

RÉPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR  
ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITÉ FRÈRES MENTOURI CONSTANTINE 1  
FACULTÉ DES SCIENCES EXACTES  
DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE

N° d'ordre : 47/D3C/2019  
Série : 01/Phy/2019

## THÈSE

PRÉSENTÉE POUR OBTENIR LE DIPLOME DE DOCTORAT 3<sup>ème</sup> CYCLE EN PHYSIQUE  
SPÉCIALITÉ  
SCIENCES DES MATÉRIAUX

## THÈME

**Caractérisation des textures de films AlN. Évolution au cours  
de la croissance et influence sur les propriétés d'utilisation.**

Par  
**Badis RIAH**

Soutenue le : 10/06/2019

Président :	Atika	ROUSTILA	Prof.	Université Frères Mentouri Constantine 1.
Encadreur :	Nadjet	ROUAG	Prof.	Université Frères Mentouri Constantine 1.
Co-Encadreur :	Abdelhak	AYAD	M.C.A	Université Salah Boubnider Constantine 3.
Examineurs :	Salah	SAHLI	Prof.	Université Frères Mentouri Constantine 1.
	Abdou	DJOUADI	Prof.	IMN, Université de Nantes, France.
	Ahcène	BOUMAIZA	Prof.	Université M. Seddik Ben Yahia de Jijel.

Année universitaire : 2018-2019

## *Remerciements*

*Ce travail a été réalisé au laboratoire de Microstructures et Défauts des Matériaux (LMDM) du département de physique de l'université Constantine 1.*

*Tout d'abord je tiens à remercier le Pr Rouag Nadjat qui a assuré mon encadrement, pour son soutien, sa disponibilité et surtout pour l'ensemble des connaissances qu'elle m'a apporté. Un grand merci pour tout le temps qu'elle m'a accordé avec beaucoup d'enthousiasme dans l'élaboration de ce travail de thèse de doctorat.*

*Je voudrai exprimer ma gratitude à vous monsieur A.Ayad. Je vous remercie pour les remarques que vous m'avez adressé tout au long de cet encadrement. Vous m'avez guidé au long de ces années et grâce à vous ainsi à vos précieux conseils j'ai appris beaucoup de choses. Merci infiniment.*

*Une partie de mon travail expérimental a été effectué au laboratoire de l'institut des Matériaux Jean Rouxel (IMN) de l'université de Nantes dirigé par monsieur Florent Boucher. Je le remercie infiniment de m'avoir accueilli chaleureusement au sein de son laboratoire pour passer mes stages avec les meilleures conditions de travail.*

*Il me tient à cœur de remercier en particulier monsieur Pr.A.Djouadi. Ce travail n'aurait pas vu le jour sans son aide précieuse et ses conseils éclairés tout au long de ce travail.*

*Mes sincères remerciements vont également pour les personnes avec lesquelles j'ai collaboré durant ma thèse notamment Julien Camus et Mohammad Rammal leur bonté et leur disponibilité et aide m'ont permis de mener ce travail de recherche à bien. Ce travail et le fruit de votre collaboration.*

*Mes remerciements s'adressent également au Pr A. Roustila qu'elle m'a fait en acceptant de présider ma thèse.*

*Je prends aussi un réel plaisir à remercier chaleureusement tous les membres du jury d'avoir porté intérêt à mon étude et d'avoir fait l'honneur d'accepté de participer à cette soutenance et de juger ce travail. Je désire exprimer ma très vive pour l'honneur aux Pr. S. Sahli, Pr. A. Boumaiza et Pr. M.A. Djouadi qu'ils m'ont fait en acceptant d'examiner mon travail. Leurs compétences et leurs disponibilités ont été pour moi une source d'encouragement.*

*Je remercie spécialement Pr L.Chekeur, qu'ils trouvent ici le témoignage de ma gratitude et de ma reconnaissance pour leurs conseils, leurs encouragements et leur aide précieuse pour l'élaboration de ce travail. Je tiens à remercier mes professeurs Pr O.Khalfallah et N.Keghouche pour l'aide, le soutien et les précieux conseils qu'ils m'ont prodigués.*

*Je n'oublie pas d'adresser mes vifs remerciements à mes chers amis Zahra, Hamid, Houda, Meriem, Nihad, Sara et Samia qui m'ont toujours encouragé et soutenu. Merci même à ceux que j'ai oublié de citer.*

*Je tiens particulièrement à remercier et ma tante Nassira pour les conseils et l'aide qu'ils m'ont apportés.*

*Enfin, j'adresse mes remerciements à tous ceux qui ont participé de loin ou de près dans l'élaboration de ce travail.*

*Ces remerciements ne peuvent se terminer sans remercier mes chers parents, mes frères et mes sœurs qui m'ont entouré, écouté, encouragé et soutenu.*

## Table des matières

<b>Introduction générale.....</b>	<b>1</b>
<b>Chapitre 1 : Matériaux et techniques de dépôts.....</b>	<b>4</b>
<b>Introduction .....</b>	<b>5</b>
<b>1.1. État de l'Art .....</b>	<b>5</b>
<b>1.2. Le nitrure d'aluminium .....</b>	<b>9</b>
<b>1.3. Les mécanismes de croissance d'une couche mince .....</b>	<b>13</b>
<b>1.4. Interface entre dépôt et substrat : adhésion .....</b>	<b>18</b>
<b>1.5. Dépôt physique en phase vapeur (PVD).....</b>	<b>19</b>
La pulvérisation cathodique magnétron réactive.....	19
<b>1.6. Techniques de pulvérisation.....</b>	<b>22</b>
1.6.1. La pulvérisation magnétron en courant continu (DCMS) .....	22
1.6.2. La pulvérisation magnétron en régime d'impulsion de haute puissance (HiPIMS)...	22
1.7. Dispositifs expérimentaux (Réacteurs de pulvérisation) .....	23
<b>Chapitre 2 : Texture des couches minces .....</b>	<b>25</b>
<b>2.1. Définition de la texture cristallographique .....</b>	<b>26</b>
<b>2.2. Orientation d'un grain dans un matériau polycristallin .....</b>	<b>27</b>
2.2.1. Les angles d'Euler .....	28
2.2.2. Les indices de Miller $\{hkl\}\langle uxw \rangle$ .....	30
<b>2.3. Représentation de la Texture .....</b>	<b>32</b>
2.3.1. Figures de pôles directes.....	32
2.3.2. Figures de pôles inverses.....	33
<b>2.4. Origine de la texture .....</b>	<b>33</b>
2.4.1. Textures de solidification .....	34

2.4.2. Textures de déformation .....	34
2.4.3. Texture de recristallisation .....	34
2.4.4. Texture des films .....	34
<b>2.5. Analyse des textures cristallographiques .....</b>	<b>37</b>
2.5.1. Analyse de la texture par diffraction des rayons X .....	38
2.5.1.1. Principe.....	38
2.5.1.2. Description du diffractomètre.....	39
2.5.1.3. Diagramme de diffraction $\theta$ - $2\theta$ .....	39
2.5.1.4. Figures de pôles expérimentales et corrigées .....	40
2.5.1.5. Enregistrement des figures de pôles expérimentales .....	41
<b>2.6. Corrections des figures de pôles expérimentales .....</b>	<b>42</b>
2.6.1. Analyse quantitative de la texture par diffraction X.....	46
2.6.2. Définition de la FDO .....	46
2.6.3. Normalisation de $f(g)$ .....	47
2.6.4. Équation fondamentale de texture .....	48
2.6.5. Résolution de l'équation fondamentale.....	49
2.6.6. Figures de pôles recalculées .....	50
2.6.7. Normalisation des figures de pôles.....	51
<b>Chapitre 3 : Analyse des textures de la phase hexagonale des films d'AIN déposés par DCMS sur différents substrats.....</b>	<b>53</b>
Introduction .....	54
<b>3.1. Caractérisation de la texture des films d'AIN .....</b>	<b>55</b>
3.1.1. Procédure et conditions expérimentales .....	55
3.1.2. Projection stéréographique d'AIN-h.....	57
3.1.3. Échantillonnage .....	58

<b>3.2. Influence de l'épaisseur sur l'évolution de la texture .....</b>	<b>59</b>
<b>3.3. Influence du taux d'azote sur la perfection de la fibre (0001) .....</b>	<b>65</b>
<b>3.4. Influence du réacteur sur l'évolution de la texture (0001) pour les films d'AlN déposés sur Si(100) .....</b>	<b>68</b>
<b>3.5. Influence de l'orientation de substrat sur l'acuité de la fibre (0001) de l'AlN-h pour les films d'AlN déposés par DCMS.....</b>	<b>71</b>
<b>3.6. Influence de la nature du substrat sur la texture des films d'AlN déposés par DCMS .....</b>	<b>74</b>
<b>3.7. Influence d'une couche tampon d'AlN .....</b>	<b>76</b>
3.7.1. Influence de la couche d'AlN <sub>Kyma</sub> sur l'évolution de la texture des films d'AlN déposés par DCMS .....	77
3.7.2. Influence de la couche d'AlN <sub>MBE</sub> sur l'évolution de la couche d'AlN déposée par DCMS .....	79
<b>Conclusion chapitre 3.....</b>	<b>85</b>
<b>Chapitre 4 : Influence des deux méthodes DCMS et HiPIMS sur l'évolution de la phase hexagonale. Mise en évidence de la phase cubique. ....</b>	<b>86</b>
4.2. Caractérisation de la phase hexagonale d'AlN pour les films déposés sur Si(100) par DCMS et HiPIMS.....	89
4.3. Caractérisation de la phase cubique d'AlN pour les films déposés sur Si(100) par DCMS et HiPIMS.....	93
<b>Conclusion chapitre 4.....</b>	<b>100</b>
<b>Conclusions et Perspectives .....</b>	<b>101</b>
<b>Bibliographie.....</b>	<b>104</b>
<b>Annexes .....</b>	<b>114</b>

## Table des figures :

<b>Figure 1:</b> Structure cristalline de l'AlN-h. ....	9
<b>Figure 2:</b> Le diagramme schématique. ....	10
<b>Figure 3:</b> Structure cristalline d'AlN-c. ....	12
<b>Figure 4:</b> Les différents modes de croissance : 2D (à gauche), 3D (au centre) et mixte (à droite). ....	13
<b>Figure 5:</b> Classification de la morphologie des couches minces de Thornton. ....	15
<b>Figure 6 :</b> Diagramme de zone de microstructure (SZD).....	17
<b>Figure 7 :</b> Schéma de principe de la pulvérisation cathodique magnétron. ....	20
<b>Figure 8 :</b> Schéma de principe d'un magnétron .....	22
<b>Figure 9 :</b> Schéma représentatif des différents paramètres .....	23
<b>Figure 10 :</b> Photographie du réacteur de dépôt 2 pouces. ....	24
<b>Figure 11 :</b> Photographie de réacteur de dépôt 8 pouces. ....	24
<b>Figure 12 :</b> Référentiel échantillon (X, Y, Z) ou et référentiel cristal (X', Y', Z').....	27
<b>Figure 13:</b> Définition des angles d'Euler ( $\phi_1$ , $\phi$ , $\phi_2$ ).....	28
<b>Figure 14:</b> Orientation ( $\phi_1$ , $\phi$ , $\phi_2$ ) sur une projection stéréographique.....	29
<b>Figure 15:</b> Schéma illustre le système hexagonal représenté par {OX1 X2 X3} et le système cubique par {OX Y Z}. ....	31
<b>Figure 16:</b> Figure de pôle inverse dans le cas d'AlN-h.....	33
<b>Figure 17:</b> Différents types de texture observée (a) Figure de pôle $\{10\bar{1}1\}$ d'AlN-h un substrat du silicium sans le film, (b) Figure de pôle $\{10\bar{1}1\}$ d'AlN-h pour l'AlN/Si(100), (c) Figure de pôle $\{10\bar{1}1\}$ d'AlN-h /AlNMBE/Si.....	36
<b>Figure 18:</b> Exemple sur l'axiotaxie. ....	37
<b>Figure 19:</b> Diffractogramme d'une couche d'AlN déposée sur Si(100) en fonction de l'épaisseur de la couche mince.....	40
<b>Figure 20:</b> Un diffractomètre à 4 cercles.....	41

<b>Figure 21:</b> Plateforme utilisée sur un goniomètre de texture. ....	42
<b>Figure 22:</b> Figure de pôles $\{10\bar{1}1\}$ expérimentale d'AlN-h pour un film d'AlN déposé sur Si(100). ....	42
<b>Figure 23:</b> Représentation de la défocalisation ; augmentation de la surface irradiée entre deux positions distinctes de $\chi$ .....	43
<b>Figure 24:</b> (a) Variation de l'intensité diffractée en fonction de l'angle de déclinaison $\chi$ pour différents angles de Bragg $\theta$ (mesure sur une poudre d'AlN) (b) Variation de l'intensité diffractée en fonction de l'angle de déclinaison $\chi$ pour un angle de Bragg ( $2\theta=37,89^\circ$ ) (mesure sur un film d'AlN bien texturé).....	44
<b>Figure 25:</b> Limitations des réflexions dues à la géométrie instrumentale, cas d'un détecteur CPS.....	45
<b>Figure 26:</b> Relation entre la fonction de distribution des orientations $f(g)$ et des figures de pôles $Phkl(\varphi, \chi)$ .....	49
<b>Figure 27:</b> Figure de pôle incomplète $\{10\bar{1}2\}$ d'AlN-h pour des films (a) 2D, (b) 3D pour des films d'AlN/Si(100). ....	52
<b>Figure 28:</b> Figure de pôles $\{10\bar{1}2\}$ d'AlN-h déposé sur Si(100) par DCMS.....	56
<b>Figure 29:</b> Mise en évidence de la fibre (0001) à partir de : (a) $\{0001\}$ ( $2\theta = 36,04^\circ$ ), (b) $\{10\bar{1}1\}$ .....	57
<b>Figure 30:</b> (a) et (b) Relation angulaires dans AlN-h (c) Projection Stéréographique AlN-h pour les plans des raies considérées .....	58
<b>Figure 31:</b> Figures de pôles expérimentales $\{10\bar{1}2\}$ pour l'angle $2\theta = 49,81^\circ$ d'AlN-h en fonction de l'épaisseur de la couche d'AlN déposé sur Si(100) par DCMS (a) 12 nm, (b) 200 nm, (c) 640 nm et (d) 990 nm. La réponse de la symétrie 4 correspond au silicium ( $2\theta = 47,70^\circ$ ). ....	61
<b>Figure 32:</b> Figures de pôles $\{10\bar{1}1\}$ pour l'angle $2\theta = 37,89^\circ$ d'AlN-h en fonction de l'épaisseur de la couche d'AlN déposé sur Si(100) par DCMS (a) 12 nm, (b) 200 nm, (c) 640 nm et (d) 990 nm. ....	62
<b>Figure 33:</b> XRD Phi-scans de la figure de pôles $\{10\bar{1}1\}$ ( $2\theta = 37,89^\circ$ ) d'AlN-h pour les angles de tilt ( $\text{Chi} = 57,5^\circ - 62,5^\circ$ avec un pas de $2,5^\circ$ ) en fonction de l'épaisseur. ....	63
<b>Figure 34:</b> Figures de pôles $\{10\bar{1}1\}$ pour l'angle $2\theta = 37,89^\circ$ d'AlN-h en fonction du taux d'azote du film d'AlN déposé sur Si(100) par DCMS (a) 20 % et (b) 35%. ....	66

<b>Figure 35:</b> XRD Phi-scans de la figure de pôles $\{10\bar{1}1\}$ ( $2\theta = 37,89^\circ$ ) d'AlN-h pour les angles de tilt ( $\text{Chi} = 57,5^\circ - 62,5^\circ$ avec un pas de $2,5^\circ$ ) pour les films d'AlN déposés sur Si(100) par DCMS avec un taux d'azote: (a) 20% (b) 35%.....	67
<b>Figure 36:</b> Figures de pôles $\{10\bar{1}1\}$ pour l'angle $2\theta = 37,89^\circ$ d'AlN-pour les films d'AlN déposés sur Si(100) par DCMS : (a) réacteur 2" (b) réacteur 8".....	69
<b>Figure 37:</b> XRD Phi-scans de la figure de pôles $\{10\bar{1}1\}$ ( $2\theta = 37,89^\circ$ ) d'AlN-h pour les angles de tilt ( $\text{Chi} = 57,5^\circ - 62,5^\circ$ avec un pas de $2,5^\circ$ ) pour les films d'AlN déposés sur Si(100) par DCMS : .....	70
<b>Figure 38:</b> Figures de pôles $\{10\bar{1}1\}$ ( $2\theta = 37,89^\circ$ ) d'AlN-h pour les films d'AlN déposés par DCMS, en utilisant le réacteur 8" sur : (a) Si(100) et (b) Si(111). .....	72
<b>Figure 39:</b> XRD Phi-scan de la figure de pôles $\{10\bar{1}1\}$ ( $2\theta = 37,89^\circ$ ) d'AlN-h pour les angles de tilt ( $\text{Chi} = 57,5^\circ - 65^\circ$ avec un pas de $2,5^\circ$ ) des films d'AlN déposés, par DCMS en utilisant le réacteur 8", sur (a) AlN/Si(100) et (b) AlN/Si(111).....	73
<b>Figure 40:</b> Figure de pôles $\{10\bar{1}1\}$ pour l'angle $2\theta = 37,89^\circ$ d'AlN-h pour le film d'AlN déposé sur SiC-6H par DCMS par le réacteur 8".....	75
<b>Figure 41:</b> XRD Phi-scan de la figure de pôles $\{10\bar{1}1\}$ ( $2\theta = 37,89^\circ$ ) pour le film d'AlN déposé sur SiC-6H par le réacteur 8".....	76
<b>Figure 42:</b> Schéma explicatif de la bicouche formée d'AlNPVD/AlNKyma/Si (111).....	77
<b>Figure 43:</b> Figures de pôles $\{10\bar{1}2\}$ d'AlN-h ( $2\theta = 49,81^\circ$ ) pour : (a) AlNKyma/Si(111) et (b) AlNPVD/ AlNKyma/Si(111) par DCMS par le réacteur 8". La réponse du symétrie 3 correspond au silicium $2\theta=47,70^\circ$ ).....	78
<b>Figure 44:</b> Clichés MET de l'interface AlNMBE / Si à différents agrandissements.....	79
<b>Figure 45:</b> Schéma explicatif d'une bicouche formée 'AlNPVD/AlNMBE(11nm)/Si(111)..	80
<b>Figure 46:</b> Figures de pôles $\{10\bar{1}2\}$ pour l'angle $2\theta = 49,81^\circ$ d'AlN-h pour déposé sur : (a) AlNMBE (11 nm)/Si(111) et (b) AlNPVD/AlNMBE (11 nm)/Si(111). .....	81
<b>Figure 47:</b> Angles entre les pôles $\{10\bar{1}2\}$ d'AlN-h pour : AlNPVD/AlNMBE/Si(111).....	82
<b>Figure 48:</b> Figures de pôles $\{10\bar{1}2\}$ ( $2\theta = 49,81^\circ$ ) d'AlN-h pour : (a) AlNMBE/Si(111) et (b) AlNPVD/AlNMBE/Si(111).....	83
<b>Figure 49:</b> Calculs des angles entre la famille de plans $\{10\bar{1}2\}$ d'AlN-h pour le film d'AlNPVD/ AlNMBE (02 nm) /Si(111) déposé par DCMS par le réacteur 8" ..	84

<b>Figure 50 :</b> Diagrammes de DRX des films d'AlN/Si(100) par DCMS et HiPIMS. ....	89
<b>Figure 51:</b> Figures de pôles {0001} de l'AlN-h pour le film d'AlN déposé sur Si(100) par : (a) DCMS (b) HiPIMS .....	90
<b>Figure 52:</b> Figures de pôles $\{10\bar{1}2\}$ d'AlN-h pour le film d'AlN déposé sur Si(100) par : (a) DCMS (b) HiPIMS .....	91
<b>Figure 53:</b> XRD Phi-scan de la figure de pôles $\{10\bar{1}2\}$ pour les angles de tilt Chi (37,5° à 47,5°) pour l'AlN/Si(100) en DCMS. ....	92
<b>Figure 54:</b> XRD Phi-scan de la figure de pôles $\{10\bar{1}1\}$ pour l'angle de tilt Chi= 62,5° pour les films d'AlN déposés sur Si(100) par DCMS et HiPIMS. ....	93
<b>Figure 55:</b> Figure de pôles expérimentales {0002} d'AlN-h (a) Chi= 0 à 75° (b) Chi= 15 à 75° .....	93
<b>Figure 56:</b> Figures de pôles expérimentales {200} ( $2\theta= 44,77^\circ$ ) de l'AlN-c pour les films d'AlN déposés par (a) DCMS (b) HiPIMS. ....	94
<b>Figure 57:</b> Figures de pôles (a) {111} ( $2\theta= 28,41^\circ$ ) du Si (b) $\{10\bar{1}2\}$ ( $2\theta = 49,81^\circ$ ) d'AlN-h du substrat de Si(100) avant le dépôt de la couche d'AlN. ....	95
<b>Figure 58:</b> Figure de pôles {200} ( $2\theta = 44,77^\circ$ ) de l'AlN-c pour le substrat du Si(100) avant le dépôt de la couche d'AlN. ....	96
<b>Figure 59:</b> XRD Phi-scan de la figure de pôles {200} ( $2\theta = 44,77^\circ$ ) d'AlN-c pour l'angle de tilt (Chi = 55°) pour : le Si(100) sans la couche d'AlN, l'AlN d'épaisseur de 200 nm et le film d'AlN de 1000 nm d'épaisseur.....	96
<b>Figure 60:</b> Figures de pôles {200} ( $2\theta= 44,77^\circ$ ) de l'AlN-c pour les films d'AlN déposés par :(a) DCMS (b) HiPIMS .....	97
<b>Figure 61:</b> Arrangements atomiques de : (a) AlN-c (100)/ Si(100), AlN-h (b) (0002)/AlN-c (111) et (c) AlN-h (0002)/ Si(100). ....	99

## **Introduction générale**

## Introduction Générale

---

Le nitrure d'aluminium AlN a fait l'objet de beaucoup de recherches, fondamentales et appliquées, notamment pour ses propriétés piézoélectriques, thermiques, acoustiques, diélectriques et sa stabilité chimique. Il possède des caractéristiques très intéressantes pour de nombreuses applications, tant en électronique qu'en photonique.

Les films d'AlN sont utilisés pour des filtres acousto-optiques de type SAW (Surface Acoustic Wave) et des diodes à émission UV, du point de vue de l'utilisation électronique. Ils sont particulièrement intéressants en photonique (filtre, miroir de Bragg, LED, UV). L'utilisation d'AlN dans des dispositifs pour l'optoélectronique, ainsi que pour la microélectronique, nécessite la synthèse de films épitaxiés, par des techniques physico-chimiques d'élaboration. Parmi ces techniques, nous avons utilisé la méthode (PVD) (dépôt physique en phase vapeur).

L'AlN est un composé polymorphe, il présente deux structures cristallines, hexagonale et cubique. La phase hexagonale est thermodynamiquement stable, elle est la plus largement étudiée. La structure cubique est métastable, elle a été beaucoup moins considérée, mais elle attire de plus en plus l'attention, du fait de ses propriétés importantes par rapport à celles de la structure hexagonale. Elle possède une conductivité thermique et une résistivité électrique plus importantes et une vitesse de propagation acoustique plus élevée, du fait de son degré de symétrie supérieur. Cette phase reste, malgré tout, difficile à synthétiser par la technique PVD.

