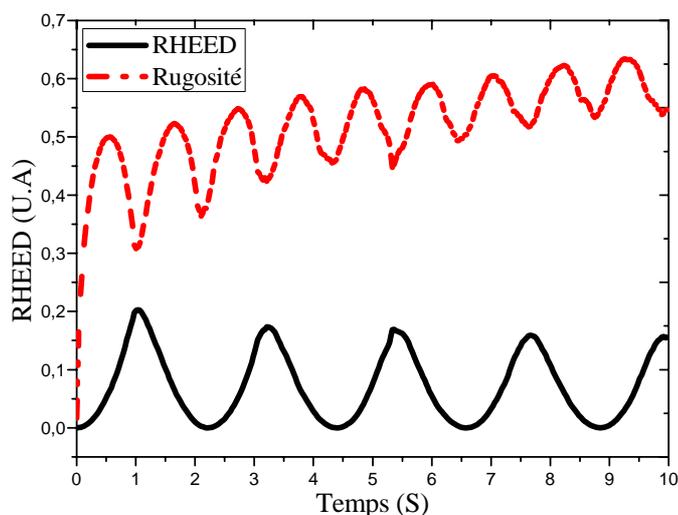


Figure 4.15 : Variation de l'intensité RHEED et de la rugosité de la surface en fonction du temps (pour un cluster de 80x80)).

Dans les figure 4.14 et 4.15, nous avons examiné la morphologie de la surface épitaxiée à partir du modèle Solide – sur – Solide.

Nous remarquons que l'intensité RHEED est maximale pour une surface parfaitement plane (couche diatomique : c'est – à – dire, la formation de deux couches monoatomiques), lorsque la couche suivante commence à croître, des îlots se forment et l'intensité diminue, elle est minimale lorsque la couche diatomique est à moitié pleine (ou bien formation d'une autre couche monoatomique), puis elle augmente pour les mêmes raisons jusqu'à ce que la couche soit pleine. Les mêmes explications peuvent s'appliquer au signal sur la rugosité qui est présenté sur les deux figures 4.14 et 4.15, ce signal est minimal pour une surface parfaitement plane (formation d'une monocouche), et lorsque la couche suivante commence à croître l'intensité de signal accroît. C'est presque le cas inverse du signal RHEED.

Les deux figures 4.14 et 4.15 montrent que le temps de formation d'une monocouche atomique dans le cas du modèle SOS est de l'ordre de 1 Seconde.

Chapitre 5

Simulation de la Croissance Homoépitaxiale par jets moléculaires des composés III-V

Simulation de la Croissance Homoépitaxiale par jets moléculaires des composés III-V

L'étude de la surface de GaAs (001) a fait l'intérêt de plusieurs études expérimentales et théoriques depuis quelques années car elle fait l'élément de base dans la structure de la plus part des composants électroniques multicouches[1-4,92,94].

L'objectif principal de ce chapitre entre dans ce cadre, c'est – à – de présenter un modèle théorique pour étudier la croissance homoépitaxiale de GaAs par jets moléculaires,

On présente dans cette partie deux modèles théoriques, le premier traite la homoépitaxie de GaAs(001) dans le cas d'une croissance épitaxiale standard, cependant le deuxième se base sur le modèle de la reconstruction de la surface bêta2 (2x4) de GaAs(001) proposé par M.Itoh[94,95].

Les deux modèles traités incluent tous les détails microscopiques tels que : Les processus atomistiques de la croissance des îlots (déposition, incorporation, diffusion, absorption, désorption), la reconstruction de surface, la structure zinc blende du cristal, et les différentes propriétés

Ces modèles ont été appliqués pour un substrat parfait (lisse : non restructif) dans un premier lieu. Les principes de base des modèles sont projetés pour un substrat restructif (non parfait) de type Bêta2(2x4) dans le deuxième lieu afin de décrire la statistique globale des îlots (tranches formées) [25,96], et de déterminer la morphologie et la rugosité de la surface formée après une croissance cristalline.

5.1. Structure de GaAs (001)

5.1.1. Cristallographie de la structure zinc blende[25]

Le GaAs est un matériau semi-conducteur type III-V composé de l'élément de gallium (Ga) de la colonne III et de l'élément arsenic (As) de la colonne V du tableau périodique des éléments. Le GaAs a été créé par Goldschmidt et signalé en 1929, mais la première détermination des propriétés électroniques de ce matériau n'a y lieu qu'en 1952. Le cristal de GaAs est composé de deux super réseaux, chaque réseau est de type cube face centrée (FCC). La configuration de ce cristal est connue sous le nom zinc blende. Figure 5.1

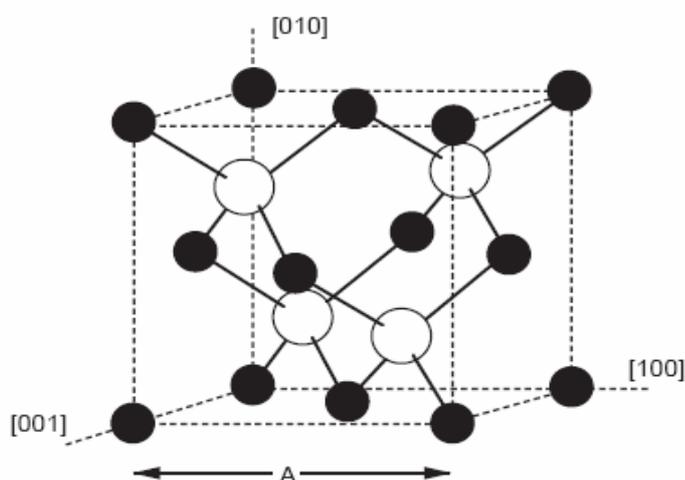


Figure 5.1: Structure zinc blende (GaAs)

La figure 5.1 montre un cube unitaire de GaAs. Les cercles noirs représentent les atomes de Ga et les blancs représentent les atomes As

5.1.2. Surface (001)

L'étude de la surface de GaAs (001) a fait l'intérêt de plusieurs études expérimentales et théoriques depuis quelques années, car elle fait l'élément de base dans la structure de la plus part des composants électroniques multicouches [2,9,29,90,94].

La face (001) est la plus importante surface de GaAs, car elle est la plus communément utilisée dans les hétérostructures à base de GaAs [6,97] Figure 5.2. Suivant la température du substrat et le facteur As/Ga du flux, cette surface prend plusieurs phases (reconstructions).

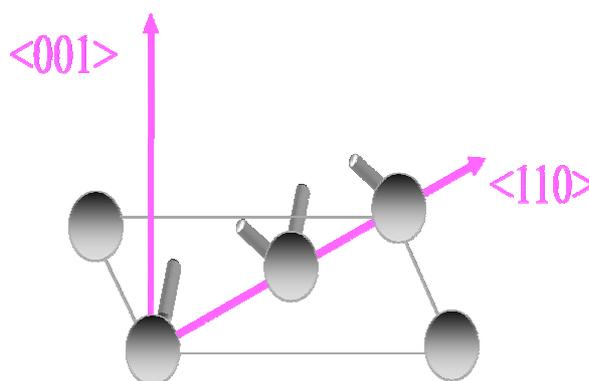


Figure 5.2: Surface (001)[83].

Une surface (001) est représentée et nous montre une configuration avec des chaînes de liaisons pendantes dans les directions $\langle 110 \rangle$ [83].

5.2. Reconstructions de la surface de GaAs(001)

5.2.1. Reconstructions de Surfaces

Les reconstructions de surface sont observées sur la plupart des surfaces de monocristaux, métalliques ou semi-conducteurs. Dans le cas des semi-conducteurs III-V, elles dépendent de la composition de la surface en élément III ou V. A ce titre, leur connaissance est un guide précieux lors de l'épitaxie puisqu'il permet par observation du diagramme RHEED, d'estimer la composition de la surface en croissance [92-100]. Ces différentes reconstructions correspondent à des énergies spécifiques différentes qui peuvent favoriser la diffusion de surface des espèces incidentes mais aussi la transition d'un mode de croissance bidimensionnel vers un mode tridimensionnel. Historiquement, les reconstructions de surface de GaAs ont servi de prototype à toutes discussions sur d'autres semi-conducteurs III-V[90].

5.2.2. Principes de reconstruction de la surface des composés semiconducteurs

Lors de la croissance des semiconducteurs, l'observation des diagrammes RHEED révèle principalement un grand nombre de structures sur les surfaces de GaAs. Duke a proposé trois principes pour décrire la forme de la reconstruction de la surface des semiconducteurs à faibles indices.

- a)- La structure de la surface observée est cinématiquement la structure de plus faible énergie accessible sous les conditions de préparation
- b)- Les surfaces tendent automatiquement à être compensées.
- c)- Pour une stœchiométrie de surface extérieure donnée, la géométrie atomique de la surface est déterminée principalement soit par les obligations d'état de surface

associées avec les liaisons de surface ou par (rempli) l'anion pendille des états de liaison.

Le deuxième principe (b) est connu comme : le principe (modèle) de l'électron de comptage.

Une structure de surface satisfait à ce modèle s'il est possible d'avoir toutes les liaisons pendantes sur l'élément électro-négatif occupées (As) et toutes les liaisons pendantes vides sur l'élément électro-positif.(Ga), c'est-à-dire de déterminer le nombre d'électrons disponibles. Si cette condition est vérifiée, la surface sera un semiconducteur, par contre si elle est satisfaite partiellement, alors que cette structure représente d'un métal. Bien que le 2ème principe (b) ne détermine pas uniquement la reconstruction superficielle, il permet de déterminer quelles sont les structures stables et instables.

Le transfert de charge à partir de cation (Ga) à l'anion (As) transforme les (As) dans un état pendillant occupé de type (s), et le (Ga) dans un autre état pendant de type (p). Par conséquent, les atomes (Ga) de la surface sont situés dans une configuration de collage sp^2 avec leurs plus proches voisins de type quasi-planaires. Tandis que les atomes (As) de la surface sont dans configuration de liaison avec les proches voisins de type p^3 .

Donc pour déterminer la composition de la surface, les structures satisfaisantes aux 2ème (b) et 3ème (c) principes correspondent aux minimum locaux (mais nécessairement globaux) des énergies de surface libres. D'autre part, les structures de surface observées sur une surface semi-conducteurs, en général, dépendra sur le processus utilisé pour préparer la surface. Ainsi, la structure observée correspond au plus bas minimum d'énergie libre qui peut être atteint cinétiquement par les conditions du procédé utilisé pour préparer la surface (1^{er} principe (a)).

5.2.3. Différentes Reconstructions de GaAs

Après la première démonstration réussie de la croissance épitaxiale par jets moléculaire (MBE) de GaAs (001), il a été signalé qu'une riche variété de reconstructions est formée selon la stœchiométrie de la surface, passant d'une reconstruction $c(4 \times 4)$ plus riche en As, par (2×4) , (6×6) et $c(8 \times 2)$ vers une reconstruction (4×6) plus riche en Ga[95].

La structure atomique $c(4 \times 4)$ riche en (As) peut être contrôlée dimer par les dimer Ga-As et As-As structuré par un changement des espèces moléculaires de As[101].

La reconstruction $c(4 \times 4)$, la plus riche en arsenic, fait encore débat puisque si jusqu' alors, elle était décrite avec plusieurs dimères d'arsenic en surface conduisant à un taux de couverture en arsenic de 1.75, des résultats récents tendent à prouver qu'elle est caractérisée par trois dimères mixtes $Ga - As$ et un taux de couverture de 1.0 en arsenic [98,101]. Figure5.3.

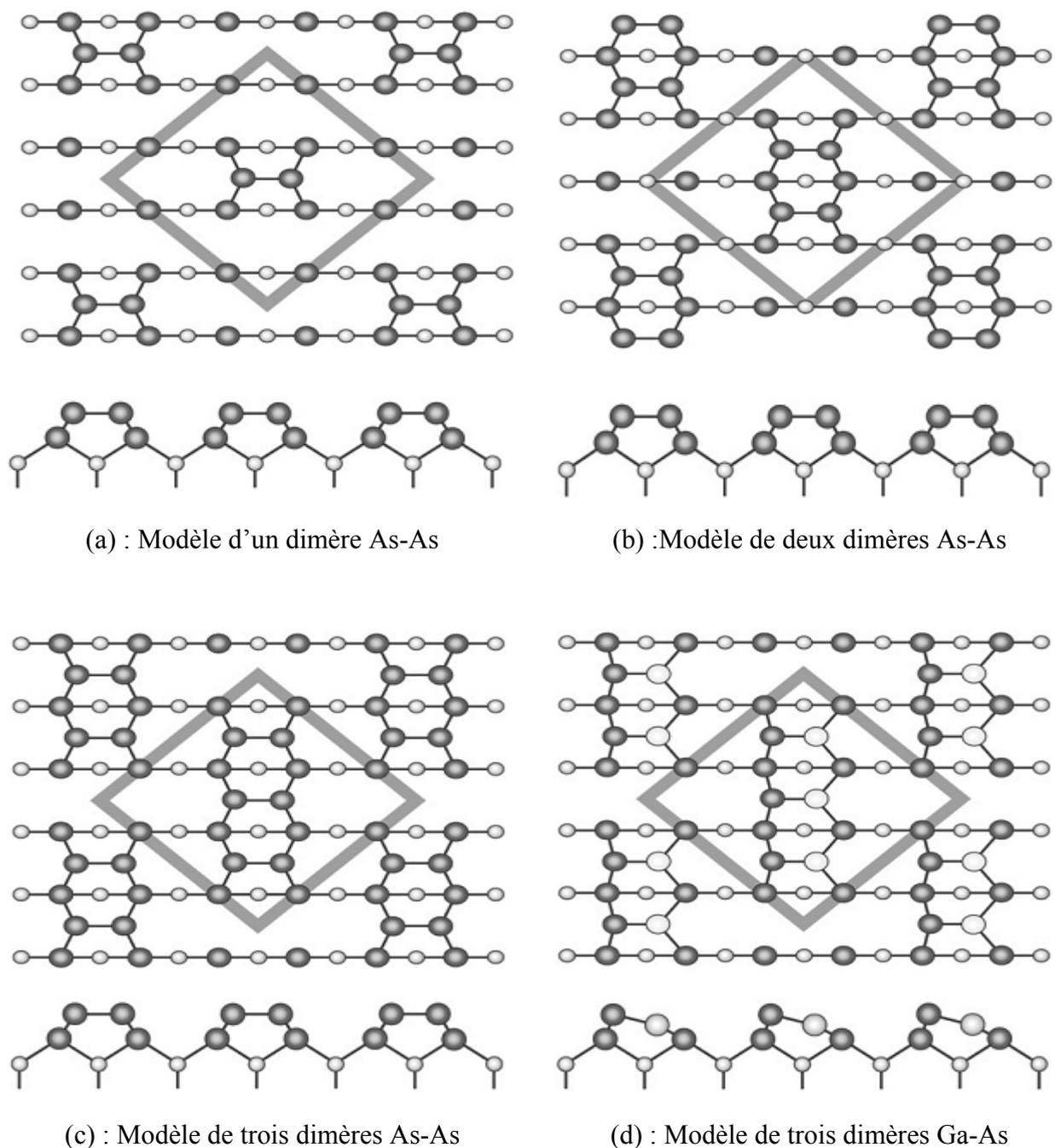


Figure 5.3: Structure des modèles de reconstruction de la surface $c(4 \times 4)$ de GaAs riche en As.

Cercle blanc (noir) indique les atomes Ga (As).

Les reconstructions (6×6) , $c(8 \times 2)$, et (4×6) sont formées en vertu de Ga-riche. La reconstruction riche gallium est plus complexe.

La surface $c(8 \times 2)$ est structurée avec des lignes courbes de défauts le long de la direction $[1 \bar{1} 0]$.

Plusieurs variantes de reconstructions (6×6), $c(8 \times 2)$, et (4×6) ont été proposées ces dernières années. On peut citer par exemple les modèles; β , β_2 , Skala, Jones, Figure 5.4.

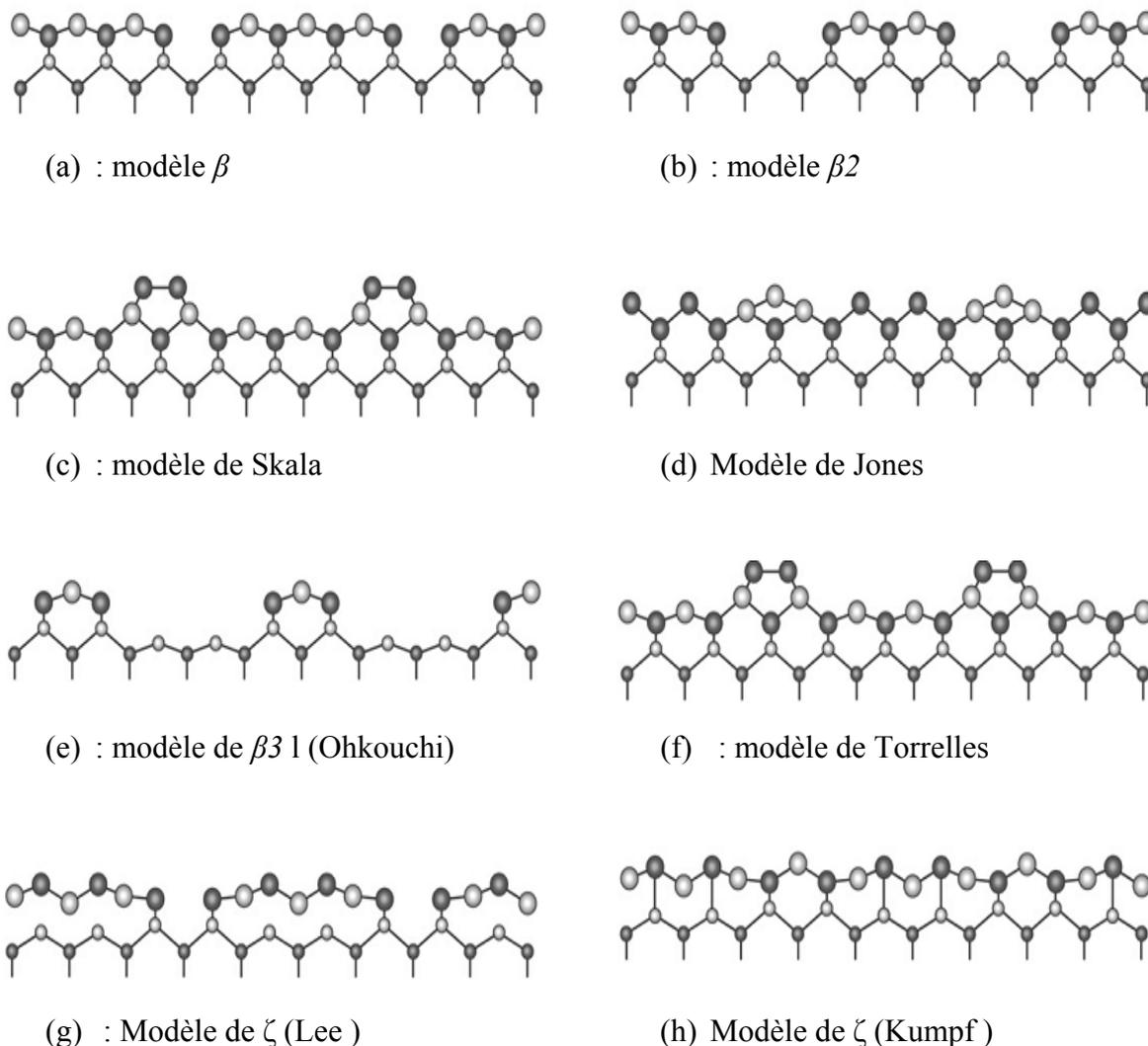


Figure 5.4: Structure des modèle de reconstruction de la surface $c(8 \times 2)$ de GaAs.

Cercle blanc (noir) indique les atomes Ga (As)[101].

La structure (4×6) constituée de surface des dimères Ga-As et de la subsurface des dimères Ga-Ga est énergétiquement stable pour les conditions riches en Ga.

La surface (6×6) a une géométrie atomique semblable à (4×6) , avec la disposition d'une large gamme de composition de surface: les densités de surface des dimères Ga-As et As-As varient en fonction des conditions de préparation. La structure (6×6) avec dominante la surface des

dimères (Ga-As) a un peu près égale stœchiométrie à la structure de la surface $c(8 \times 2)[101]$.
Figure 5.5.

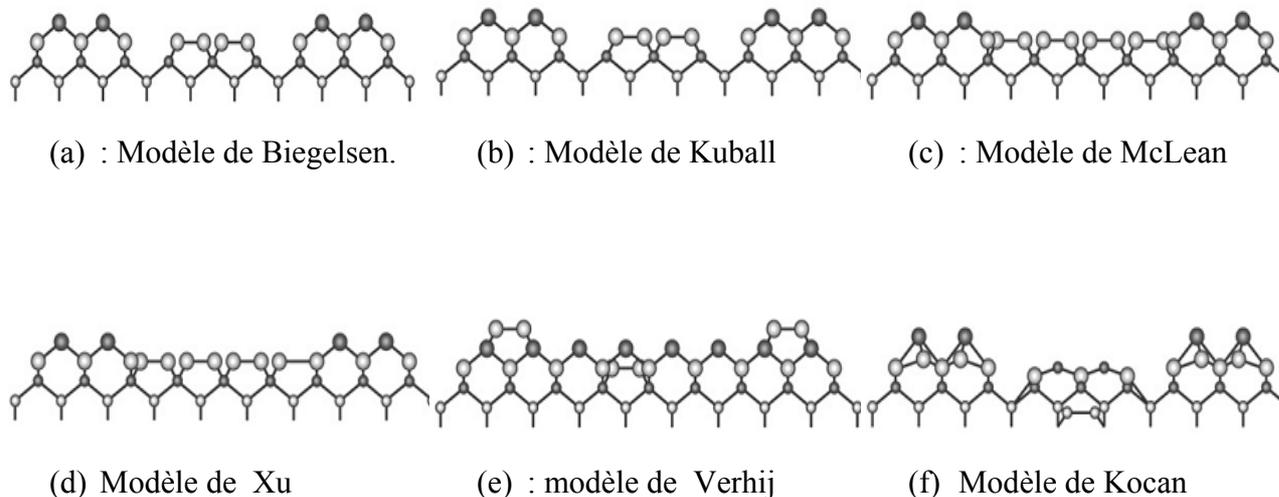


Figure 5.5: Structure des modèles de reconstruction de la surface (6×6) de GaAs.

Cercle blanc (noir) indique les atomes Ga (As)[101].

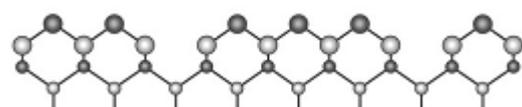
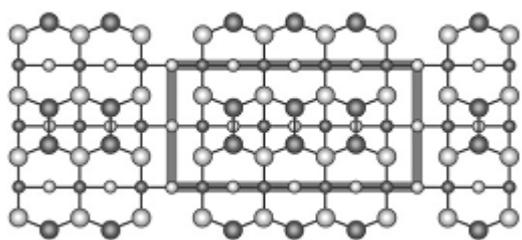
La figure 5.5 montre quelques modèles de la reconstruction de la surface (6×6) de GaAs, qui est semblable à la structure (4×6) .

La plupart des formes de reconstruction citées par avant, sont des structures singulières, par conséquent et suivant les principes de Duke, on peut citer trois reconstructions principales qui satisfassent à ces règles, et que l'on peut classer suivant leur concentration décroissante en arsenic : $c(4 \times 4)$, (2×4) et (4×2)

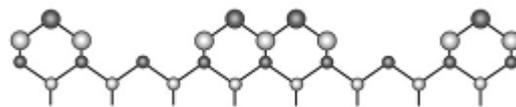
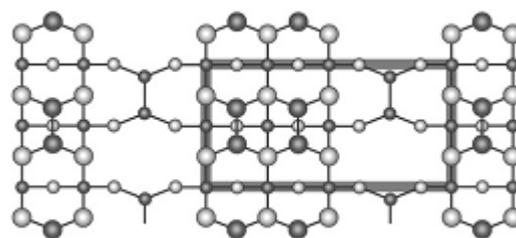
La surface (4×2) est une reconstruction très riche en gallium. Pour ces raisons, la croissance de GaAs s'effectue le plus souvent en (4×2) , pour laquelle la composition en arsenic est de l'ordre de 0.5 – 0.75 monocouche.

Une caractéristique importante de la surface de GaAs est la possibilité d'observer la transition d'une surface riche en arsenic à une surface riche en gallium en suivant le passage d'un diagramme RHEED (2×4) à un diagramme (2×4) [94,98,101].

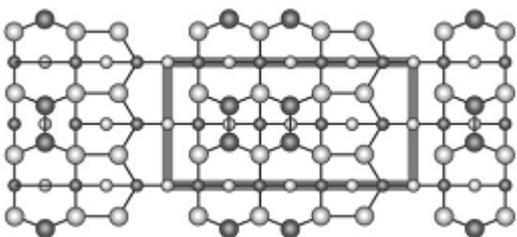
La figure 5.6 représente les différents types de reconstruction de la surface (2×4) de GaAs(001).



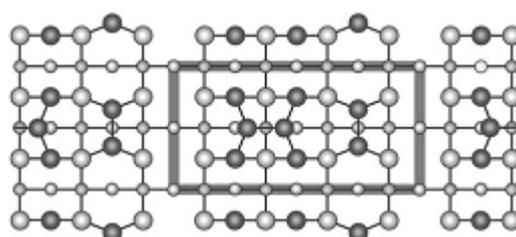
(a) : modèle β .



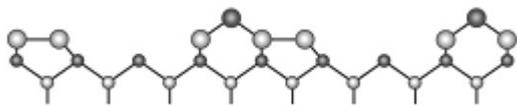
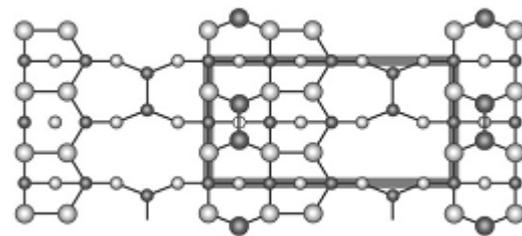
(b) : modèle β_2



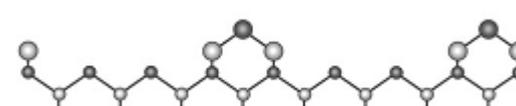
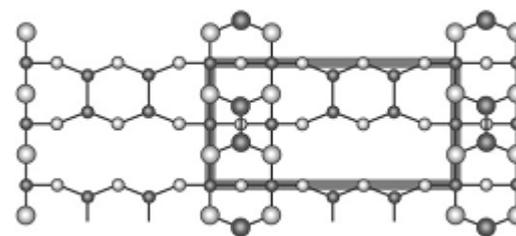
(c) : modèle α



(d) : modèle γ model



(e) : modèle α_2



(f) : modèle β_3

Figure 5.6: Structure de modèles de reconstruction de la surface (2x4) de GaAs riche en As.

Cercle blanc (noir) indique les atomes Ga (As).

5.2.4. Reconstruction β_2 (2×4) de GaAs(001) :

La reconstruction (2×4) de GaAs a suscité de nombreuses études expérimentales (photoémission, STM, RHEED,...) et théoriques (ab initio). Lors de la croissance épitaxiale de GaAs, des changements d'intensité des raies fractionnaires du diagramme (2×4) permettent de distinguer les reconstructions GaAs α , β et γ [25].

Il existe actuellement un consensus suivant lequel l'arrangement le plus stable correspond au modèle $\beta_2(2 \times 4)$ [94,95]. Figure 5.7.

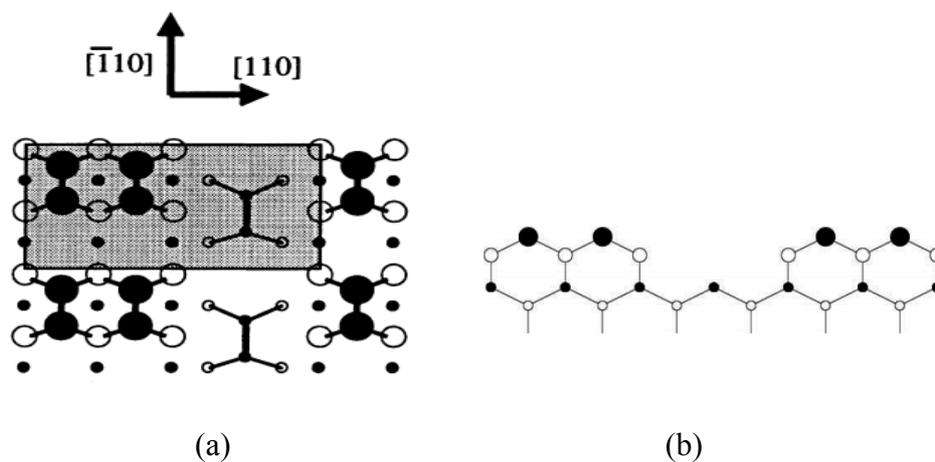


Figure 5.7 : Reconstruction de la surface β_2 (2×4) de GaAs(001).

(a) : Vue de dessus de β_2 (2×4), (b) : Vue latérale de β_2 (2×4).

La figure 5.7 montre la structure de la surface β_2 (2×4) de GaAs(001).

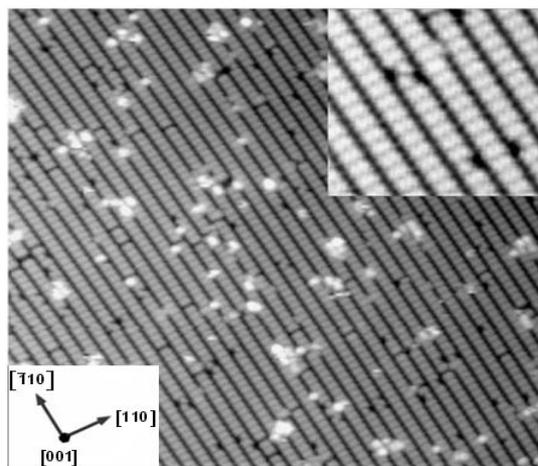


Figure 5.8 : Image STM d'une reconstruction β_2 (2×4) de GaAs(001) ([6]).

L'image (coté haute droite) est une image STM de haute résolution ($100^{\circ}\text{A} \times 100^{\circ}\text{A}$) prenant de la même surface, les dimères d' As_2 et les tranches sont présentés comme des points blancs et noirs respectivement.

5.3. Description du modèle de Simulation

Dans cette partie, nous présentons les modèles d'homoépitaxie de $\text{GaAs}(001)$. Ces modèles ont pour objet de simuler à la fois la croissance homoépitaxiale et la reconstruction de la surface $\beta_2 (2 \times 4)$ de $\text{GaAs}(001)$ produits par jets moléculaires. Contrairement au cas de l'homoépitaxie standard où la croissance est aléatoire et la couche épitaxiée se compose par des îlots de différentes tailles, il est nécessaire dans le modèle de la reconstruction de la surface $\beta_2 (2 \times 4)$ de $\text{GaAs}(001)$ (proposé en détails par M.Itoh) de montrer que la surface des couches épitaxiées se compose par des tranches et non pas des îlots [90,94,95].

Le modèle inclut tous les détails microscopiques tels que : Les processus atomistiques de la croissance (mode 2D), la structure zinc blende du cristal, et les différentes propriétés cinétiques de la croissance, etc.

5.3.1. Structure zinc-blende de GaAs [6]

L'élaboration d'un modèle de simulation réaliste nécessite une adaptation exacte de la structure cristallographique. Généralement la majorité des matériaux semiconducteurs cristallisent dans la structure diamant ou zinc blende. Figure 5.9.

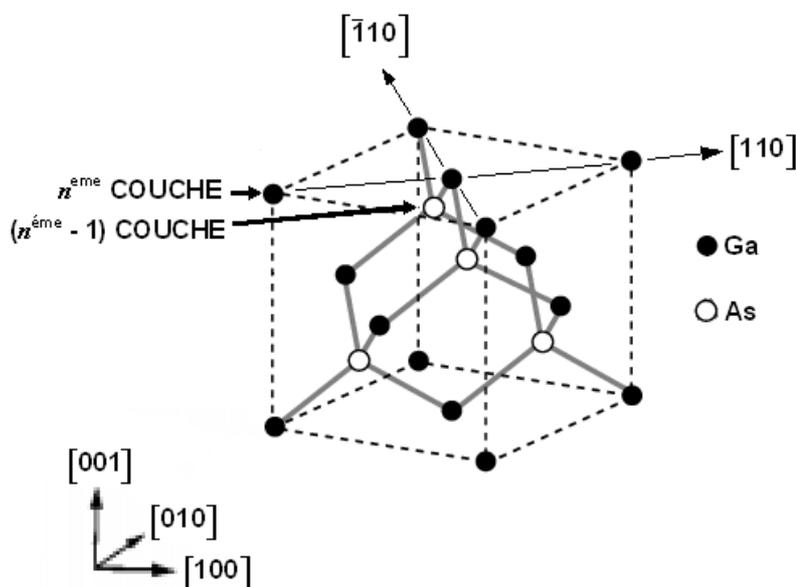


Figure 5.9 : La structure zinc-blende de GaAs .

La figure 5.9 montre une cellule conventionnelle de la structure zinc blende.

Pour réaliser cette structure, on suppose une variable $Li_{(i,j,k)}^B$ qui compte le nombre de liaisons d'un atome de coordonnées i, j, k et les atomes de la couche supérieure $k + 1$. Dans le cas de la surface (001) de la structure zinc-blende la variable $Li_{(i,j,k)}^B$ prend soit 0,1 ou 0,2. On définit aussi une autre variable $ha(i, j)$, qui décrit la hauteur de chaque site de coordonnées i, j dans le plan x, y de la surface.

La condition de dépôt d'un atome Ga et l'arrangement adéquat de paire d'atomes As, donc si ces deux atomes prennent respectivement les positions (i, j, k) et $(i + 1, j, k)$, l'atome Ga aura les coordonnées $(i, j, k + 1)$. La même chose pour l'As, si elle est déposée sur une paire d'atomes Ga de coordonnées (i, j, k) et $(i, j + 1, k)$ et elle aura les coordonnées $(i, j, k + 1)$.

Par l'utilisation de $ha(i, j)$, on peut définir l'emplacement de déposition de chaque types d'atomes. Dans la structure zinc-blende les atomes As et Ga prennent alternativement des couches différentes, en introduisant une variable C_{\emptyset} ($\emptyset = Ga$ ou bien As) au moyen de cette variable, on peut identifier la nature de chaque couche pour éviter l'occurrence des anti-site (déposition de As sur As ou Ga sur Ga).

Dans la simulation si $C_{Ga} = impaire$ et $C_{As} = paire$ la déposition des atomes Ga ce fait uniquement dans les couches impaires, et les As dans les couches paire.

Suivant ces définitions, la construction de la structure zinc-blende dans notre simulation est comme suit:

Un atome Ga peut se déposer dans la position $(i, j, ha(i, j) + 1)$ si elle vérifier les conditions :

- $ha(i, j) \in C_{As}$
- $ha(i + 1, j) \geq ha(i, j)$
- $Li_{(i+1,j,ha(i,j))}^B < 2$

Si ces conditions sont vérifiées et un événement d'adsorption Ga se produit, les grandeurs $ha(i, j)$, $Li_{(i,j,ha(i,j))}^B$ et $Li_{(i+1,j,ha(i,j))}^B$ sont incrémentés par une unité.

Le même procédé pour le cas de dépôt d'As₂, une paire dimère As* est capable de déposé dans les sites $(i, j, ha(i, j))$, $(i + 1, j, ha(i, j))$, $(i, j + 1, ha(i, j))$ et $(i + 1, j + 1, ha(i, j))$ et devient par la suite incorporé dans la surface comme un dimère As₂ avec les deux coordonnées $(i, j, ha(i, j) + 1)$ et $(i + 1, j, ha(i, j) + 1)$ si les conditions suivant sont vérifier :

- $ha(i, j) \in C_{Ga}$
- $ha(i + 1, j) = ha(i, j)$
- $ha(i, j + 1) \geq ha(i, j)$
- $ha(i + 1, j + 1) \geq ha(i, j)$

- $Li_{(i,j+1,ha(i,j))}^B < 2$
- $Li_{(i+1,j+1,ha(i,j))}^B < 2$

Cette procédure de construction du structure zinc-blende est un moyen satisfaisant avec le modèle SOS, qui empêche l'apparence des défauts.

5.3.2. Les mécanismes élémentaires

Le modèle est fondé sur une liste d'événements. Ces événements sont déterminés par une analyse du nombre d'interactions pour déterminer le mouvement.

Pour simuler le modèle, on a utilisé un modèle mathématique défini sur un réseau cubique de trois dimensions, avec une structure cristalline zinc blende.

La nature de ce modèle (modèle a deux types d'espèces : Ga et As dans notre simulation) exige que chaque type d'atomes (Ga ou As) occupe une couche bien distincte. Les directions cristallographiques $[110]$, $[\bar{1}10]$ et $[001]$ présentent les coordonnées du système x, y et z, la croissance ce fait sur la direction z ($[001]$) $[102]$.

A chaque position dans le cluster on définit une variable qui détermine l'état (vacante ou bien occupé par un atome Ga ou As). Les atomes As forment des dimères à condition qu'ils ne soient pas déposer sur des atomes Ga.

Avant d'être incorporées dans la surface ou désorbées vers le vide, les molécules As_2 entrent dans un état de physisorption (état précurseur : réservoir) modéliser dans le programme de simulation par une matrice à deux dimensions $[6,94]$.

Les processus inclus dans notre modèle de calcul sont : dépôts, migration des atomes de Ga, dépôts des molécules As_2^* dans l'état de précurseur, incorporation As_2 , adsorption; dissociation de As_2^* de GaAs, de la formation et les migrations de As_2 $[90,91,93-96,99-100]$. Figure 5.10.

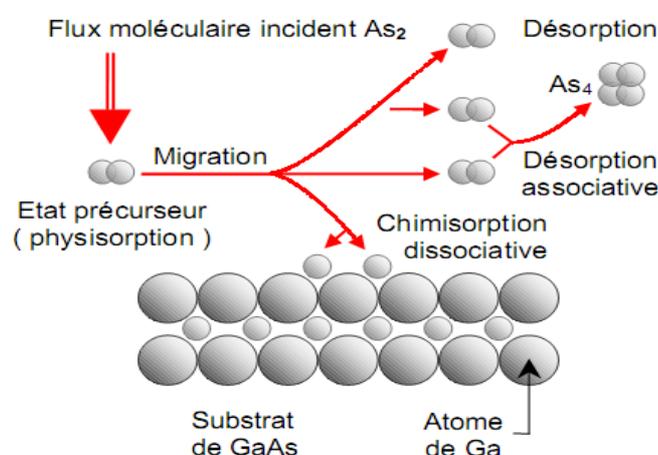


Figure 5.10 : Modèle de croissance à partir d'un flux de Ga et d'un flux d' As_2 $[34]$

Donc nous avons déterminé et classé les mouvements les plus probables en cinq catégories :

a)- Adsorption des Atomes Ga

Le taux d'adsorption des atomes Ga est exprimé par la surface du substrat (monocouche) et unité de temps (seconde). Pour accomplir cet événement, le programme choisit aléatoirement une position vacante dans le plan xy de la surface.

b)- Diffusion des Atomes Ga

Dans la croissance GaAs(001), les calculs ab initio montrent que la diffusion des atomes Ga est anisotrope, c'est-à-dire qu'il y a une différence dans la barrière de diffusion des atomes Ga dans la direction [110] et celle pour la direction $[\bar{1}10]$. Le lieu de la diffusion est choisit aléatoirement dans un des quatre proches voisines sites vacants (pour un atome libre), dans le cas contraire l'atome est considéré incorporé dans un îlot.

c)- Incorporation des Atomes Ga

Les liaisons d'un atome Ga se change suivant leur configuration dans le cristal. L'incorporation dans le cristal de ces atomes est prévue dans les cas :

- S'il y a une adsorption au-dessus de l'atome Ga.
- Si l'atome Ga forme un dimère avec un autre atome Ga dans la direction [110] de la couche supérieure du cluster.

d)- Adsorption des Atomes As₂

On distingue deux types d'adsorption pour les molécules As₂:

- La déposition des molécules As₂ ce fait en premier lieu dans le réservoir (état précurseur). Les molécules dans cet état sont attachées par une très faible liaison avec la surface, avant que ces molécules soient déposées sur la surface ou bien désorber vers le vide.
- La déposition des molécules As₂* dans la surface ce fait par l'intermédiaire du réservoir, les molécules (état de physisorption) attend un arrangement de moins quatre atomes Ga pour déposer dans la surface.

Dans le site d'adsorption les molécules As₂ deviennent incorporées dans la surface comme des **As** dimères, la direction de cette liaison est orientée vers la direction cristallographique $[\bar{1}10]$.

e)- Désorption des Molécules As₂

Le phénomène de désorption des molécules As₂ est très fréquenté dans ce type de croissance épitaxiale, la désorption des molécules As₂ incorporées dans la surface est faite en premier lieu

dans le réservoir, si ce dernier est plein, on considère que la désorption se fait directement vers le vide.

Même chose pour la création et la diffusion des atomes As monomère, par ce que leur formation nécessite la rupture d'une liaison forte de 4 eV, donc, est considéré que c'est un événement très peu probable.

Dans nos calculs, on n'a pas pris en considération la diffusion des dimères As-As sur la surface, car ce type de processus n'a pas une grande influence sur le mécanisme de croissance.

5.3.3. Calcul énergétique[6,94]

5.3.3.1. Interactions des Atomes Ga dans le Modèle

Une interaction se forme entre deux atomes Ga s'ils prennent des positions proches voisines entre eux. Un atome Ga résidé dans une tranche, forme une liaison avec un autre atome Ga dans la direction $[110]$ (ou $[\bar{1}10]$), si le dernier est placé au-dessous d'un atome As, ce type d'interaction est appelé PBCIs (Pairwise Bond-Counting Interactions) Figure 5.11.

Ce type d'interaction est très important dans la croissance épitaxiale parce qu'il est l'origine de la stabilité de la structure.

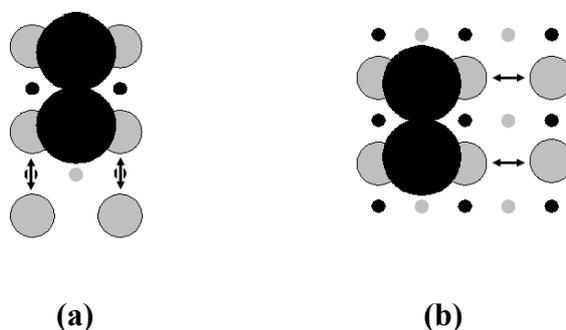
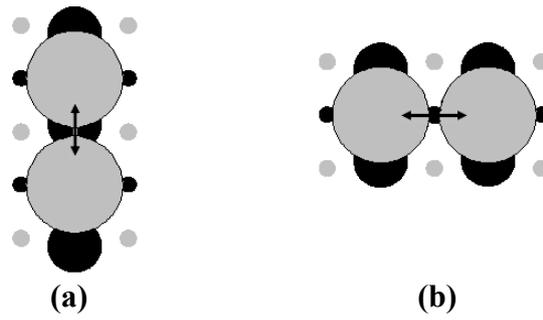


Figure 5.11 : Interactions PBCIs des atomes Ga.

(a) : PBCI dans la direction $[110]$, (b): PBCI dans la direction $[\bar{1}10]$.

On a introduit aussi, l'interaction entre une paire d'atomes Ga en absence du PBCI dans les directions cristallographiques $[110]$ et $[\bar{1}10]$. Figure 5.12.

Comme l'interaction précédente, cette interaction n'est pas une fonction linéaire des nombres de proches voisins.

Figure 5.12 : Interactions *Ga-Ga*

(a) : Interaction *Ga-Ga* dans la direction $[110]$, (b) : Interaction *Ga-Ga* dans la direction $[\bar{1}10]$.

Pour calculer l'énergie d'interaction produite par PBCIs, on définit une variable s qui compte le nombre de liaisons possible d'un atome Ga dans la position (i, j, k) avec leurs proches voisins dans la même couche.

Pour calculer s , on le décompose en deux composantes perpendiculaires suivant les directions $[110]$ et $[\bar{1}10]$

Dans la direction $[\bar{1}10]$, s est défini par l'expression :

$$S_{(i,j)}^{[\bar{1}10]} = Li_{(i+1,j,ha(i,j))}^B + Li_{(i-1,j,ha(i,j))}^B \quad (5.1)$$

Et pour la direction $[110]$,

$$S_{(i,j)}^{[110]} = Li_{(i,j+1,ha(i,j))}^B + Li_{(i,j-1,ha(i,j))}^B \quad (5.2)$$

Par la contribution des interactions PBCIs, on définit la barrière du potentiel d'un atome Ga par :

$$E_{(i,j)}^{PBCI} = E_{[\bar{1}10]}^{PBCI} \theta \left(S_{(i,j)}^{[\bar{1}10]} \right) + E_{[110]}^{PBCI} \theta \left(S_{(i,j)}^{[110]} \right) \quad (5.3)$$

Avec :

$$\theta(x) = \begin{cases} 1 & \text{si } x > 0 \\ 0 & \text{si } x \leq 0 \end{cases} \quad (5.4)$$

En outre, si plusieurs PBCIs sont produits Figure 5.13, le nombre max d'électrons qu'un atome Ga peut échanger pour ce type de liaisons est réduit à un [44].

Donc on introduit un terme additionnel dans la formule pour éviter toutes multiples contributions de PBCIs.

$$E_{(i,j)}^{PBCI} = E_{[\bar{1}10]}^{PBCI} \theta \left(S_{(i,j)}^{[\bar{1}10]} \right) + E_{[110]}^{PBCI} \theta \left(S_{(i,j)}^{[110]} \right) - E_{[110]}^{PBCI} \theta \left(S_{(i,j)}^{[\bar{1}10]} \right) \theta \left(S_{(i,j)}^{[110]} \right) \quad (5.5)$$

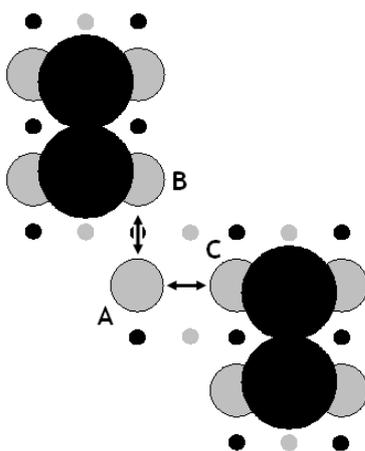


Figure 5.13 : Possibilités de multiples interactions PBCIs. .

Pour calculer l'énergie d'interaction entre une paire d'atomes Ga, on utilise la formule :

$$\begin{aligned} \Delta_{(i,j)} = & \left(E_{[\bar{1}10]}^{Ga-Ga} (\delta_{ha(i,j+1),ha(i,j)} + \delta_{ha(i,j-1),ha(i,j)}) \right) - \\ & \left(E_{[\bar{1}10]}^{Ga-Ga} (\delta_{ha(i,j+1),ha(i,j)} \delta_{ha(i,j-1),ha(i,j)}) \right) \delta_{Li_{(i,j+1,ha(i,j))}^B,0} \delta_{Li_{(i,j-1,ha(i,j))}^B,0} + \\ & \left(E_{[110]}^{Ga-Ga} (\delta_{ha(i+1,j),ha(i,j)} + \delta_{ha(i-1,j),ha(i,j)}) \right) - \\ & \left(E_{[110]}^{Ga-Ga} (\delta_{ha(i+1,j),ha(i,j)} \delta_{ha(i-1,j),ha(i,j)}) \right) \delta_{Li_{(i+1,j,ha(i,j))}^B,0} \delta_{Li_{(i-1,j,ha(i,j))}^B,0} \end{aligned} \quad (5.6)$$

Avec $\delta_{a,b}$ est le delta Kronecker ;

$$\delta_{a,b} = \begin{cases} 1 & \text{si } a = b \\ 0 & \text{si } a \neq b \end{cases} \quad (5.7)$$

$E_{[\bar{1}10]}^{Ga-Ga} (\delta_{ha(i,j+1),ha(i,j)} + \delta_{ha(i,j-1),ha(i,j)})$: Terme de vérification de l'existence d'une interaction entre deux atomes Ga dans la direction $[\bar{1}10]$.

$E_{[\bar{1}10]}^{Ga-Ga} (\delta_{ha(i,j+1),ha(i,j)} \delta_{ha(i,j-1),ha(i,j)})$: Terme de limitation de nombre de liaisons employé dans ce type d'interactions a un pour chaque direction cristallographique.