Récemment les chercheurs ont commencé à s'intéresser à l'anisotropie des films AlN ou texture cristallographique. La texture décrit la distribution statistique des orientations des grains. C'est une caractéristique importante de la microstructure des films minces, qui peut influencer, de façon significative, les différentes propriétés citées précédemment. Le principal objectif de ce travail est l'étude de l'influence de la texture sur la qualité des films d'AlN, en fonction des méthodes de dépôt, des substrats utilisés, de l'épaisseur des films ainsi que des applications envisagées. Au cours de notre travail, nous avons pu également mettre en évidence la présence de la phase cubique, que nous considérons comme phase transitoire. Cette phase cubique, si elle est bien orientée, peut faciliter la croissance de la phase hexagonale. Nous pouvons souligner que c'est la première fois, à notre connaissance, que la phase cubique considérée généralement comme métastable, est identifiée par analyse de texture.

## Introduction Générale

---

Ce mémoire comprend 4 chapitres

- Le premier chapitre présente une étude bibliographique du matériau AlN, que ce soit en termes de propriétés ou d'application. Nous rappelons également les procédés expérimentaux et les techniques de synthèse des films d'AlN étudiés (\*).
- Dans le deuxième chapitre, nous rappelons les différents types de texture et nous décrivons les approches généralement utilisées pour la description de la texture, notamment celle des films de structure hexagonale. La méthode que nous avons utilisé pour la caractérisation de la texture de ces films d'AlN est la diffraction des rayons X (DRX).
- Le troisième chapitre présente une synthèse des résultats de caractérisation de la texture de la phase hexagonale des films AlN déposés par DCMS sur de différents substrats. Nous avons considéré l'influence de l'épaisseur des films, de la nature et de l'orientation du substrat et les différentes conditions de dépôt.
- Le dernier chapitre est consacré à l'étude de l'influence des deux méthodes DCMS et HiPIMS sur l'évolution structurale de la phase hexagonale dans les couches minces d'AlN. C'est dans ce chapitre que nous discutons également la mise en évidence expérimentale d'une phase cubique transitoire.

Enfin nous terminons ce manuscrit par des conclusions et les perspectives ouvertes à l'issue du travail de cette thèse.

*(\*) Les films ont été fournis par l'équipe Ingénierie des Matériaux et Métallurgie (ID2M) et particulièrement le Pr M.A. Djouadi de l'institut des Matériaux Jean Rouxel (IMN), dans le cadre d'une collaboration pour intégrer l'anisotropie des films d'AlN dans une étude globale qui vise à fournir des substrats composites d'AlN/Si pour la croissance de GaN.*

**Chapitre 1 : Matériaux et techniques de dépôts**

## Introduction

Les nitrures III-V sont des semi-conducteurs remarquables. Ils ont beaucoup d'intérêt dans le domaine des sciences des matériaux vu leurs nombreuses applications en microélectronique ainsi qu'en optoélectronique. Ils sont notamment utilisés par exemple dans la fabrication de diodes laser, de détecteurs dans l'ultraviolet et de transistors. Les dispositifs optoélectroniques à base de nitrures exhibent de bonnes performances, malgré une densité de dislocations très élevée ( $> 10^8 \text{ cm}^{-2}$ ) et des champs électriques intrinsèques énormes (plusieurs MV/cm). Les différents phénomènes physiques mis en jeu dans ces matériaux sont illustrés par les propriétés optiques de puits et de boîtes quantiques.

Dans ce premier chapitre, nous allons tout d'abord commencer par un état de l'art, puis nous présentons les différents mécanismes de croissance d'une couche mince. Nous présenterons ensuite, la technique de dépôt physique en phase vapeur (PVD), en particulier, la pulvérisation cathodique magnétron réactive. Nous décrirons aussi, les différentes techniques de pulvérisation et les dispositifs expérimentaux utilisés dans cette étude.

### 1.1. État de l'Art

Le nitrure d'aluminium AlN est un semi-conducteur avec une bande interdite directe de 6,2 eV, soit l'une des plus élevée des composés nitrures [1]. L'AlN possède une forte résistivité électrique ( $10^8$ - $10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ ) à 300 K selon les conditions de fabrication [2], une conductivité thermique de  $320 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  [3] et une constante diélectrique ( $\epsilon_r$ ) comprise entre 8 et 9,5 [4], qu'en font un matériau intéressant en microélectronique. Il est notamment utilisé comme un matériau diélectrique dans les structures SOI (Silicon On Insulator (Silicium sur isolant) [5]. L'AlN peut être aussi utilisé pour la fabrication de dispositifs d'ondes acoustiques de surface (SAW) ou de volume (BAW) grâce à ses propriétés piézoélectriques. Ces dispositifs enregistrent une forte évolution grâce à la grande variété de leur domaine d'applications : les résonateurs, les filtres à hautes fréquences pour la téléphonie mobile, les capteurs de pression pouvant fonctionner en milieux agressifs,... [6]. Grâce à son paramètre de maille proche de celui du silicium, de ses caractéristiques de dissipation thermique et d'isolant électrique, l'AlN a été identifié comme le matériau de choix pour l'élaboration de couches tampons, destinées à compenser le désaccord de maille entre le substrat de silicium et les couches actives du dispositif, par exemple les hétérojonctions en nitrure de gallium et

nitride d'aluminium-gallium [7]. La qualité cristalline et la morphologie de surface de la couche tampon en nitride d'aluminium jouent un rôle déterminant sur les propriétés des hétérostructures III-N et dépendent fortement des paramètres du procédé de dépôt [8].

Les chercheurs de l'Institut des Matériaux Jean Rouxel de Nantes (France) (IMN) et particulièrement le professeur M.A. Djouadi travaillent sur la croissance des films de nitride d'aluminium sur différents substrats. A partir des procédés plasmas et notamment des techniques de pulvérisation, l'objectif principal de l'équipe de l'IMN est de réaliser une épitaxie de films d'AlN sur silicium à basse température parce qu'il est industriellement et économiquement plus intéressant de l'utiliser comme substrats que le saphir. L'AlN d'orientation (0001) et le silicium d'orientation (111) ont une unique relation épitaxiale, cependant, son utilisation est peu commune dans le domaine de la microélectronique. C'est en effet le silicium (100) qui est utilisé dans le domaine de la microélectronique grâce à ses propriétés électroniques et surtout à la très faible densité d'états à l'interface SiO<sub>2</sub>/Si(100) [9]. Par conséquent, si on vise une intégration des fonctionnalités des matériaux III-N dans la filière silicium, il faudrait réaliser l'épitaxie directement sur la face (001) de silicium. Néanmoins, pour une raison de symétrie, il n'est pas évident de faire coïncider un hexagone sur un carré, mais surtout il existe deux relations épitaxiales reliant l'AlN (0001) et le silicium (100) ce qui conduit à un matériau de moins bonne qualité structurale que le silicium (111) et les autres substrats (Saphir, etc).

Ces travaux et résultats ont été obtenus en particulier dans le cadre des thèses de C. Duquenne [10], B. Abdallah [11], A. Soussou [12], K. Ait Aissa [13] et J. Camus [8].

C. Duquenne a montré dans sa thèse qu'il faut utiliser une configuration déséquilibrée du champ magnétique de la cathode pour synthétiser une couche mince d'AlN d'orientation (0001). Cette configuration permet de conserver la décharge magnétron à faible pression de travail et d'obtenir ainsi des flux d'ions et des vitesses de dépôt supérieurs à ceux obtenus avec une configuration conventionnelle équilibrée.

En revanche, les travaux de B. Abdallah ont porté sur l'étude de l'évolution des contraintes résiduelles des films de nitride d'aluminium en fonction des paramètres du procédé de dépôt utilisé, en l'occurrence la pulvérisation magnétron réactive. Ces travaux de thèse ont porté sur l'optimisation du procédé qui a permis de synthétiser des couches minces d'AlN ayant

différentes orientations cristallographiques  $\{10\bar{1}0\}$  et notamment l'orientation préférentielle (0001) hexagonale. B. Abdallah propose dans ses travaux une nouvelle méthode de mesure des contraintes intrinsèques, couplée avec des caractérisations structurales. Ces travaux ont permis de quantifier les contraintes dans les films d'AlN et de proposer une explication à l'évolution de la contrainte en fonction de l'épaisseur. Par la suite, une étude structurale fine des films d'AlN sur toute leur épaisseur a été effectuée par microscopie électronique en transmission à haute résolution (METHR). Cette dernière a permis de montrer l'existence de trois zones : une interface amorphe avec le silicium, une zone polycristalline et une zone très bien cristallisée. Par ailleurs, le contrôle du bombardement ionique, du rapport ions/neutres, de la contamination en oxygène ainsi qu'un choix judicieux du type de substrats permet de minimiser la couche interfaciale ainsi que la zone polycristalline. En effet, l'optimisation des paramètres expérimentaux et l'utilisation de couches épitaxiées d'AlN et d'AlGaN ont permis une reprise d'épitaxie locale à basse température des films de nitrure d'aluminium sur ces substrats [14].

M.A. Soussou a révélé dans son étude les conditions expérimentales optimales en DCMS pour l'obtention de films d'AlN de bonne qualité cristalline. A. Soussou a travaillé sur une optimisation du procédé de dépôt d'AlN en HiPIMS (High Power Impulse Magnetron Sputtering (Pulvérisation magnétron à haute puissance pulsée) par spectroscopie d'émission optique (SEO). En associant des diagnostics « in situ » du plasma telles que la SEO et la spectrométrie de masse, il a réussi à découvrir des conditions expérimentales permettant la croissance de couche minces d'AlN bien cristallisées. De plus, Il a aussi montré que l'application d'une tension de 1 kV sur la cathode et d'une largeur de pulse de 28  $\mu$ s permettent d'avoir un rapport maximum des intensités des espèces déposantes (Al) sur les intensités des espèces non déposantes (Ar). De ce fait, une vitesse de dépôt suffisamment élevée a été obtenue à cette largeur de pulse avec une qualité améliorée des films d'AlN.

La thèse de K. Ait Aissa est consacrée à l'étude de la croissance des couches minces de nitrure d'aluminium par pulvérisation magnétron réactive DCMS (Direct current Magnetron Sputtering), HiPIMS) et l'évaluation de ses propriétés en vue d'applications de type passivation de transistors HEMTs (High electron mobility transistor (transistor à haute mobilité électronique) ou de couche tampon pour la croissance de GaN. Elle s'est intéressée à trois paramètres : le pourcentage d'azote dans la décharge plasma, la pression de travail et l'épaisseur de la couche mince d'AlN. Les analyses physico-chimiques (MEB, MET, DRX,

AFM, EDX, FTIR, Raman) et mécaniques (contraintes résiduelles) lui ont permis d'une part de déterminer l'effet de ces paramètres sur les propriétés des films, et d'autre part de comparer les deux procédés de dépôt (DCMS, HiPIMS). Les films d'AlN obtenus par les deux procédés ont été texturés selon l'orientation préférentielle (0001), avec une structure colonnaire dense. Une étude microstructurale réalisée par microscopie électronique en transmission (MET) a permis de montrer la présence d'une croissance directe sur Si pour les films réalisés par HiPIMS. En revanche, pour évaluer l'utilisation de films d'AlN comme matériaux d'interface thermique, les propriétés thermiques des films ont été déterminées par l'utilisation de la méthode photothermique infrarouge rapide. Les valeurs identifiées ont montré que les propriétés thermiques des films d'AlN dépendent non seulement de leurs épaisseurs mais aussi du procédé de dépôt ayant permis l'élaboration de la couche mince. Des valeurs de conductivités thermiques de 175 et 250  $\text{W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$  ont été obtenues pour des films réalisés en DCMS et en HiPIMS respectivement. Enfin, des essais ont été effectués en vue de l'amélioration de la qualité de la couche tampon d'AlN sur la croissance des couches de GaN. Deux types de substrats composites AlNMBE (Molecular Beam Epitaxy (épitaxie par jet moléculaire) et AlNPVDNC (Plasma Vapor Deposition of NanoColumns (dépôt physique de nanocolonnes en phase vapeur) ont été utilisés pour la reprise de la croissance des films AlNPVD mais il n'a pas été possible de démontrer une croissance épitaxiale du film AlN à basse température sur ces deux types de couches buffer.

Les travaux de J. Camus ont porté sur l'étude de la croissance et des propriétés de couches minces d'AlN élaborées par pulvérisation magnétron réactive à basse température ( $<250^\circ\text{C}$ ) pour la gestion thermique de composants de puissance. Des caractérisations physico-chimiques (DRX, Raman, MET, etc.) et mécaniques ont montré que les films déposés sur silicium sont colonnaires, denses, d'orientation (0001) avec une mosaïcité de  $1,8^\circ$  pour  $2\ \mu\text{m}$ . Les mesures thermiques effectuées par « la méthode du ruban chaud » ont montré des conductivités thermiques de l'ordre de  $240\ \text{W.K.m}^{-1}$  atteignant ainsi des valeurs supérieures de deux ordres de grandeur à celles du BCB (BenzoCycloButene) ou du  $\text{SiO}_2$ . Leur intégration en tant que drains thermiques dans des transistors HEMT-GaN et des Lasers à Cascade Quantique a permis une amélioration notable des performances thermiques de ces composants de puissance. Ces films d'AlN ont également été optimisés afin de servir de couche tampon d'AlN pour la croissance de GaN sur silicium. Comme l'hétéroépitaxie de l'AlN sur silicium (100) ou (111) par PVD n'est pas encore possible à basse température, des

défauts apparaissent lors de la croissance d'AlN (0001) sur silicium et se répercutent sur la couche active dégradant les performances des HEMT-GaN. L'utilisation de couches tampons d'AlN de quelques nm d'épaisseur élaborées à haute température par PVDNC (AlNKyma) ou pas (MBE) a rendu possible une reprise d'épitaxie à basse température de l'AlN PVD sur l'AlN déposé à haute température AlN HT sur Si(111). L'amélioration de la mosaïcité (tilt des colonnes de la couche par rapport à la normal du substrat) et la conservation de la contrainte en tension liées à la couche tampon d'AlN HT ont permis de fabriquer des transistors HEMTs GaN sur Si(111) donnant des performances électriques à l'état de l'art et des performances thermiques améliorées.

Le but de notre travail, est d'étudier l'influence de la texture cristallographique sur la l'évolution de la qualité des films d'AlN et de mettre en évidence l'existence de la phase cubique d'AlN. L'AlN étant déposé à basse température par pulvérisation magnétron réactive DCMS et HiPIMS.

## 1.2. Le nitrure d'aluminium

Le nitrure d'aluminium est un matériau de la famille des nitrures de métaux III-V. À température ambiante, la structure thermodynamiquement stable du nitrure d'aluminium est hexagonale de type wurtzite appartenant au groupe de symétrie  $P6_3mc$  [15] (Figure 1).

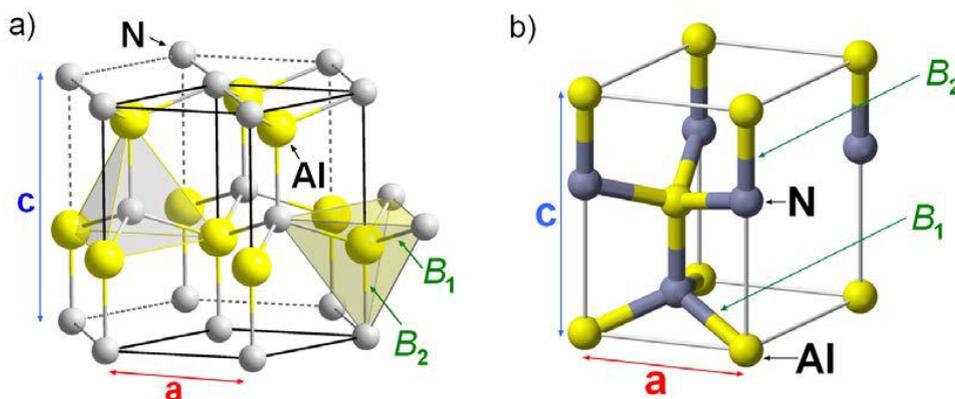
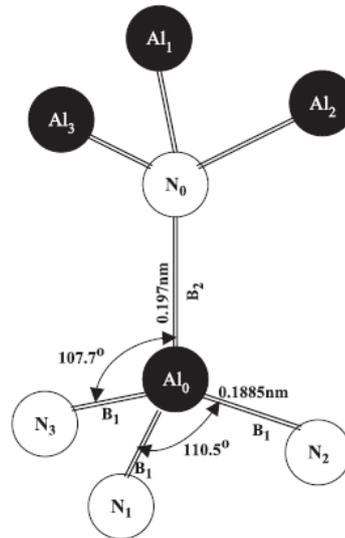


Figure 1: Structure cristalline de l'AlN-h.



**Figure 2:** Le diagramme schématique.

La structure hexagonale wurtzite d'AlN est formée de deux sous réseaux hexagonaux compacts d'atomes d'azote (N) et d'aluminium (Al). Chaque atome d'aluminium est entouré par quatre atomes d'azote et réciproquement, formant ainsi un tétraèdre légèrement distordu, avec trois liaisons Al-N équivalentes de longueur 0,1885 nm et formant un angle de  $110,5^\circ$  entre elles. La liaison dans la direction de l'axe c est plus longue (0,1917 nm), les angles formés entre cette liaison et les trois premières est de  $107,7^\circ$  (Figure 2) [16].

Sous sa forme hexagonale, l'AlN-h possède de bonnes propriétés diélectriques, une stabilité thermique et chimique ainsi qu'une forte conductivité thermique ( $>250 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ). Ce qui est valide pour les films d'AlN déposés sur Si(100) par HiPIMS [17]. L'absence de centre de symétrie implique que l'AlN est piézo-électrique. Le nitrure d'aluminium possède de bonnes propriétés mécaniques, par exemple son module d'Young est de 300 GPa et sa dureté de 12 GPa, d'où son application comme couche protectrice.

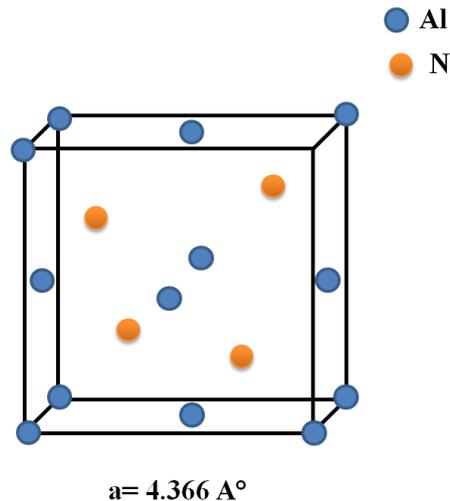
L'AlN-h présente également d'intéressantes propriétés optiques avec un indice de réfraction élevé (entre 1,8 et 2,2 à 632,8 nm selon sa nature cristalline) ainsi qu'une très grande transparence dans le visible et dans le proche infrarouge (de 400 nm à 3  $\mu\text{m}$ ). Il est donc couramment utilisé en tant que matériau protecteur pour l'optique ou comme fenêtre infrarouge [15,18].

Ces propriétés dépendent de la structure cristalline de l'AlN-h mais aussi de son orientation préférentielle. En effet, nous verrons plus tard que les films peuvent être composés de plusieurs orientations cristallines notées (0001),  $\{10\bar{1}0\}$ ,... etc.

Néanmoins, l'orientation d'AlN-h la plus couramment utilisée pour des applications SAW, est la (0001) avec l'axe c perpendiculaire à la surface du substrat. Cependant, d'autres orientations de l'AlN sont utilisées, particulièrement les orientations  $\{10\bar{1}0\}$  et  $\{10\bar{2}0\}$ . En fait, dans le cas de ces deux orientations, l'axe c est parallèle à la surface de substrat, ainsi l'onde acoustique de surface coïncide avec l'axe c piézoélectrique du film (coefficient d33). L'orientation  $\{10\bar{1}0\}$  possède un meilleur coefficient de couplage que l'orientation (0001) [19], mais son obtention reste difficile. Par ailleurs, l'orientation (0001) d'AlN est la plus « facile » à produire, certains auteurs ont réussi à obtenir des couches minces (10 $\bar{1}$ 0) d'AlN par ablation laser en jouant sur la pression d'azote. À faible pression d'azote, l'orientation de l'AlN hexagonale est (0001). Avec l'augmentation du taux d'azote, on observe un changement de l'orientation du film de (0001) vers (10 $\bar{1}$ 0) [20]. Des dispositifs SAW ont par ailleurs été réalisés sur des couches minces d'AlN déposées par PLD sur Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (R) [21]. Ces filtres ont montré de bonnes caractéristiques :  $f_0=1,068$  GHz et  $v=5980$  m.s<sup>-1</sup>. Bien que les deux orientations  $\{10\bar{1}0\}$  et  $\{10\bar{2}0\}$  du nitrure d'aluminium montrent des propriétés intéressantes, elles restent cependant difficiles à obtenir et ont encore été très peu intégrées dans des dispositifs SAW. L'orientation (0001) reste la plus courante et la plus utilisée pour les dispositifs à ondes acoustiques de surface.

En revanche, le nitrure d'aluminium peut exister également sous une forme cubique de type zinc-blende avec un paramètre de maille de 0,791 nm ou 0,438 nm, ou de type NaCl avec un paramètre de maille 0,477 nm. La figure 3 nous montre la structure cristalline d'AlN-c.

L'AlN-c possède de meilleures propriétés que celles de l'AlN hexagonale tels qu'une conductivité thermique élevée (250-600 W.m.k<sup>-1</sup>), une résistivité électrique plus forte (>10<sup>16</sup> Ω.cm), une dureté Vickers plus élevée (40-50 GPa), un module d'élasticité et également une vitesse de propagation plus élevés du fait de son degré de symétrie supérieur à celui de la phase hexagonale [22-24]. Elle permet d'éliminer les effets négatifs des fortes polarisations spontanées et piézoélectriques présentes dans les nitrures en phase hexagonale [9].



**Figure 3:** Structure cristalline d'AlN-c.

L'utilisation moderne de l'AlN dans des dispositifs pour l'optoélectronique et la microélectronique nécessite la synthèse de leurs couches minces par des techniques physico-chimiques d'élaboration. Les principales techniques physiques sont :

- épitaxie par jet Moléculaire (MBE) [25];
- La pulvérisation magnétron en courant continu (DCMS) [26] ;
- la pulvérisation réactive en régime d'impulsion de haute puissance (HiPIMS) [27] ;

L'utilisation de l'ammoniaque est nécessaire pour apporter l'élément azote pour une croissance épitaxiale des films de nitrures, et c'est le craquage de la molécule  $\text{NH}_3$  par pyrolyse via la température de surface du substrat qui permet d'obtenir des espèces de N pour la croissance [8, 17]. Pour les applications en microélectronique, les techniques de dépôt généralement utilisées sont la MBE, l'ablation laser et surtout la MOCVD (Metal Organic Chemical Vapour Deposition (épitaxie en phase vapeur aux organométalliques)). Ces méthodes reposent sur une forte température de synthèse (autour de  $1000 \text{ }^\circ\text{C}$ ) et demandent un coût énergétique exorbitant. Et à cet égard, la méthode PVD est une très bonne solution pour diminuer cette température ( $200 \text{ }^\circ\text{C}$ ). En outre, parmi l'ensemble des dépôts PVD, la pulvérisation cathodique magnétron est le procédé offrant les plus grandes vitesses de dépôt et la possibilité de diminuer au maximum la température du substrat pendant la croissance.