$\delta_{Li_{(i,j+1,ha(i,j))}^B,0} \delta_{Li_{(i,j-1,ha(i,j))}^B,0}$: Terme de vérification d'existence de PBCIs.

Les mêmes définitions s'appliquent sur la deuxième tranche de la formule (c'est à dire la direction $[110]$)

En tenant compte de la contribution de l'énergie de surface E_S^{Ga} , la barrière de potentiel pour la diffusion d'un atome Ga est défini par :

$$E_{(i,j)}^{Ga} = E_S^{Ga} + E_{(i,j)}^{Ga-Ga} + E_{(i,j)}^{PBCI} \quad (5.8)$$

5.3.3.2. Interactions des Atomes As dans le Modèle

Comme ont à déjà montré, la déposition des atomes As dans la surface ce fait par l'intermédiaire d'un réservoir (état précurseur). Pour cela, on distingue deux différents états qui peuvent prendre un atome As dans notre modèle :

- Dans l'état précurseur, les molécules As_2^* ont une faible liaison avec la surface (0.2 eV) et une grand mobilité. Dans la simulation, on introduit deux types d'événements pour les molécules As_2^* , la désorption vers le vide et l'incorporation dans la surface. Comme pour tous les événements inclus dans le modèle, ces deux événements sont de types Arrhenius, donc pour calculer la barrière de potentiel on applique la loi :

$$R_{\alpha}^* = n^* \nu \exp\left(\frac{E_{\alpha}^*}{k_B T}\right) \quad (5.9)$$

n^* : est la densité des molécules As_2^* par site (surface), et α : est le type d'événement (incorporation, désorption).

On suppose au début que le réservoir est presque plein $n^* \approx 0.5$ [44], et une valeur de $R_{incorporation}^* = 10^3 s^{-1}$ est déjà calculé dans [99].

Connaissant les taux de R, on peut donc calculer : $E_{incorporation}^*$ et $E_{désorption}^*$. Ces valeurs sont présentées dans les sections suivantes.

- Dans la surface, un atome As peut prendre deux états qui représente les deux positions qui peut prendre un atome dans un dimère As_2 . Ces deux états sont différenciés suivant la direction de la liaison entre les deux composants d'un dimère (si elle est dans la direction $[\bar{1}10]$ ou dans la direction contraire). Schématiquement, si un vecteur pointant du centre d'un atome As vers le milieu du dimère est dans la direction $[\bar{1}10]$ on désigne cet état par UP, et on désigne par DOWN le sens inverse de l'interaction, la Figure 5.14 schématise cette procédure.

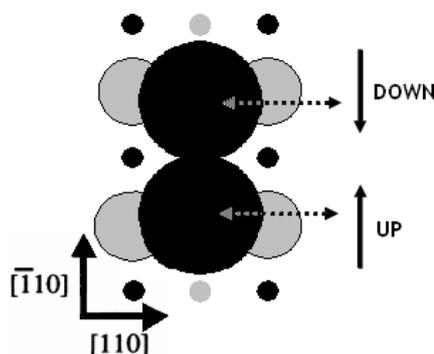


Figure 5.14 : Représentation des états d'atome As dans un dimère As_2 .

(Les vecteurs UP et DOWN indique l'état de chaque atome)

Donc pour la construction et la stabilité, on définit des interactions attractives comme (l'interaction $As - As$ in - phase,...), et des interactions répulsives comme (l'interaction répulsive Coulombien,...).

On définit la variable $e_{As}(i, j, k)$ qui décrit l'état d'un atome As de coordonnées (i, j, k) . Cette grandeur prend des valeurs dans l'ensemble $\{Up, Down, V\}$, avec le V désigne une position vacante, Suivant ces définitions, la barrière de potentielle d'une interaction entre deux dimères dans la direction $[\bar{1}10]$ (*inter - dimer* Interaction) est défini comme :

$$E_{(i,j)}^{As_2-As_2 \text{ inter dimer}} = \left(E_{[\bar{1}10]}^{As_2-As_2 \text{ inter dimer}} \left(\delta_{e_{As}(i,j,ha(i,j)),Up} \delta_{e_{As}(i,j+1,ha(i,j)),Down} + \delta_{e_{As}(i,j,ha(i,j)),Up} \delta_{e_{As}(i,j-2,ha(i,j)),Up} \right) \right) \quad (5.10)$$

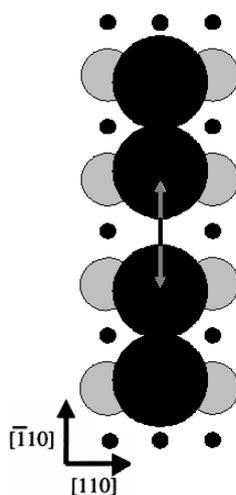


Figure 5.15 : Interaction $As-As$ dans la direction $[\bar{1}10]$ (*inter-dimer interactions*).

La barrière de potentielle d'une interaction entre deux dimère dans la direction $[110]$ (*in - phase dimer interactions*) est défini comme :

$$E_{(i,j)}^{As_2-As_2 \text{ in phase dimer}} = \left(E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ in phase dimer}} \left(\delta_{e_{As}(i,j,ha(i,j)),Up} \delta_{e_{As}(i+1,j,ha(i,j)),Up} + \delta_{e_{As}(i,j,ha(i,j)),Up} \delta_{e_{As}(i-1,j,ha(i,j)),Up} \right) \right) \quad (5.11)$$

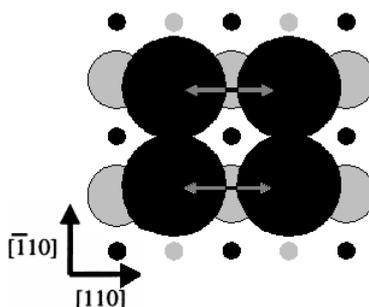


Figure 5.16 : Interaction $As-As$ dans la direction $[110]$ (*in-phase dimer interactions*).

La barrière de potentielle d'une interaction répulsive coulombienne entre deux dimère (*Screened Coulomb repulsions*) est défini comme :

$$E_{(i,j)}^{As_2-As_2 \text{ repulsive colomb}} = \left(E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ repulsive colomb}} \delta_{ha(i,j),h_{Max}} \left(\delta_{e_{As}(i,j,ha(i,j)),Up} \delta_{e_{As}(i+2,j,ha(i,j)),Up} + \delta_{e_{As}(i,j,ha(i,j)),Up} \delta_{e_{As}(i-2,j,ha(i,j)),Up} \right) \right) \quad (5.12)$$

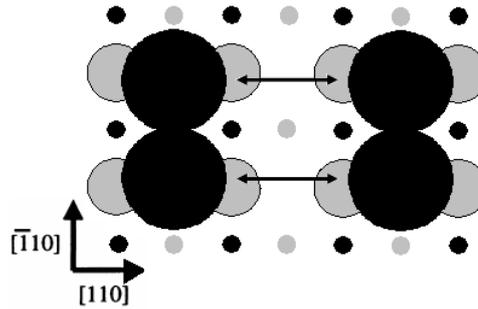


Figure 5.17 : Interaction répulsive coulombien entre deux paires As_2 (*Screened Coulomb repulsion*).

La barrière de potentielle d'une interaction répulsive entre deux dimères dans la direction [110] (*anti-phase dimer interactions*) est défini comme :

$$E_{(i,j)}^{As_2-As_2 \text{ anti phase dimer}} = E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ anti phase dimer}} \delta_{ha(i,j),h_{Max}} \left(\left(\delta_{e_{As}(i,j,ha(i,j)),Up} \delta_{e_{As}(i+1,j,ha(i,j)),Down} + \delta_{e_{As}(i,j,ha(i,j)),Up} \delta_{e_{As}(i-1,j,ha(i,j)),Down} \right) + \delta_{e_{As}(i,j,ha(i,j)),Up} \delta_{e_{As}(i+1,j-1,ha(i,j)),Up} + \delta_{e_{As}(i,j,ha(i,j)),Up} \delta_{e_{As}(i-1,j-1,ha(i,j)),Up} \right) \quad (5.13)$$

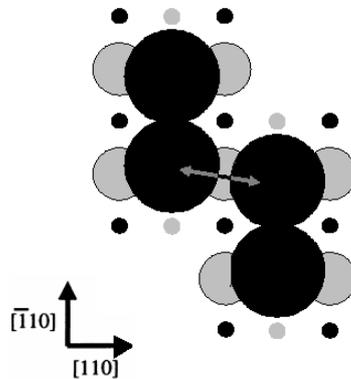


Figure 5.18 : Interaction $As-As$ répulsive dans la direction [110] (*anti-phase dimer interactions*)

Tenant compte de la contribution de surface $E_{(i,j)}^{As_2}$, la barrière de potentielle pour la désorption d'un dimère As est :

$$E_{(i,j)}^{As_2} = E_S^{As_2} + E_{(i,j)}^{As_2-As_2 \text{ inter dimer}} + E_{(i,j)}^{As_2-As_2 \text{ inphase dimer}} + E_{(i,j)}^{As_2-As_2 \text{ repulsive colomb}} + E_{(i,j)}^{As_2-As_2 \text{ anti phase dimer}} \quad (5.14)$$

Il faut noter ici qu'on a négligé l'effet de PBCIs sur les interactions des atomes As, le fait que cette interaction est réalisée entre les deux types d'atomes, l'état électronique de l'atome As est affecté. Par conséquent, les autres interactions de l'As seront affectées. Cette simplification est justifiée seulement quand les interactions considérées dans ce modèle des dimères As_2 est plus importante de toutes autres types d'interactions (tel que : le PBCIs).

5.3.4. Déroulement de la croissance

La quantification et l'énumération des processus de la croissance tel que la déposition, la diffusion, absorption et la désorption des atomes Ga et As sur le substrat et la détermination des paramètres définissant la forme de cluster ; nécessitent une modélisation mathématique du comportement de la structure formée et une simulation qui s'effectueront avec la technique de Monte Carlo Cinétique [6,93,99,102,103].

Les cycles de Monte Carlo sont un enchaînement des différents événements que nous avons détaillé dans les sections précédentes. Ainsi, par la suite, la chronologie de tous les processus (événements) cinétiques de croissance est défini comme suit [90,91,93-96,99-100,102-104]:

1. Dépôts aléatoire des atomes de Ga.
2. Diffusion des atomes de Ga sur la surface.
3. Incorporation des atomes de Ga.
4. Flux As_2 en état de précurseur devenir As_2^* .
5. Absorption (incorporation) de As_2
6. Désorptions de As_2^* , il y en a deux événements de désorption de As_2^* avec deux taux[5].
 - a). Désorptions vers le vide.
 - b). L'adsorption d'une surface a état précurseur
7. Diffusion en tant que monomères.

Tous ces événements sont schématisés sur la figure 5.19 qui montre l'organigramme détaillé de calcul.

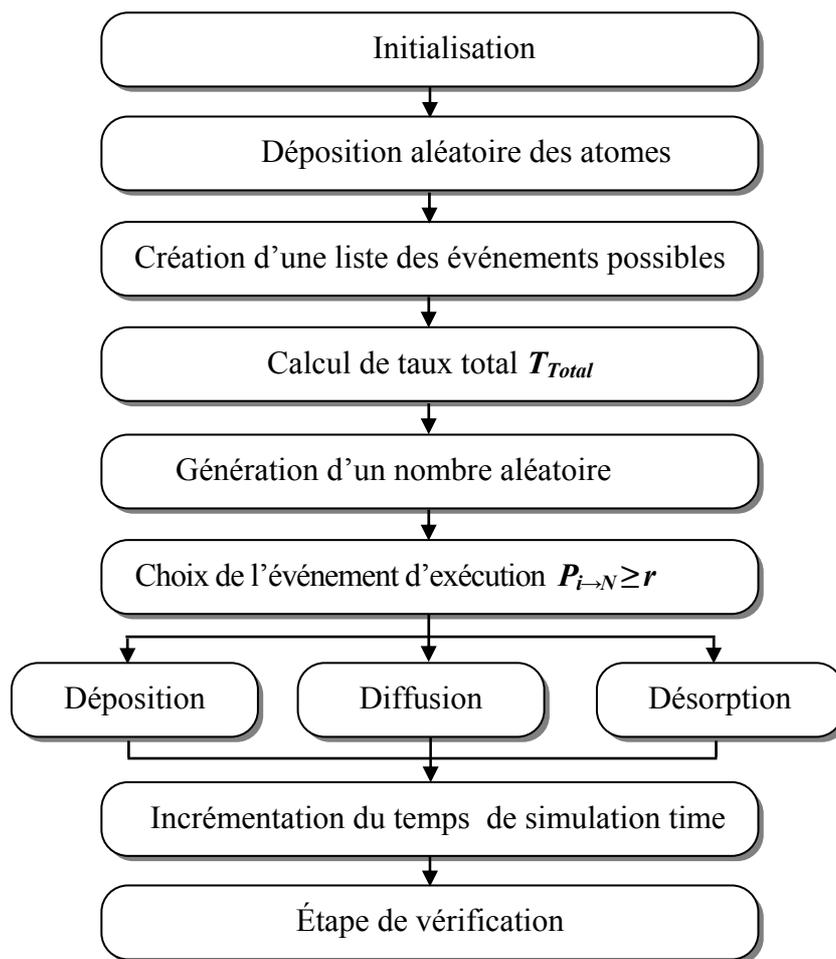


Figure 5.19 : Principe de calcul de la simulation de la croissance homoépitaxiale de GaAs(001) par la méthode de Monte Carlo Cinétique (KMC)

5.3.5. Paramètres de simulation

Les simulations ont été effectuées sur des substrats carrés de taille (40 x 40) et (80 x 80) avec les conditions aux limites périodiques. L'épaisseur des couches déposées est jusqu'à 10 couches atomiques.

Pour nos simulations, les paramètres typiques utilisés sont illustrés dans le tableau 5.1. Ces paramètres ont été employés en particulier de modéliser avec précision la croissance et la reconstruction de la surface β_2 (2x4) homoépitaxiales de GaAs (001) [6. 94, 95,105].
Tableau5.1.

Paramètre	Symbole	valeur
Energie de surface pour un atome As	E_S^{As}	1.65 eV
Energie de surface pour un atome Ga	E_S^{Ga}	1.4 eV
Interaction PBCI pour les atomes Ga dans la direction $[\bar{1}10]$	$E_{[\bar{1}10]}^{PBCI}$	0.25 eV
Interaction PBCI pour les atomes Ga dans la direction $[110]$	$E_{[110]}^{PBCI}$	0.28 eV
Interaction Ga – Ga dans la direction $[\bar{1}10]$	$E_{[\bar{1}10]}^{Ga-Ga}$	0.32 eV
Interaction Ga – Ga dans la direction $[110]$	$E_{[110]}^{Ga-Ga}$	0.28 eV
Interaction entre deux dimères As_2 dans la direction $[\bar{1}10]$ (<i>inter dimer interactions</i>)	$E_{[\bar{1}10]}^{As_2-As_2 \text{ inter dimer}}$	0.63 eV
Interaction entre deux dimères As_2 dans la direction $[110]$ (<i>in-phase dimer interactions</i>)	$E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ in phase dimer}}$	1 eV
Interaction répulsive coulombien entre deux dimères As_2 (<i>Screened Coulomb repulsions</i>)	$E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ repulsive colomb}}$	-1.71 eV
Interaction répulsive entre deux dimères As_2 dans la direction $[110]$ (<i>anti-phase dimer interactions</i>)	$E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ anti phase dimer}}$	-0.15 eV
Barrière d'incorporation dans la surface pour les molécules As_2^*	$E_{incorporation}^*$	1.74 eV
Barrière de désorption du réservoir pour les molécules As_2^*	$E_{désorption}^*$	2.39 eV
Fréquence de vibration	ν	10^{12} s^{-1}

Tableau 5.1 : Paramètres gammes employés dans notre simulation de Monte Carlo cinétique (KMC)[105].

5.4. Résultats obtenus

Avant de présenter les résultats obtenus par notre simulation (code de calcul), on présente la présentation de la structure de l'image obtenue (morphologie de la surface épitaxiée).

Dans la représentation graphique des clusters, on utilise les symboles suivant pour représenter les atomes, ainsi, on utilise des divers couleurs afin d'indiquer la position de chaque atomes dans le cluster. Figure 5.20.

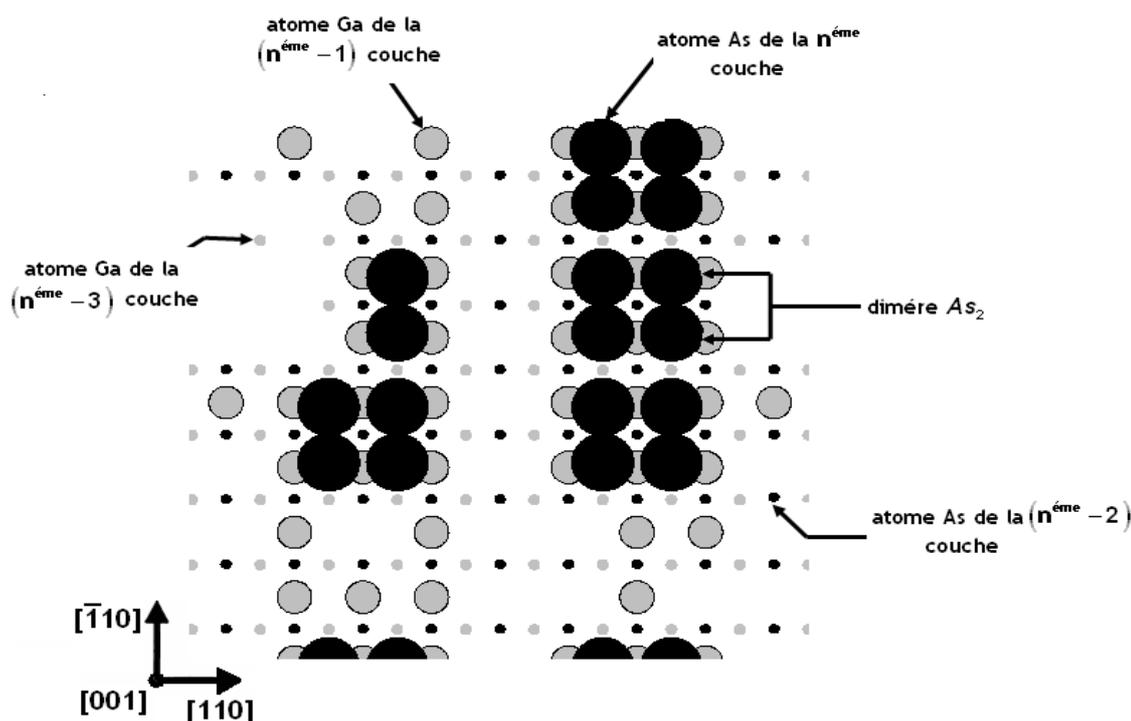


Figure 5.20 : Technique de représentation graphique.

La figure 5.20 montre la technique de représentation graphique utilisée dans le code de calcul.

5.4.1. Homoépitaxie standard de GaAs(001)

Le modèle (modèle de la homoépitaxie standard de GaAs(001)) est un modèle SOS définis sur une structure zinc blende, ce modèle inclut les processus microscopiques élémentaires qui décrivent en détails les processus cinétiques de croissance cités par avant, tels que:

- processus atomistique de croissance des îlots.
- état de précurseur (réservoir)
- Structure Zinc structure de cristal. Figure 5.21.

- Différentes propriétés cinétiques de la croissance telles que: (absorption, la diffusion, l'incorporation des atomes de Ga, l'absorption, désorption de molécules dans le vide et la désorption à partir de l'état de réservoir) [94,95,102,105].

Dans cette partie de simulation ; c'est-à-dire l'épitaxie de GaAs/GaAs, on a supposé que la déposition des atomes de Ga se fait aléatoirement (sans création de tranches).

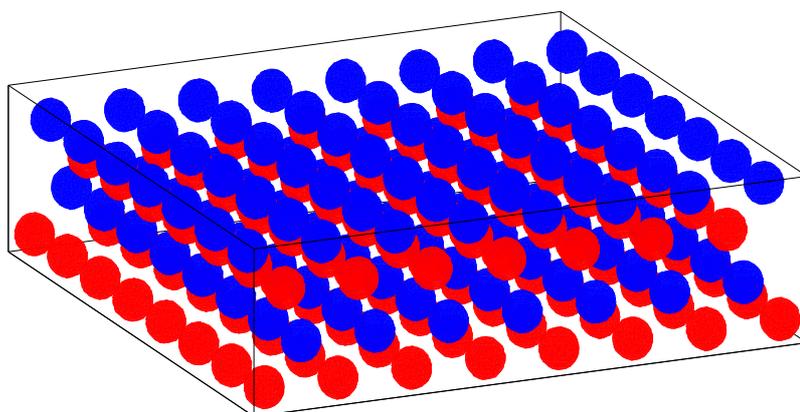


Figure 5.21 : Cluster formé après la déposition de deux couches diatomiques.

Dans ce modèle, on a utilisé deux types de substrats ; un substrat lisse (parfait) et un autre reconstructif de type Bêta2 (2x4). Figure 5.22 et 5.23.



Figure 5.22: Substrat GaAs(001)

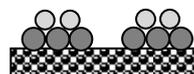


Figure 5.23: Substrat GaAs(001) de type β_2 (2x4)

5.4.1.1. Morphologie de la surface

Dans les Figures 5.24 et 5.25, nous présentons la morphologie de la surface de GaAs (001) après le dépôt de 10 couches diatomiques (Ga + As)

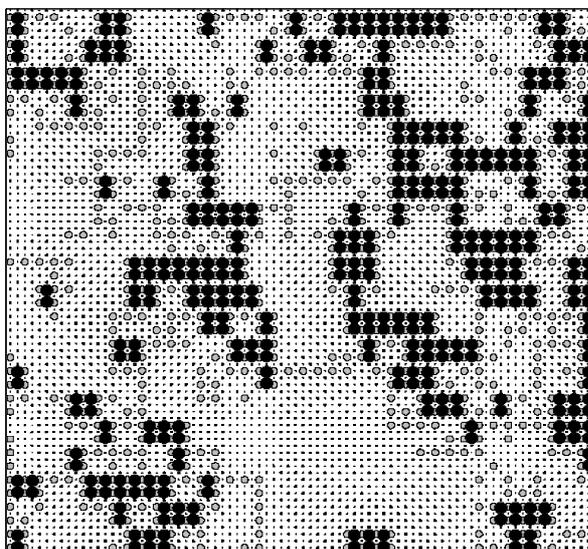


Figure 5.24: Morphologie de la surface d'un cluster de (40x40) obtenue par la méthode de Monte Carlo Cinétique pour un substrat parfait dans les conditions: $T=580^{\circ}\text{C}$, $\text{Ga flux}=0.1\text{ML/s}$, $\text{As flux}=0.4\text{ML/s}$

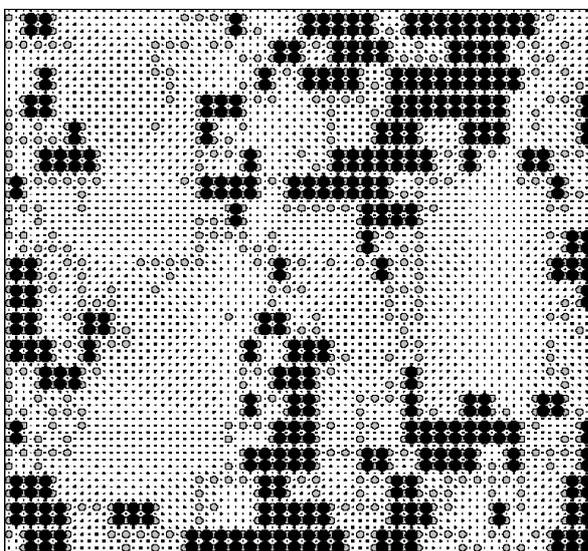


Figure 5.25: Morphologie de la surface d'un cluster de (40x40) obtenue par la méthode de Monte Carlo Cinétique pour un substrat de type Bêta2(2x4) dans les conditions: $T=580^{\circ}\text{C}$, $\text{Ga flux}=0.1\text{ML/S}$, $\text{As flux}=0.4\text{ML/S}$

Les figures 5.24 et 5.25 montrent que quelle que soit la forme du substrat (parfait ou Bêta2(2x4)), la surface épitaxiée est constituée par des îlots, de taille et de nombre d'atomes

différents, car dans ce type de croissance (croissance homoépitaxiale standard de GaAs(001)), on a supposé dans notre simulation que la déposition des atomes de la première couche (Ga dans notre cas) se fait d'une façon au hasard d'atomes, avec la première couche (Ga dans ce cas).