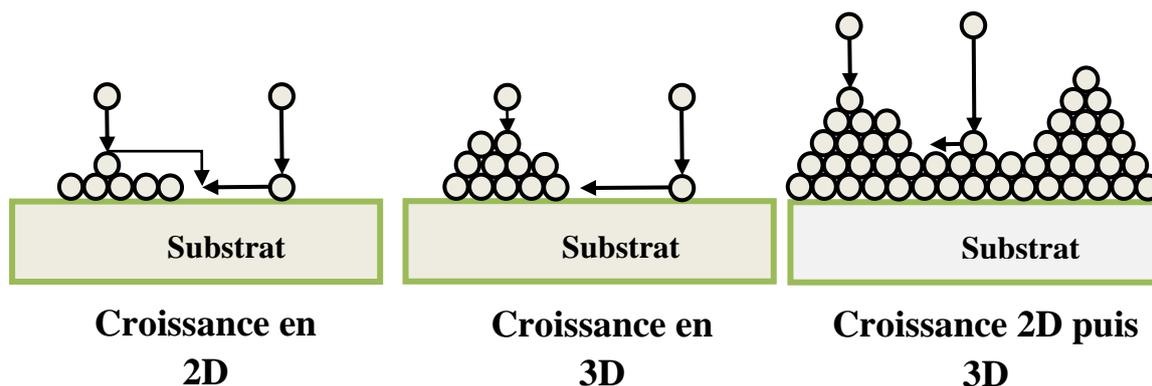
### 1.3. Les mécanismes de croissance d'une couche mince

La formation d'un film déposé par PVD sur un substrat se fait par condensation des atomes de la phase gazeuse à sa surface. Les propriétés du film obtenu sont très dépendantes de sa structure (morphologie), elle est même dépendante des modes de croissance des couches.

Les différentes étapes de la croissance des films sont :

- **la nucléation** où les atomes de la couche mince à déposer sont adsorbés par la surface du substrat ;
- **la diffusion** pendant laquelle les atomes du film diffusent à la surface du substrat pour s'agglomérer entre eux en formant des clusters ;
- **la coalescence** où les clusters s'agglomèrent à leur tour pour former des germes qui recouvrent progressivement le substrat;
- **la croissance** La phase de croissance du germe dans le plan est perpendiculairement à la surface. En revanche, le nombre de germes formés et la vitesse de leur croissance dépendent à la fois du nombre, du type et de l'énergie des atomes incidents ainsi que de la température de travail et de l'état de surface du substrat [8, 13].

Lors du dépôt d'une couche mince, les atomes incidents recouvrent graduellement la surface du substrat, il s'ensuit trois modes de croissance tel que présentés sur la figure 4 et décrits en 1958 par Ernst Mauer.



**Figure 4:** Les différents modes de croissance : 2D (à gauche), 3D (au centre) et mixte (à droite).

Le mode de croissance bidimensionnel (2D) ou Franck-Van der Merwe : le matériau se dépose couche atomique après couche atomique. Ce type de nucléation se produit lorsque le

dépôt a une composition similaire à celle du substrat. L'exemple le plus simple est celui du dépôt ayant la même composition que le substrat.

- Le mode de croissance tridimensionnel (3D) ou Volmer-Weber : les atomes arrivant commencent par une croissance 2D puis 3D à partir d'une certaine épaisseur. Ce mode de croissance est appelé Stranski-Krastanov.

Le mode de croissance des couches minces est tributaire des énergies de surfaces du film ( $\varphi_{\text{film}}$ ), du substrat ( $\varphi_{\text{substrat}}$ ) et de l'énergie d'interface ( $\varphi_{\text{film-substrat}}$ ) à travers le bilan énergétique suivant :

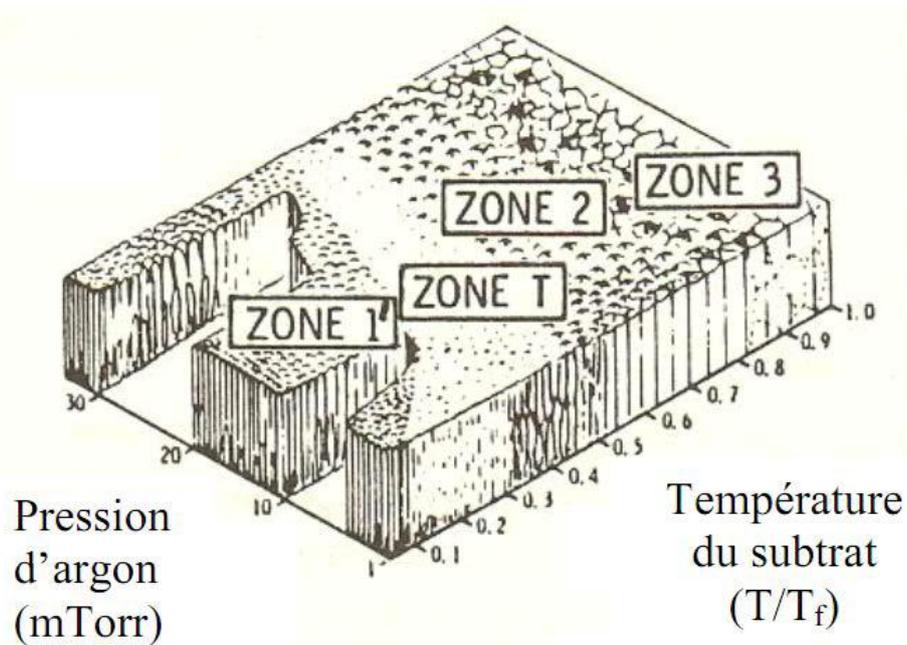
$$\Delta\varphi = \varphi_{\text{film}} - \varphi_{\text{substrat}} + \varphi_{\text{film-substrat}}$$

- Lorsque  $\Delta\varphi < 0$ , on assiste à une croissance 2D
- Lorsque  $\Delta\varphi > 0$ , la croissance du film se fait alors suivant un mode 3D
- Enfin,  $\Delta\varphi$  peut varier au cours de la croissance et donner lieu à un mode mixte.

La transition entre une croissance initiale 2D vers une croissance 3D est généralement associée à une relaxation de l'énergie emmagasinée dans le film, due à la différence de paramètre de maille entre film/substrat [28].

La technique PVD fonctionne grâce à des espèces de forte énergie provoquant d'autres effets en surface ou même en volume telles que la pulvérisation, l'implantation et la diffusion d'atomes qui viennent perturber ces modes de croissances théoriques. Des cascades de collisions, liées à l'énergie des espèces, sont créées et génèrent des déplacements et des réorganisations d'atomes non seulement en surface mais aussi en volume proche de la surface ou « subsurface » [29].

Les couches minces déposées par la méthode PVD peuvent présenter des morphologies très différentes en fonction des paramètres de croissance mis en jeu, découlant eux même des caractéristiques physiques des dépôts [8]. Plusieurs classifications ont été proposées afin de pouvoir classer les différentes structures des films. La première est celle de Thornton [30] (Figure 5), réalisée à partir d'observations expérimentales de couches métalliques déposées par pulvérisation.



**Figure 5:** Classification de la morphologie des couches minces de Thornton [30].

Les analyses structurales ont permis de créer un modèle de zones de structure (SZM). Ce modèle est illustré sur la figure 5.

Les zones du modèle ont été décrites en rendant compte des propriétés morphologiques des couches minces en fonction de la température normalisée,  $T_d/T_f$  ( $T_d$  est la température du substrat pendant le dépôt et  $T_f$ , le point de fusion du substrat), de la pression partielle d'argon (Ar) pendant la pulvérisation cathodique et de l'énergie des espèces qui bombardent la surface de la couche lors de sa croissance. Ces zones ont les mêmes caractéristiques pour toutes les méthodes atomistiques. Nous pouvons classer la morphologie des films en quatre zones en fonction de ces deux paramètres [8, 31]:

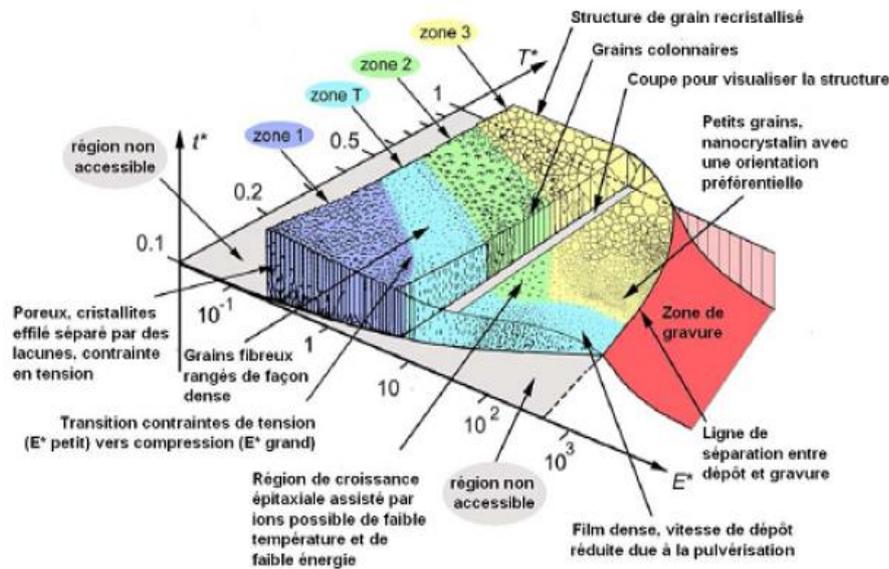
- **La zone 1:** Les grains de la couche mince ont une forme de colonne séparée par des espaces vides formant un film poreux. En revanche, la structure obtenue est rugueuse en surface et est expliquée par une faible mobilité de surface des adatoms lors de la formation du film à cause de la température ambiante.
- **La zone T:** Les grains de la couche mince obtenue ont une forme de fibres arrangés densément les uns à côté des autres ainsi qu'une surface libre plus fine que celle de la zone 1.

Grâce à un bombardement d'espèces plus énergétiques, les adatoms ont plus d'énergie thermique ou d'énergie transmise pour se déplacer dans les directions latérales pour faire disparaître les espaces vides autour des grains ;

- **La zone 2:** Les grains du film obtenu ont une forme de colonnes accolées les unes aux autres. Cependant, la surface des colonnes de la zone a une forme angulaire. Les films cristallins dans cette zone ne sont pas poreux. En revanche, les colonnes ont une largeur fixe sur l'épaisseur de la couche mince et sont séparées par des joints de grains bien définis rendant la structure dense. Ces angles correspondent aux plans cristallins. Il est néanmoins important de noter que les adatoms dans cette zone ont une énergie thermique suffisante pour la diffusion latérale grâce à une température très élevée. En effet, cette dernière devient prédominante, ainsi la microstructure des couches minces n'est plus dépendante de la pression partielle du gaz de pulvérisation, ni de l'énergie transmise par bombardement ionique ;

- **La zone 3:** Les couches minces cristallisées dans cette zone ont des grains équiaxiaux qui sont caractéristiques pour des matériaux massifs traités à haute température. De plus, les grains du film peuvent recristalliser et ils sont souvent monocristallins ainsi que la surface de grains est plate. En revanche, la diffusion dans le volume étant prépondérante dans cette zone, la recristallisation engendre des joints de grains parallèles à la surface du substrat. Cette structure est la structure classique rencontrée lors de l'élaboration des films métalliques par PVD. L'énergie thermique des adatoms dans la zone 3 est prédominante. Les atomes du film peuvent diffuser dans toutes les directions.

En revanche, il est important de noter que cette classification est très adaptée aux techniques de dépôt ne mettant pas en jeu un bombardement ionique intense pendant la synthèse. Et à cet égard, d'autres classifications ont été proposées [32]. La plus récente a été proposée par A. Anders en 2010 [33]. Même si cette dernière est plus adaptée aux techniques telles que l'arc cathodique ou l'HiPIMS. Ce diagramme nous montre la possibilité d'une croissance épitaxiale des films de nitrures à basse température pour une gamme donnée du rapport de flux ions/neutres et de l'énergie des ions (Figure 6).



**Figure 6** : Diagramme de zone de microstructure (SZD) [33].

En plus des paramètres de dépôt discutés ci-dessus, nous ajoutons également la microstructure des couches minces déposées par PVD qui dépend de quelques facteurs tels que [31] :

- La rugosité de la surface du substrat est un paramètre très important pour la croissance d'une couche mince. La croissance des grains du film se réalise à partir des plans de la surface du substrat. En revanche, la croissance d'un film sur une surface rugueuse implique que les axes des colonnes ne sont plus parallèles ainsi que les couches minces obtenues sont plus poreuses que celles réalisées sur des surfaces plates.
- L'angle d'incidence des vapeurs aussi est un paramètre très important pour la croissance d'un film, les axes des colonnes sont toujours orientés vers la source de vapeurs. Si le film obtenu est bien texturé, un changement de l'angle d'incidence va changer cette texture. La nouvelle direction  $[h_1k_1l_1]$  sera alors changée d'un angle égal à l'angle d'incidence.
- La rotation du substrat : il est néanmoins important de noter que les sites de condensation des colonnes sont à « l'ombre » par rapport à la source pendant une partie de la rotation du substrat. L'axe de croissance des grains suit la direction

proche de celle du vecteur du maximum d'intensité des vapeurs. Et à cet égard, la croissance des colonnes de la couche mince continue à partir des plans cristallins, qui sont les plus exposés aux vapeurs arrivant de la source.

#### 1.4. Interface entre dépôt et substrat : adhésion

La qualité de l'interface entre le dépôt et le substrat détermine l'adhésion d'un dépôt et la qualité du système revêtement/substrat. Il existe quatre types d'interface, qui peuvent être catégorisées comme suit [31, 34] :

**L'interface abrupte :** On l'observe quand le changement de la composition chimique est abrupt. C'est-à-dire quand il y a discontinuité de la composition entre les deux matériaux (dépôt et substrat) sur une très faible épaisseur de 0.2 à 0.5 nm. Cette interface a une très faible adhérence car les atomes adsorbés adhèrent au substrat par les faibles forces de Van de Waals.

**L'interface-diffusion :** Cette dernière se produit quand il y a un changement graduel de la composition chimique et qu'il n'y a pas de formation d'un composé dans la zone tampon. Ce mécanisme intervient lorsque les matériaux du dépôt et du substrat sont solubles l'un dans l'autre sous une température suffisamment élevée et un temps suffisamment grand pour engendrer le phénomène de diffusion.

**Interface-composé :** ce type d'interface aura lieu quand il y a la formation d'un composé chimique entre le dépôt et le substrat. Ce type d'interface nécessite une diffusion au préalable. La formation d'une nouvelle phase peut être accompagnée par un changement de volume, ce qui conduit à la naissance de contraintes internes de compression qui favorise la bonne adhérence du dépôt au substrat. Cependant, en général, la formation d'un composé à l'interface favorise l'adhérence du dépôt au substrat.

**Interface-pseudo-diffusion :** On obtient ce type d'interface en provoquant au préalable un ré-dépôt par l'évaporation d'un mélange des matériaux du substrat et du matériau à déposer, de manière à avoir une jonction avec un gradient de composition. Un bombardement ionique avec des atomes des deux matériaux pourrait être envisagé.

En revanche, il faut bien noter que la qualité des interfaces est l'un des enjeux de l'épitaxie de l'AlN directement sur silicium car elle influe sur le reste de la croissance du film d'AlN. Plus l'interface est de qualité (abrupte et non perturbée) et moins la couche finale comporte de défauts lors de l'épaississement. En revanche, nous savons bien que l'interface entre l'AlN et le Si est de mauvaise qualité, ce qui entraîne une croissance perturbée avec une désorientation des colonnes de l'AlN par rapport à la normale et dans le plan, ainsi que l'apparition de cristallites orientées différemment à l'interface. Tous ces défauts cristallographiques empêchent une croissance épitaxiale et dégradent les propriétés thermiques de la couche d'AlN [8, 13].

### 1.5. Dépôt physique en phase vapeur (PVD)

Actuellement, les techniques de dépôt par voie physique (PVD) sont largement utilisées dans l'industrie pour leur compatibilité avec les technologies de la filière silicium. Les techniques de dépôt PVD offrent la possibilité de déposer à la fois des couches métalliques et isolantes, dont la combinaison est souvent indispensable pour la réalisation de dispositifs intégrés. On note également leur très bonne homogénéité sur les grandes surfaces.

Les avantages de la technique PVD par rapport aux autres méthodes sont :

- Température ambiante (300 et 500K);
- Ces techniques sont plus simples à mettre en œuvre ;
- L'utilisation d'un vide secondaire est suffisant ;
- Les vitesses de dépôt sont plus élevées ;
- Les films sont plus denses.

Ci-dessous, nous allons brièvement décrire la pulvérisation cathodique, technique la plus couramment utilisée.

#### La pulvérisation cathodique magnétron réactive

**Pulvérisation cathodique :** Pour former un plasma, on applique une différence de potentiels entre deux électrodes métalliques (100 -1000 V) dans une enceinte contenant un gaz neutre. Le mouvement des électrons ionisent le gaz et entraînent la formation d'un gaz partiellement

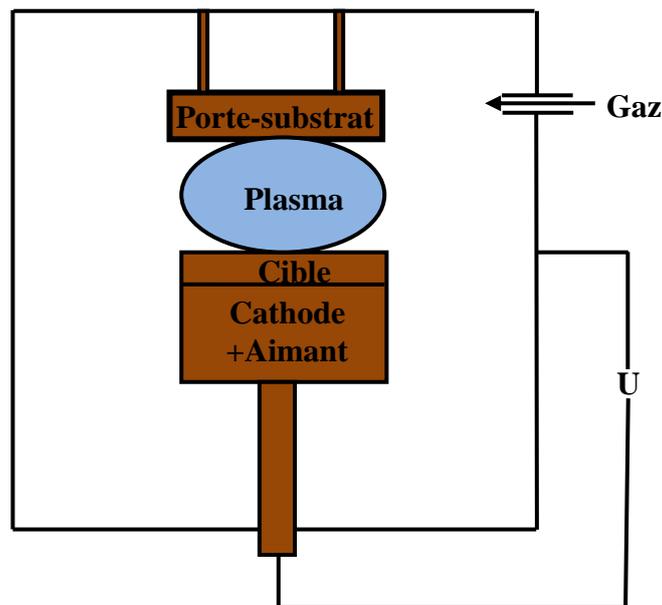
ionisé. C'est ainsi qu'un plasma froid électriquement neutre est créé, constitué de particules neutres, ionisées et d'électrons [8, 10].

Le substrat et les parois de l'enceinte jouent le rôle de l'anode tandis que la cible constituée du matériau à déposer présente la cathode. La surface de la cible est bombardée ce qui entraîne l'arrachement des atomes de la cible ou pulvérisation par les ions du plasma situés à proximité.

Cette méthode permet de déposer tous les types de matériaux :

- simples ou composés ;
- réfractaires ou non ;
- conducteurs ou diélectriques.

Le schéma de principe de la pulvérisation cathodique magnétron est présenté sur la figure 7.



**Figure 7** : Schéma de principe de la pulvérisation cathodique magnétron.

Selon la littérature, les plasmas peuvent être classés suivant deux catégories, les plasmas chauds et les plasmas froids.

Les premiers correspondent à un milieu à l'équilibre thermodynamique où la température des électrons est identique à celle des ions ; c'est l'exemple du cœur des étoiles ou des plasmas de fusion obtenus dans les tokamaks-ITER. Ces plasmas sont généralement fortement ionisés.

La seconde catégorie concernant cette étude, à savoir les plasmas froids, constitue un milieu en hors équilibre thermodynamique, caractérisé par une différence de température conséquente entre les ions du plasma (10<sup>4</sup> à 10<sup>6</sup> K) et les électrons (à partir de 1000 K). Dans le domaine industriel, les plasmas froids sont notamment utilisés à des fins de traitement de surface. Il est possible, de faire modifier la surface du film afin d'en changer les propriétés grâce aux particules énergétiques (ions) ou aux particules neutres réactives, comme par exemple modifier la mouillabilité d'un matériau, augmenter sa dureté ou rendre conductrice une surface initialement isolante. A ces fins, de nombreux procédés ont été développés, et parmi eux le procédé de pulvérisation cathodique magnétron.

**Pulvérisation réactive :** Dans le cas des dépôts de nitrure d'aluminium, l'azote introduit va se décomposer sous la forme d'ions et sous forme atomique dans le plasma. Dès lors, dans le cas du régime de pulvérisation métallique, il se produit à la surface du substrat une réaction chimique entre les espèces aluminium qui proviennent de la cible pulvérisée et les espèces azote, réaction qui conduit à la formation de nitrure d'aluminium. Dans le cas du régime nitruré, des molécules AlN formées sur la cible peuvent aussi être éjectées vers le substrat. Les conditions de dépôts sont choisies pour obtenir un régime légèrement nitruré [8, 10, 17].

**Cible magnétron :** Les hautes pressions utilisées en pulvérisation affectent le libre parcours moyen des particules présentes dans le plasma. La probabilité de collisions d'une particule avant d'atteindre la cible est accrue, ce qui diminue la vitesse de dépôt et l'énergie des espèces arrivant sur le substrat. Pour réussir à diminuer la pression, nous utilisons des aimants permanents d'une centaine de Gauss placés derrière la cible. Le champ magnétique généré augmente la trajectoire des électrons dans le plasma, ce qui provoque localement plus de collisions entre les électrons et les atomes de l'atmosphère gazeuse. Le plasma est plus ionisé ce qui induit un taux de pulvérisation et une vitesse de dépôt améliorés [17]. Le schéma du principe d'un magnétron est montré sur la figure 8.

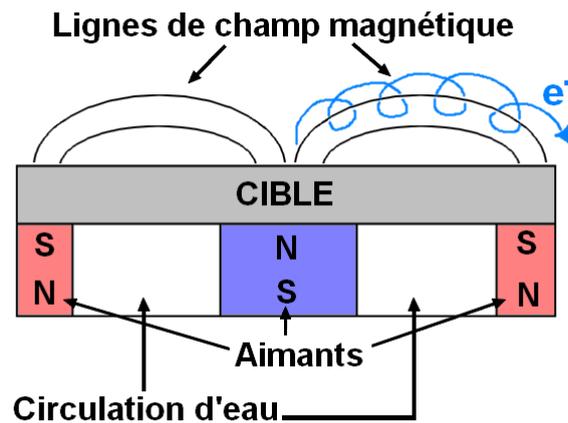


Figure 8 : Schéma du principe d'un magnétron [17].

## 1.6. Techniques de pulvérisation

### 1.6.1. La pulvérisation magnétron en courant continu (DCMS)

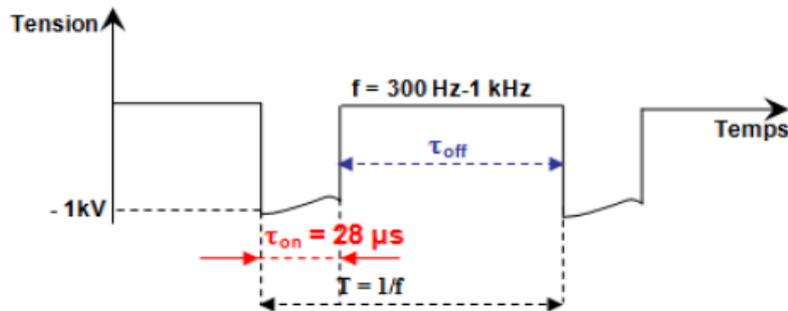
Le générateur de courant continu est réglé en puissance afin d'éviter à la fois la diminution de la vitesse de dépôt et l'endommagement de la cible. Dans ce système, la cible est mise en contact électrique de la cathode et l'anode est composée des parois du réacteur et du substrat.

### 1.6.2. La pulvérisation magnétron en régime d'impulsion de haute puissance (HiPIMS)

La technique HiPIMS, quant à elle, génère le potentiel négatif appliqué sur la cathode grâce à un générateur HiPIMS avec préionisation [35]. Ce dernier s'insère entre le générateur continu et la cathode pour pulser le courant. Une haute tension négative de 1 kV environ appliquée durant un temps très court  $\tau_{on}$  permet de conserver une même puissance moyenne avec des fréquences de l'ordre de 1kHz (Figure 9). L'avantage de cette technique est de générer des plasmas fortement ionisés avec des espèces hautement énergétiques. Cette technique va ainsi favoriser le contrôle du bombardement ionique par application d'une tension de polarisation au niveau du substrat. Ainsi, l'efficacité du décapage ionique et donc l'adhérence des couches minces pourront être considérablement améliorées.

Un des points négatifs dans l'utilisation de la technologie HiPIMS est la faible vitesse de dépôt par rapport à celle atteinte en pulvérisation cathodique magnétron conventionnelle. Pour

des puissances moyennes équivalentes, une baisse de la vitesse de dépôt de 70 à 75 % est généralement observée.



**Figure 9** : Schéma représentatif des différents paramètres liés à l'alimentation HiPIMS [8, 13].

$T_{on}$  : la durée d'impulsion en  $\mu s$ , c'est le temps pendant lequel le plasma est allumé,

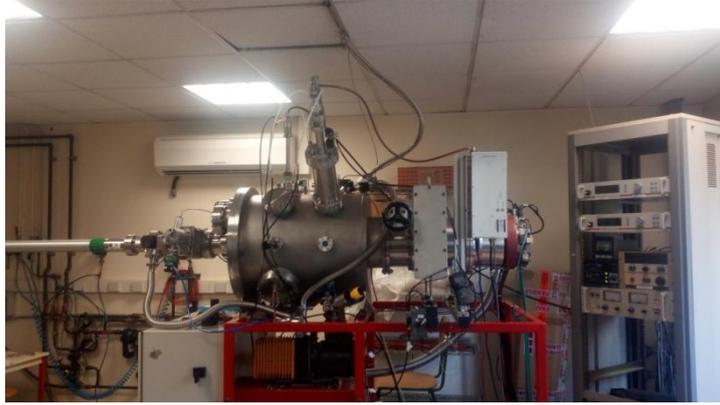
$T_{off}$  : c'est le temps pour lequel le plasma est éteint,

$f$  : la fréquence de répétition,

$T$  : la période qui est égale à la durée d'impulsion + la durée pendant laquelle le plasma est éteint.

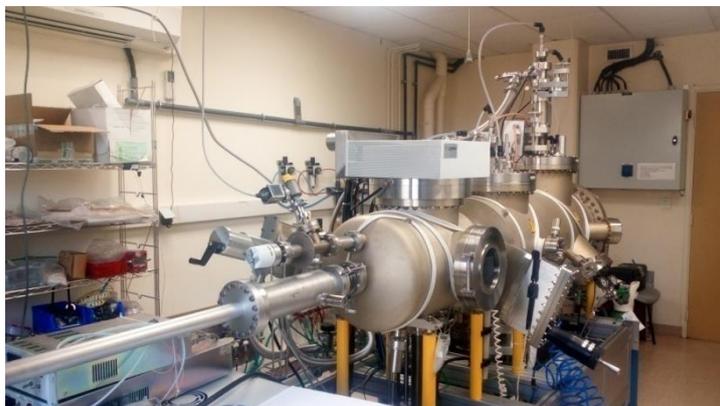
### 1.7. Dispositifs expérimentaux (Réacteurs de pulvérisation)

Le premier réacteur utilisé pour se travaille de thèse est un réacteur semi-industriel dont la taille de la cathode est de 2 pouces. Il est formé d'une enceinte sous vide dans laquelle la cathode magnétron et un porte-substrat chauffant réglable en hauteur sont placés en vis-à-vis. Le vide résiduel dans la chambre de dépôt est de l'ordre de  $10^{-7}$  Torr obtenu par une pompe turbomoléculaire assistée par une pompe primaire. Une vanne de laminage située entre la pompe et la chambre permet de contrôler la pression lors des dépôts en jouant sur son ouverture. Le réacteur 2 pouces permet de déposer des dépôts d'AlN homogènes en épaisseur sur 1 pouce de diamètre seulement (Figure 10).



**Figure 10** : Photographie du réacteur 2 pouces de dépôt.

Un deuxième réacteur de taille huit pouces a été utilisé également dans ce manuscrit (Figure 11). Pour poursuivre l'étude de l'AlN et surtout en vue de son industrialisation, l'IMN s'est doté d'un réacteur plus grand tant au niveau du volume que de la taille de ses composants. Une cathode 8 pouces et un porte substrat de taille équivalente sont disponibles ainsi qu'un vide résiduel amélioré de l'ordre de  $5 \times 10^{-8}$  Torr. Ce réacteur a comme but, de permettre d'étendre la zone homogène en épaisseur de 1 pouce sur le réacteur 2 pouces à 4 pouces sur ce deuxième réacteur. Une configuration magnétique est en cours d'étude pour réaliser ce premier pas vers l'industrialisation. Pour l'instant, la zone homogène est un anneau de 2 pouces de largeur et de diamètre intérieur de 6 pouces. Un porte-substrat permettant de placer des échantillons dans la zone homogène est donc utilisé.



**Figure 11** : Photographie du réacteur 8 pouces de dépôt.

**Chapitre 2 : Texture des couches minces**

## Introduction

L'étude de l'anisotropie des films est relativement récente par rapport à la texture des matériaux massifs. Dans les conférences ICOTOM (International Conference On Textures Of Materials) qui existent depuis 1968 et qui se tiennent lieu chaque trois ans, c'est seulement à partir de 2002 que les chercheurs ont commencé à parler de la texture dans les films minces. Très rapidement, l'intérêt suscité augmente et la texture des films occupe rapidement une place prépondérante dans ces congrès spécialisés.

La texture cristallographique, ou présence d'orientations préférentielles des grains, est un paramètre important dans l'étude des propriétés des matériaux polycristallins [36]. La mesure d'une propriété physique d'un échantillon permet souvent de constater que le résultat varie suivant l'endroit étudié, mais aussi suivant la direction de mesure : il y a hétérogénéité et anisotropie. Cette anisotropie, variation de certaines propriétés suivant la direction, a plusieurs origines dont la texture et la microstructure de l'échantillon. La diffraction des rayons X ou des neutrons permet d'accéder à la texture globale, alors que la diffraction des électrons rétrodiffusés obtenue en microscopie électronique à balayage est à même de caractériser simultanément la micro-texture et la microstructure. Ces différentes techniques de caractérisation sont succinctement décrites, et plusieurs exemples sont présentés afin d'illustrer l'intérêt de la caractérisation de la texture pour une bonne maîtrise des propriétés d'usage des matériaux [37].

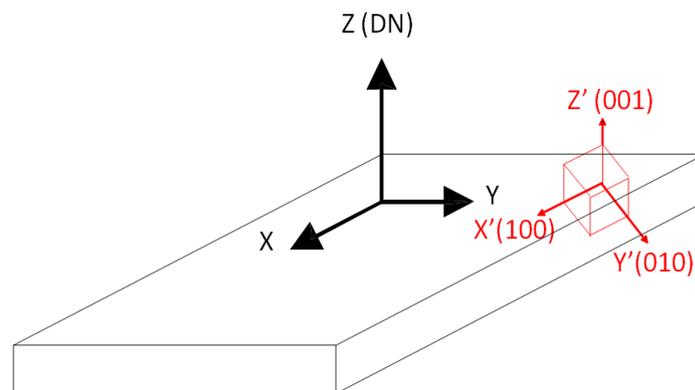
### 2.1. Définition de la texture cristallographique

Un échantillon polycristallin est un assemblage de grains qui peuvent être assimilés à de petits monocristaux appelés cristallites. Chaque cristallite est définie par sa forme, sa taille et son orientation cristallographique. Les matériaux présentent une anisotropie cristallographique ou texture au moment où un certain nombre de grains ne sont pas orientés au hasard, mais possèdent une ou plusieurs orientations préférentielles [38- 41].

## 2.2. Orientation d'un grain dans un matériau polycristallin

La caractérisation d'un grain dans un polycristal nécessite trois paramètres de position et trois paramètres d'orientation. Pour la texture cristallographique on ne considère que l'orientation des grains. Pour déterminer l'orientation d'un grain, on définit deux référentiels : l'un lié à l'échantillon, le deuxième lié au cristal caractérisé à partir des vecteurs de base du réseau cristallin [41].

Un cristal de symétrie cubique est décrit par son trièdre de référence  $Ox'y'z'$ , dont les axes sont parallèles aux directions de type  $\langle 100 \rangle$ , soit  $Ox' // [100]$ ,  $Oy' // [010]$ ,  $Oz' // [001]$ . L'échantillon est décrit par son trièdre de référence  $Oxyz$ , les axes  $Ox$ ,  $Oy$  et  $Oz$  sont tels que :  $Oz // DN$ ,  $Ox$  et  $Oy$  sont deux directions particulières du plan de l'échantillon, perpendiculaires entre elles. Il faut noter que, dans les films, les orientations préférentielles sont sous forme de fibres  $\{hkl\}$  où  $\{hkl\}$  sont les indices des plans des colonnes qui sont parallèles à la normale de la surface du substrat (DN) (Figure 12).



**Figure 12 :** Référentiel échantillon (X, Y, Z) et référentiel cristal (X', Y', Z').

L'orientation d'un grain dans un échantillon considéré est définie par une relation entre ces deux trièdres de référence et est généralement symbolisée par  $g$ ,  $g$  pouvant être définie de différentes manières :

- les trois paramètres d'orientation définissent la rotation qui relie le référentiel échantillon au référentiel cristal (les angles d'Euler) ;
- les indices de Miller  $\{hkl\}\langle u_xw \rangle$ .

### 2.2.1. Les angles d'Euler

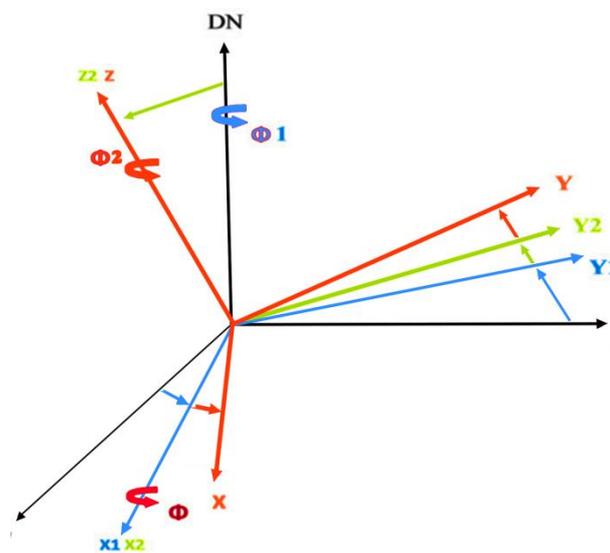
La description de l'orientation des cristallites dans un échantillon nécessite trois paramètres qui sont généralement les angles d'Euler :  $\varphi_1$ ,  $\phi$ ,  $\varphi_2$  dans le formalisme de Bunge (figure 13 et 14) [42]. L'orientation d'une cristallite dans un échantillon est obtenue par les trois rotations successives [43] :

- une rotation autour de z d'un angle  $\varphi_1$
- une rotation autour de x' d'un angle  $\phi$  ;
- une rotation autour de z'' d'un angle  $\varphi_2$ .

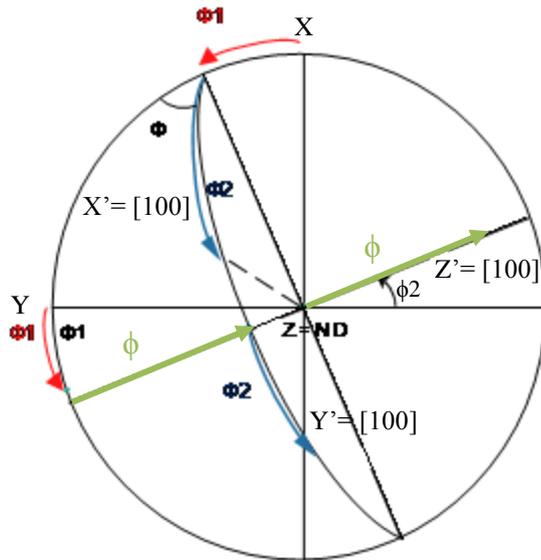
L'orientation dans l'échantillon est alors notée  $g = \{\varphi_1, \phi, \varphi_2\}$  avec :

$$0 < \varphi_1 < 2\pi, 0 < \phi < 2\pi, 0 < \varphi_2 < 2\pi.$$

Les trois angles d'Euler qui décrivent une orientation peuvent être utilisés comme coordonnées dans un espace à trois dimensions, appelé espace d'Euler, où chaque point représente une orientation.



**Figure 13:** Définition des angles d'Euler ( $\varphi_1$ ,  $\phi$ ,  $\varphi_2$ )



$$\{\phi_1, \phi, \phi_2\} \sim \{30^\circ, 70^\circ, 40^\circ\}$$

**Figure 14:** Orientation ( $\phi_1, \phi, \phi_2$ ) sur une projection stéréographique.

Il existe également d'autres formalismes pour décrire une orientation, parmi les principaux, citons celui de Roe [45].

Dans l'espace d'Euler, deux notations sont possibles :  $(\phi_1, \phi, \phi_2)$ , utilisée par Bunge (1965), et  $(\psi, \theta, \phi)$  utilisée par Roe (1965). Les angles  $\psi, \theta$  et  $\phi$  sont les angles de rotation autour des axes OZ, OY et OZ respectivement. Le triplet de Roe  $(\psi, \theta, \phi)$  est obtenu à partir du triplet de Bunge  $(\phi_1, \phi, \phi_2)$  par :

$$\psi = \phi_1 - \frac{\pi}{2}, \theta = \phi, \phi = \phi_2 + \frac{\pi}{2} \quad (1)$$

*Remarque :* à cause des symétries du cristal, plusieurs rotations, dites équivalentes, correspondent à une orientation (par ex. 24 rotations équivalentes dans le cubique).

La méthode de Bunge est actuellement la plus utilisée pour définir une orientation  $g = (\phi_1, \phi, \phi_2)$  dans l'étude quantitative des textures. C'est la triple rotation définie dans l'espace d'Euler, dans le formalisme de Bunge [46]. Chacune de trois rotations est décrite par une matrice, et le produit des trois matrices donne la matrice de rotation correspondant à l'orientation  $g$  :

- Pour la structure cubique :

$$\mathbf{g} = (\varphi_1, \phi, \varphi_2) = \mathbf{g}^Z_{\varphi_2} * \mathbf{g}^X_{\phi} * \mathbf{g}^Z_{\varphi_1} \quad (2)$$

$$\mathbf{g} = \begin{pmatrix} \cos(\varphi_2) & \sin(\varphi_2) & 0 \\ -\sin(\varphi_2) & \cos(\varphi_2) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(\phi) & \sin(\phi) \\ 0 & -\sin(\phi) & \cos(\phi) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos(\varphi_1) & \sin(\varphi_1) & 0 \\ -\sin(\varphi_1) & \cos(\varphi_1) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3)$$

soit :

$$\mathbf{g} = \begin{pmatrix} \cos(\varphi_1)\cos(\varphi_2) - \sin(\varphi_1)\sin(\varphi_2)\cos(\phi) & \sin(\varphi_1)\cos(\varphi_2) + \cos(\varphi_1)\sin(\varphi_2)\cos(\phi) & \sin(\varphi_2) \sin(\phi) \\ -\cos(\varphi_1) \sin(\varphi_2) - \sin(\varphi_1)\cos(\varphi_2)\cos(\phi) & -\sin(\varphi_1)\sin(\varphi_2) + \cos(\varphi_1)\cos(\varphi_2)\cos(\phi) & \cos(\varphi_2) \sin(\phi) \\ \sin(\varphi_1)\sin(\phi) & -\cos(\varphi_1)\sin(\phi) & \cos(\phi) \end{pmatrix} \quad (4)$$

Les colonnes de la matrice correspondent aux directions X, Y et Z, les lignes correspondent aux normales des plans (100), (010) et (001). D'après cette matrice, on peut déduire les relations entre les indices de Miller  $\{hkl\}\langle uvw \rangle$  et les angles d'Euler.

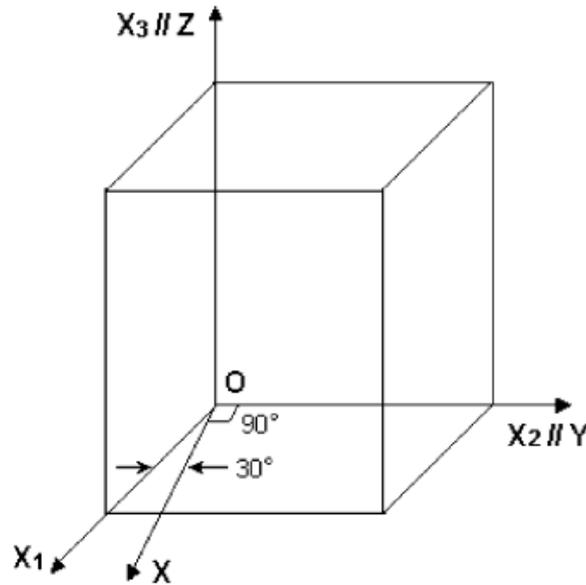
### 2.2.2. Les indices de Miller $\{hkl\}\langle uvw \rangle$

Les orientations idéales (ou préférentielles) sont représentées, en notation de Miller, par le doublet  $\{hkl\}\langle uvw \rangle$ , où  $\{hkl\}$  est le plan de l'échantillon et  $\langle uvw \rangle$  une direction particulière de ce plan. On parle de composantes de texture. Ces indices sont obtenus, à partir des angles d'Euler comme suit :

- pour la structure cubique :

$$\begin{cases} h = \sin(\phi) \sin(\varphi_2) \\ k = \sin(\phi) \cos(\varphi_2) \\ l = \cos(\phi) \\ u = \cos(\varphi_1) \cos(\varphi_2) - \sin(\varphi_1) \sin(\varphi_2) \cos(\phi) \\ v = -\cos(\varphi_1) \sin(\varphi_2) - \sin(\varphi_1) \cos(\varphi_2) \cos(\phi) \\ w = \sin(\varphi_1) \sin(\phi) \end{cases}$$

Dans le système hexagonal les directions [100], [010] et [001] sont parallèles aux axes de références X, Y et Z respectivement, comme il est montré sur la figure suivante [47] :



**Figure 15:** Schéma illustre le système hexagonal représenté par {OX1 X2 X3} et le système cubique par {OX Y Z}.

L'orientation d'un cristal de symétrie hexagonale est représentée par  $(hkil) \langle uvw \rangle$ . Chaque matériau a un paramètre  $c/a$ , ce qui conduit à une projection stéréographique spécifique (cf §3.1.2). Pour une structure cubique, rappelons que la projection stéréographique reste la même pour tous les matériaux. Pour les systèmes hexagonal, la relation entre  $g = (\phi_1, \phi, \phi_2)$  et  $\{hkil\} [uvw]$  dans le système de Bunge est exprimée par [47] :

$$\begin{bmatrix} h \\ k \\ l \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{3}}{2} & -\frac{1}{2} & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{c}{a} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \sin \phi_2 \sin \phi \\ \cos \phi_2 \sin \phi \\ \cos \phi_2 \end{bmatrix} \quad (5)$$

$$\begin{bmatrix} u \\ v \\ w \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{2}{3} & -\frac{1}{3} & 0 \\ 0 & \frac{2}{3} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{c}{a} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos \phi_1 \cos \phi_2 - \sin \phi_1 \sin \phi_2 \cos \phi \\ \cos \phi \sin \phi_2 - \sin \phi_1 \cos \phi_2 \cos \phi \\ \sin \phi_1 \sin \phi_1 \end{bmatrix} \quad (6)$$

Les indices de Miller à partir des angles d'Euler, par les équations suivantes:

$$\left\{ \begin{array}{l} h = \frac{\sqrt{3}}{2} \sin(\varphi_2) \sin(\varphi) + \frac{1}{2} \sin(\varphi_2) \cos(\varphi) \\ k = -\cos(\varphi_2) \sin(\varphi) \\ l = \left(\frac{c}{a}\right) \cos(\varphi) \\ u = \frac{2}{3} (\cos\varphi_1 \cos\varphi_2 - \sin\varphi_1 \sin\varphi_2 \cos(\varphi)) + \frac{1}{3} [-\cos(\varphi_1) \sin(\varphi_2) - \sin(\varphi_1) \cos(\varphi_2) \cos(\varphi)] \\ v = -\frac{2}{3} (-\cos(\varphi) \sin(\varphi_2)) - \sin(\varphi_1) \cos(\varphi_2) \cos(\varphi) \\ w = \frac{c}{a} \sin(\varphi_1) \sin(\varphi) \end{array} \right.$$

Avec:  $i = (-h-k)$  et  $t = [-u-v]$

### 2.3. Représentation de la Texture

Une figure de pôles est la méthode de représentation la plus utilisée pour la caractérisation des textures. Même si elle ne fournit pas une description quantitative des orientations préférentielles, elle est le moyen le plus direct pour leurs représentations.

Dans le cas d'un matériau polycristallin, cette représentation établie, dans le repère lié à l'échantillon, la répartition des normales à une famille de plans réticulaires  $\{hkl\}$  donnée pour l'ensemble des cristallites. Cette représentation est constituée de lignes d'iso-intensités qui mettent en évidence l'orientation et les variations de densité des pôles dans le repère échantillon.

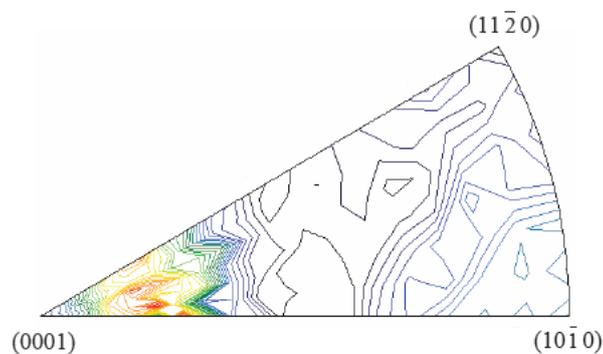
#### 2.3.1. Figures de pôles directes

Une figure de pôles directe (FDP) est la projection stéréographique sur un plan de l'échantillon de la distribution des densités de pôles d'une famille de plans  $\{hkl\}$  dans toutes les directions de l'échantillon. La densité de pôles dans une direction  $[uvw]$  correspond au rapport de l'intensité diffractée par l'ensemble des plans  $\{hkl\}$  de normale  $e$  dans

l'échantillon considéré, sur l'intensité diffractée au même point par un échantillon sans texture [36].

### 2.3.2. Figures de pôles inverses

Les figures de pôles inverses sont une autre façon de représenter la distribution des orientations des cristallites. Une figure de pôles inverse est la représentation, dans le référentiel cristal, de la densité de pôles des différentes familles  $\{hkl\}$ , dans une direction donnée de l'échantillon. Les figures de pôles inverses représentent la répartition le long d'une direction fixe de l'échantillon  $y = (\phi, \chi)$  des directions cristallines  $\langle hkl \rangle$  alignées avec  $y$ . Le repère utilisé est par conséquent celui du cristal. Il est intéressant de tracer la figure de pôles inverse de la normale à l'échantillon ND ( $\phi=0^\circ$  et  $\chi=0^\circ$ ) car dans nos couches cette direction correspond à la direction de fibre de la texture (sauf lorsque la texture de fibre est inclinée). Dans le cas de notre étude, nous ne pouvons pas tracer les figures de pôles inverses du fait de la présence de la réponse des deux phases (cubique, hexagonale). La figure 16 présente un exemple d'une figure de pôle inverse de la couche d'AlN. Le repère dans ce cas est composé des plans  $(0001)$ ,  $\{10\bar{1}1\}$  et  $\{10\bar{1}2\}$ .



**Figure 16:** Figure de pôle inverse dans le cas d'AlN-h.

## 2.4. Origine de la texture

Avant de considérer les textures des films, nous procédons dans ce paragraphe à un rappel succinct sur l'origine et l'évolution des textures du matériau massif. Dans un matériau massif, la présence d'une texture peut être due à : la solidification, la déformation, la

recristallisation et/ou les transformations de phases [48]. La texture peut provenir, d'une répartition non aléatoire des contraintes internes, d'une variation orientée de la concentration en impuretés, de l'existence de bandes riches en inclusions, ou encore de la forme des grains, etc. Elle peut être contrôlée au cours du processus de fabrication et permet d'optimiser les propriétés d'emploi du matériau.