5.4.1.2. Rugosité de la surface GaAs(001)

La rugosité de la surface nous donne des informations sur le taux de remplissage de surface, c'est-à-dire si la surface épitaxiale est rugueuse ou non ?

Les figure 5.26 et 5.27 montrent la variation de la rugosité de surface en fonction du temps et du nombre de couches diatomiques (respectivement), nous présentons sur ces figures les résultats de nos simulations de l'intensité de la rugosité de la surface de GaAs (001) après une croissance MBE pour deux différentes forme de substrat (parfait et $\beta 2(2 \times 4)$).

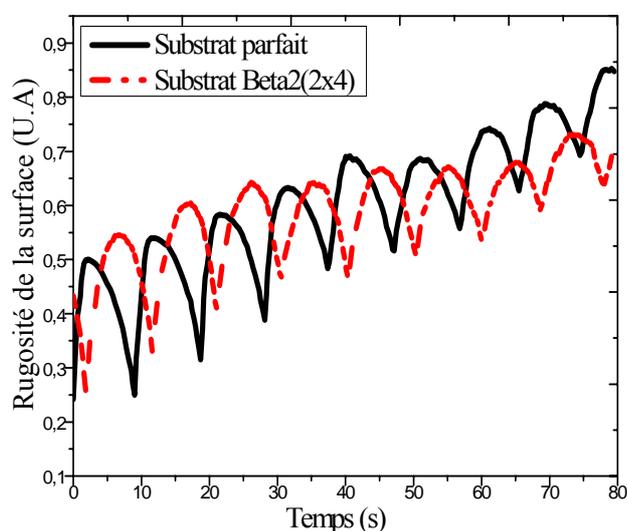


Figure 5.26 : Variation de la rugosité de surface du GaAs (001) en fonction du temps ; obtenus par simulation de Monte Carlo Cinétique (substrat parfait et Bêta2(2x4)).

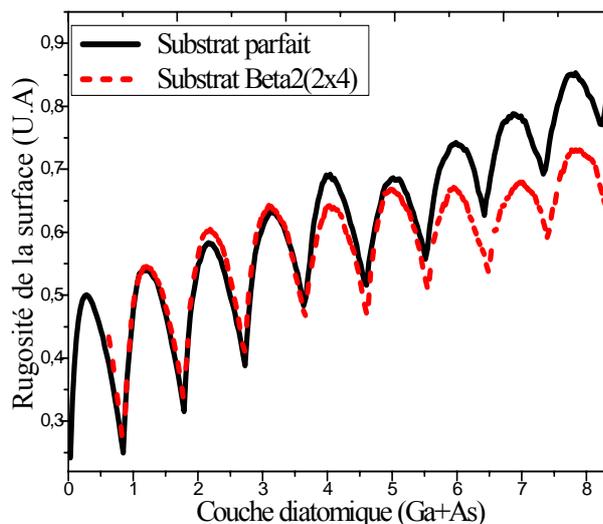


Figure 5.27 : Variation de la rugosité de surface du GaAs (001) en fonction du nombre de couches diatomiques ; obtenus par simulation de Monte Carlo Cinétique (substrat parfait et Bêta2(2x4)).

On remarque dans les figures 5.26 et 5.27, que l'intensité minima indique une couverture maximale (le maximum montre que les couches sont complètement vides). La courbe commence de zéro indiquant qu'il s'agit d'un substrat lisse (parfait), et l'autre courbe commence du point 0.05, indique un taux de couverture du substrat environ 62,5% (75% pour la couche de Ga et 50% pour les couche de As)

5.4.2. Reconstruction de la surface Bêta2(2x4) de GaAs(001)

Dans cette partie ; on s'intéresse au modèle de la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) proposé par M.Itoh[94,95]. Ce modèle a été appliqué pour modéliser la croissance de GaAs(001) pour un substrat parfait (lisse : non restructif). Dans notre travail, les principes de base du modèle sont projetés pour un substrat restructif (non parfait) de type Bêta2(2x4) afin de décrire la statistique globale des îlots (tranches formées), et de déterminer la morphologie et la rugosité de la surface formée après une croissance cristalline.

5.4.2.1. Principe du modèle de la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) de GaAs(001), modèle de M.Itoh

Pour la croissance homoépitaxiale de GaAs(001) [105]; Itoh a présenté un modèle très compliqué basé sur la structure de zinc blende (001). Mais cette approche est contrainte, car elle est adaptée à une seule reconstruction structurale de type β_2 (2x4) de GaAs (001). [6,94,95]. Figure5.28.

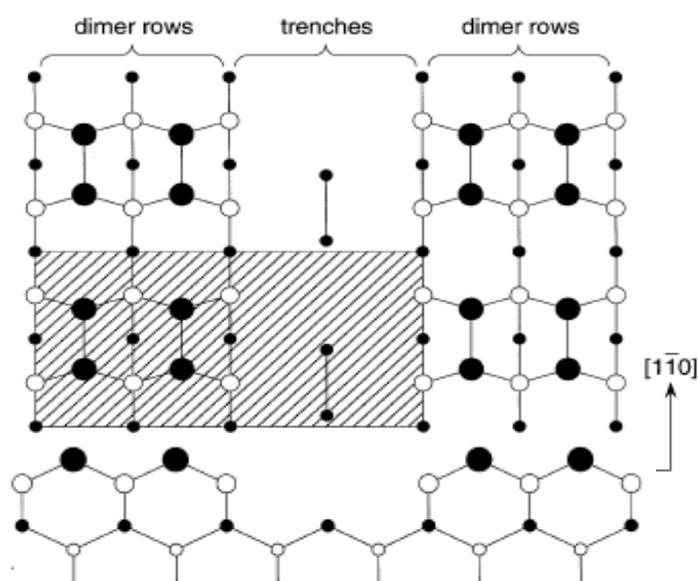


Figure 5.28 : Vues du plan de la reconstruction β_2 (2x4) de l'arséniure de gallium (0 0 1)[6].
Les cercles remplis représentent les atomes As et les milieux ouverts représentent des atomes de Ga.

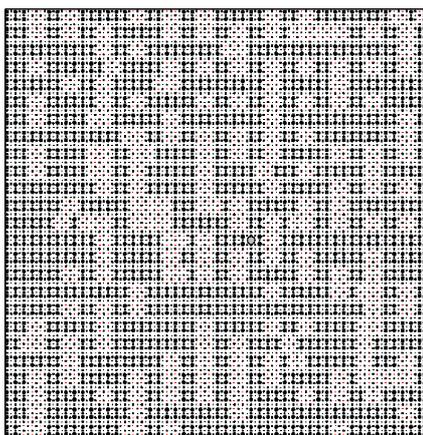
Les processus inclus dans le modèle de Itoh sont : dépôts, migration des atomes de Ga, dépôts des molécules As_2^* dans l'état de précurseur, incorporation As_2 , adsorption; dissociation de As_2^* de GaAs, la formation et les migrations de As_2 . Figure 5.10

Par la suite, la chronologie de tous ces processus cinétiques de la reconstruction β_2 (2x4) est définie comme elle est indiquée dans les paragraphes précédents. [6. 94, 95, 105]:

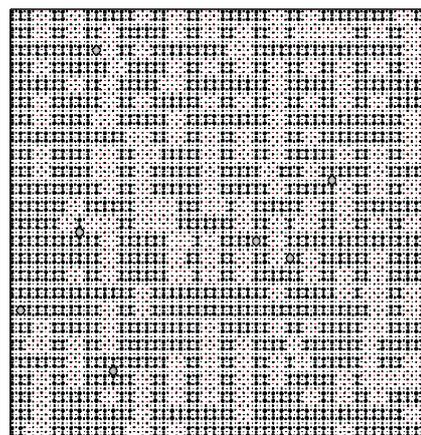
5.4.2.2. Morphologie de la surface épitaxiée

a). Cas d'un substrat parfait (lisse)

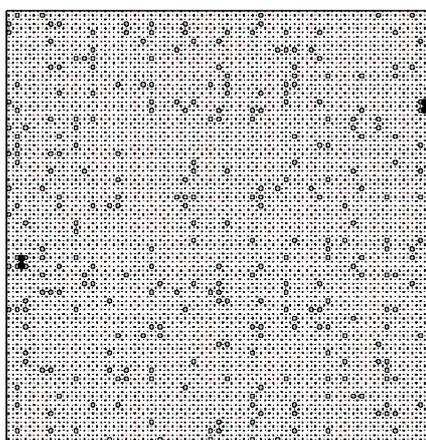
Avant de présenter les résultats de la homoépitaxie de GaAs pour le deuxième substrat, on présente quelques images morphologiques de la croissance homoépitaxiale pour un substrat parfait selon le modèle de M. Itoh. Figure 5.29; ces résultats sont obtenus par simulation Monte Carlo Cinétique dans les conditions typiques de MBE.



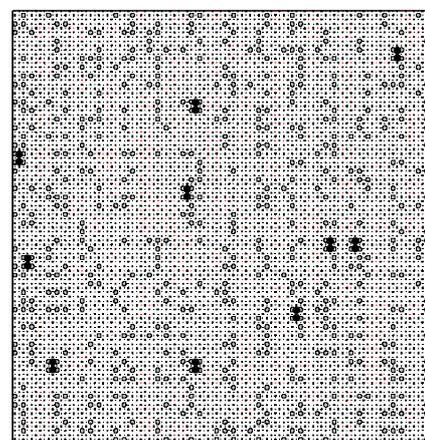
(a): Nombre de couches diatomiques : 2
 Nombre de couches monoatomiques : 5
 Nombre d'atomes total déposés : 9003
 Nombre d'atomes dans la dernière couche : 1
 Taux de couverture : 0.02%



(b): Nombre de couches diatomiques : 2
 Nombre de couches monoatomiques : 5
 Nombre d'atomes total déposés : 9014
 Nombre d'atomes dans la dernière couche : 6
 Taux de couverture : 0.12%

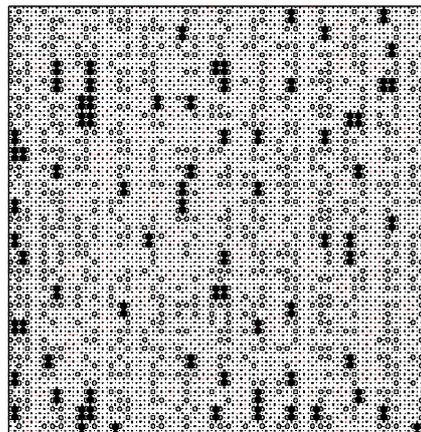
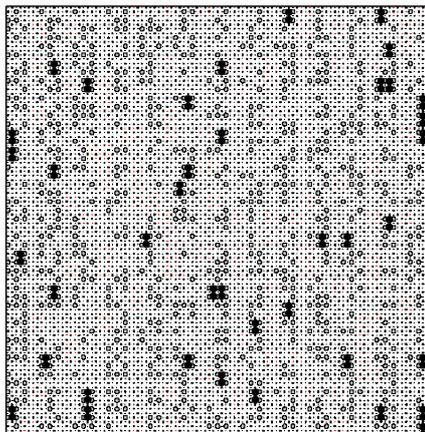


(c): Nombre de couches diatomiques : 3
 Nombre de couches monoatomique : 6
 Nombre d'atomes total déposés : 9512
 Nombre d'atomes dans la dernière couche : 306



(d): Nombre de couches diatomiques : 2
 Nombre de couches monoatomiques : 6
 Nombre d'atomes total déposés : 9931
 Nombre d'atomes dans la dernière C : 606
 Taux de couverture : 12.12%

Taux de couverture : 6.12%



(e): Nombre de couches diatomiques : 3

Nombre de couches monoatomiques : 6

Nombre d'atomes total déposés : 10382

Nombre d'atomes dans la dernière C: 906

Taux de couverture : 18.12%

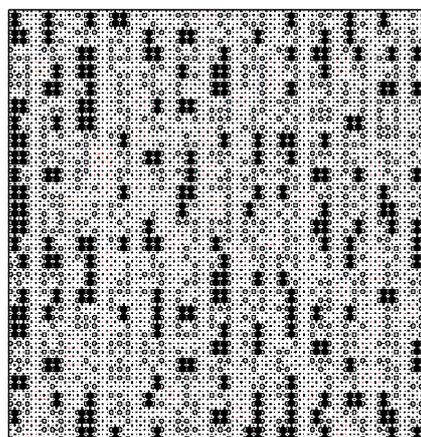
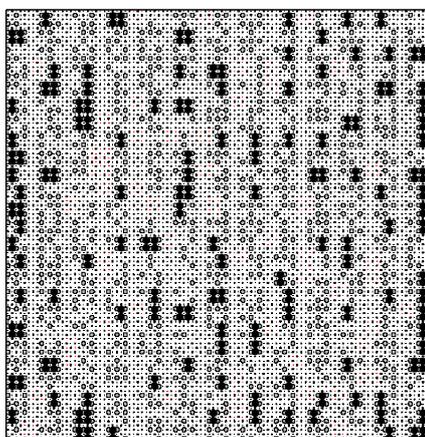
(f): Nombre de couches diatomiques : 3

Nombre de couches monoatomiques : 6

Nombre d'atomes total déposés : 10841

Nombre d'atomes dans la dernière C: 1207

Taux de couverture : 24.14%



(g): Nombre de couches diatomiques : 3

Nombre de couches monoatomiques : 6

Nombre d'atomes total déposés : 11221

Nombre d'atomes dans la dernière C: 1506

Taux de couverture : 30.12%

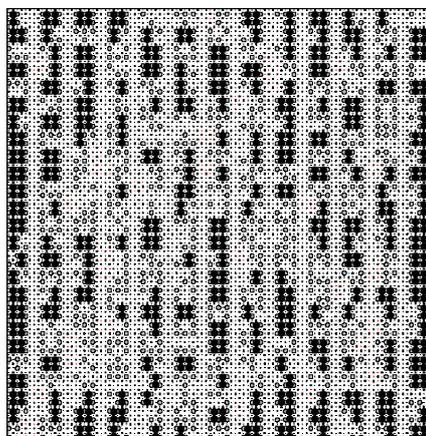
(h): Nombre de couches diatomiques : 3

Nombre de couches monoatomiques : 6

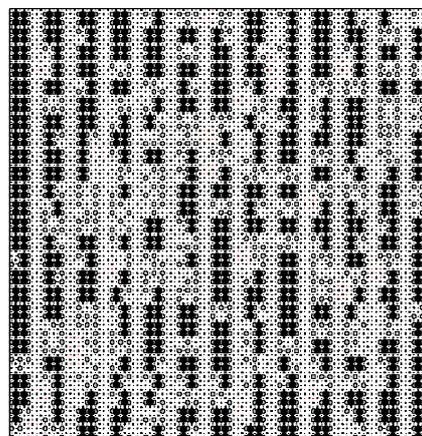
Nombre d'atomes total déposés : 11594

Nombre d'atomes dans la dernière C: 1806

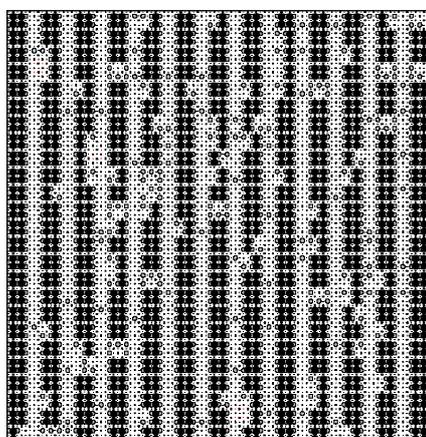
Taux de couverture : 36.12%



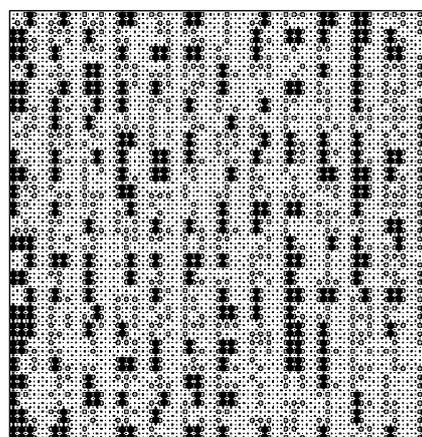
(i): Nombre de couches diatomiques : 3
 Nombre de couches monoatomiques : 6
 Nombre d'atomes total déposés : 11959
 Nombre d'atomes dans la dernière C: 2106
 Taux de couverture : 42.12



(j): Nombre de couches diatomiques : 3
 Nombre de couches monoatomiques : 6
 Nombre d'atomes total déposés : 12307
 Nombre d'atomes dans la dernière C: 2407
 Taux de couverture : 48.14%



(k): Nombre de couches diatomiques : 3
 Nombre de couches monoatomiques : 6
 Nombre d'atomes total déposés : 12992
 Nombre d'atomes dans la dernière C: 3006
 Taux de couverture : 60.12%



(l): Nombre de couches diatomiques : 4
 Nombre de couches monoatomiques : 8
 Nombre d'atomes total déposés : 16569
 Nombre d'atomes dans la dernière C: 2042
 Taux de couverture : 40.84%

Figure 5.29 : : Morphologie de la surface d'un cluster de (50x50) obtenu par la simulation de Monte Carlo Cinétique à une température de 580 °c (surface parfaite);

Les figures 5.29(a) et 5.29(l) représentent l'évolution en temps de la morphologie de la surface d'un cluster de (50x50) atomes a partir du modèle de la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) de GaAs(001) (modèle proposé par M.Itoh).

Ces résultats sont obtenus dans des conditions typiques : température de 580°C, flux de Ga de 0.1ML/S et le flux de As₂ de 0.4 ML/S

Les cercles Blanc (gris, noir) représentent les numéros de couches n (n +1, n +2) respectivement c'est-à-dire les couches des atomes Ga (As, Ga). On remarque bien l'existence des tranches ; soit des atomes de Ga ou bien de As ce qui est bien confondu avec les images STM (figure 5.8), qui montrent que les clusters formés sont composés par des tranches [106].

Les processus de la croissance commencent par la déposition aléatoire de 10% des atomes Ga. Figure 5.29(a) et (b). La déposition des atomes As débute après que les atomes Ga prennent un arrangement adéquat afin d'accepter des dimères As₂. On remarque que les dimères As₂ ont résidés dans des tranches, c'est le début de formation d'une nouvelle couche.

La procédure de formation d'une reconstruction Bêta2(2x4) dans ce type de croissance épitaxiale commence par la formation des petits îlots. Figure 5.31(c)-(f), puis se forme comme des tranches (non pas des îlots comme le cas du modèle standard de la homoépitaxie ou bien le modèle Solid – On – Solid ;SOS), ce qui est bien visualisé dans les figures 5.29(h)-(l).

Remarquons aussi que les résultats obtenus par ce modèle, montrent une formation d'une couche (n+1) avant que la couche (n) sera complètement remplie, c'est-à- dire la formation de plusieurs couches en même temps. La reconstruction débute par une croissance de couche par couche puis elle change la forme vers une croissance en 3 dimensions après la déposition de plusieurs couches. Ce type de croissance est appelé « Step flow »[94]

Notre programme de simulation nous permet aussi de calculer le temps de croissance de chaque couche. Par exemple pour les conditions typiques citées au par avant (flux de Ga de 0.1ML/S et un flux de As₂ de 0.4 ML/S), on a observé que la vitesse de croissance est de l'ordre de 0.08, ce que nous donne une couche par seconde.

b). Cas d'un substrat de type Bêta2(2x4) (non parfait)

Le modèle de M.Itoh (modèle de la reconstruction de la surface) a été proposé pour un substrat parfait (non restructif). Dans notre approche, les principes de base du modèle (modèle pour un substrat parfait) sont projetés pour un substrat restructif (non parfait) de type Bêta2(2x4) mais avec quelques modification;

Remplir dans un premier lieu le vide dans le substrat Beta2(2x4) afin de rendre le matériaux lisse (substrat parfait) ;c.à.d. déposition initiale d'une couche diatomique GaAs(Ga+As) puis l'application du modèle de M.Itoh dans le deuxième lieu[94,95,96]. Figure 5.30.

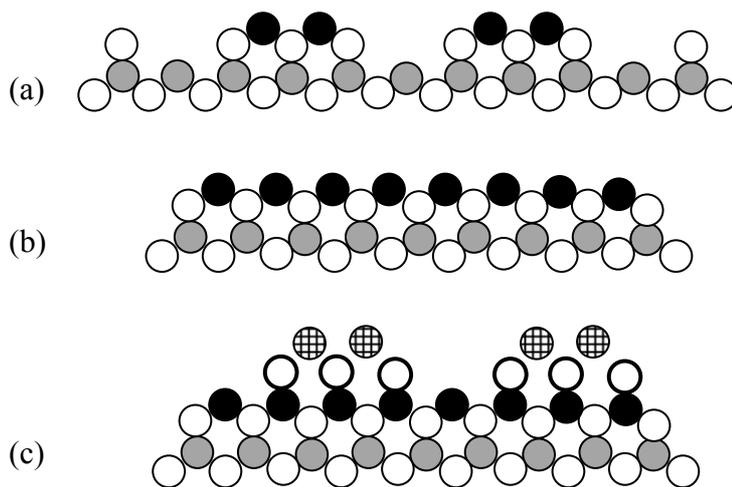


Figure 5.30 : Schéma de la reconstruction de la surface de GaAs (0 0 1) pour un substrat de type Bêta2(2x4) ;
 (a) substrat, (b) : déposition de la première couche diatomique (Ga+As),
 (c): création des tranches (reconstruction) [96].

●: 1^{ère} couche As, ○: 2^{ème} couche Ga, ●: 3^{ème} couche As, ○: nouvelle couche Ga, ⊕: nouvelle couche As,

La figure 5.31 et 5.32 représentent la morphologie de la reconstruction de la surface épitaxiée d'un cluster de dimension (40x40) de GaAs(001) sur un substrat Bêta2(2x4) ; dans des conditions typiques : température de 580°C, flux de Ga de 0.1ML/S et un flux de As₂ de 0.4 ML/S. Ces résultats sont obtenus pour des taux de couverture de 6% et 60 % (respectivement).

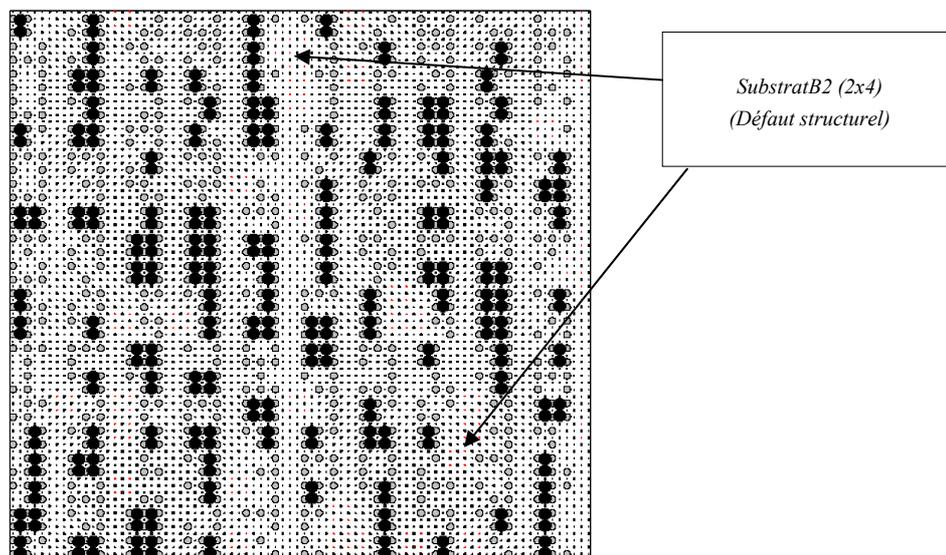


Figure 5.31 : : Morphologie de la surface d'un cluster de dimensions (40x40) obtenu par la simulation de Monte Carlo Cinétique à une température de 580 °c (surface Bêta2(2x4));
 (Formation de deux couches diatomiques)

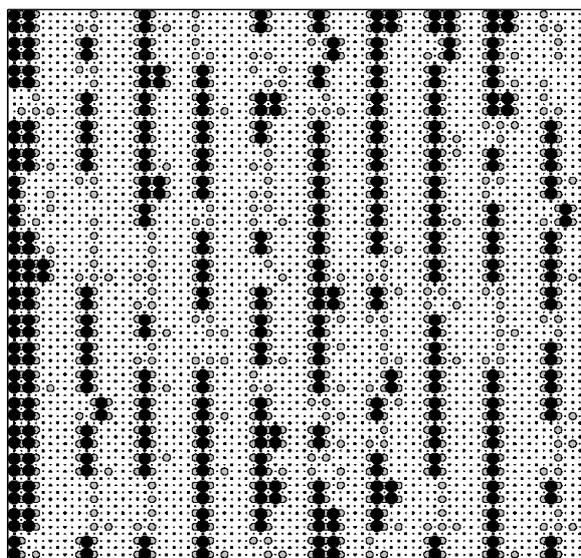


Figure 5.32 : : Morphologie de la surface d'un cluster de dimensions (40x40) obtenu par la simulation de Monte Carlo Cinétique à une température de 580 °c (surface Bêta2(2x4));
(Formation de 10 couches diatomiques)

Ces figures montrent que la surface épitaxiée se compose par des tranches [106] comme le cas d'un substrat parfait. Nous observons l'apparition du substrat Bêta2(2x4) (cercle plein en rouge), ce qui montre la formation de plusieurs couches en même temps.