#### **2.4.1. Textures de solidification**

Au cours de la solidification, de nombreux grains germent les parois froides, en lingotière ou coulée continue. Il n'y a pas de texture très marquée : les grains les plus favorablement orientés se développent plus vite dans le bain liquide et forment des cristaux colonnaires ou basaltiques, qui empêchent les autres de progresser, puis souvent les absorbent [49-50].

#### **2.4.2. Textures de déformation**

Les textures de déformation dépendent essentiellement de la composition chimique, des mécanismes de déformation (glissement, maclage,...), du mode de déformation (traction, compression, tréfilage, laminage, emboutissage...), du taux de réduction et de la texture initiale [51].

#### **2.4.3. Texture de recristallisation**

Les textures de recristallisation dépendent essentiellement des textures de déformation antérieures, du taux d'écroutissage et de l'atmosphère et de la température de recuit.

Dans cette étude nous nous sommes intéressés à la caractérisation de la texture des films d'AlN par diffraction des rayons X.

#### **2.4.4. Texture des films**

Au cours de l'élaboration d'une couche mince, plusieurs zones peuvent être distinguées en fonction de l'éloignement de l'interface entre la couche mince et le substrat [52]:

- près de l'interface couche/substrat, la texture cristallographique des films est générée par la nature de la germination, la croissance épitaxiale est possible entre les germes de la couche mince et la distribution des grains du substrat ;
- près de la surface extérieure de la couche mince (quand l'épaisseur de la couche est suffisamment élevée), dans ce cas, l'influence du substrat sur la texture est très faible. La texture est essentiellement déterminée par les paramètres de dépôt qui peuvent sélectionner une ou plusieurs orientations de croissance ;
- une zone de transition; cette zone de transition peut être constituée d'une ou plusieurs couches.

Le développement de la texture des films intervient lors des deux étapes de la formation de la couche,

- la phase de nucléation : dans cette partie, les plans atomiques de plus faible énergie de surface ont tendance à se placer parallèlement au substrat (les plans denses et ceux dont la vitesse de croissance selon la normale au substrat est la plus rapide).
- la phase de coalescence et de croissance : les grains ou colonnes du film dont la vitesse de croissance est la plus rapide croissent préférentiellement car la vitesse de croissance des grains, selon la normale au substrat, dépend de leur texture cristallographique.

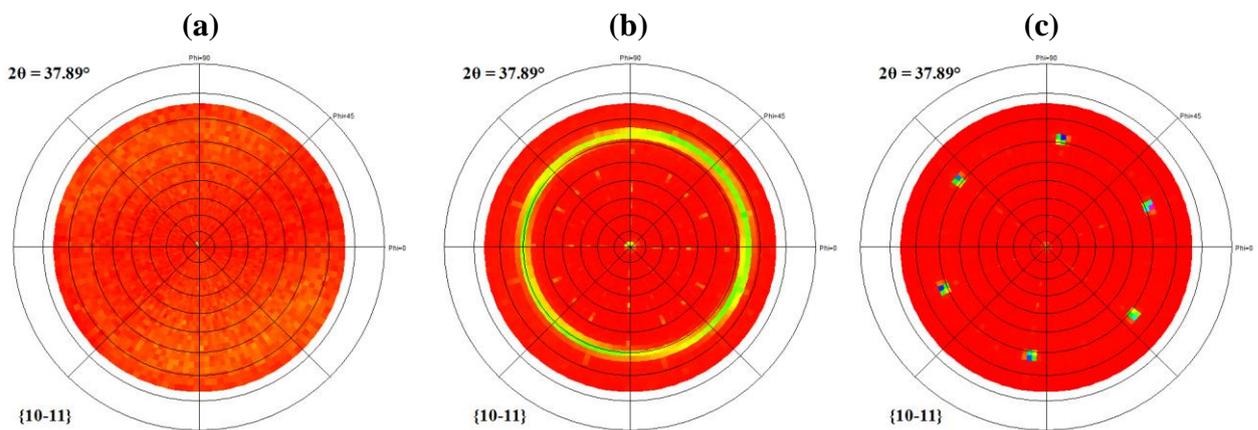
Les orientations cristallographiques d'une couche mince peuvent dépendre des conditions de dépôt. Les conditions de symétrie imposent en général une texture de fibre d'axe parallèle à la direction de croissance.

De plus, la texture cristallographique décrit la distribution statistique des orientations des grains cristallins dans les films minces. Cette distribution est une caractéristique importante de la microstructure des films car elle permet de déterminer leurs diverses propriétés : électriques, magnétiques et mécaniques [53-56].

Il existe trois types principaux de texture pour un film déposé par PVD :

- texture aléatoire : les colonnes de la couche mince sont orientées aléatoirement dans toutes les directions. On obtient alors des figures de pôle avec une intensité uniforme ;
- texture de fibre : les colonnes du film sont composées d'une famille de plans parallèles à la surface du substrat et possèdent un axe de rotation autour de la normale à ces plans. La figure de pôles est formée par des anneaux concentriques [57] ;
- l'épitaxie : l'ensemble des colonnes ont la même orientation. Il existe une relation d'orientation entre les grains de la couche mince et ceux du substrat. La figure de pôles est formée de taches définies à des positions données [58].

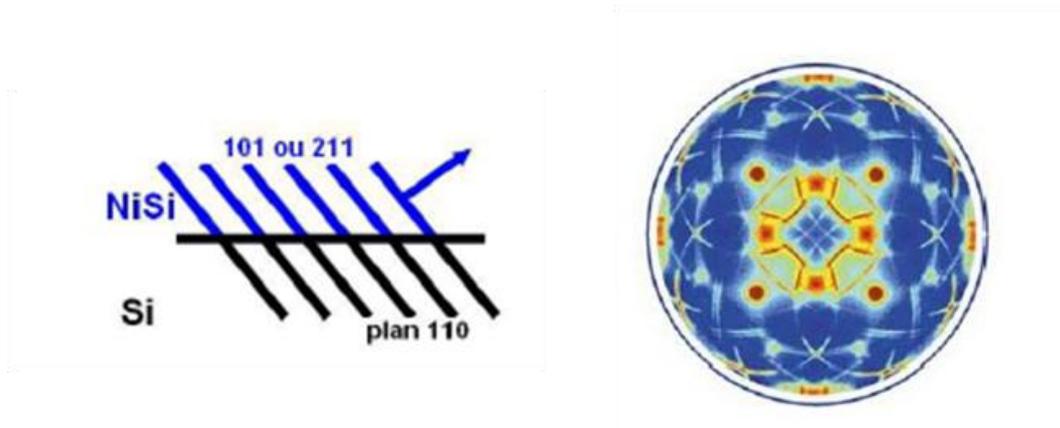
Les différents types de texture sont montrés sur la figure 17 (cf. chapitre 3):



**Figure 17:** Différents types de texture observée (a) Figure de pôle  $\{10\bar{1}1\}$  d'AlN-h un substrat du silicium sans le film, (b) Figure de pôle  $\{10\bar{1}1\}$  d'AlN-h pour l'AlN/Si(100), (c) Figure de pôle  $\{10\bar{1}1\}$  d'AlN-h /AlNMBE/Si

Il existe un autre type de texture :

L'axiotaxie : où les plans cristallins de la couche mince s'alignent avec ceux du substrat du fait d'avoir un paramètre de maille comparable, c'est l'axiotaxie. De plus, les plans de la couche présentent un axe de rotation suivant la normale à ces plans. La figure de pôles est formée d'anneaux autour des pôles qui s'alignent à l'interface [59]. La figure 18 présente un exemple de l'axitaxie.



**Figure 18:** Exemple sur l'axiotaxie.

La texture d'une couche mince obtenue par dépôt dépend des étapes de son développement (nucléation, coalescence ou croissance) et donc des paramètres de son élaboration :

- Orientation et nature du substrat ;
- Épaisseur de la couche ;
- Méthode de dépôt ;
- Distance cible-substrat ;
- Température du substrat ;
- Puissance appliquée à la cible (vitesse de dépôt) ;
- Pression du gaz de travail ;
- Polarisation du substrat.

Dans notre travail, nous avons considéré l'effet de l'épaisseur de la couche, l'orientation du substrat, la nature du substrat, l'inter-couche d'AlN et la technique de dépôt. L'AlN-h cristallise selon l'orientation (0001). Cette orientation est très recherchée pour plusieurs applications, notamment pour les applications thermiques et piézo-électriques des films d'AlN [8,13].

## 2.5. Analyse des textures cristallographiques

La caractérisation de la texture peut s'effectuer selon différentes techniques:

- Diffraction des rayons X.
- Diffraction des neutrons.
- EBSD (EBSD : Électron Back Scattering Diffraction) ;
- Diagrammes de diffraction des électrons rétrodiffusés ;
- Diagrammes d'électrons canalisés (ECP, SACP : Électron Channelling Pattern et Selected Area Channelling Pattern).

Pour la caractérisation de la texture cristallographique de matériaux polycristallins tels que les films déposés par PVD, la diffraction des rayons X (DRX) est très utilisée car elle permet une analyse en volume. Il est possible d'estimer qualitativement et quantitativement la texture. L'analyse qualitative comprend l'enregistrement d'un diagramme de diffraction X en géométrie Bragg-Brentano et l'enregistrement des figures de pôles expérimentales. L'analyse quantitative correspond à la détermination de la Fonction de Distribution des Orientations (FDO) des cristallites à partir des figures de pôles corrigées. Dans cette étude nous avons caractérisé la texture des films d'AlN par diffraction des rayons X.

### 2.5.1. Analyse de la texture par diffraction des rayons X

#### 2.5.1.1. Principe

La diffraction des RX est basée sur la loi de Bragg qui donne, pour une famille donnée de plans cristallographiques de distance interréticulaire ( $d$ ), la relation pour qu'il y ait diffraction entre l'angle d'incidence du faisceau par rapport aux plans considérés ( $\theta$ ) ou angle de Bragg, sa longueur d'onde ( $\lambda$ ) :

$$2.d.\sin \theta = n.\lambda \dots\dots\dots(7)$$

Avec  $n$  (entier), l'ordre de diffraction.

### 2.5.1.2. Description du diffractomètre

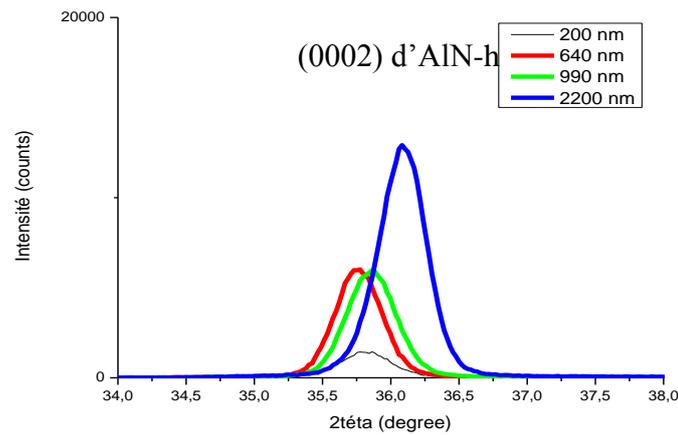
Les diagrammes de diffraction X nécessaires à l'analyse qualitative de l'orientation des cristallites et l'obtention des figures de pôles de la seconde étape ont été enregistrés au niveau de notre Laboratoire (LMDM) à l'aide d'un diffractomètre PANanalytical Empyrean. Ce dernier a plusieurs modes d'analyse :

- Identification et quantification de phases
- Cristallographie et analyse Rietveld
- Contraintes résiduelles et texture
- Analyse de couches minces
- Réflectométrie
- Rocking curve et cartographie de l'espace réciproque
- Microdiffraction

### 2.5.1.3. Diagramme de diffraction $\theta$ - $2\theta$

La première caractérisation de texture peut se faire à partir d'un diagramme de diffraction  $\theta$ - $2\theta$ . La source des rayons X et le détecteur sont placés sur un cercle centré sur l'échantillon. La source des rayons X est fixe, alors que le détecteur et l'échantillon se déplacent à des vitesses angulaires respectives  $\omega$  et  $2\omega$ . Un balayage angulaire en  $\theta$  permet d'amener successivement en position de diffraction les différents plans réticulaires (hkl).

Dans le cas où l'échantillon étudié présente une orientation préférentielle, les rapports d'intensités relatives de certaines raies diffèrent de ceux attendus pour le diagramme de poudres du matériau étudié (composée de cristallites orientés aléatoirement). Un diffractogramme d'une couche d'AlN est présenté en exemple sur la figure 19.



**Figure 19:** Diffraction pattern of an AlN layer deposited on Si(100) as a function of the thickness of the thin layer.

It is nevertheless important to note that this type of X-ray diffraction diagram gives us partial information on the texture of the films. In fact, only the planes  $\{hkl\}$  parallel to the surface of the sample are diffracted during a  $\theta$ - $2\theta$  analysis.

#### 2.5.1.4. Experimental and corrected pole figures

In a texture analysis by DRX, the counter is 'called' on a ray  $\{hkl\}$  of the diffraction spectrum and the sample is placed on a goniometric platform and scans the entire space. After the different calculation steps, the experimental pole figures allow us to obtain the distribution of orientations of a polycrystalline textured material compared to the same material if it is isotropic. This step of the analysis allows us to deepen the study of the texture thanks to the realization of pole figures.

The measurement of crystallographic textures uses the Schulz method. A parallel X-ray beam (RX) contained in the horizontal plane is directed towards the common center of all the rotation movements of the goniometer (Figure 20). In this same horizontal plane, the X-ray photon detector is positioned in a direction making an angle  $2\theta$  with the incident RX beam. The value of the angle  $\theta$  is linked to the distance of the lattice planes on which the diffraction experiment is carried out by the Bragg relation (Eq. 7).

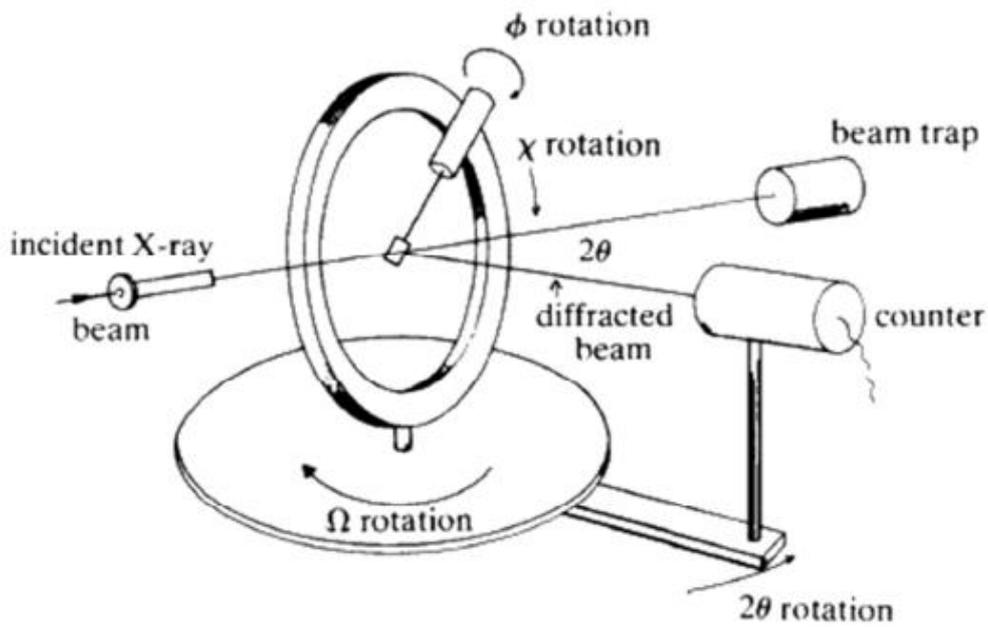
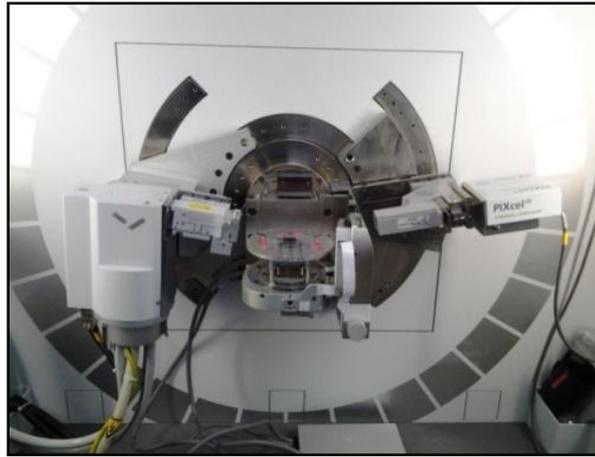


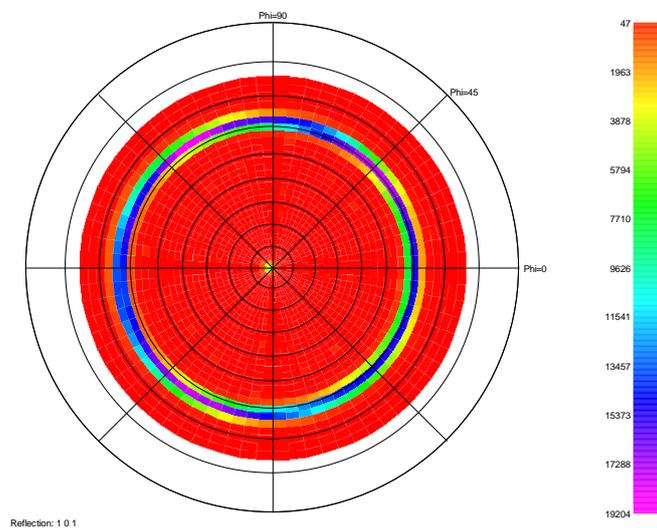
Figure 20: Un diffractomètre à 4 cercles.

#### 2.5.1.5. Enregistrement des figures de pôles expérimentales

L'enregistrement d'une figure de pôles est réalisé pour des valeurs de l'angle d'incidence  $\omega$  (égal à l'angle de Bragg  $\theta$ ) et du détecteur  $2\theta$  qui sont fixes. L'échantillon analysé est soumis à deux rotations (basculement selon  $\chi$  et une rotation azimuthale selon  $\phi$  pour amener successivement tous les plans cristallins  $\{hkl\}$  à diffracter selon la relation de Bragg. A chaque position selon  $\phi$  et  $\chi$ , l'intensité diffractée  $I_{hkl}(\phi, \chi)$  est enregistrée. Pour une position  $2\theta$  donnée, plus le nombre de plans en position de diffraction est important et plus l'intensité  $I_{hkl}(\phi, \chi)$  est forte. La figure 21 montre la plateforme utilisée sur un goniomètre de texture. Pour chaque angle  $\chi$ , une analyse par rotation selon  $\phi$  permet d'évaluer l'homogénéité du dépôt. Une figure de pôle expérimentale d'AlN est présentée comme exemple sur la figure 22.



**Figure 21:** Plateforme utilisée sur un goniomètre de texture.



**Figure 22:** Figure de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  expérimentale d'AlN-h pour un film d'AlN déposé sur Si(100).

## 2.6. Corrections des figures de pôles expérimentales

Les figures de pôles expérimentales mesurées sont dites incomplètes. Le logiciel X'Pert texture permet d'appliquer quatre types de corrections afin de compléter les figures de pôles expérimentales [60]. Ces corrections prennent en compte :

### - le bruit de fond

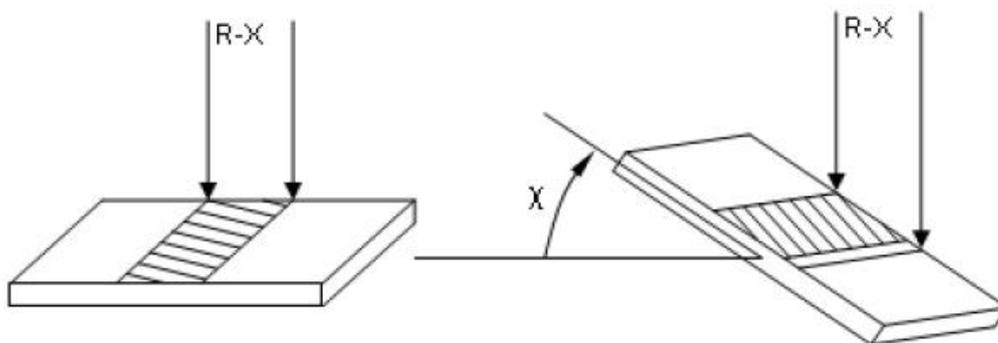
Cette correction n'est pas nécessaire lors des manipulations car l'intensité du bruit de fond est très faible par rapport à celle des figures de pôles. Les corrections qui ont été appliquées après

l'enregistrement des figures de pôles correspondant sont : la défocalisation du faisceau, la variation de l'intensité diffractée pour des échantillons de faible épaisseur lors de basculement  $\chi$  et de la zone aveugle.

#### - la défocalisation :

Dans le cas de la diffraction des rayons X, les mesures sont réalisées en réflexion jusqu'à un angle de basculement de  $\chi$  de  $75^\circ$ . Au-delà, on se heurte à des problèmes de défocalisation, compte tenu du basculement de l'échantillon. Au contraire, en diffraction des neutrons où l'on travaille en transmission. Ce phénomène ne permet pas d'exploiter directement la périphérie des figures de pôles, car les intensités diffractées caractérisant cette région sont très fortement atténuées. La défocalisation du faisceau est un problème purement géométrique. La défocalisation est la conséquence de l'élargissement de la surface irradiée sur l'échantillon (Figure 23) lorsqu'on incline en  $\chi$ , qui conduit à un élargissement des pics de diffraction et une diminution de l'intensité mesurée car une partie du faisceau diffracté n'est pas collectée par le détecteur [61].

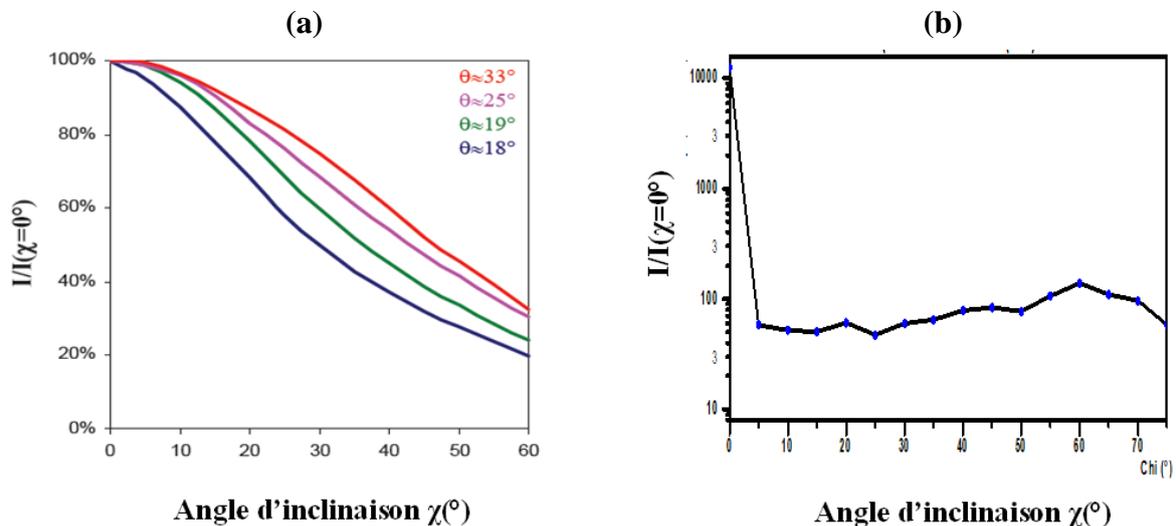
D'une manière générale, c'est pourquoi on scanne l'échantillon de  $\chi = 0^\circ$  à  $\chi = 75^\circ$ . On obtient alors, sur les figures de pôles une zone dite « aveugle » [62]. Pour évaluer la perte de signal, une mesure a été effectuée, dans la thèse d'E. Derniaux dans les mêmes conditions opératoires que celles de la figure de pôles, sur un échantillon de référence composé de cristallites orientées aléatoirement (poudre) [52]. Les zones irradiées sont identiques pour les échantillons de référence et à analyser.