La figure 5.31 montre une surface reconstruite en Bêta2(2x4), On remarque les mêmes résultats dans le cas d'un substrat de type Bêta2(2x4).

5.4.2.3. Calcul de la Rugosité de Surface

Après la présentation des résultats de la morphologie de la surface, nous allons présenter dans ce paragraphe la rugosité de la surface formée après la croissance cristalline. Figure 5.33 et 5.34.

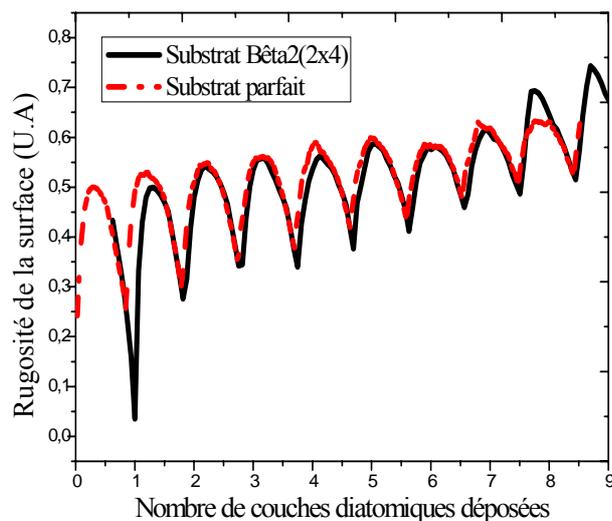


Figure 5.33 : Variation de la rugosité de la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) de GaAs (001) en fonction du nombre de couches diatomiques ; obtenus par simulation de Monte Carlo Cinétique(substrat parfait et Bêta2(2x4)).

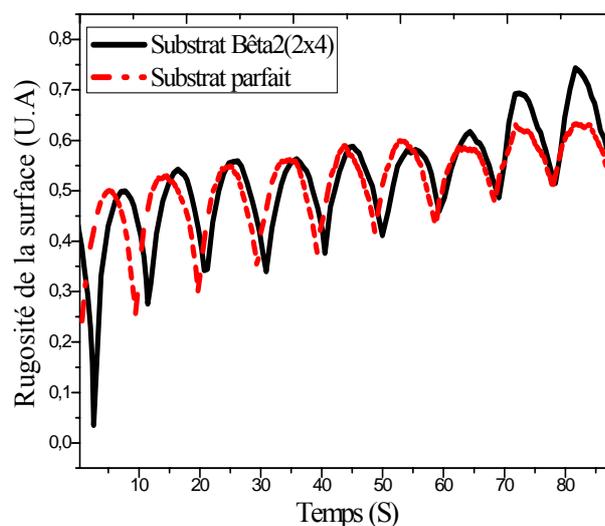


Figure 5.34 : Variation de la rugosité de la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) de GaAs (001) en fonction du temps ; obtenus par simulation de Monte Carlo Cinétique (substrat parfait et Bêta2(2x4)).

Les figures 5.33 et 5.34 montrent respectivement les rugosités de la surface formée de deux types de substrat (parfait de Bêta2(2x4)) en fonction du temps et du nombre de couches diatomiques.

Pour le cas du substrat parfait, les courbes commencent à 0, puis subissent une augmentation durant la croissance de $\beta_2(2 \times 4)$. Par contre pour un substrat de type $\beta_2(2 \times 4)$ où la courbe de la rugosité commence par 0.375 et indique la nature de substrat (couche de départ).

A travers ces courbes, on constate clairement une augmentation du maximum de la rugosité, ce qui est dû au type de croissance « step flow » ; ceci explique bien la croissance de plusieurs couches en même temps, ce qui conduit à une formation d'amas tridimensionnelle.

Et si on dépose un nombre important de couches, la croissance perd la dimensionnalité vers 3 dimensions.

Remarquons aussi que, dans les conditions de notre simulation la croissance est de l'ordre de la déposition d'une couche diatomique durant 12.5 secondes.

5.4.2.4. Taux de couverture

Sur les figures 5.35 et 5.36, on montre la variation du taux de couverture des couches monoatomiques Ga et As en fonction du temps, pour les deux types de substrat étudiés (substrat parfait et $\beta_2(2 \times 4)$ (respectivement)).

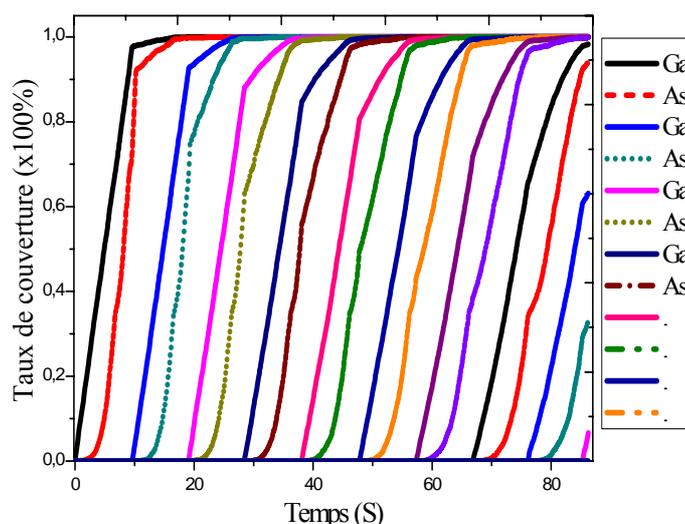


Figure 5.35 : Variation du taux de couverture des couches diatomiques déposées de GaAs(001) en fonction du temps pour un substrat parfait (substrat 80x80)
(flux_Ga=0.1ML/S, flux_As=0.8 ML/S)

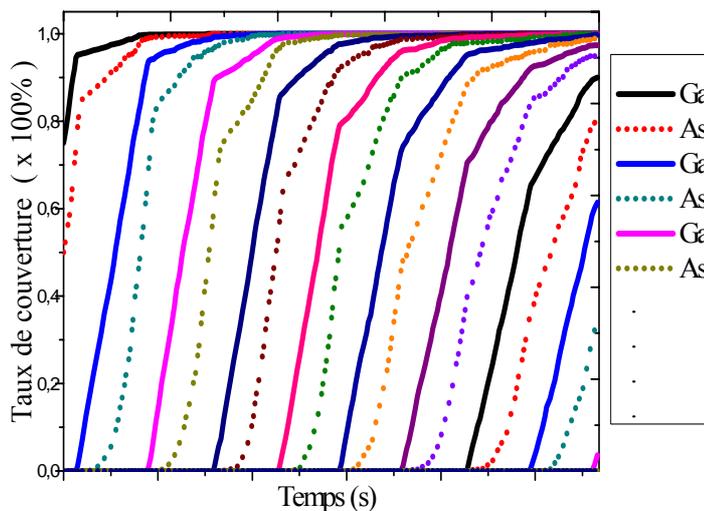


Figure 5.36 : Variation du taux de couverture des couches diatomiques déposées de GaAs(001) en fonction du temps pour un substrat de type Bêta2(2x4) (substrat 100x100).
(flux_Ga=0.1ML/S, flux_As=1 ML/S)

Dans la figure 5.36, la première courbe montre que le taux de couverture des atomes de Ga au début de la croissance commence par 75% et dans la deuxième courbe, nous montrons que le taux de couverture des atomes est de 50% au début de la croissance.

On peut même tracer la variation du taux de couverture des couches diatomiques (Ga+As) en fonction du temps. Figure 5.37.

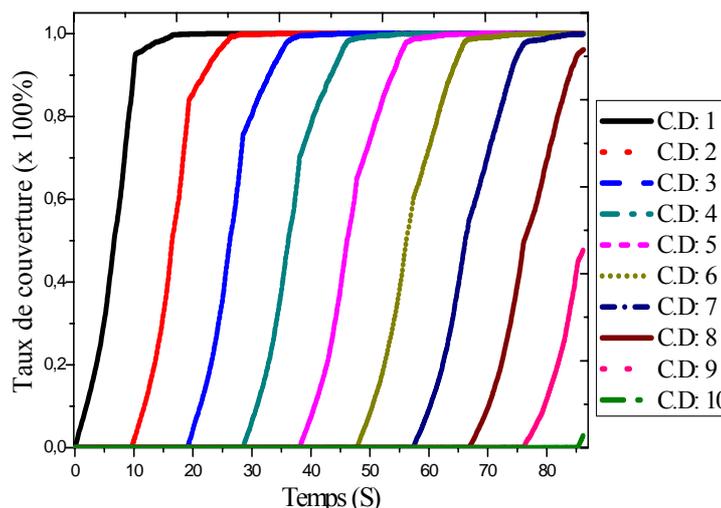


Figure 5.37 : Variation du taux de couverture des couches diatomiques (Ga + As) déposées de GaAs(001) en fonction du temps (substrat 80x80)
(flux_Ga=0.1ML/S, flux_As=0.8 ML/S)

Avant d'analyser les figures 5.35 – 5.37, on note essentiellement que la croissance se fait par couches alternatives de Ga et d'As.

Nous constatons aisément à partir des figures 5.35 – 5.37, que les courbes relatives de Ga et d'As ne sont pas les mêmes quelque soit le type de substrat étudié.

Dans le cas de la croissance des atomes de Ga, l'allure de la courbe se compose de trois phases figure 5.38;

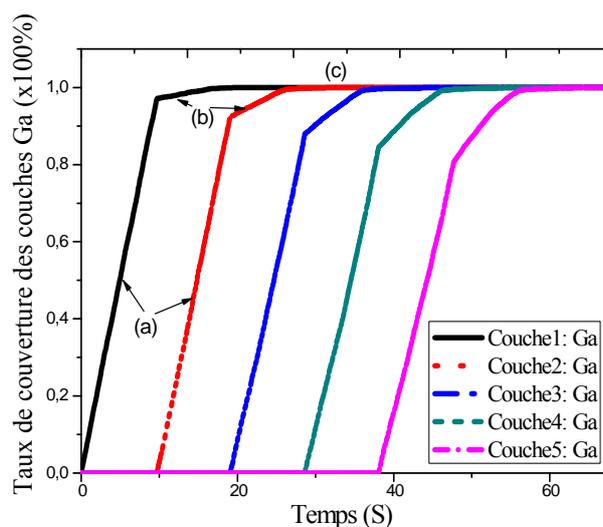


Figure 5.38 : Variation du taux de couverture des couches monoatomiques (Ga) déposées de GaAs(001) en fonction du temps (substrat 80x80)

(flux_Ga=0.1ML/S, flux_As=0.4 ML/S)

- Une partie linéaire progressive (a) : (correspond au début de croissance de la couche Ga) ; ceci est due à l'incorporation directe des atomes du groupe III c'est-à-dire que les atomes Ga se déposent directement sur la surface. Par contre les molécules du groupe V qui se trouvent préalablement dans un état chimisorbées ou encore faiblement lié à la surface[107].
- Une partie curviligne (b): (correspond à une vitesse de croissance faible[107]).
- Une partie stationnaire (c): la vitesse de croissance dans cette phase s'annule dès que le taux de couverture atteint 100% (couche pleine).

On observe aussi une variation sur la forme de l'allure de la courbe de Ga qui montre une diminution de la deuxième partie (a) et extension de la partie (b), ceci est justifié par une transformation du mode de croissance de 2 D à 3 D. figure 5.37.

D'autre part, dans le cas de la croissance des atomes de As, on distingue que l'allure de la courbe se compose en quatre parties. figure 5.39 :

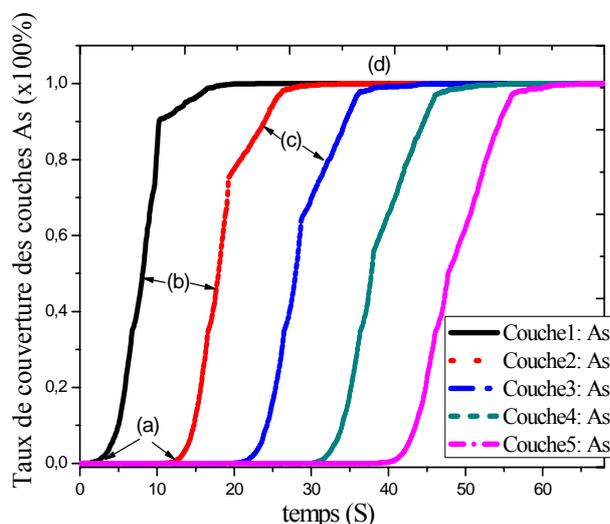


Figure 5.39 : Variation du taux de couverture des couches monoatomiques (As) déposées de GaAs(001) en fonction du temps (substrat 80x80)
 (flux_Ga=0.1ML/S, flux_As=0.4 ML/S)

- Partie curviligne (a) (correspond à une vitesse de croissance élevée) : les atomes de d'As se trouvent dans l'état de physisorption ; les molécules d'Arsenic passent d'abord par la physisorption. Ces molécules résident sur la surface, puis ils se dissocient pour former des liaisons chimiques sur la surface[107].
- Partie semi – linéaire (b): dans cette partie les atomes As sont incorporés dès que la configuration des atomes de Ga les permet.
- Partie stationnaire (c): vitesse de croissance très faible.
- Partie stationnaire (d): la vitesse de croissance dans cette phase s'annule dès que le taux de couverture atteint 100% (couche pleine).

Chapitre 6

Simulation in situ par RHEED et photoémission

Simulation in Situ par RHEED et photoémission

Dans ce chapitre, nous allons présenter les résultats de simulation in situ par RHEED et photoémission.

Nous traiterons le cas de la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) de GaAs(001) pour deux types de substrats (parfait et Bêta 2(2x4)).

Cette étude a pour objectif de montrer que les techniques de photoémission et RHEED sont bien adaptées pour caractériser in situ la croissance MBE ainsi que la validation des résultats obtenues dans le chapitre précédent (Mode de croissance, morphologie,)

6.1. Calcul de l'intensité RHEED et du courant de photoémission

Après avoir présenter les résultats de croissance MBE particulièrement la morphologie de la surface, nous allons maintenant exposer la simulation in situ qui est une étape très importante dans la croissance épitaxiale par jets moléculaires

6.1.1. Calcul de L'intensité RHEED

L'étude de l'intensité de la tâche spéculaire au cours de la croissance a montré qu'une évolution dans le temps est liée au mode de croissance.

Pour le calcul de l'intensité RHEED, la formule (3.27) peut être exprimée par le module au carré de la différence entre le taux de couverture θ des couches paires et impaires à la surface [30].

Alors l'intensité RHEED s'écrit [108]:

$$I_{\text{RHEED}} = |\sum_n (\theta_n - \theta_{n+1}) (-1)^n|^2 \quad (6.1)$$

D'où :

θ_n , θ_{n+1} représentent les taux de couverture correspondent respectivement a des plans adjacents d'atomes du groupe III et d'atomes du groupe V (c'est-à-dire les couches n et n+1 (respectivement)).

6.1.2. Phénomène de photoémission[86]

6.1.2.1. Principe de photoémission

Le phénomène de photoémission dépend de nature chimique et structurale des atomes absorbées. Le courant de photoémission est proportionnel au nombre de liaisons pendantes des atomes de Ga vu qu'expérimentalement la croissance s'opère dans des conditions riches en Arsenic et donc se sont les atomes de Ga qui contrôlent la croissance. En plus les atomes Ga sont plus électropositifs que les atomes As, ce qui implique une décroissance de l'énergie de surface et donc une émission importante de photoélectrons.

Le fait d'avoir une alternance de couches atomiques, implique l'apparition de deux phénomènes physiques très importants :

- La variation de la courbure des bandes d'énergie de valence et de conduction.
- L'apparition à proximité de la surface d'un dipôle variable dit dipôle de surface.

On peut poser l'hypothèse que le dépôt alternatif sur le substrat de couches monoatomique de Ga puis de As fera apparaître respectivement en surface des états donneurs et accepteurs dont la densité augmente avec le recouvrement et induisant une courbure des bandes respectivement vers le bas et vers le haut. Vu aussi le caractère ionique de la liaison de GaAs, on peut envisager l'existence en surface d'une couche dipolaire. Alors il apparaît que la succession de couches atomiques différentes peut être la cause de la variation du signal de photoémission.

6.1.2.2. Calcul du courant de photoémission

Considérant que chaque atome de Ga isolé sur la surface contribue à l'émission d'un courant Δi , alors la variation totale en cours de croissance ΔI_0 , sera proportionnelle au nombre d'atomes de Ga non recouverts à la surface.

$$\Delta I_0 = I_{PE} - I_0 = \sum_n i_n \quad (6.2)$$

I_0 : Courant photoémis associé à une surface stabilisée arsenic.

I_{PH} : Courant photoémis en cours de croissance.

i_n : Nombre d'atomes de Ga attribués à la couche n.

Pour le calcul de la photoémission, on créé dans notre programme de simulation une sous-routine dans laquelle à chaque réalisation d'un événement on compte le nombre d'atomes de Ga qui sont liés 1, 2 ou 3 fois. Ceux qui sont liés 4 fois sont saturés et ne participent pas au courant de photoémission.

6.2. Simulation in situ par RHEED et photoémission

Pour examiner la validité des résultats de simulation Monte Carlo Cinétique présentés dans le chapitre précédent, on a effectué une simulation in situ par RHEED et photoémission. Ces types de techniques sont très utilisés pour suivre l'évolution de la morphologie de surface durant la croissance.

Dans cette partie, nous allons présenter les résultats de simulation in situ par RHEED et photoémission de la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) de GaAs sur la surface (001) pour deux types de substrats (parfait et Bêta 2(2x4)).

6.2.1. Analyse de la surface par RHEED

L'avantage de la technique de croissance MBE est repose sur le contrôle et la possibilité de suivre la croissance en temps réel grâce à l'utilisation in situ de l'intensité RHEED et aussi elle permet un très bon contrôle des épaisseurs des couches.

L'étude de l'intensité de la tâche spéculaire au cours de la croissance a montré une évolution dans le temps liée au mode de croissance .Figure 6.1.

On peut constater que l'intensité de diffraction oscille avec une période correspondant à la croissance d'une couche diatomique unique ou deux monocouches.

Il convient de noter que dans la direction [001] sur le substrat de (001), les oscillations RHEED ne se produisent que lors d'une germination en deux dimensions sur une surface parfaitement plane, le maximum du signal de RHEED (minimum de rugosité) correspond à la croissance d'une couche diatomiques (GA+As), et le minimum (maximum de rugosité) correspond à la croissance de demi de couche (diatomique)[109,110].

La figure 6.1 montre la variation de l'intensité RHEED et de la rugosité de la surface en fonction du nombre de couches diatomiques (Ga+As) pour la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs(001) pour les deux types de substrats étudiés (substrat parfait et substrat Bêta2(2x4)).

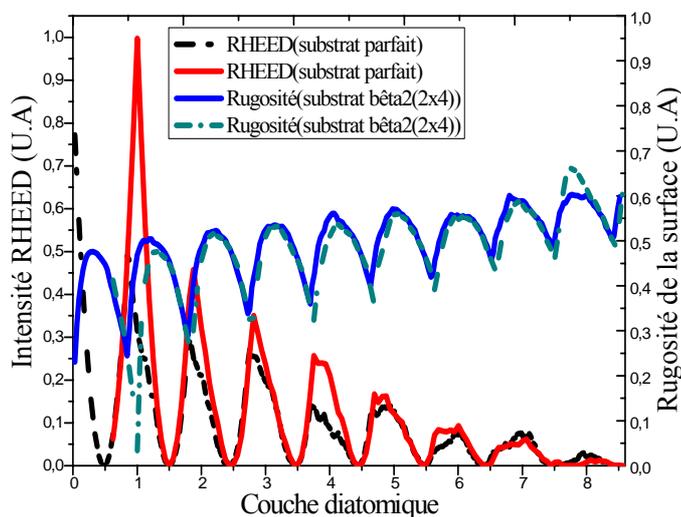


Figure 6.1 : Variation de l'intensité RHEED et de la rugosité de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) en fonction du nombre de couches diatomiques pour des substrats de dimensions (40x40)

La figure 6.2 montre la variation de l'intensité RHEED et de la rugosité de la surface en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs(001) pour les deux types de substrats étudiés (substrat parfait et substrat Bêta2(2x4)). Ces résultats sont obtenus dans des conditions typiques ; Température = 580 °C, Flux de Ga = 0.1 ML/S et de Flux de As = 0.4 ML/S)[25].

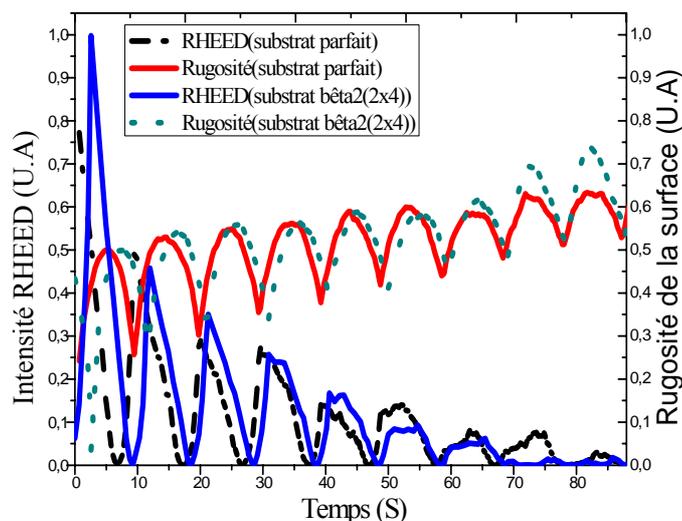


Figure 6.2 : Variation de l'intensité RHEED et de la rugosité de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) en fonction du temps pour des substrats de dimensions (40x40)

Les figures 6.1 et 6.2 montrent que l'amplitude des oscillations RHEED décroît avec le temps (nombre de couches diatomiques) car les couches ne se forment pas et on remarque successivement, la deuxième couche peut commencer à croître avant que la première couche ne soit complète. Même, on peut remarquer le commencement de la troisième couche avant que la deuxième ne s'achève.

Il y'a donc une augmentation de la rugosité moyenne au cours du temps et en fonction de nombres de couches diatomiques [109].

Dans ce type de croissance (step flow) la rugosité n'augmente pas mais les oscillations disparaissent car la croissance se fait par avancée de marches

Dans la pratique, on observe une atténuation de l'intensité de ces oscillations RHEED car la croissance de la couche suivante commence avant que la couche inférieure ne soit complètement formée [83], ce qui crée des rugosités en surface. Au bout d'un certain temps de dépôt, on va obtenir un régime stationnaire, avec une rugosité de surface conservée au cours de la croissance, et donc disparition des oscillations de RHEED lors d'une interruption de croissance (les pics correspondent aux 8^{ème} et 9^{ème} couche).

On peut remarquer aussi dans les figures 6.1 et 6.2 que les courbes de RHEED correspondants au premier substrat (parfait) commence par un maximum d'intensité (minimum de rugosité) ; par contre dans le cas du deuxième substrat ; la courbe de l'intensité RHEED commence par 0,05u.a

et la rugosité par 0,45 u.a, ce qui confirme un taux de couverture de 75% pour les atomes Ga et 50% pour les atomes de As (taux de 62,5% pour couche diatomique (Ga+As))

6.2.2. L'Effet des paramètres de la croissance sur RHEED

6.2.2.1. L'Effet de flux As_2

La figure 6.3 montre l'effet de flux d'Arsenic sur les oscillations RHEED.