**Figure 23:** Représentation de la défocalisation ; augmentation de la surface irradiée entre deux positions distinctes de  $\chi$  [63].

Comme en plus le phénomène de défocalisation varie légèrement en fonction de l'angle de Bragg  $\theta$ , les mesures ont été faites pour différents angles (Figure 24a). Ces angles ont été choisis en fonction de la position angulaire des raies (hkl) pour lesquels des figures de pôles ont été mesurées.

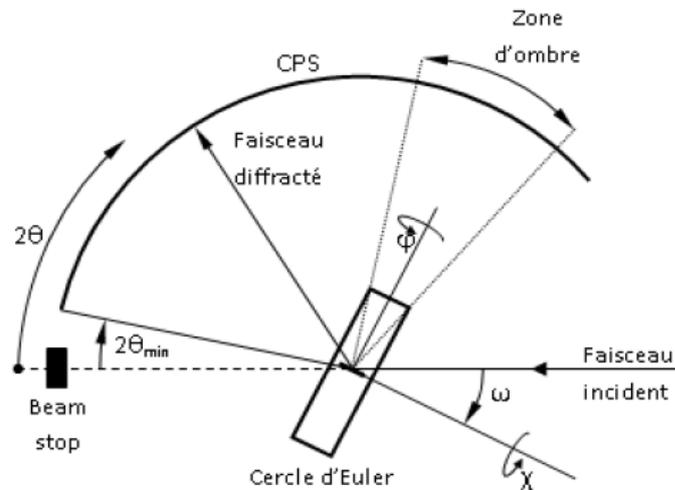
Les courbes obtenues fournissent les coefficients de correction à appliquer aux intensités mesurées pour tenir compte de la défocalisation du faisceau. Plus l'angle  $\theta$  est faible et plus la correction est forte. Aussi, nous avons calculé l'évolution de l'intensité en fonction de l'angle d'inclinaison à  $2\theta=37,89^\circ$ , pour un échantillon bien texturé d'AlN. Nous avons remarqué une diminution de l'intensité à partir de  $\chi = 2,5^\circ$  (Figure 24b).



**Figure 24:** (a) Variation de l'intensité diffractée en fonction de l'angle de déclinaison  $\chi$  pour différents angles de Bragg  $\theta$  (mesure sur une poudre d'AlN) [52] (b) Variation de l'intensité diffractée en fonction de l'angle de déclinaison  $\chi$  pour un angle de Bragg ( $2\theta=37,89^\circ$ ) (mesure sur un film d'AlN bien texturé).

### - la zone aveugle

C'est la zone de détection qui ne peut être observée par le détecteur. Elle est due à la géométrie instrumentale et concerne les petits angles (Figure 25).



**Figure 25:** Limitations des réflexions dues à la géométrie instrumentale, cas d'un détecteur CPS [63].

**Remarque :** la zone aveugle agrandit avec l'augmentation de l'angle de diffraction  $\theta$ , mais ceci est facilement récupérable avec un logiciel de texture. Cette zone aveugle se traduit par un trou au centre de la figure de pôle. Pour des grandes valeurs en  $2\theta$ , il existe aussi une zone d'ombre, cette dernière est fortement influencée par la position du cercle d'Euler en  $\omega$ .

### Volume diffractant

Une autre correction appliquée aux figures de pôles expérimentales est due à la variation du volume diffractant. Dans le cas des films, l'intensité diffractée dépend de l'angle de basculement  $\chi$  car l'absorption dans le dépôt évolue en fonction de cet angle [64- 65]. La formule qui permet de corriger l'intensité diffractée en fonction de l'épaisseur de la couche déposée pour la géométrie Bragg-Brentano symétrique est [60] :

$$\frac{I_e}{I_0} = 1 - e^{\frac{-2\mu e}{\sin\theta \cos\chi}} \quad (8)$$

avec :

$I_e$  : intensité provenant de la couche déposée pour un angle  $\chi$  donné ;

$I_0$  : intensité provenant d'un échantillon "infini" pour la même valeur de l'angle  $\chi$  ;

$\mu$  : coefficient d'absorption linéaire du matériau ( $\text{cm}^{-1}$ ) ;

$e$  : épaisseur de la couche ( $\mu\text{m}$ ) ;

$\theta$  : angle de Bragg pour lequel la figure de pôles a été mesurée ( $^{\circ}$ ).

La détermination du coefficient d'absorption linéaire  $\mu$  fait intervenir les coefficients d'absorption massiques  $\mu_a$ . Dans le cas d'un élément, on a la relation :

$$\frac{\mu}{\rho} = \frac{\mu_a}{\rho_a} \quad (9)$$

avec :

$\mu_a$  : coefficient d'absorption linéaire de l'élément a ;

$\rho_a$  : densité de l'élément a ( $\text{g.cm}^{-3}$ ).

Pour un cristal composé de plusieurs sortes d'atomes, le coefficient d'absorption linéaire ne dépend pas de la structure mais uniquement de la composition et de la densité  $\rho$  du cristal. Il est donné par la relation [66] :

$$\frac{\mu}{\rho} = \sum_a P_a \frac{\mu_a}{\rho_a} \quad (10)$$

$P_a$  : fraction pondérale de l'espèce atomique a dans le cristal.

### 2.6.1. Analyse quantitative de la texture par diffraction X

A partir des figures de pôles mesurées puis corrigées pour des angles de Bragg  $2\theta$  différents, il est possible de déterminer quantitativement la texture où l'orientation préférentielle d'un matériau polycristallin. Pour cela, il est nécessaire de calculer la Fonction de Distribution des Orientations (FDO) des cristallites. Le logiciel X'Pert texture permet d'effectuer ce calcul.

### 2.6.2. Définition de la FDO

La fonction de distribution des orientations FDO ou  $f(g)$  est une description quantitative de la texture de l'échantillon. La fonction de texture  $F(g)$  concerne l'orientation des cristallites d'une seule phase (même composition et même structure cristalline). Elle représente la densité volumique de cristaux  $\Delta V(g)/V$  possédant l'orientation  $g$  à  $dg$  près :

$$\frac{\Delta V(g)}{V} = f(g) \times d(g) \quad (11)$$

Avec,

$d(g) = \sin\beta \times d\beta \times d\alpha \times d\gamma$  : élément d'orientation défini par les trois angles d'Euler  $g = \{\alpha, \beta, \gamma\}$  ;

$\Delta V(g)$  : volume de cristallites dont l'orientation est comprise entre  $g$  et  $g+dg$  ;

$V$  : volume de l'échantillon irradié.

L'unité utilisée pour  $f(g)$  (FDO) est m.r.d (multiple of a random distribution). Elle peut prendre des valeurs entre 0 et l'infini puisque  $f(g)$  est une densité. Elle doit être supérieure ou égale à zéro quelque soit  $g$  :

- si  $f(g)=0$  m.r.d, le matériau ne présente pas de cristallites orientées selon  $g$  à  $dg$  près. Par contre s'elles sont orientées, certaines zones de la FDO sont donc supérieures à 1 m.r.d ;

- si  $f(g)=1$  m.r.d quelle que soit  $g$ , c'est le cas d'un matériau non texturé (une poudre) ;

- si  $f(g)$  tend vers l'infini, le matériau est composé de cristallites qui sont toutes orientées exactement selon la même orientation  $g$ , c'est le cas d'un monocristal parfait (ou un pseudo-monocristal).

### 2.6.3. Normalisation de $f(g)$

Si  $f(g) = 1$  m.r.d, la distribution des orientations est aléatoire, quel que soit  $g$ , ce qui conduit à la condition de normalisation, afin de garantir un volume total de 100% :

$$\int_{\phi_y=0}^{2\pi} \int_{\theta_y=0}^{\pi/2} \int_{\gamma_y=0}^{2\pi} f(g) dg = 8\pi^2 \quad (12)$$

$F(g)$  est obtenu à partir des figures de pôles, par une méthode d'affinement.

### 2.6.4. Équation fondamentale de texture

L'analyse quantitative de la texture consiste à trouver l'orientation  $\mathbf{g}$ , c'est-à-dire la valeur des angles d'Euler, de chaque cristallite à partir de plusieurs figures de pôles corrigées correspondant à des familles de plans  $\{hkl\}$  non parallèles à la surface de l'échantillon (dans le cas d'AlN, ce sont les familles de plans  $\{10\bar{1}0\}$ ,  $\{10\bar{1}1\}$ ,  $\{10\bar{1}2\}$  et  $\{10\bar{1}3\}$ ). Ceci se fait par l'intermédiaire de l'équation fondamentale de l'analyse de texture :

$$P_{hkl}(\varphi, \chi) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} f(\mathbf{g}) d\tilde{\varphi} \quad (13)$$

Avec,

$f(\mathbf{g})$  : fonction de distribution des orientations ;

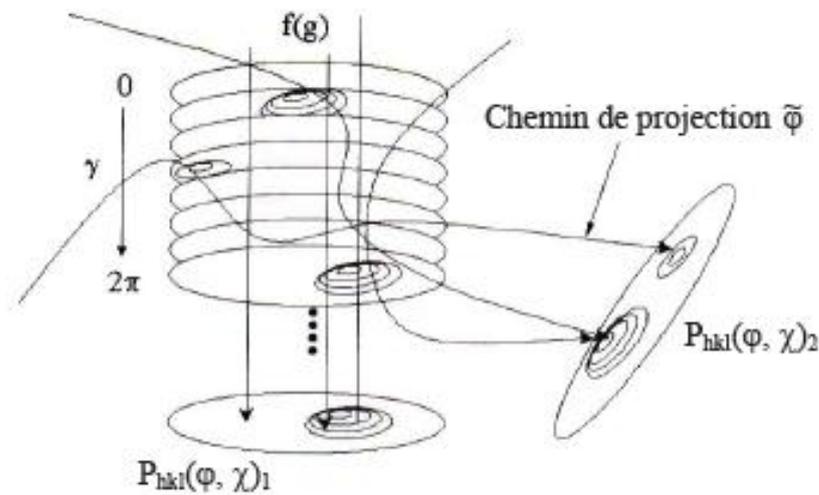
$P_{hkl}(\phi, \chi)$  : densité de pôle reliée à l'intensité diffractée mesurée  $I_{hkl}(\phi, \chi)$  par la relation :

$$I_{hkl}(\phi, \chi) = P_{hkl}(\phi, \chi) \times N_{hkl} \quad (14)$$

$N_{hkl}$  : facteur de normalisation calculé par intégration de  $\phi$  et  $\chi$  et ceci sur la totalité de la figure de pôles expérimentale complète, ou affinée avec  $f(\mathbf{g})$  :

$$N_{hkl} = \frac{\int_{\varphi=0}^{\varphi=2\pi} \int_{\chi=0}^{\chi=\frac{\pi}{2}} I_{hkl}(\varphi, \chi) \sin \chi d\chi d\varphi}{\int_{\varphi=0}^{\varphi=2\pi} \int_{\chi=0}^{\chi=\frac{\pi}{2}} \sin \chi d\chi d\varphi} \quad (15)$$

L'équation fondamentale de la texture représente le fait que chaque figure de pôles (représentation 2D) est une projection selon un certain chemin  $\phi \sim$  de la FDO (représentation 3D) suivant un certain chemin de projection qui dépend de la symétrie du cristal (Figure 26). Chaque cellule d'une figure de pôles est une moyenne de plusieurs cellules de la FDO et chaque cellule de la FDO est obtenue à partir d'une ou plusieurs cellules des figures de pôles. Plus le nombre de figures de pôles effectuées est important et plus la résolution de la fonction de distribution sera fiable.



**Figure 26:** Relation entre la fonction de distribution des orientations  $f(g)$  et des figures de pôles  $P_{hkl}(\varphi, \chi)$  [67].

### 2.6.5. Résolution de l'équation fondamentale

Il existe plusieurs méthodes mathématiques pour résoudre l'équation fondamentale de la texture: harmoniques sphériques généralisées [68], vectorielle [69], WIMV (Williams-Imhoff-Matthies-Vinel) [70], E-WIMV (Extended Williams Imhoff Matthies Vinel) [71], cellules définies arbitrairement, maximisation de l'entropie...). Dans le cas d'une étude de texture cristallographique à partir de la diffraction des rayons X ou de neutron, il faut parfois prendre en compte les contraintes résiduelles élastiques qui subsistent dans de nombreux matériaux (le cas des films), comme ceux qui ont subi une mise en forme. La méthode utilisée dans le logiciel Philips X'Pert texture est la méthode WIMV. Elle consiste à associer un point (ou un ensemble de points) de l'espace des pôles à un point de l'espace des orientations après avoir discrétisé ces deux espaces. Cette méthode est une manière itérative convergente permettant d'affiner une distribution d'orientations. Elle est basée sur un affinement numérique de  $f(g)$  à l'étape  $n+1$ . Dans ce cas, les auteurs utilisent le terme de Distribution des Orientations (DO) à la place de Fonction de Distribution des Orientations (FDO) [67]. DO est déterminé par l'affinement de  $f_{n+1}(g)$  :

$$f^{n+1}(g) = N_{hkl}^n \frac{f^n(g) f^0(g)}{\left( \prod_{hkl=1}^I \prod_{m=1}^{M_{hkl}} P_{hkl}^n(\varphi, \chi) \right)^{\frac{1}{IM_{hkl}}}} \quad (16)$$

$$f^0(g) = N_{hkl}^0 \left( \prod_{hkl=1}^I \prod_{m=1}^{M_{hkl}} P_{hkl}^{exp}(\varphi, \chi) \right)^{\frac{1}{IM_{hkl}}} \quad (17)$$

Avec :

I : nombre des figures de pôles mesurées ;

$M_{hkl}$  : multiplicité du pôle hkl ;

$f^n(g)$  : valeur affinée de  $f(g)$  à l'itération n ;

$P_{hkl}^n(\varphi, \chi)$  : valeur affinée de  $P_{hkl}(\varphi, \chi)$  à l'itération n ;

$P_{hkl}^{exp}(\varphi, \chi)$  : densité de pôle expérimentale ;

$N_{hkl}^n$  : facteur de normalisation affiné.

### 2.6.6. Figures de pôles recalculées

Après l'affinement du DO, il est possible de recalculer la figure de pôles complète. Une fois que l'on observe un bon accord entre les figures de pôles corrigées et recalculées, on peut considérer que les figures de pôles expérimentales et corrigées ainsi que l'affinement de DO sont de bonne qualité. Dans le logiciel X'Pert texture, la fiabilité de l'affinement de DO est estimée par le facteur d'accord RP entre les valeurs de densité de pôles expérimentales et recalculées [52, 60]. Ils sont définis comme suit :

$$RP = \frac{1}{N} \sum_{hkl} \frac{|P_{hkl}^{exp}(\varphi, \chi) - P_{hkl}^{calc}(\varphi, \chi)|}{P_{hkl}^{exp}(\varphi, \chi)} \quad (18)$$

Avec :

$P_{hkl}^{exp}(\varphi, \chi)$  : densité de pôles expérimentale ;

$P_{hkl}^{calculé}(\varphi, \chi)$  : densité de pôles recalculée ;

N : nombre de point mesurés pour l'ensemble des figures de pôles

**Remarque :** Les facteurs de multiplicités RP permettent de contrôler si la représentation des figures de pôles à partir de l'FDO est correcte ou non (Plus la valeur de RP est faible plus l'affinement de FDO est bien résolu).

### 2.6.7. Normalisation des figures de pôles

Une figure de pôles normalisée est définie par :

$$\frac{dV(\phi, \chi)}{V} = \frac{P_{\vec{h}}(\phi, \chi)}{4\pi} \sin \chi d\chi d\phi \quad \text{ou} \quad \frac{dV(\mathbf{y})}{V} = \frac{1}{4\pi} P_{\vec{h}}(\vec{\mathbf{y}}) d\vec{\mathbf{y}} \quad (19)$$

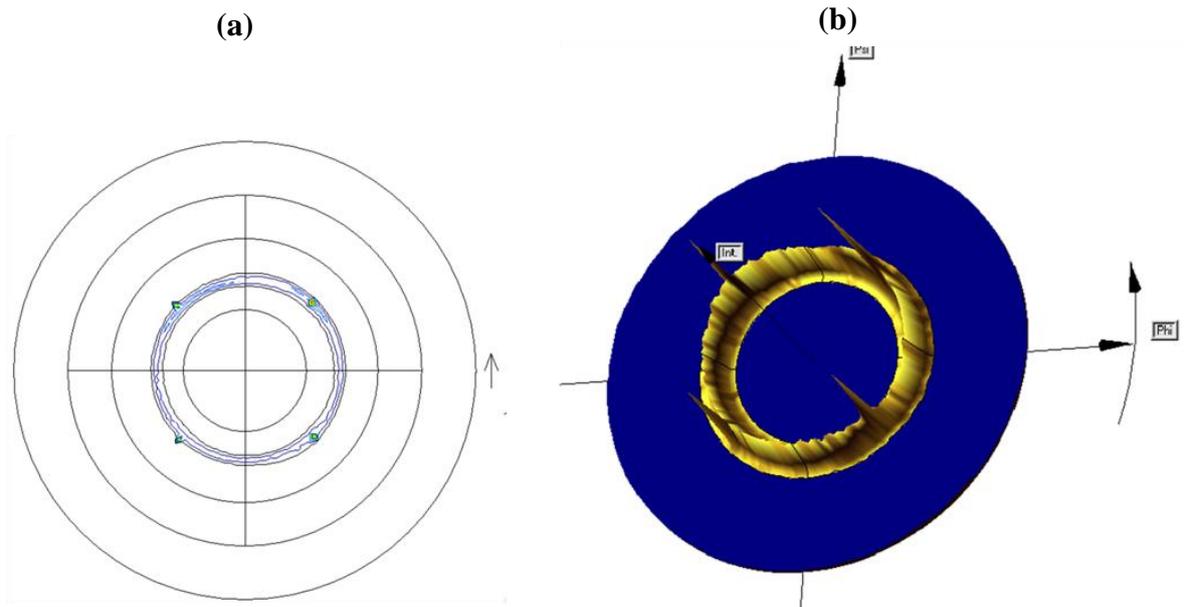
C'est donc la fraction volumique des cristallites dont les normales  $\vec{h} = \langle hkl \rangle^*$  sont orientées entre  $\vec{y} = (\phi, \chi)$  et  $\vec{y} + d\vec{y}$ , ce qui représente une densité par unité de surface de la sphère des pôles  $\vec{h} d\vec{y}$ . Il faudra également intégrer sur une surface  $\Delta y$  de la sphère de pôles pour pouvoir obtenir un pourcentage volumique d'orientation. Similairement à  $f(g)$ , toutes les figures de pôles d'un échantillon ne présentant pas d'orientation préférentielle auront la même densité  $P_{\vec{h}}(\vec{\mathbf{y}}) = 1$  m.r.d. quelque soient  $\vec{y}$  et  $\vec{h}$ . Alors, la relation de normalisation est :

$$\int_{\phi}^{2\pi} \int_{\chi}^{\pi/2} P_h(\phi, \chi) \sin \chi d\chi d\phi = 4\pi \quad (20)$$

Dans une analyse complète de texture, les étapes de traitement des figures de pôles expérimentales sont toujours réalisées :

- Correction des figures de pôles expérimentales ;
- Détermination de la Distribution des Orientations des cristallites et représentation dans l'espace d'Euler ;
- Comparaison des figures de pôles recalculées aux figures de pôles expérimentales corrigées
- Détermination de la figure de pôles inverse selon la direction normale à l'échantillon DN.

Les représentations en 2D et 3D (figure 27) ont été les plus souvent employées car elles sont plus complètes ( $0 < \phi < 360^\circ$ ) et apportent plus d'informations sur la qualité et l'homogénéité de la texture que les représentations en 1D.



**Figure 27:** Figure de pôle incomplète  $\{10\bar{1}2\}$  d'AlN-h pour des films (a) 2D, (b) 3D pour des films d'AlN/Si(100).

Dans le cas d'une représentation en 2D, il existe deux types de projection :

- Projection de Schmidt qui permet une répartition à aires égales ;
- Projection stéréographique ou projection de Wulff qui permet une répartition à angles égaux.

Dans notre étude de texture, nous étions contraints de ne pas corriger les figures de pôles pour ne pas réduire ou éliminer la réponse de la phase cubique d'AlN qui est minoritaire par rapport à la phase hexagonale.

**Chapitre 3 : Analyse des textures de la phase hexagonale des films  
d'AlN déposés par DCMS sur différents substrats.**

## Introduction

L'objectif recherché dans l'étude globale de films AlN est de fournir un substrat composite AlN/Si pour la croissance de GaN. L'AlN est déposé par PVD à basse température, pour réduire les soucis de dilatation thermique entre ces deux matériaux. La basse température est un paramètre indispensable afin d'éviter la détérioration des plots métalliques dans la fabrication des composants photoniques ou électroniques. De plus, le marché de l'électronique de puissance GaN ne dévoile son véritable potentiel que lorsque les coûts de production sont réduits. L'utilisation du silicium comme substrat pour la croissance de GaN permet à la filière GaN de devenir un acteur majeur de l'électronique en offrant de nouvelles solutions. Les premiers essais d'introduction de l'AlNPVD comme couche buffer dans des transistors HEMTs-GaN ont été une réussite dans le cadre de la thèse de J. Camus [8], puisqu'ils ont prouvé la faisabilité des couches d'AlN PVD réalisées à basse température sur des substrats composites d'AlNMBE/Si(111), notamment au niveau de la thermique et de la gestion des contraintes. Un des objectifs de notre travail réside dans l'amélioration de l'interface AlNPVD / Si et la croissance épitaxiale de l'AlN PVD à basse température directement sur silicium (111) ou (100).

Dans cette partie de l'étude, nous avons considéré l'influence de la texture sur la qualité des films d'AlN. L'analyse de la texture cristallographique des couches minces est nécessaire car elle nous donne des informations sur l'orientation des colonnes du film par rapport au substrat, ainsi que l'ordre de ces derniers dans le plan. L'organisation des colonnes d'AlN dans le plan est un critère primordial pour une couche sans défaut de structure, permettant d'obtenir une croissance épitaxiale de bonne qualité de GaN.

Ce chapitre regroupe les résultats de la texture des films d'AlN pour considérer l'influence de l'anisotropie sur les propriétés structurales des films. Nous avons étudié l'influence de l'évolution de la texture des films d'AlN élaborés à basse température par PVD (DCMS) :

- Nous avons commencé par une étude de l'influence de l'épaisseur et du taux d'azote.
- Nous avons ensuite étudié l'influence du choix du réacteur (2" et 8") sur du silicium d'orientation (100) et (111).
- Nous avons également analysé la texture des films d'AlN déposés sur un substrat de carbure de silicium (SiC), plus propice à la croissance d'AlN.

- Enfin, nous avons caractérisé la texture des films d'AlN déposés sur des substrats composites AlNkyma/Si(111) et AlNMBE/Si(111) où des couches d'AlN épitaxiées à haute température sont présentes.

### 3.1. Caractérisation de la texture des films d'AlN

#### 3.1.1. Procédure et conditions expérimentales

La texture globale des échantillons (AlN/Si, AlN/SiC, AlN/AlNkyma/Si(111), et AlN/AlNMBE/Si(111)) a été déterminée à partir de la diffraction des rayons X. Les figures de pôles (FDP) expérimentales  $\{10\bar{1}0\}$ ,  $(0002)$ ,  $\{10\bar{1}1\}$ ,  $\{10\bar{1}2\}$  et  $\{10\bar{1}3\}$  de l'AlN-h et  $\{111\}$ ,  $\{200\}$  et  $\{220\}$  pour l'AlN-c ont été mesurées avec un goniomètre de texture en utilisant le rayonnement ( $K\alpha = 0,154$  nm) du cuivre avec les conditions : Tension et Courant ( $U = 40$  kv,  $I = 40$  mA), Focalisation en mode 'point focus', capillaire optique ( $L=70$  mm,  $D = 7,00$  mm), masque (largeur : 1,00 mm), fente divergence (distance à l'échantillon: 140 mm, type: fixe, hauteur: 1,00 mm, angle:  $0,5730^\circ$ ), Collimateur à plaques parallèles ( $0,18^\circ$ ), Fente de Soller ( $0,04$  rad), Filtre Nickel (0,020 mm d'épaisseur), Détecteur Pixcel 1D (type: détecteur RTMS, mode: fente de réception). Ces conditions ont été choisies à l'aide du logiciel « Data Collector » connecté au diffractomètre. Nous avons fait l'analyse expérimentale de façon systématique, avec la supposition que les deux phases coexistent (voir le tableau 1).

**Tableau 1** : Positions  $2\theta$  et rapports d'intensité des raies utilisées pour AlN-h, AlN-c et Si.  
(avec  $K\alpha(\text{Cu})= 0,154$  nm).

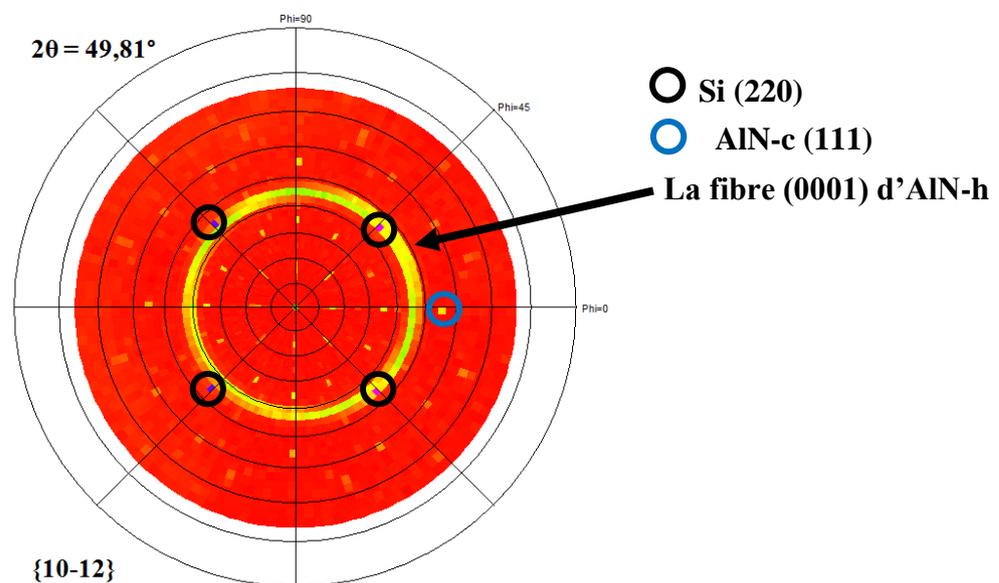
AlN-h			AlN-c			Si (cfc)		
Raie	$2\theta$	I / I <sub>0</sub>	Raie	$2\theta$	I / I <sub>0</sub>	Raie	$2\theta$	I / I <sub>0</sub>
100	33,15	1	111	37,78	1	111	28,41	1
002	36,04	0.6	200	43,91	3.75	111	28,41	1
101	37,89	0.7	220	63.83	2.25	220	47,30	0.6
102	49,81	0.2	311	76.66	0.65	400	69.17	0.08

- ✓ Dans un premier temps, nous avons caractérisé chaque dépôt par diffraction des rayons X en mode  $\theta$ - $2\theta$  (Figure 19). Pour chaque échantillon, nous avons bien observé une croissance de nitrure d'aluminium d'orientation (0001) sans distinction du réacteur, ni de la technique de dépôt, ni de l'orientation du substrat de silicium utilisé.

La seule différence notable dans ce mode d'analyse est celle entre les dépôts faits par les techniques DCMS et HiPIMS.

✓ Nous avons ensuite procédé à une caractérisation plus complète, celle de la texture par analyse des figures de pôles. Cette étude s'est avérée assez complexe, car nous pouvons avoir trois réponses sur une même figure de pôles pour certaines mesures de texture (figure 28) :

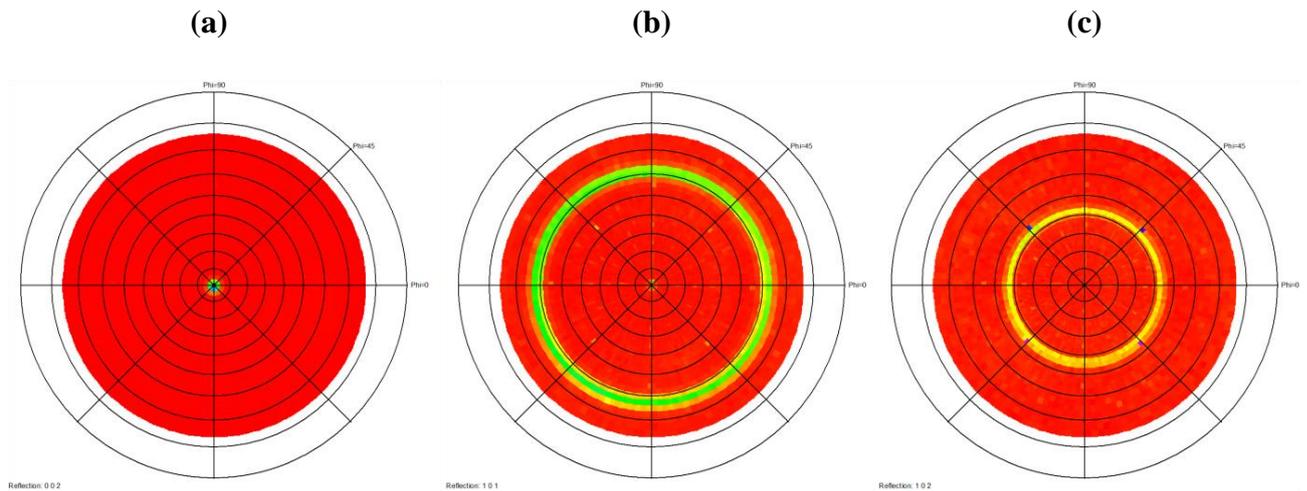
- La réponse du substrat, quand le film est trop mince (**symétrie 4 à  $\chi = 45^\circ$** ) ;
- La réponse de l'AlN-h (**la fibre (0001) à  $\chi = 42,5^\circ$** ).
- La réponse de l'AlN-c (**la réponse multi-cristalline**) (cf. chapitre 4).



**Figure 28:** Figure de pôles  $\{10\bar{1}2\}$  d'AlN-h déposé sur Si(100) par DCMS.

✓ Nous avons travaillé avec les figures de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  et/ou les figures de pôles  $\{10\bar{1}2\}$  pour mieux visualiser la fibre (0001) d'AlN-h. La figure 29 montre la mise en évidence de la fibre (0001) d'AlN-h pour le film d'AlN de 640 nm déposé sur Si(100) à partir des figures de pôles  $\{0001\}$ ,  $\{10\bar{1}1\}$  ou  $\{10\bar{1}2\}$ .

La texture de fibre (0001) peut être décrite à partir des trois figures de pôles (figure 29).



**Figure 29:** Mise en évidence de la fibre (0001) à partir de : (a)  $\{0001\}$  ( $2\theta = 36,04^\circ$ ), (b)  $\{10\bar{1}1\}$  ( $2\theta = 37,89^\circ$ ), (c)  $\{10\bar{1}2\}$  ( $2\theta = 49,81^\circ$ ).

### 3.1.2. Projection stéréographique d'AlN-h

Une projection stéréographique (PS) d'une structure donnée est le report stéréographique des normales aux plans sur un plan donné, le pôle de ce plan est le centre de la projection. Des centres de symétrie élevée sont généralement utilisés. C'est une représentation de la structure qui permet la conservation des angles dièdres et facilite les mesures et analyses relatives aux variations angulaires.

- Elle est unique pour les matériaux de structure cubique; pour les autres structures, chaque matériau a une projection spécifique qui dépend des rapports entre ses paramètres de base.
- Pour une structure hexagonale, la projection stéréographique PS dépend du rapport ( $c/a$ ), qui fixe les angles entre (0001) et les plans pyramidaux (figure 30a). Il est égal à 1,60 pour AlN-h ( $a = 0,311\text{nm}$ ,  $c = 0,498\text{ nm}$ ). Les angles entre le plan (0001) et les plans prismatiques sont égaux à  $90^\circ$  (figure 30b).

La projection correspondante du centre (0001) est reportée sur la figure 30c. Les pôles  $\{10\bar{1}0\}$  et  $\{11\bar{2}0\}$  sont situés sur le grand cercle (rayon  $90^\circ$  en Chi), alternativement tous les  $30^\circ$ . Les pôles  $\{10\bar{1}1\}$  sont situés sur le cercle moyen (rayon  $62,58^\circ$  en Chi), entre le centre de projection et les pôles  $\{10\bar{1}0\}$ . Les pôles  $\{10\bar{1}2\}$  sont sur le petit cercle (rayon  $43^\circ$  en Chi), entre le centre de projection et les pôles  $\{10\bar{1}1\}$ . Les pôles correspondant aux plans  $\{10\bar{1}1\}$



Tableau 2 : Échantillonnage de l'étude.

Échantillons utilisés	Épaisseurs (nm)	Méthodes de dépôt	Taux d'azote	Réacteurs utilisés	Objectifs
4 Échantillons AlN/Si(100)	12 200 640 990	DCMS	35%	2"	Influence de l'épaisseur.
2 Échantillons AlN/Si(100)	640	DCMS	20% 35%	2"	Influence du taux d'azote
2 Échantillons AlN/Si(100)	640	DCMS	35% 55%	2" et 8"	Influence du réacteur
2 Échantillons AlN/Si(100) et AlN/Si(111)	640	DCMS	35% 55%	8"	Influence de l'orientation du substrat.
AlN/SiC	400	DCMS	55%	8"	Influence de la nature du substrat.
AlNKyma/Si(111)	200	PVDNC	55%	substrat	Étude du substrat AlNKyma/Si(111).
2 Échantillons AlN/AlNKyma/Si(111)	1200	DCMS	55%	8"	Influence de la couche tampon d'AlNKyma.
2 échantillons AlNMBE/Si(111)	2 11	MBE	55%	substrat	Étude du substrat AlNMBE/Si(111)
2 Échantillons AlN/AlNMBE/ Si(111)	250 530	DCMS	55%	8"	Influence de la couche tampon d'AlNMBE.

### 3.2. Influence de l'épaisseur sur l'évolution de la texture

Pour les applications envisagées de nos couches minces élaborées à basse température par DCMS, l'épaisseur de la couche est l'un des paramètres clé, car elle influence non seulement le degré de cristallinité et l'ordre de grandeur des contraintes résiduelles dans les films, mais aussi la texture cristallographique. Cette partie a donc pour objectif d'étudier l'influence de ce paramètre sur l'évolution de la texture des films d'AlN déposés par DCMS dans le réacteur

2". Pour cela, nous avons considéré 4 échantillons. Le tableau 3 illustre les échantillons utilisés dans cette étude.

**Tableau 3 :** influence de l'épaisseur sur la texture des films AlN.

type d'échantillon	Épaisseur de la couche (nm)	Rc (°)
AlN/Si(100)	12	
	200	3,3
	640	3,2
	990	3,0

Nous remarquons, que la mosaïcité (le tilt des colonnes par rapport à la normal du substrat) décroît avec l'épaisseur de la couche de l'AlN PVD déposée jusqu'à atteindre une valeur de 3,0°. Cette diminution est significative d'une amélioration de la qualité cristalline des films avec l'épaississement de la couche mince d'AlN.

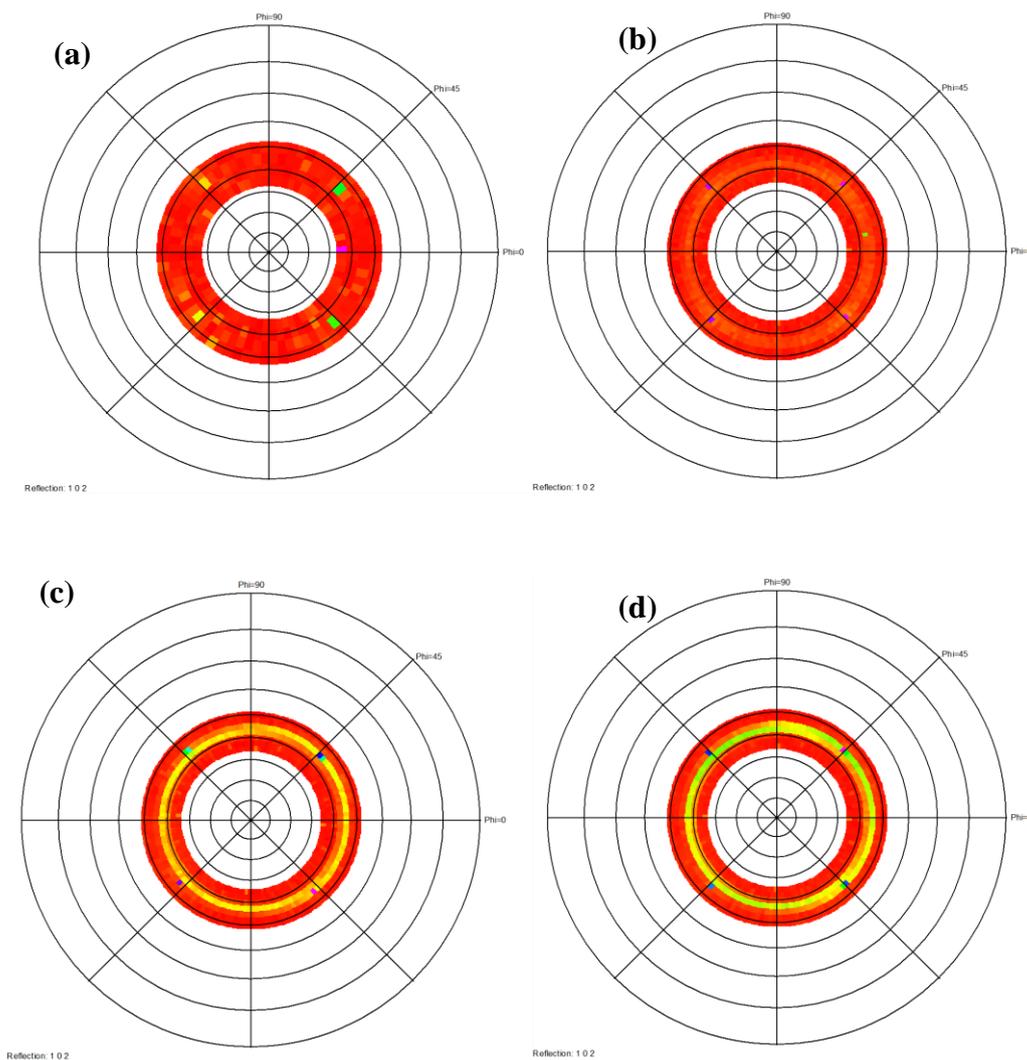
Les figures 31 et 32 montrent l'évolution de la fibre (0001) d'AlN-h pour les films d'AlN déposés sur Si(100) par DCMS en fonction de l'épaisseur de la couche d'AlN, par les FDP  $\{10\bar{1}2\}$  et  $\{10\bar{1}1\}$ , respectivement. Il faut remarquer que, pour les figures 31 à 38, nous n'avons considéré sur le report des figures de pôles que les couronnes de  $\text{Chi}=57,5^\circ$  à  $\text{Chi}=65^\circ$ .

Les Phi-scans des figures de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  sont reportés sur la figure 33, pour des angles de tilt Chi de  $57,5^\circ$  à  $65^\circ$ , avec un pas de  $2,5^\circ$ . Rappelons que l'angle entre les plans (0001) et  $\{10\bar{1}1\}$  est  $62,5^\circ$ . Cette caractérisation permet d'évaluer la rotation ou « twist » des colonnes les unes par rapport aux autres dans le plan et ainsi mesurer l'ordre des colonnes dans le plan.

La figure 31 montre que pour une couche de 12 nm d'épaisseur (31a), il n'y a pas de texture de fibre. Les réponses des plans  $\{220\}$  du Si(100), présentant la symétrie d'ordre 4 sont très intenses.

La fibre (0001) apparaît à partir de 200 nm (31b). L'apparition de cette fibre implique que les colonnes de la couche d'AlN évoluent quand l'épaisseur augmente et acquièrent la même orientation avec des plans (0001) parallèles à la surface du substrat. Quand l'épaisseur augmente encore (640 et 990 nm, 31c et d), la fibre devient plus intense, le signal du substrat diminue. L'acuité de la fibre (0001) d'AlN-h augmente avec l'épaississement de la couche d'AlN. On observe également des variations d'intensité le long de la fibre [72,73].

Sur la figure 32 sont reportées les figures de pôles, après correction du bruit de fond. Nous constatons la présence de deux renforcements à partir de 640 nm d'épaisseur. La présence de renforcements est significative et implique une amélioration des propriétés du film en fonction de l'épaisseur [8,11 et 13]. La présence de renforcements sur la fibre (0001) montre que les colonnes de la couche d'AlN présentent des orientations préférentielles dans le plan. Cependant, il faut des renforcements présentant une symétrie d'ordre 6 (espacés de  $52,65^\circ$ ,  $99,87^\circ$  et  $124,71^\circ$ ) pour obtenir une croissance épitaxiale d'AlN directement sur Si(100) (Figure 17c).



**Figure 31:** Figures de pôles expérimentales  $\{10\bar{1}2\}$  pour l'angle  $2\theta = 49,81^\circ$  d'AlN-h en fonction de l'épaisseur de la couche d'AlN déposée sur Si(100) par DCMS (a) 12 nm, (b) 200 nm, (c) 640 nm et (d) 990 nm. La réponse de la symétrie 4 correspond au silicium ( $2\theta = 47,70^\circ$ ).

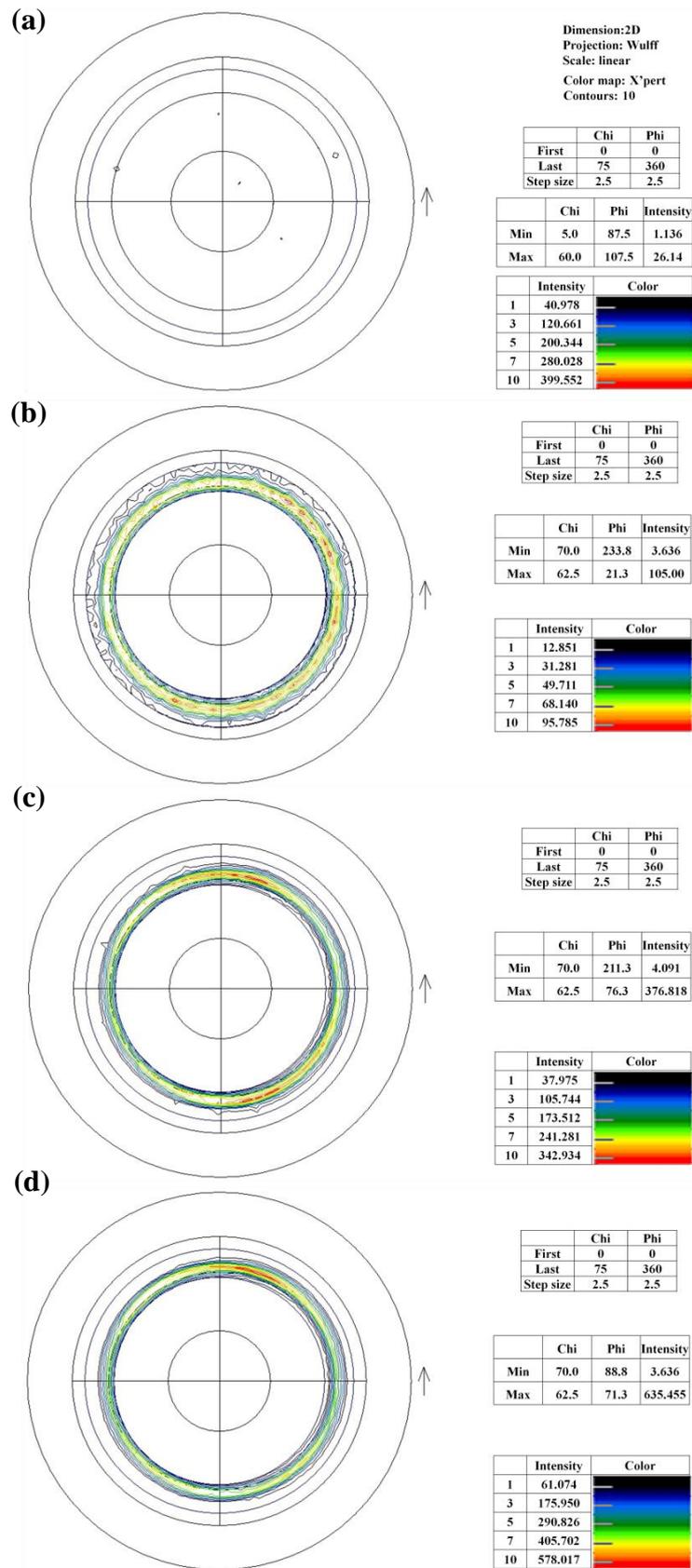
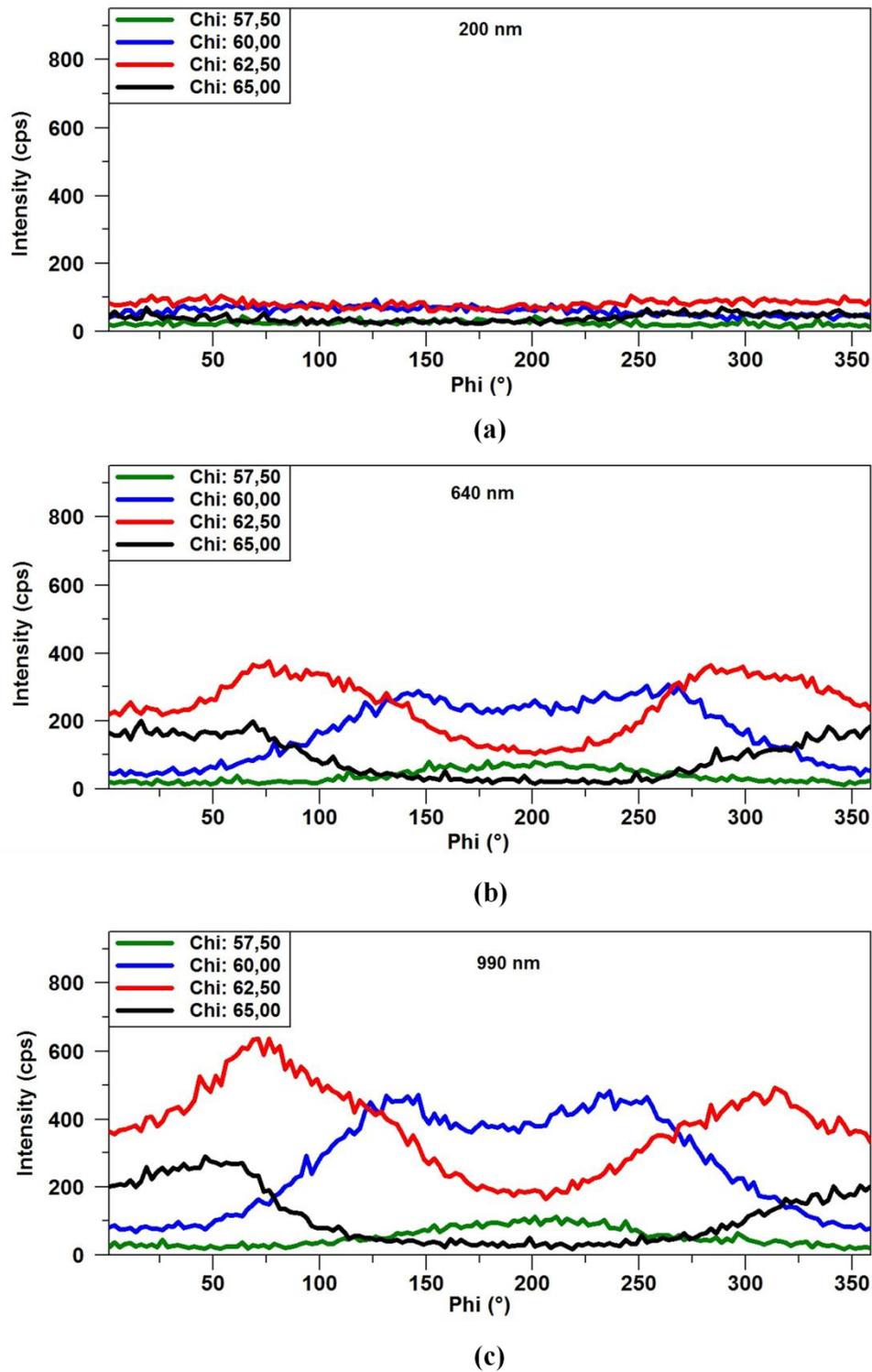


Figure 32: Figures de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  pour l'angle  $2\theta = 37,89^\circ$  d'AlN-h en fonction de l'épaisseur de la couche d'AlN déposée sur Si(100) par DCMS (a) 12 nm, (b) 200 nm, (c) 640 nm et (d) 990 nm.