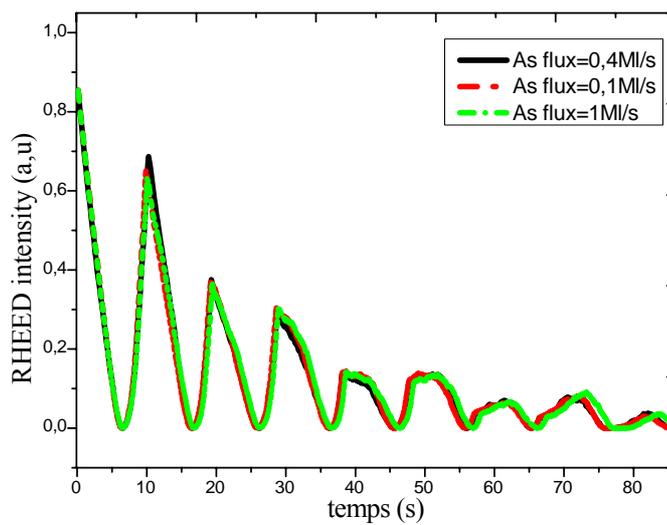


Figure.6.3: Variation de l'intensité RHEED en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différents flux de As_2 , obtenue par simulation Monte Carlo Cinétique ($T=580^\circ C$, flux de Ga=0.4 MI/s)

La figure 6.3 montre que la valeur de flux d' As_2 n'a pas un grand effet sur l'intensité RHEED.

6.2.2.2. L'Effet de flux Ga

La figure 6.4 montre l'effet du flux du Gallium sur l'intensité RHEED suivant le modèle de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs(001).

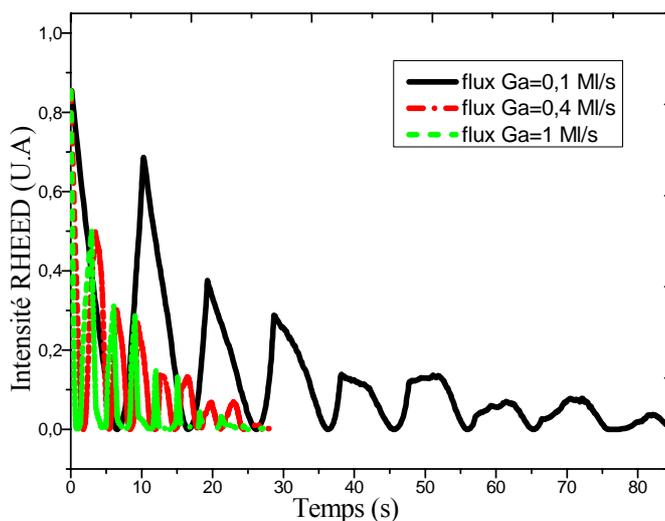


Figure.6.4: variation de l'intensité RHEED en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs du flux de Ga, obtenue par simulation Monte Carlo Cinétique (As2 flux =0.4 MI/s , T=580°C)

Pour la figure 6.4; on note essentiellement que le flux de Ga a une influence significative sur le signal RHEED qui est due, comme nous avons indiqué précédemment, à l'influence du taux élevé d'incorporation d'atomes de Ga [105].

L'oscillation RHEED sera élevée mais sa période sera très large. Ceci peut être expliqué par le fait que sur le substrat, les atomes de Gallium peuvent diffuser sur la surface et former des amas en faveur de l'adsorption de l'Arsenic.

Même remarque, on peut la constater sur la figure 6.5, qui représente l'évolution de l'intensité RHEED en fonction du nombre de couches diatomiques.

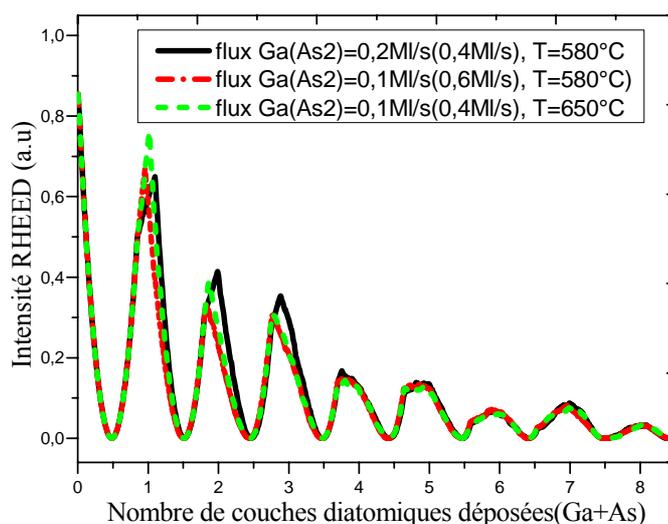


Figure 6.5 : Variation de l'intensité RHEED de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) en fonction du nombre de couches diatomiques déposées pour des substrats de dimensions (80x80)

Le résultat de ces oscillations (RHEED) est confirmé par la figure 6.4 qui représente la variation de l'intensité RHEED en fonction du temps.

Il faut noter que le flux d'Arsenic doit être élevé par rapport au flux du Gallium avec un rapport de proportionnalité entre 1 et 25.

Dans la reconstruction de la surface Bêta2(2x4), ce rapport est de l'ordre de 4.

6.2.2.1 L'Effet de la température

Pour l'effet de la température, on a trouvé que cet effet est un peu faible, car la gamme de température pour la reconstruction Bêta2(2x4) varie entre 500 ÷ 650 °C.

sur la figure 6.6, on représente l'effet de la température sur l'intensité RHEED pour les valeurs optimales de Ga et d'As₂ (flux Ga = 0,1 ml / s, le flux As₂= 0,4 ml / s) [2,105]

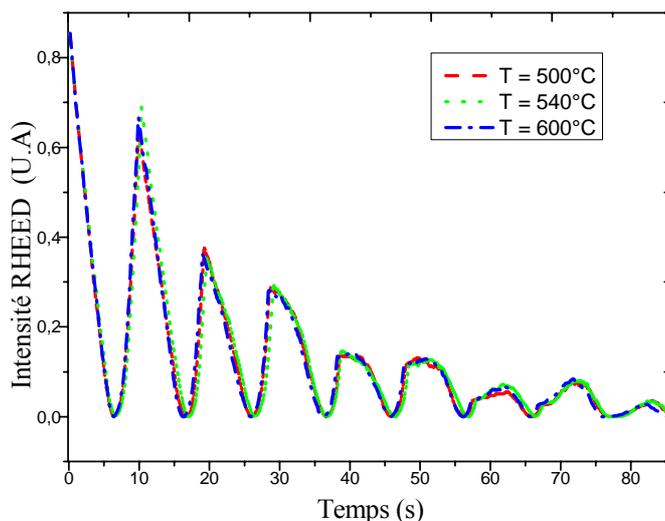


Figure.6.8: variation de l'intensité RHEED en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs de température, obtenue par simulation Monte Carlo Cinétique (flux d' $As_2=0.4$ Ml/s , flux de Ga=0.4 Ml/s ,)

On observe que les trois températures montrent quelques fluctuations sur les oscillations RHEED surtout dans les dernières couches, ce comportement a été interprété par le changement de la nature des états de la surface entraînant une diminution ou une augmentation de la courbure des bandes d'énergie.

La température optimale de ce type de reconstruction est environ $580^\circ C$ [25].

6.3. Simulation in situ par photoémission

Dans cette partie, nos calculs sont effectués sur un substrat de (40x40). Ce choix de taille a pour but la minimisation du temps de calcul.

Les figures 6.9 et 6.10 représentent la variation du courant de photoémission et de l'intensité RHEED en fonction du nombre de couches diatomiques et du temps (respectivement)

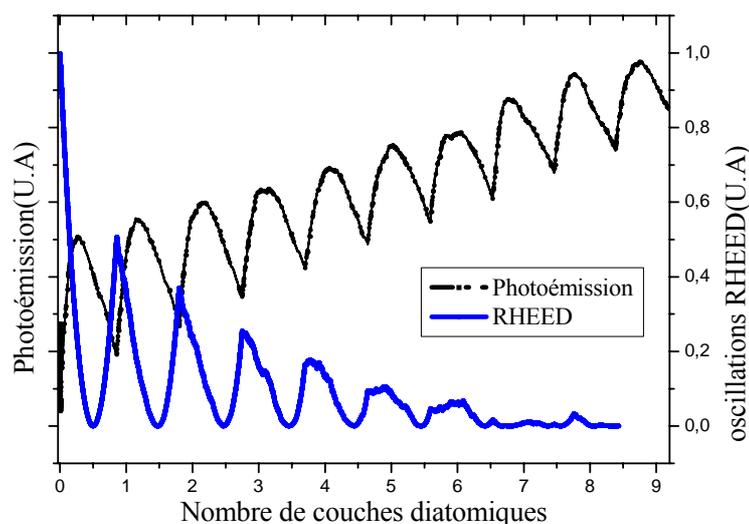


Figure.6.9: variation de l'intensité RHEED et de photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs de température, obtenue par simulation Monte Carlo Cinétique (flux d' $\text{As}_2=0.4$ Ml/s , flux de Ga=0.4 Ml/s)

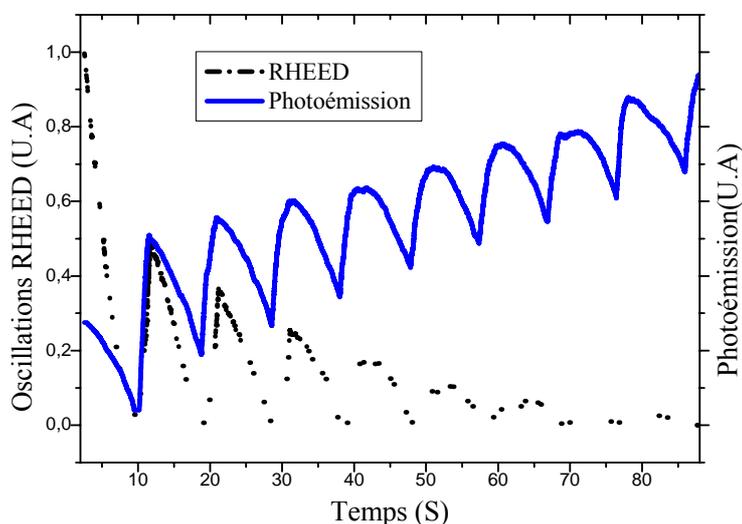


Figure.6.10: Variation de l'intensité RHEED et de photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs de température, obtenue par simulation Monte Carlo Cinétique (flux d' $\text{As}_2=0.4$ Ml/s , flux de Ga=0.4 Ml/s)

Ces figures montrent une augmentation du courant de photoémission. Nous observons que le maximum des oscillations de la photoémission se coïncide avec une demie couche diatomique et le minimum avec une couche diatomique [107,109-112](le cas contraire avec le signal de RHEED) avec un petit décalage dans la figure 6.10.

Comparant l'intensité RHEED avec celle du courant de photoémission, on remarque que ces deux oscillations ont la même période qui correspond à une couche diatomique.

6.3.1. L'Effet de flux de Ga

Nous avons illustré dans la figure 6.11 la variation de photoémission en fonction du temps pour différents flux d'incorporation des atomes de Ga.

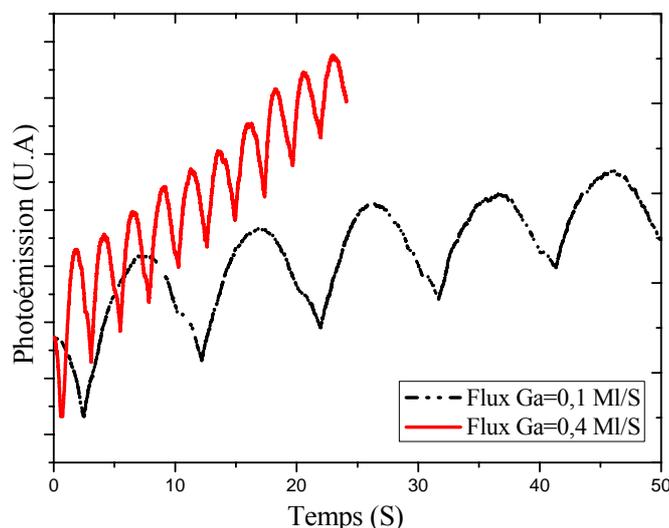


Figure.6.11: Variation des oscillations de photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs de flux de Ga (flux d' $\text{As}_2=0.4$ ML/s , $T=580^\circ\text{C}$)

On observe une augmentation des amplitudes de la photoémission pour les deux courbes. Dans la courbe correspond à un flux de gallium de 0.4ML/S, nous remarquons une augmentation d'intensité plus rapide qu'au cas de flux de 0.1ML/S, ceci est justifié par l'excès des atomes de Gallium par rapport aux atomes d'Arsenic, qui provoque une augmentation de la rugosité[83,].

6.3.2. L'Effet de flux d'As

Nous avons de même représenté sur la figure 6.12, la variation des oscillations de photoémission en fonction du temps pour différents flux d'incorporation des molécules d'As₂.

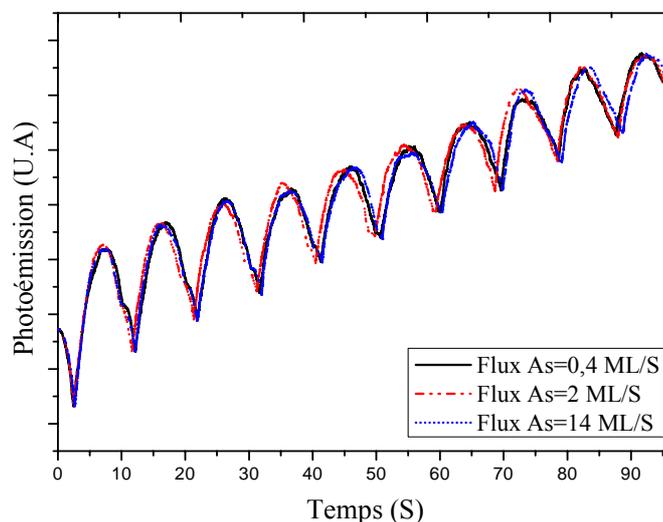


Figure.6.12: Variation des oscillations de photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs de flux d'As (flux de Ga=0.1 ML/s , T=580°C)

La figure 6.12 montre que le flux des molécules d'Arsenic n'as pas une grande influence sur la croissance ; on remarque seulement de petits décalages des oscillations et des faibles variations des intensités. Dans ce cas l'excès des molécules d'As₂ qui ne trouvent pas des positions (places) adéquates subissent des processus de désorption vers le réservoir ou bien vers le vide.

6.3.3. L'Effet du rapport des flux (Ga/As)

Après avoir observé l'effet des flux des atomes de Gallium et d'Arsenic, nous allons voir l'influence du rapport des flux des deux espèces (Ga et As).

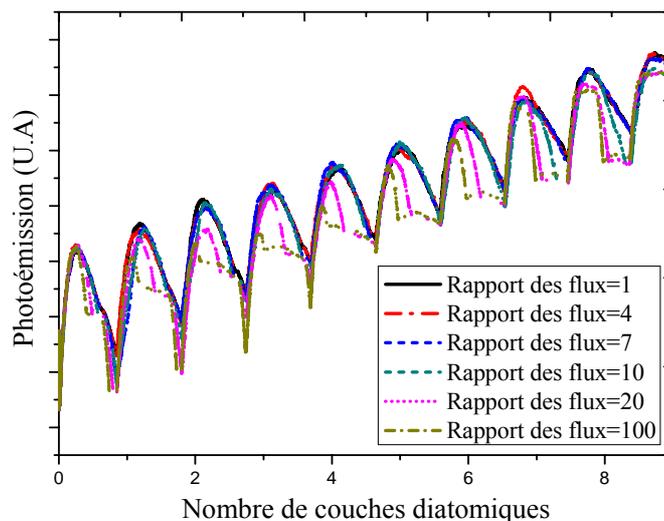


Figure.6.13: Variation des oscillations de photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface $\beta 2$ (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs du rapport des flux (Ga/As)

(flux Ga=0.1 Ml/s , T=580°C)

Figure 6.13 illustre la variation des oscillations du photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface $\beta 2$ (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs du rapport des flux (Ga/As). Dans ce cas (substrat de taille 40x40), on observe que la qualité du signal de photoémission est parfaite pour des rapports compris entre 4 à 10. Pour les autres courbes (1, 20 et 100), on remarque des perturbations sur le signal.

Donc nous avons remarqué l'existence d'un rapport de flux optimal, pour lequel la qualité des oscillations de photoémission est meilleur. Ce rapport varie de 4 à 10 pour un substrat de (40x40) jusqu'aux 4 à 25 pour un substrat de taille un peu important.

6.3.4. L'Effet de la température

Pour l'effet de la température, nous avons trouvé les mêmes résultats que l'effet du flux d'As. Figure 6.14.

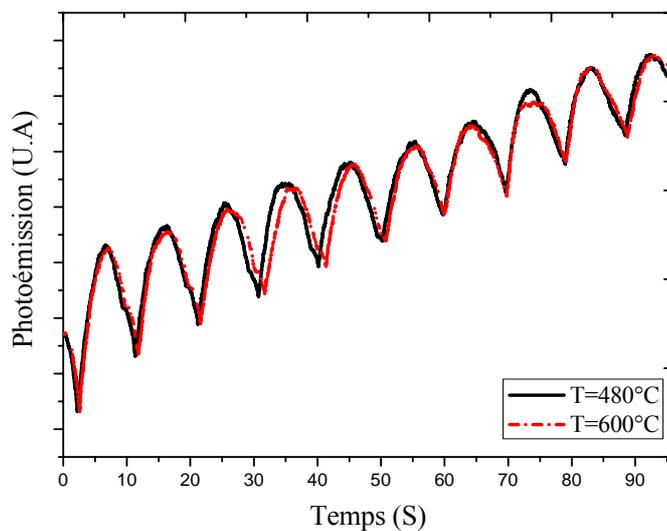


Figure.6.14: Variation des oscillations de photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) de GaAs (001) pour différentes valeurs de températures.

(flux d' $\text{As}_2=0.4$ MI/s , flux de Ga=0.1 MI/s)

On observe seulement de petits décalages des oscillations et des faibles variations des intensités. Ces décalages sont plus faibles pour des températures comprises entre 560°C à 590°C qui représente la température optimale de la croissance.

Chapitre 7

**Application du modèle de la
reconstruction de la surface
Bêta2(2x4) sur la Homoépitaxie
InAs/InAs**

Application du modèle de la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) sur la Homoépitaxie InAs/InAs

Pour évaluer le modèle de la reconstruction de la de la surface Bêta2(2x4) de GaAs(001), nous avons simulé la homoépitaxie de InAs(001) qui est définit par une reconstruction de la surface alpha2(2x4) dans les mêmes conditions de taille et des flux avec celles de GaAs.

Nous examinerons les résultats obtenus de la croissance de InAs(001) à partir des oscillations RHEED et de photoémission.

7.1. Homoépitaxie InAs(001)

Après avoir présenté et caractérisé les résultats de croissance MBE particulièrement de GaAs(001), nous allons maintenant essayer d'appliquer notre code de calcul sur la homoépitaxie de InAs(001) afin de montrer la validité de ce code sur la simulation à l'échelle atomique de la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) des matériaux III-V, En ajustant les paramètres du modèle à cette surface[95].

La température de croissance de InAs(001) est très basse par rapport à celle de GaAs(001), elle est de l'ordre de 400°C[83].

7.1.1. Structure de InAs(001)[94]

Suivant aux observations obtenues par STM, Yamaguchi et Horikoshi ont montré que, la surface de InAs(001) est semblable à une structure de GaAs(001). Cette structure se compose de deux formes atomiques ; la première est la reconstruction Bêta2(2x4) ordinaire, tandis que l'autre est composée par des franchises (lignes simples) des dimères d'Arsenic.

Yamaguchi et Horikoshi ont proposé une nouvelle structure atomique appelée $\alpha_2(2x4)$, qui est représentée sur la Figure. 7.1.

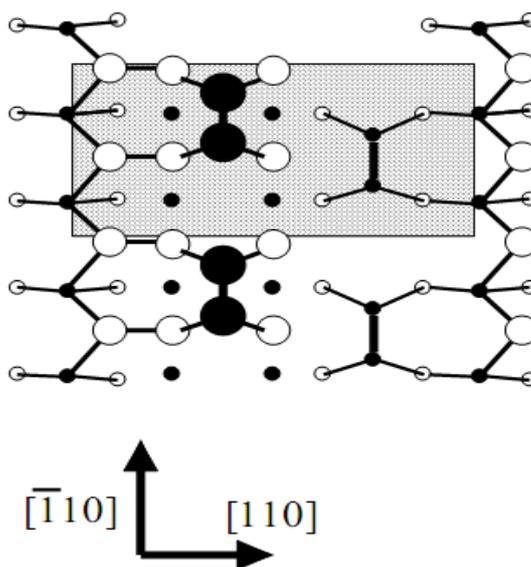


Figure 7.1 : Reconstruction de la surface β_2 (2×4) de InAs(001).

(les cercles noirs (pleines) et blancs (vides) représentent respectivement les atomes As et In)

Dans le chapitre 5, nous avons déterminé les énergies de surface (collage) des atomes Ga et As par es valeurs $E_S^{As} = 1.65$ eV et $E_S^{Ga} = 1.40$ eV (respectivement). Afin d'appliquer notre modèle

sur InAs(001), il est nécessaire de réduire ces valeurs, car les énergies de cohésion (interaction) sont faible par rapport aux celles de GaAs(001) par un facteur de 20%. Par conséquent, on réduit E_S^{As} de 1.65 eV à 1.3 eV et l'énergie des cations (Is) à $E_S^{In} \approx 1.1 eV$, pour une température inférieure à 400°C, cette valeur vaut 1.05 eV. Cette réduction d'énergie de liaison est très importante dans la croissance des quantum dots et des puits quantiques.

La deuxième modification sur les processus de croissance est d'augmenté les paramètres de la PBCIs parce qu'un atome Is peut déformer son angle de liaison plus facilement qu'un atome de Ga. En même temps, puisque l'état d'une obligation pendulent d'un atome In a une énergie supérieure d'un atome Ga, le transfert de charge à partir d'une surface d'atomes In sur une surface d'atomes As est plus renforcé que celui de Ga sur une surface GaAs(001)

En conséquence, les valeurs des interactions d'attractions entre les dimères adjacentes As et la répulsion de Coulomb entre les deuxièmes dimères voisins d'As vont augmenter dans la structure InAs (001) en comparaison avec celles de GaAs (001).

De même, les deux barrières $E_{incorporation}^*$ et $E_{désorption}^*$ des molécules d'Arsenic (As^*_2) du réservoir sont réduites à moins de la moitié de celles des valeurs de GaAs (001) en raison de la faible énergie de cohésion. Dans la pratique, ces diminutions permettront en plus la cinétique à des températures beaucoup plus faibles. Dans le InAs(001), la température est de $\approx 400^\circ C$ au lieu de $T = 580^\circ C$ dans le cas de GaAs(001).

Pour les autres interactions, on note essentiellement que, pour l'interaction de la phase anti-répulsion de InAs (001) est considérablement réduite à un tiers de celle de GaAs (001). En outre, nous estimons qu'il est nécessaire de modifier la fréquence de vibration de croissance à $\nu^* = 10^8 S^{-1}$

7.1.2. Paramètres de simulation

Les paramètres typiques utilisés dans nos simulations de la reconstruction de la surface InAs(001) sont illustrés dans le tableau 7.1.

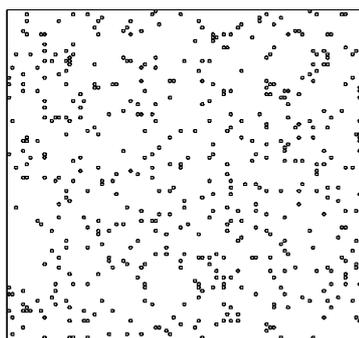
Paramètre	Symbole	valeur
Energie de surface pour un atome As	E_S^{As}	1.30 eV
Energie de surface pour un atome In	E_S^{In}	1.05 eV
Interaction PBCI pour les atomes In dans la direction $[\bar{1}10]$	$E_{[\bar{1}10]}^{PBCI}$	0.33 eV
Interaction PBCI pour les atomes In dans la direction $[110]$	$E_{[110]}^{PBCI}$	0.3 eV
Interaction In – In dans la direction $[\bar{1}10]$	$E_{[\bar{1}10]}^{In-In}$	0.32 eV
Interaction In – In dans la direction $[110]$	$E_{[110]}^{In-In}$	0.28 eV
Interaction entre deux dimères As_2 dans la direction $[\bar{1}10]$ (<i>inter dimer interactions</i>)	$E_{[\bar{1}10]}^{As_2-As_2 \text{ inter dimer}}$	0.63 eV
Interaction entre deux dimères As_2 dans la direction $[110]$ (<i>in-phase dimer interactions</i>)	$E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ in phase dimer}}$	1.20 eV
Interaction répulsive coulombien entre deux dimères As_2 (<i>Screened Coulomb repulsions</i>)	$E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ repulsive colomb}}$	-1.90 eV
Interaction répulsive entre deux dimères As_2 dans la direction $[110]$ (<i>anti-phase dimer interactions</i>)	$E_{[110]}^{As_2-As_2 \text{ anti phase dimer}}$	-0.05 eV
Barrière d'incorporation dans la surface pour les molécules As_2^*	$E_{incorporation}^*$	0.75 eV
Barrière de désorption du réservoir pour les molécules As_2^*	$E_{désorption}^*$	0.91 eV
Fréquence de vibration	ν^*	10^8 s^{-1}

Tableau 7.1 : Paramètres gamme employées dans la simulation de la croissance de InAs(001)[94,102].

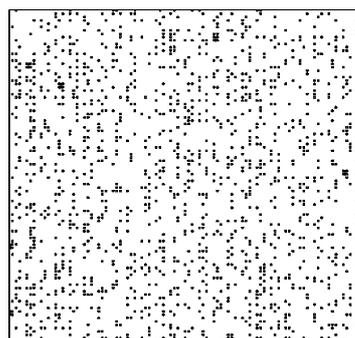
7.2. Résultats de simulation

7.2.1. Morphologie de la surface

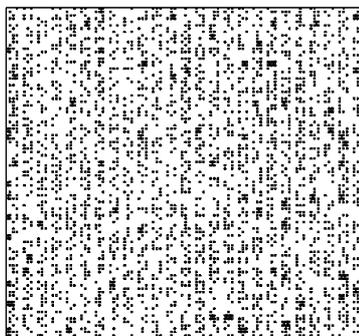
Les figures ci – dessous représentent des images de morphologie d'une surface InAs(001) de taille (100x100) obtenus par simulation Monte Carlo Cinétique dans les conditions typiques de MBE (flux In=0.1 ML/S, flux As=0.4 ML/S et T=385°C).



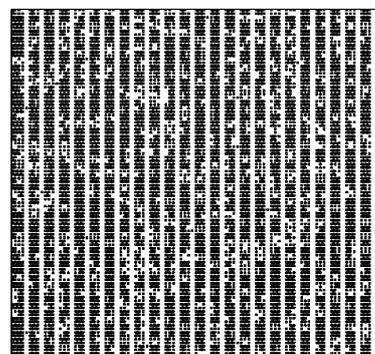
(a) Déposition initial des atomes In



(b) Déposition de s atomes As (dimère As)



(c) Diffusion des atomes In et As (paire dimère As)



(d) Diffusion des atomes In et As

Figure 7.2 : Evolution de la morphologie de la surface épitaxiée d'un cluster de (100x100) de InAs obtenu à une température de 385 °c.

La figure 7.2 représente l'évolution en fonction du temps de la morphologie de la surface épitaxiée de la reconstruction $\alpha 2(2 \times 4)$ de InAs(001) d'un cluster de (100x100) atomes au cours de déposition de deux couches diatomiques (3 couches monoatomiques).

Ces résultats sont obtenus dans des conditions typiques : température de 580°C, flux de Ga de 0.1ML/S et un flux de As₂ de 0.4 ML/S

Les figures 7.2 (a) – (d) montrent que les clusters formés sont composés par des tranches.

Comme le cas de la reconstruction $\beta 2(2 \times 4)$ de GaAs(001), les processus de la croissance commencent par la déposition aléatoire de 10% des atomes de In. Figure 7.2 (a).

Dans la figure 7.2(b), nous observons une création des dimères As₂, qui sont résidés dans des tranches après qu'ils se forment des paires de dimères figure 7.2 (c) – (d).

La reconstruction débute par une croissance de couche par couche puis elle change la forme vers une croissance en 3 dimensions après la déposition de plusieurs couches. Ce type de croissance est appelé « Step flow »

Comparant les résultats de la morphologie de la reconstruction de la surface $\alpha 2(2 \times 4)$ de InAs (001) avec celles de la reconstruction $\beta 2(2 \times 4)$ de GaAs(001) (rapportés dans le chapitre 5), nous remarquons que, dans le cas de GaAs les couches atomiques paires débutent par des dimères As, par contre dans le cas de InAs, où on rencontre des paires dimères, qui se forment par la diffusion des dimères, c'est le cas des faibles température 380°C – 400°C Figure 7.2 (c) et (d). Avec l'augmentation de la température ce phénomène ne sera plus observable, car la déposition des atomes d'As change de nature, et on rencontre seulement des dimères d'As₂. Figure 7.3.

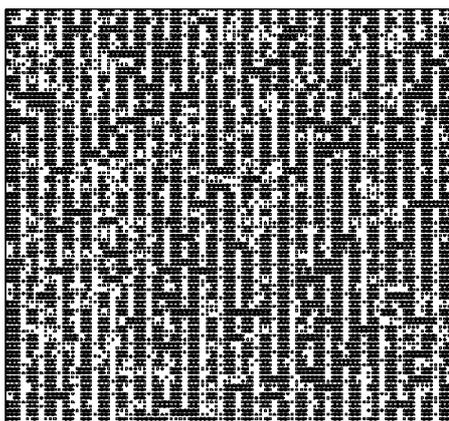


Figure 7.3 : Morphologie de la surface épitaxiée d'un cluster de (100x100) de InAs obtenu à une température de 420 °c.

La figure 7.3 représente l'évolution en fonction du temps de la morphologie de la surface épitaxiée de la reconstruction $\alpha 2(2 \times 4)$ de InAs(001) d'un cluster de (100×100) atomes au cours de déposition de deux couches diatomiques (3 couches monoatomiques).

7.2.3. Taux de couverture

Les figures 7.3 et 7.4 décrivent les résultats des taux de couverture ainsi pouvant être comparés avec ceux obtenus avec GaAs(001). En effet, on remarque le même comportement de variations des taux de couverture monoatomiques et diatomiques obtenues avec la reconstruction $\text{Be}2(2 \times 4)$ de GaAs vis-à-vis la variation du temps.

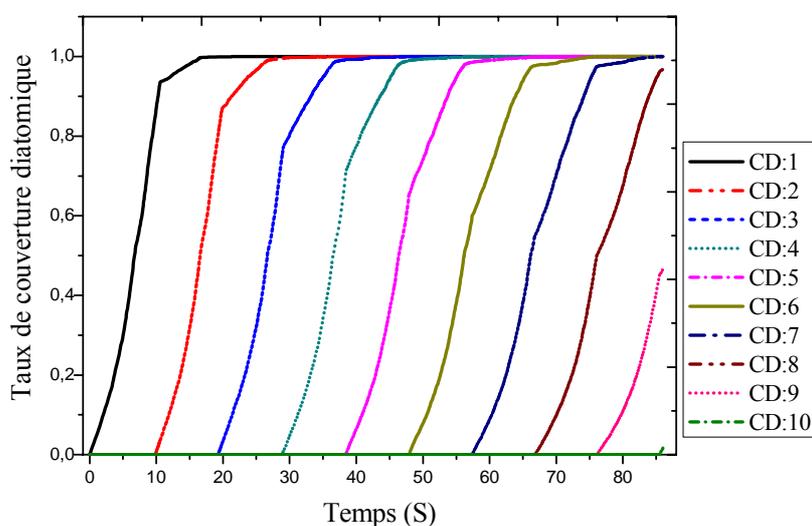


Figure 7.4 : Variation du taux de couverture des couches diatomiques déposées d'InAs (001) en fonction du temps à une température de 385 °c. (substrat 80x80)

(flux_In=0.1ML/S, flux_As=0.4 ML/S)

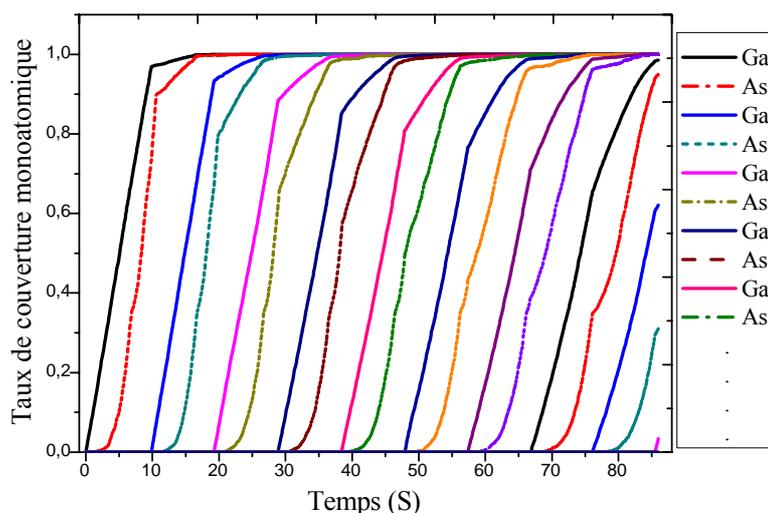


Figure 7.5 : Variation du taux de couverture des couches monoatomiques déposées d'InAs (001) en fonction du temps à une température de 385 °c. (substrat 80x80)
(flux_In=0.1ML/S, flux_As=0.4 ML/S)

7.2.4. Caractérisation in situ par RHEED

Les figures 7.6 et 7.7 montrent la simulation Variation de l'intensité RHEED et de la rugosité de la surface en fonction du nombre de couches diatomiques et du temps (respectivement) de la reconstruction de la surface α_2 (2x4) de InAs (001) (substrat de (50x50)) dans les conditions suivant : (flux_In=0.1ML/S, flux_As=0.4 ML/S)

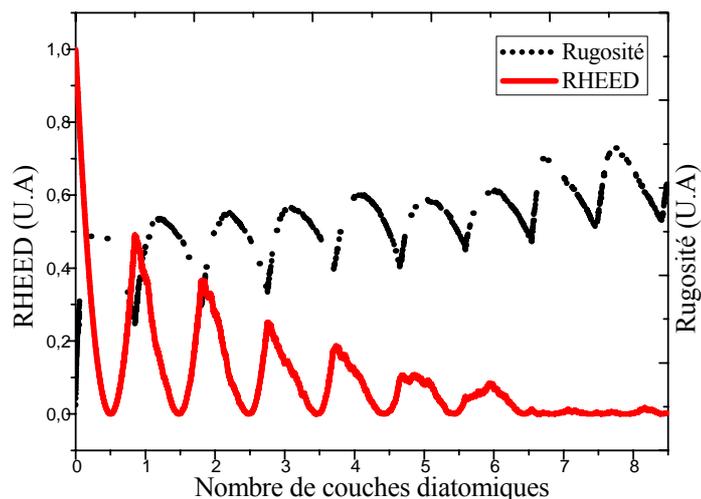


Figure 7.6: Variation des oscillations RHEED et de la rugosité de la surface en fonction du nombre de couches diatomiques de la reconstruction de la surface α_2 (2x4) de InAs (001) (substrat de (50x50)) (flux_In=0.1ML/S, flux_As=0.4 ML/S)

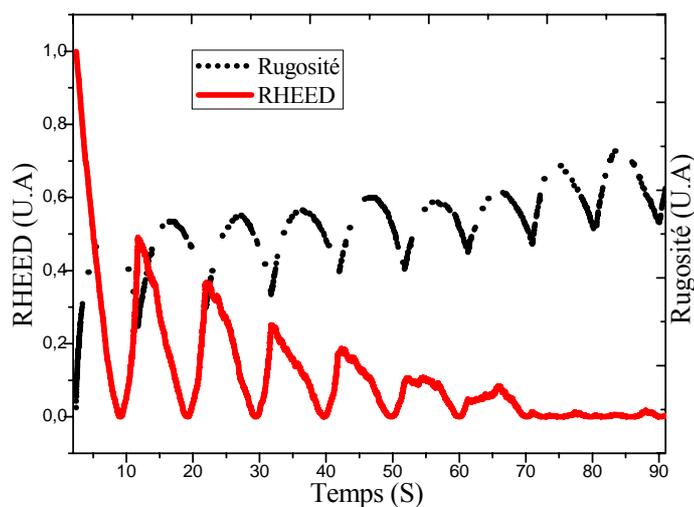


Figure.7.7: Variation des scillations RHEED et de la rugosité de la surface en fonction du temps de la reconstruction de la surface α_2 (2x4) de InAs (001) (substrat de (50x50))
(flux_In=0.1ML/S, flux_As=0.4 ML/S)

Les figures 7.6 et 7.7 indiquent une augmentation de la rugosité et une régression de l'intensité RHEED comparé au cas de GaAs(001), mais ces variations sont plus remarquables pour InAs. Par exemple dans la figure 7.7, on constate que l'intensité RHEED atteint de forte valeur pour InAs (0.99 U.A), à $t=0$, puis elle décroît pour atteindre la valeur de 0.5 pour le deuxième maximum après environ 13 Secondes, et une valeur de 0.35 U.A pour le 3^{ème} maximum, par contre dans le cas de GaAs, l'intensité RHEED varie de 0.8 U.A pour le premier maximum à une valeur de 0.30 pour le 3^{ème} maximum. On peut aussi observer la même remarque pour l'intensité de la rugosité de la surface, on note que le rugosité passe d'une valeur de 0.5 U.A (même valeur pour le GaAs) pour le premier maximum à la valeur de 0.70 U.A pour le 9^{ème} maximum (0.6 U.A pour le GaAs).

Ces variations de l'intensité RHEED et de la rugosité sont dues essentiellement par deux paramètres important ;

Le premier est la température de croissance qui contribue la cinétique de la croissance. Et le deuxième, est les énergies d'interaction qui sont très faibles pour le InAs de 20 % par rapport au GaAs

Il faut noter aussi que la rugosité de la surface est attribuée à une faible température (environ 400°C) de croissance et un flux important des molécules d'Arsenic qui limitent le mouvement des atomes d'Indium.

7.2.4. Caractérisation in situ par Photoémission

Sur les figures 7.8 et 7.9, nous avons reporté la variation du courant de photoémission de la reconstruction $\alpha 2(2 \times 4)$ de InAs(001) en fonction l'intensité RHEED et le photoé décrit les résultats des taux de couverture ainsi pouvant être comparés avec ceux obtenus avec du temps et du nombre de couches diatomiques (respectivement).

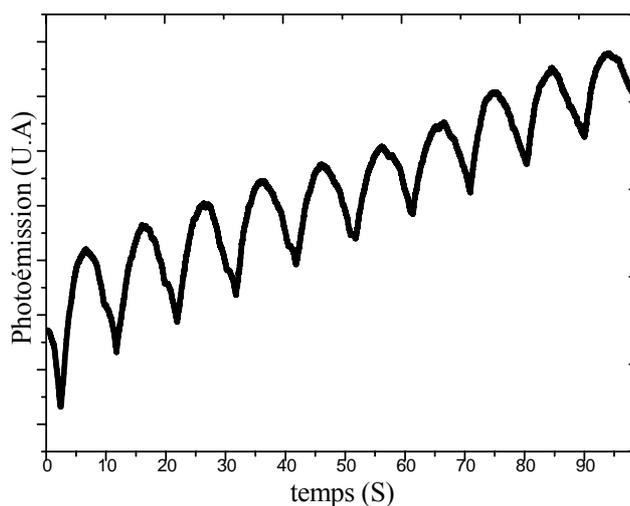


Figure 7.8: Variation des oscillations RHEED et de photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface $\alpha 2(2 \times 4)$ de InAs (001) (flux d' $\text{As}_2=0.4 \text{ Ml/s}$, flux de In=0.1 Ml/s)

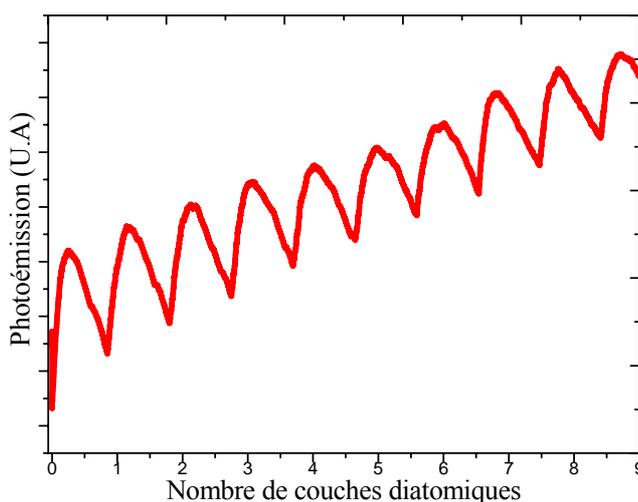


Figure 7.9: Variation des oscillations RHEED et de photoémission en fonction nombre de couches diatomiques de la reconstruction de la surface $\alpha 2(2 \times 4)$ de InAs (001) (flux d' $\text{As}_2=0.4 \text{ Ml/s}$, flux de In=0.1 Ml/s)

Comparant les figures de la photoémission de InAs(001) avec celles de GaAs, on observe une augmentation plus rapide pour le cas de InAs qui est justifié par l'augmentation du nombre de liaisons due au transfert de charge à partir d'une surface d'atomes In sur une surface d'atomes As qui est plus renforcé que celui de Ga sur une surface GaAs(001). Cela indique que la croissance de InAs se fait par formation d'ilots tridimensionnels. On note que expérimentalement, les conditions d'élaboration de couches de InAs sont extrêmement difficiles[83,109-112].

Conclusion Générale

Conclusion

L'épitaxie par jets moléculaires est une technique de croissance avec une excellente qualité, malgré quelques inconvénients mineurs ; MBE est la technique la plus récente et la plus prometteuse par rapports aux autres techniques de croissance épitaxiales (LPE ,VPE).

Notre travail de thèse axé sur la modélisation de la croissance épitaxiale par jets moléculaires des composés III-V et leur caractérisation in situ, recouvre trois aspects complémentaires : (a) : la modélisation, (b): simulation et (c): caractérisation in situ par RHEED et photoémission.

Après avoir présenté les techniques de croissance cristalline ; associées à l'épitaxie des semiconducteurs III-V, deux différents modèles théoriques (Diffusion Limitée par Agrégation (DLA), solide sur solide (Solid – On – Solid)) ont été abordées afin d'analyser et d'étudier les phénomènes microscopiques de la croissance cristalline.

Ces modèles classiques (DLA et SOS) n'ont pas donné des résultats satisfaisantes suite aux quelques inconvénients majeurs tels que la morphologie de la surface épitaxiée, qui ne présente aucune concordance avec l'expérience, particulièrement les images obtenue par le microscope à effet tunnel (STM : Scanning Tunneling Microscope), ce qui nous a amené à chercher d'autres modèles de croissance cristalline pour remédier ces inconvénients.

Nous avons présenté un autre modèle, proposé par M.Itoh, et basé sur la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) de GaAs(001), celui-ci a donné des résultats performants par rapport à l'expérience. Ce modèle a été appliqué pour modéliser la croissance de GaAs(001) pour un substrat parfait (lisse : non restructif). Dans notre approche, les principes de base du modèle sont projetés pour un substrat restructif (non parfait) de type Bêta2(2x4), en tenant compte tous les détails microscopiques tel que : Les processus atomistiques de la croissance des îlots (déposition, incorporation, diffusion, absorption, désorption), la reconstruction de surface, la structure zinc blende du cristal, et les différentes propriétés cinétiques de la croissance.

Aussi, nous avons présenté la méthode de Monte Carlo Cinétique (KMC). Cette méthode permettra d'obtenir par simulation à l'échelle atomique le modèle de la reconstruction de la surface Bêta2(2x4) (de M.Itoh) à des temps suffisamment élevés pour garantir une bonne fiabilité les diverses propriétés de la homoépitaxie de GaAs(001), tels que : la morphologie de la surface épitaxiée, la rugosité et les taux de couvertures monoatomique (Ga et As) et diatomique (GaAs).

Dans des conditions précises de température et des flux de Ga et d'As, les premiers résultats de croissance de GaAs(001) obtenus (morphologie, rugosité et taux de couverture) ont été observés et analysés par les techniques de caractérisation in situ RHEED et photoémission.

Nous avons trouvé que les oscillations du courant de photoémission montrent un bon analogue avec celles de RHEED.

Nous avons aussi étendu notre étude à la croissance homoépitaxiale de InAs(001) qui est définie par une reconstruction de la surface $\alpha 2(2 \times 4)$ dans les mêmes conditions de taille et des flux avec celles de GaAs

En ce qui concerne l'avenir de cette thématique, trois perspectives sont à prévoir à partir de ce travail : au niveau du modèle de $\beta 2(2 \times 4)$, le problème limitant actuellement notre simulateur à la surface $\beta 2(2 \times 4)$ de GaAs(001) pourrait être révisé, on se penche sur d'autres formes de reconstruction tels que α , β et γ avec la prise en compte d'autres orientations cristalline de surface, par exemple comme (111), (100), (010) ,.... Afin de mieux adapter notre code de calcul avec les résultats expérimentaux.

Une autre alternative pour la continuation directe de ce travail serait la caractérisation in situ par d'autres techniques d'analyse tels que la caractérisation par rayons X et LEED.

La dernière perspective est la possibilité de traiter les hétéroépitaxie avec la prise en compte de l'effet des contraintes pour les matériaux de fort désaccord d'indice de maille.

Annexe

Structure du programme de calcul

Simulation de la reconstruction de la surface (Simures)

Programme principale :

Cette partie donne des informations plus concrètes sur notre code de calcul (Simulation de la reconstruction de la surface : Simures). Développé en Matlab, et comptant environ 3000 lignes pour chaque code, il est délibérément découpé en de nombreux modules et sous procédures interdépendants.

KMCRHEEDGaAs : programme de calcul utilisé pour obtenir les informations suivantes :

morphologie de la surface, la rugosité et les oscillations RHEED en fonction du temps et du nombre de couches.

KMCRHEEDGaAs_taux : permet de calculer les taux de couvertures monoatomiques (Ga et As) et diatomique (GaAs).

KMCRHEEDGaAs_photo : programme de calcul des oscillations du courant de photoémission.

KMCRHEEDGaAs_Beta : permet de calculer tous les informations précédentes (morphologie, rugosité, RHEED, photoémission) pour un substrat restructif (non parfait) de type Bêta2(2x4).

KMCRHEEDInAs : permet de calculer tous les informations tels que la morphologie, rugosité, RHEED, et photoémission pour la reconstruction alpha2(2x4) de InAs(001).

KMCRHEEDGaAs_Anim : permet de calculer la variation (évolution) de la morphologie durant un intervalle du temps bien précis.

KMCRHEEDGaAs_3D : permet l'affichage de la morphologie de la surface en 3 dimensions.

Sous-programme:

Les programmes principales (KMCRHEEDGaAs, KMCRHEEDGaAS_taux, KMCRHEEDGaAs_photo, KMCRHEEDGaAs_Beta, KMCRHEEDInAs, KMCRHEEDGaAs_Anim et KMCRHEEDGaAs_Anim) sont composés de sous programmes suivants :

RND : fonction de génération d'un nombre aléatoire.

AsOBJET : procédure qui créer un objet circulaire représente un atome As.

GaOBJET : procédure qui créer un objet circulaire représente un atome Ga.

AtomOBJET : utilisé en 3D pour la représentation des atomes (sphère).

SHOW : procédure qui regroupe toutes les routines d'affichage des clusters.

Paramètres d'entrée:

Les paramètres d'entrée pour chaque programme de calcul sont :

- Les dimensions du substrat.
- Les valeurs des flux de Ga (ou bien In) et d'As.
- La température de croissance.

Résultats (paramètres de sortie):

Les résultats de simulations pourront prendre deux formes: fichiers textes (*.txt) et représentations graphiques sous Matlab (*.fig).

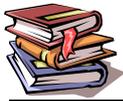


Références bibliographique

- [1] : G. Müller, J. J. Métois and P. Rudolph, ‘*Crystal Growth*’, Elsevier, 2004.
- [2] : K. Byrappa and T. Ohachi, ‘*Crystal Growth technology*’, Springer, 2002.
- [3] : I.V.Markov, ‘*Crystal growth for beginners*’, Word scientific, 1998.
- [4] : K.Seshan, ‘*Handbook of thin-film deposition processes and techniques*’, Noyes publications, 2002.
- [5] : I.Sunagawa, ‘*Crystals Growth, Morphology, and Perfection*’, Cambridge University, Press, 2005
- [6] : Abdelkafi Y, Modélisation et simulation de l'épitaxie par jets moléculaires Mémoire de magister (Université de Béchar Algérie), 2009.
- [7] : S. Quaizola, ‘*Épitaxie en Phase Vapeur de Silicium sur Silicium Mésoporeux pour Report sur Substrats Economiques et Application Photovoltaïque Bas Cout*’, Thèse de Doctorat - Institut National des Sciences Appliquées de Lyon 2003.
- [8] : C. Merckling, ‘*Croissance épitaxiale d'oxydes*’, Thèse de Doctorat – INL, Ecole National de Lyon 2007.
- [9] : RF.C.Farrow, ‘*Molecular beam epitaxy*’, Noyes publications, 1995.
- [10] : S.DAGDAG, ‘*Matériaux et revêtement céramique multifonctionnels par PECVD et SPS pour l'intégration de puissance haute température-haute tension*’, Thèse de Doctorat – ENI, Tarbes 2005.
- [11] : F. Abdou, ‘*Croissance de couches minces de Silicium par épitaxie en phase liquide à base température pour applications photovoltaïques*’, INL, INSA Lyon 2007.
- [12] : M.EL KAZZI, ‘*Etude par photoémission (XPS & XPD) d'hétérostructures d'oxydes fonctionnels épitaxiés sur Silicium*’, thèse de doctorat, INL, école centrale de Lyon (2007).
- [13] : N.CHAUVIN, ‘*Spectroscopie de la Boîte Quantique Unique dans les Systèmes InAs sur InP et InAs sur GaAs émettant à 1,3 μm et 1,5 μm* ’, Thèse de Doctorat – Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, 2006.
- [14] : Y.M.JIANG, ‘*Pulvérisation Cathodique Assistée par Ordinateur*’, Thèse de Doctorat – Université de Paris XI Orsay, 1992.
- [15] : H. Mazouz, Modélisation de la croissance épitaxiale par jets moléculaires (MBE) avec le modèle de l'agrégation limitée par diffusion (DLA), Mémoire de fin d'étude en science des matériaux, Université de Béchar, Algérie 2006.
- [16] : A.S.Grove, ‘*Physique et technologie des dispositifs à semi-conducteurs*’, DUNOD 1973.



- [17] : T.Abderahim, A.Chour et K.Soubhi, 'Réalisation et caractérisation d'une jonction PN faite par croissance épitaxiale sur Silicium', Mémoire de fin d'étude en Electronique Université DJILALI Liabes de Sidi Bel Abbes 1997.
- [18] : A.Besaada, 'Technologie des semiconducteurs', Office des publications universitaires 1994.
- [19] : V.Rymond, 'Nouvelles couches minces et multicouches dérivées de BaTiO₃ : optimisation des propriétés diélectriques', Thèse de doctorat, université de Bordeaux I 2004.
- [20] : G.Mazaleyrat, 'Modélisation multi échelles de la croissance des oxydes à fortes permittivité', Thèse de Doctorat de l'Université Paul Sabatier Toulouse III 2006.
- [21] : J.RECH, 'Contribution a la comprehension des modes d'actions tribologiques et thermiques des revetements en usinage', Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers, Centre de Cluny 2002.
- [22] : C.Sarabtopoulos, 'Photocatalyseurs à base de TiO₂ préparés par infiltration chimique en phase vapeur (CVI) sur supports microfibreux', Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse 2007.
- [23] : T.Steiner, 'Semiconductor Nanostructures for Optoelectronic Applications', Cours de physique du solide des composants optoélectroniques, université de Rouen 2003.
- [24] : G.Martel, 'Semiconductor nanostructures for optoelectronics application', édition Artech House 2004.
- [25] : B.Said et A.Abachi, 'Modélisation de la croissance cristalline par jets moléculaires (MBE) avec la méthode de monte carlo cinétique', mémoire de fin d'étude, université de Béchar 2008.
- [26] : C.Ngô, 'Introduction a la physique des semi-conducteurs', Dunod 1998.
- [27] : M.Souedan, 'Croissance hétéroépitaxiale du SiC-3C sur substrats SiC hexagonaux', Thèse de doctorat, universite Claude Bernard, Lyon1
- [28] : A.Boussetta, M.Mebarki, A.Bensaada, 'Semi-conducteurs (de la technologie aux dispositifs)', Office des publications universitaires 1994.
- [29] : L.Chang, K.Ploog, 'Molecular Beam Epitaxy and Heterostructures', NATO ASI series 1983.
- [30] : F.Lévy, 'Physique et technologie des semi-conducteurs', Presse polytechniques et universitaires Romandes 1995.
- [31] : P.Caroff-Gaonac'h, 'Croissance de boîtes quantiques InAs/InP(113)B pour les applications en télécommunications optiques', Thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Rennes 2005.
- [32] : J.Faure-Vincent, 'Transport tunnel polarisé en spin dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe', Thèse doctorat de Institut National Polytechnique de Lorraine (Ecoles des Mines de Nancy) 2004.



- [33] : C.Deparis, 'Etude de rugosité aux interfaces d'hétéro structures GaAs (Al,Ga) As Epitaxiées sous jets moléculaires' Thèse doctorat de l'institut national polytechnique de Grenoble 1991
- [34] : E.Lefebvre, 'Croissance métamorphique par Epitaxie par Jets Moléculaires et caractérisations physiques pour Transistor Bipolaire à Hétérojonction InP/InGaAs sur GaAs', Thèse de doctorat, université des sciences et technologies de Lille 2005
- [35] : S.Baceiredo, 'Caractérisation électrique des couches d'AsGa : Ge épitaxiées par la techniques des jets moléculaires', thèse de doctorat, Université de Paul Sabatier de Toulouse 1981.
- [36] : V.Poydenot, 'Boîtes et fils de Ge sur Si(001) ordonnés à longue distance par des réseaux de dislocations de flexion', thèse de doctorat, Université Joseph Fourier – Grenoble 1 2005.
- [37] : Y.Al-Douri, 'Hg_{1-x} Cd_x Te – Hg_{1-y} Cd_yTe (0≤x , y≤1) , Heterostrucures : propriétés , epitaxy and application'. Memory of Magister,Sidi-Bel-Abbes University 1994.
- [38] : M.Bertolini, 'Contrôle de ferromagnétisme dans les puits quantiques de CdMnTe réaliser en épitaxie par jets moléculaires', Thèse doctorat de l'université Joseph Fourier 1994.
- [39] : S.Andrieu et P.Müller Les surfaces solides: concepts et méthodes (EDP Sciences/CNRS éditions) 2005.
- [40] : R.Dujardin, 'Epitaxie par jets moléculaires de nanostructures isolées de Germanium sur Silicium', thèse de doctorat, Universit'e Joseph Fourier de Grenoble 2006.
- [41] : G.Guirleo, 'Etude des propriétés électriques et optiques d'hétérostructures Si/CaF₂ déposées sur substrats si(111)', Université De La Méditerranée AIX-Marseille 2 2002.
- [42] : W. Braun; 'Applied RHEED; Reflection High-Energy Electron Diffraction during crystal growth' , Springer 1999.
- [43] : T. Huhtamaki, M.O. Jahma and I.T. Koponen, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 264 55–60 2007.
- [44] : <http://www.techniques-ingenieur.fr/book/p2620/spectroscopie-auger.html>
- [45] : K.Djotni, 'Étude et réalisation d'une matrice de détecteurs bolométriques de très haute résolution. Intérêt d'une conception en couches minces', Thèse de doctorat de l'Universite de Paris-sud, UFR scientifique d'Orsay 1995.
- [46] : R.Bechelet, 'Couches minces d'oxydes élaborées par voie sol-gel, épitaxiées et nanostructurées par traitements thermiques post-dépôt', Thèse de doctorat de l'université de Limoges 2006.
- [47] : L.Mandreoli, 'Density based Kinetic Monte Carlo Methods', Thèse de doctorat de l'Université de Berlin 2004.
- [48] : A.Hemerick, 'Modélisation à l'échelle atomique des premiers stades de l'oxydation du silicium : Théorie de la Fonctionnelle de la Densité et Monte Carlo cinétique', thèse de doctorat de l'université de Toulouse III- Paul Sabatier 2008.



- [49] : E.VIEIRA DA CRUZ, 'La question de la matière, source de conflit entre les doctrines au XIIIe siècle, thèse de doctorat, université paris IV 2008.
- [50] : P. Billaud, 'propriétés optiques de nanoparticules uniques de métaux nobles', thèse de doctorat, université de Lyon 2006.
- [51] : M.Goffinet, 'Etude Ab-Initio d'oxydes multiférotiques', Mémoire de fin d'étude en Sciences Physiques, université de Liège 2006.
- [52] : E.BOURGEOIS, 'Couplage électron-phonon dans les semiconducteurs dopés et ses applications à la supraconductivité', Thèse de doctorat de l'Université Claude Bernard - Lyon I 2002.
- [53] : A.F.Al Alam, 'Modélisation au sein de la DFT des propriétés des structures électronique et magnétique et de liaison chimique des Hydrures d'Intermétalliques', Thèse de doctorat de l'université de Bordeaux I 2009.
- [54] : E.Megchiche, 'Etude théorique de la migration de lacunes et de l'oxygène interstitiel dans le nickel solide soumis à un processus d'oxydation', Thèse de doctorat de l'université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou 2007.
- [55] : F.Lallet, 'Etudes numériques et expérimentales de systèmes auto-organisées à différentes échelles', Thèse de doctorat, université de Limoges 2008.
- [56] : P.Chaquin, 'Cours d'atomistique, liaison chimique et spectroscopie, Licence de Sciences Physiques' Université Pierre et Marie Curie 2009.
- [57] : V.Trinite, 'Etude ab initio et simulation à l'Echelle atomique des transitions de phase du titane' thèse de doctorat, école polytechnique Paris 2006.
- [58] : B.Deguilhem, 'Calcul ab initio d'observables pour les condensats d'hélium métastable', thèse de doctorat, université de Toulouse III-Paul Sabatier 2009.
- [59] : D.Caliste, 'Simulations multi-échelles de la diffusion des défauts dans les semi-conducteurs Si et SiGe', thèse de doctorat, Département de Recherche Fondamentale sur la Matière Condensée – L_Sim – GRENOBLE 2005.
- [60] : Jeffrey M. Aristoff, 'The Diffusion-Limited Aggregate', MIT Undergraduate Journal of Mathematics, (2003).
- [61] : Cours de Bioinformatique moléculaire, Pôle BioInformatique Lyonnais, Lyon I 2009 <http://pbil.ibcp.fr/~gdeleage/Cours/modelisation.pdf>
- [62] : P.Depondt, 'Simulation de dynamique moléculaire ; quelques bases', LMDH, université de P&M Curie, école : « simulation numérique en matière condensée » Jussieu 29-31 mai 2002.
- [63] : B.Lapeyre, E.Pardoux & R.Sentis, 'Méthodes Monte-Carlo pour les équations de transport et de diffusion', MATHEMATIQUES & APPLICATIONS, Springer 1998.
- [64] : D.C. Young, 'Molecular Dynamics and Monte Carlo Simulations', Computational Chemistry, John Wiley & Sons, Inc 2001
- [65] : D.P.Landau & K.Binder; 'A guide to monte carlo simulation in statistical physics', Cambridge university press, Cambridge 2000.



- [66] : K.Binder & D.W.Heermann; 'Monte carlo simulation in statistical physics', Cambridge university press, Cambridge 2001.
- [67] : A.Zerkoun, 'Modélisation de l'incertitude géologique par simulation stochastique de cubes de proportions de faciès' thèse de doctorat de l'université de Joseph Fourier ? Grenoble I 2009.
- [68] : P.Depondt, 'Simulation de dynamique moléculaire ; quelques bases', LMDH, université de P&M Curie, école : « simulation numérique en matière condensée » Jussieu 29-31 mai 2002.
- [69] : M.Hayoun, 'La Méthode de Monte Carlo Metropolis', LMDH, université de P&M Curie, école : « simulation numérique en matière condensée » Jussieu 29-31 mai 2002.
- [70] : E.Clouet, 'Séparation de Phase dans les Alliages Al-Zr-Sc: du Saut des Atomes à la Croissance', de Précipités Ordonnés', Thèse de doctorat d'Ecole centrale de Paris 2004
- [71] : Y.Yang, The Monte Carlo Simulation of Physical Vapor Deposition, Thèse de doctorat, University of Virginia 2000.
- [72] : A. B. Bortz, M. H. Kalos, and J. L. Lebowitz, J. Comput. Phys.17,10 (1975).
- [73] : Andrea.C.Levi and Miroslav Kotrla; Theory and simulation of crystal growth, J.Phys.Condens.Matter 9 (1997) 299-344.
- [74] : L.Provile, 'Modélisation numérique en physique des matériaux', Habilitation à diriger, faculté des sciences de métallurgie, CEA-Saclay 2004.
- [75] : JF.Gouvet, 'Physique and fractal structures', Masson 1996.
- [76] : P.Meakin, 'Progress in DLA research' ,Elsevier, physica D; pp 104 -112 1995.
- [77] : P.Meakain, 'A historical introduction to computer models for fractal aggregates', Journal of Sol-Gel Science and Technology 15, 97–117 1999.
- [78] : M.Nazzarro and all, 'Influence of syrface heterogeneities on the formation of diffusion-limited-aggregation', pp 275-278 October 2001.
- [79] : F.Nieto and all , 'Adsorption thermodynamics of interacting particules on diffusion-limited-aggregation', pp 521,523 February 2003.
- [80] : LWitten & M.Sander, 'Diffusion – Limited – Aggreagation : a kinetic critical phenomenon? Contemporary Physics 1981.
- [81] : H.Khachab, Y.Abdelkafi & A.Beghachi, 'Modelling of Molecular Beam Epitaxy with DLA model un three dimensional', Sixième Conférence Internationale sur la *Science des Matériaux (CSM6)*. Beyrouth – Liban, 16-18 Juillet 2008.
- [82] : K. MALARZ and A. Z. MAKSYMOWICZ, 'simple solid-on-solid model of epitaxial film growth: surface morphology anisotropy', nternational Journal of Modern Physics C, Vol. 10, No. 0 (1999).
- [83] : N.Fazouan, 'Simulation du suivi par photoémission de la dynamique de croissance épitaxiale de composés semiconducteurs III-V', Thèse de doctorat, Université Ibn Tofail, (2001).



- [84] : L.Mandreoli, 'Density based Kinetic Monte Carlo Methods', Thèse de doctorat, Université de Berlin (2004).
- [85] : Burton W.K., Cabrera N., Frank F.C., Phil. Trans. Roy. Soc., London, 243, 299 (1951).
- [86] : F.Picaud, Nanostructuration d'Objets Métalliques sur Surfaces à Défauts, Thèse de doctorat - Laboratoire de Physique Moléculaire - Université de Franche-Comté (2003).
- [87] : J.M.Kim & J.M.Kosterlitz, 'Growth in restricted Solid – on – Solid model', Physical Review Letters, Volume 62, Number 19 (1989).
- [88] : J.B.Maxon, 'Monte carlo simulation of diamond –cubic (111) surfaces', thesis, doctor of philosophy, Michigan technological university (1997).
- [89] : D.L.Woodraska, 'Silicon surface phase transition studies using low-energy electron microscopy and diffraction', thesis, doctor of philosophy, University of Wisconsin-Madison (2001).
- [90] : Bruce A. Joyce, Dimitri D. Vvedensky, 'Self-organized growth on GaAs surfaces', Materials Science and Engineering: R: Reports, Volume 46 6, Pages 127-176 15 (2004).
- [91] :] B.A.Joyce, J.Zhang, T.Sitara, J.H.Neave, J.Crystal growth 115 (1991) 338
- [92] : L.Mandreoli and J.Neugebauer, 'Atom density kinetic Monte Carlo: A hybrid approach to perform epitaxial growth simulations', Physical Review B 68, 155429 (2003).
- [93] : B.A.Joyce , D. D. Vvedensky, G. R. Bell, J. G. Belk, M. Itoh and T. S. Jones, Mater. Sci. Eng B67 7 (1999).
- [94] : M.Itoh, 'Atomic-scale homoepitaxial growth simulations of reconstructed III–V surfaces', Progress in Surface Science 66 53–153 (2001).
- [95] : M.Itoh, 'Atomic – scale homoepitaxial growth simulation of reconstructed III-V surfaces', thesis, Osaka university 2000.
- [96] : B. A. Joyce B A , D. D. Vvedensky, A. R. Avery , J. G. Belk, H. T. Dobbs and T. S. Jones, 'Nucleation mechanisms during MBE growth of lattice-matched and strained III–V compound films', Appl. Surf. Sci 130-132 357 (1998).
- [97] : M.Biehl, 'Modelling and Simulation', Course of Computing Science – University of Groningen (2005).
- [98] : Y-M.JIANG, 'Pulvérisation Cathodique Assistée par Ordinateur', Thèse de doctorat, Université de Paris XI Orsay (1992).
- [99] : B. A. Joyce, J. Zhang , T. Sitara, J. H. Neave, A. Taylor, S. Armstrong, M. E. Pemble and C. T. Foxon, J.Crystal growth 115 (1991) 338
- [100] : D.D. Vvedensky, M. Itoh, G.R. Bell, T.S. Jones, B.A. Joyce, Island nucleation and growth during homoepitaxy on GaAs(001)-(2x4), Journal of Crystal Growth 201/202 56-61(1999).
- [101] : O.Akihiro, 'Surface reconstructions on GaAs(001)', Surface Science Reports 63 295–327 (2008)
- [102] : P. Kratzer, E. Penev, M. Scheffler; First-principles studies of kinetics in epitaxial growth of III–V semiconductors, Appl. Phys. A 75, 79–88 (2002)



- [103] : M.Itoh, G.R.Bell , B.A.Joyce, D.D.Vvedensky, Surf.Sci 464 200 (2000).
- [104] : P. Kratzer, C. G. Morgan, and M. Scheffler, Phys. Rev. B 59 15246 (1999).
- [105] : H.Khachab, Y.Abdelkafi & A.Belghachi, 'In situ simulation by RHEED of GaAs (001) $\beta_2(2 \times 4)$ reconstructed surface', International Conference on Information and Multimedia Technology (ICIMT 2009), Jeju island, South Korea, 16-18 December 2009, publié par IEEE conference serie 15 janvier (2010).
- [106] : Qi-Kun Xue, T. Hashizume, T. Sakurai, 'Scanning tunneling microscopy study of GaAs(001) surfaces', . Applied Surface Science 141 244–263 (1999).
- [107] : A. Amrani, A. Ali Messaoud, 'Etude de la couverture des systèmes Ga/GaAs et As₂/GaAs (100) par simulation Homoépitaxique basé sur la méthode de Monte Carlo', Deuxième Conférence Internationale sur les signaux, systèmes et Automatique SSA2'99, Blida. Algerie.
- [108] : T. Huhtamaki, M.O. Jahma and I.T. Koponen, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 264 55–60 (2007).
- [109] : M.Djafari Rouhan, N.Fazouan, A.M. Gue and D.Estève, 'Simulation of thin film growth and in situ characterization by RHEED and photoemission', Vacuum, volume 46, numbers 8-10, pages 931 to 934 (1995).
- [110] : M. Sahlaoui, N. Fazouan, M. Sajieddine, M. Djafari. Rouhani, A. Esteve, 'Atomic scale simulation of epitaxial growth: Cases of GaAs/GaAs and CdTe/GaAs', M. J. Condensed Matter, Volume 6, Number 1 (2005).
- [111] : F. Maury, K. Bouabid , N. Fazouan , A.M. Gué & D. Estève, 'GaAs growth by photon-assisted metalorganic molecular beam epitaxy using ethyl derivatives of gallium and arsenic', Applied Surface Science 86 447-452 (1995).
- [112] : N. Fazouan, M. Djafari Rouhani, A.M. Gue & D. Esteve, 'Simulation of photoemission current to monitor the thin film growth', Surface Science 352-354 1022-1026 (1996).

Liste des publications et communications

A. Publications

1. H.Khachab, Y.Abdelkafi & A.Belghachi; ‘kinetic monte carlo (KMC) simulation of GaAs(001) $\beta_2(2 \times 4)$ reconstructed surface and Characterization’, Defect and Diffusion Forum Vols. 297-301 (2010) pp 308-317.
2. H.Khachab, Y.Abdelkafi & A.Belghachi; ‘In situ simulation by RHEED of GaAs (001) $\beta_2(2 \times 4)$ reconstructed surface’, International Conference on Information and Multimedia Technology (ICIMT 2009), pp 517, IEEE conference série 15 janvier (2010).

B. Communications

1. H.Khachab, Y.Abdelkafi & A.Belghachi, ‘Modelling of Molecular Beam Epitaxy with DLA model un three dimensional’, Sixième Conférence Internationale sur la *Science des Matériaux (CSM6)*. Beyrouth – Liban, 16-18 Juillet 2008.
2. H.Khachab, Y.Abdelkafi, A.Belghachi ; “kinetic monte carlo (KMC) simulation of GaAs(001) $\beta_2(2 \times 4)$ reconstructed surface and Characterization”, 5 th International Conference on Diffusion in Solids and Liquids, Rome, Italy, 24-26 June 2009.
3. H.Khachab, Y.Abdelkafi, A.Belghachi ; “In situ simulation of the MBE growth of GaAs using *RHEED*”, *Innovations in thin film processing and characterization*”, November 17-20, 2009, Nancy, France.
4. H.Khachab, Y.Abdelkafi, A.Belghachi ; “In situ simulation by *RHEED* of GaAs (001) $\beta_2(2 \times 4)$ reconstructed surface”, 2009 International Conference on Semi-Conductor Technology (ICSCT 2009), Jeju Island, South Korea, December 18-19, 2009.
5. H.Khachab, Y.Abdelkafi, A.Belghachi ; “Détermination des paramètres optimales de la reconstruction $\beta_2(2 \times 4)$ de GaAs (001)”, Colloque National sur les Techniques de Modélisation et de Simulation en Science des Matériaux, Sidi Bel Abbes, 23-24 novembre 2009.
6. H.Khachab, Y.Abdelkafi, A.Belghachi ; “Simulation in situ par RHEED et rugosité de la croissance homoépitaxiale de GaAs(001) par jets moléculaire”, Colloque National sur les Techniques de Modélisation et de Simulation en Science des Matériaux, Sidi Bel Abbes, 23-24 novembre 2009.
7. Y.Abdelkafi , H.Khachab, N.Fazouan, A.Belghachi, “Simulation à l’échelle atomique de la reconstruction de la surface $\beta_2(2 \times 4)$ de GaAs(001) par la méthode de Monte Carlo cinétique”, 10ème Conférence Internationale en Physique de la Matière Condensée et Physique Statistique, Beni Mellal (Maroc), 25-26 Mars 2010.
8. Y.Abdelkafi , H.Khachab, N.Fazouan, A.Belghachi, “ Simulation du Suivi par RHEED de la

reconstruction de la surface Bêta2(2x4) de Composés semiconducteurs III-V”, 10^{ème} Conférence Internationale en Physique de la Matière Condensée et Physique Statistique, Beni Mellal (Maroc), 25-26 Mars 2010.

C. Communications : invité à exposer :

1. H.Khachab, Y.Abdelkafi & A.Beghachi, ‘Modélisation de la reconstruction ‘Bêta2(2x4) de GaAs(001) avec la méthode de Monte Carlo’, ACMA 2010, Marrakech, Morocco, May 12-14, 2010.
2. H.Khachab, Y.Abdelkafi & A.Beghachi, ‘In Situ simulation by photoemission of GaAs(001) Beta2(2x4) reconsructed surface’, 22nd International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (IPRM2010), May 31 - June 4, 2010, Takamatsu Symbol Tower, Kagawa, Japan
3. H.Khachab, Y.Abdelkafi & A.Beghachi, ‘Monte carlo simulation of thin film growth and in situ characterization by RHEED: Investigation of different substrates’, The 37 th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2010), May 31 - June 4, 2010, Takamatsu Symbol Tower, Kagawa, Japan