**Figure 33:** XRD Phi-scans de la figure de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  ( $2\theta = 37,89^\circ$ ) d'AlN-h pour les angles de tilt ( $\text{Chi} = 57,5^\circ - 62,5^\circ$  avec un pas de  $2,5^\circ$ ) en fonction de l'épaisseur.

Les Phi-scans de la figure 33 confirment que l'intensité de la fibre (0001) augmente avec l'épaissement de la couche mince d'AlN jusqu'à atteindre 600 Cps. Cette augmentation d'intensité est non seulement liée à l'épaisseur du film mais aussi à sa qualité cristalline comme la diminution de la mosaïcité l'indique (cf. tableau 3). Nous avons utilisé les Phi-scans de la FDP  $\{10\bar{1}1\}$ , car les renforcements sont moins visibles sur les Phi-scans de la FDP  $\{10\bar{1}2\}$  à cause de la défocalisation due au volume diffractant, (Chapitre §2.6). Il faut remarquer que la défocalisation due à l'angle  $\theta$  favorise la FDP  $\{10\bar{1}2\}$  mais de façon moins marquée et, globalement, les intensités de la FDP  $\{10\bar{1}1\}$  sont moins réduites par le phénomène de la défocalisation que la FDP  $\{10\bar{1}2\}$ .

La présence de renforcements sur la fibre (0001) révèle l'existence d'un ensemble de cristallites qui ont la même orientation dans le plan. Ces renforcements, indiquent la possibilité d'une croissance épitaxiale d'AlN directement sur Si(100). Harper et al. [74] ont montré que la texture observée pour les films d'AlN déposés sur Si(100) peut être réorientée d'une texture de fibre vers l'épitaxie avec l'augmentation de l'énergie du bombardement ionique. D'autre part, Lebedev et al. [75] ainsi que Hong et al. [76] ont montré qu'il y a une adaptation partielle possible sur le Si(100), par le biais d'une rotation de  $30^\circ$  autour de l'axe C, pour une croissance épitaxiale. Cette rotation donne une croissance sous la forme de cylindres (croissance elliptique). Néanmoins, dans notre cas, nous pensons que l'état de surface (oxydation/nitruration, restructuration, etc.) du silicium reste un obstacle à la croissance épitaxiale de l'AlN directement sur Si(100).

#### *Remarque*

*Nous avons considéré deux séries d'échantillons pour étudier l'influence de l'épaisseur. Nous avons reporté ci-dessus les résultats relatifs à la première série, car c'est celle dont nous possédons le plus d'informations sur les conditions de dépôt. Les résultats de la deuxième série sont présentés dans l'annexe.*

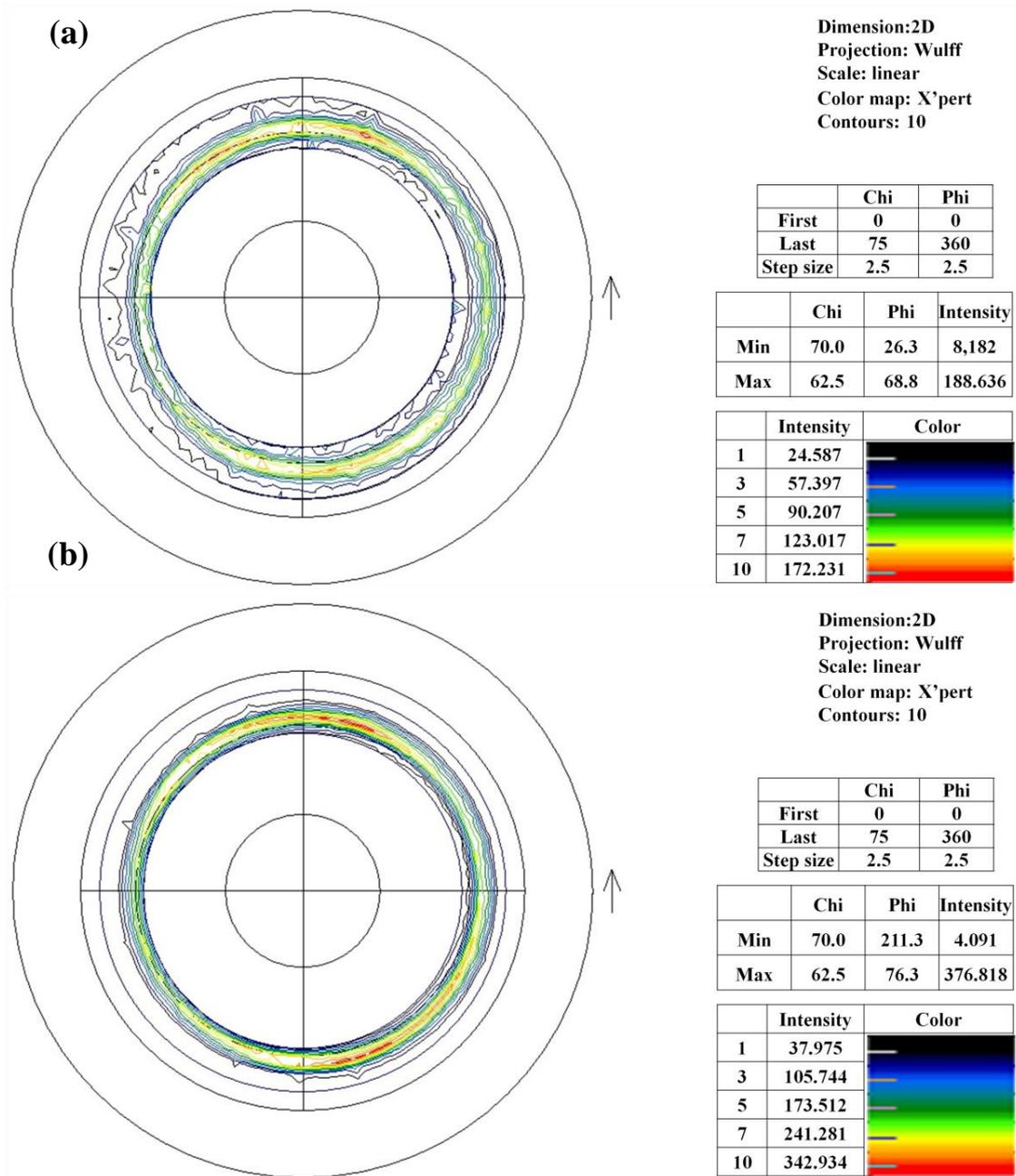
### 3.3. Influence du taux d'azote sur la perfection de la fibre (0001)

La composition du gaz de décharge et l'énergie des espèces arrivant sur le substrat peuvent influencer les propriétés physiques et structurales des films. Ainsi, lorsque le taux d'azote dans la décharge dépasse 50% en pulvérisation DC réactive, Aita et al. [77,78] notent une meilleure cristallisation au cours de la croissance des films d'AlN, avec une orientation préférentielle (0002). De même, Cheng et al. [79] ont noté que le taux d'azote doit garantir une nitruration efficace au cours de la croissance et influencer l'orientation préférentielle et la qualité du film. Ils ont observé que la texture des films d'AlN déposés par pulvérisation magnétron RF (Radio Fréquence) passe de  $\{10\bar{1}1\}$  pour 25% d'azote, à une texture  $\{10\bar{1}0\}$  pour 37% puis progressivement à une texture (0002) pour 75% d'azote.

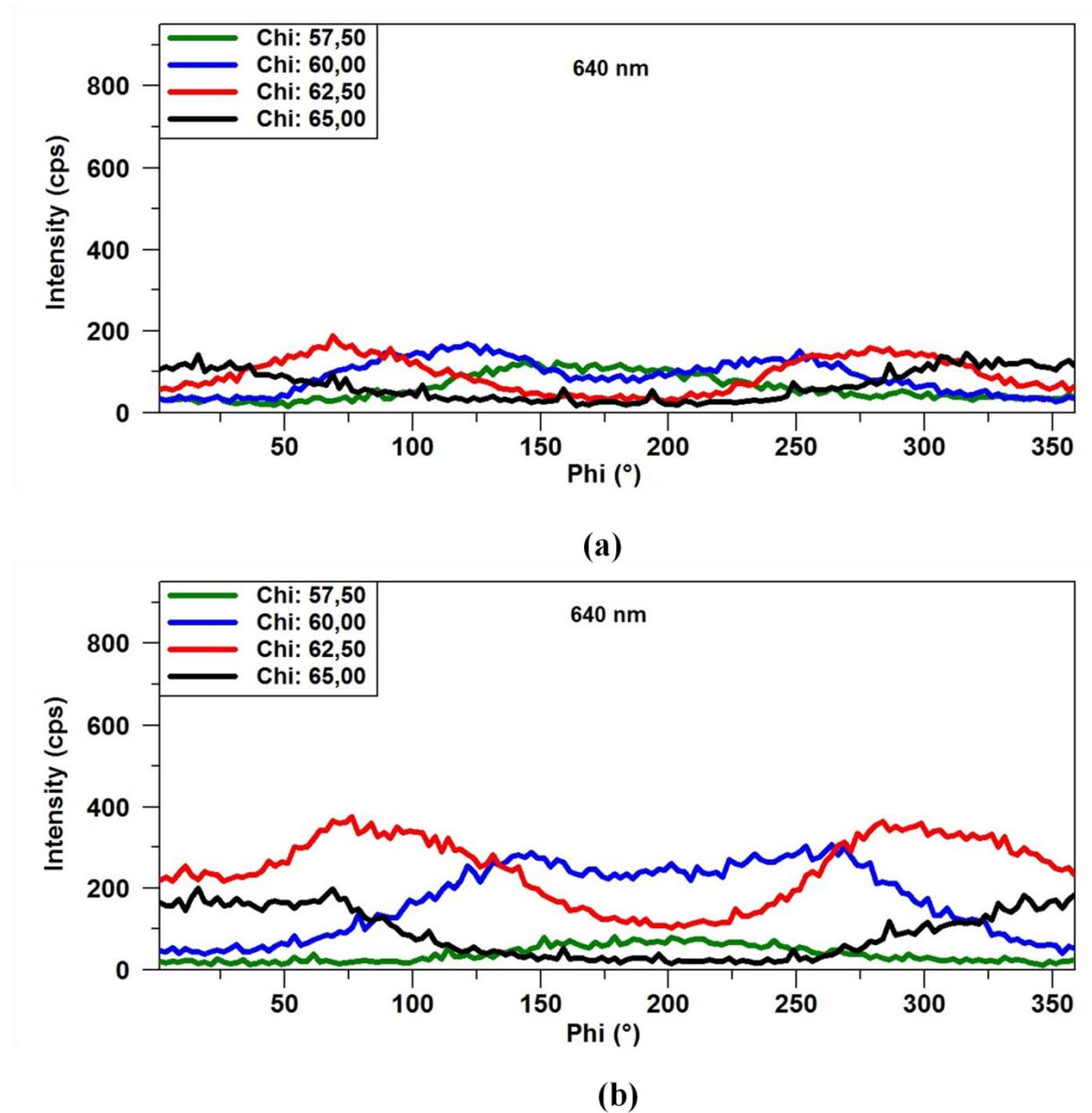
Dans notre travail, nous avons caractérisé deux échantillons d'AlN déposés sur Si(100), avec 20 % et 35% d'azote (cf. tableau 2). La figure 34 présente les figures de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  de l'AlN-h pour les films d'AlN déposés sur Si(100) par DCMS. La fibre (0001) est présente pour les deux échantillons, elle est plus intense dans le cas du film déposé à 35% de taux d'azote. Nous pouvons noter également que la dispersion diminue.

La présence d'une texture de fibre montre qu'il n'y a pas de relation d'épitaxie entre les colonnes d'AlN et celles du silicium (100), mais nous constatons la présence de renforcements dans les deux cas étudiés, renforcements qui peuvent éventuellement évoluer, au cours de la croissance, vers une relation d'épitaxie entre le film d'AlN et le Si(100). Le tracé des Phi- Scans (Figure 35) permet de mieux visualiser les renforcements de la fibre (0001), sur la figure de pôles  $\{10\bar{1}1\}$ . La variation maximale d'intensité (376 cp) sur la fibre (0001) d'AlN-h à  $\text{Chi} = 62,5^\circ$  est importante dans le cas de la couche d'AlN déposée avec un taux du 35% par rapport au film déposé à 20%. En revanche, nous constatons la présence de deux renforcements dans les deux cas à  $\text{Chi} = 62,5^\circ$  [72].

Quand la fibre est parfaite, c'est-à-dire quand il n'y a pas de renforcements, les colonnes d'AlN ne seront pas bien ordonnées dans le plan. Nous pouvons donc conclure qu'il s'établit un certain ordre, caractérisé par les renforcements, mais qui reste cependant loin de l'épitaxie.



**Figure 34:** Figures de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  pour l'angle  $2\theta = 37,89^\circ$  d'AlN-h en fonction du taux d'azote du film d'AlN déposé sur Si(100) par DCMS (a) 20 % et (b) 35%.



**Figure 35:** XRD Phi-scans de la figure de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  ( $2\theta = 37,89^\circ$ ) d'AlN-h pour les angles de tilt (Chi =  $57,5^\circ$  -  $62,5^\circ$  avec un pas de  $2,5^\circ$ ) pour les films d'AlN déposés sur Si(100) par DCMS avec un taux d'azote: (a) 20% (b) 35%.

### 3.4. Influence du réacteur sur l'évolution de la texture (0001) pour les films d'AlN déposés sur Si(100)

Comme nous l'avons vu dans le premier chapitre, le nitrure d'aluminium a été étudié à l'IMN depuis plusieurs d'années. Des améliorations significatives ont été apportées, tant au niveau des procédés de synthèse des films que des propriétés obtenues [8, 13]. Suite à des besoins industriels dans les domaines de la micro et optoélectronique, les substrats d'usage ont des tailles de l'ordre de 4" ou 8". L'IMN a donc décidé de s'équiper d'un nouveau réacteur de plus grande taille. Le « scale up » ou passage à la taille supérieure d'un réacteur plasma n'est jamais une opération évidente.

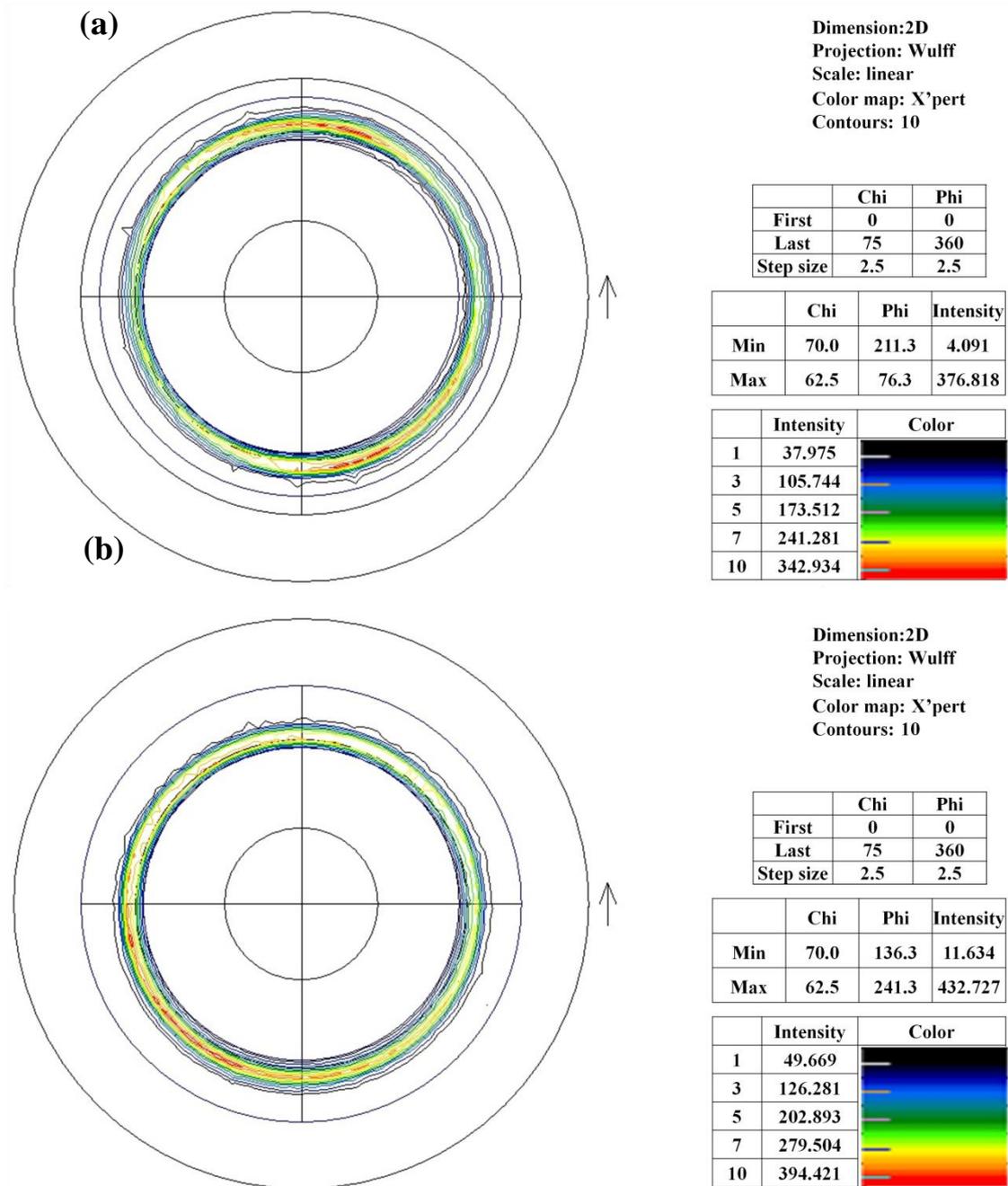
Nous avons considéré l'influence du choix du réacteur sur l'évolution de l'orientation préférentielle (0001) de l'AlN-h, pour deux échantillons d'AlN déposé sur Si(100) par la méthode DCMS, dans deux réacteurs de pulvérisation différents de taille 2" et 8".

Le tableau 4 montre les valeurs de la mosaïcité pour les deux échantillons utilisés pour l'analyse de texture. Nous pouvons remarquer que la valeur de la mosaïcité des films d'AlN déposés par DCMS sur Si(100) diminue pour le film d'AlN réalisé dans le réacteur 8", ce qui implique une amélioration de la qualité des films d'AlN. J. Camus. [8] a montré que les dépôts réalisés dans le réacteur 8" sont de meilleure qualité cristalline, avec 2° pour 1 µm alors qu'on a 3° dans le cas du réacteur 2". Il a observé également une contrainte plus faible. Il a attribué ces améliorations au vide résiduel plus poussé et à une meilleure optimisation des conditions de dépôt.

**Tableau 4 :** Échantillons utilisés dans l'étude de l'influence du réacteur.

Échantillons	Épaisseur de la couche	Rc (°)	Réacteur
AlN/Si(100)	640 nm	3,2	2"
AlN/Si(100)		2,9	8"

La figure 36 présente les figures de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  de l'AlN-h pour les films d'AlN déposés sur Si(100) par DCMS, dans les deux réacteurs 2" et 8".

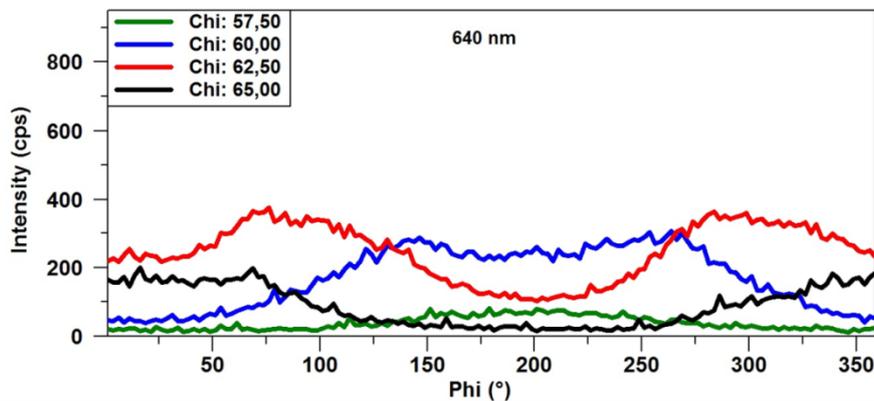


**Figure 36:** Figures de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  pour l'angle  $2\theta = 37,89^\circ$  d'AlN-pour les films d'AlN déposés sur Si(100) par DCMS : (a) réacteur 2" (b) réacteur 8".

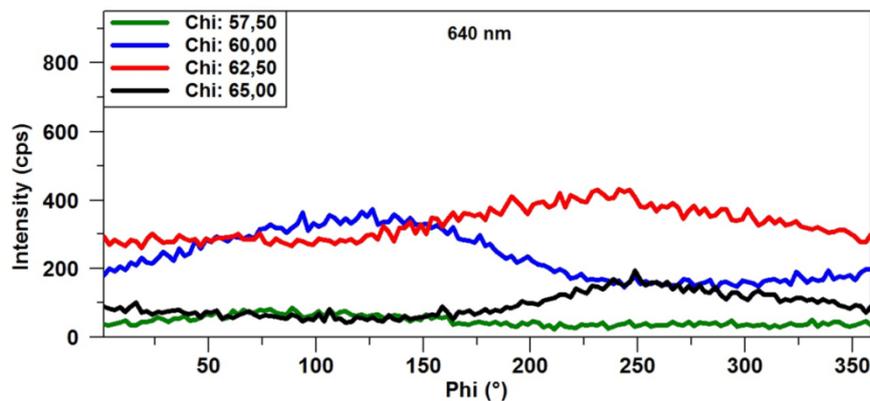
Pour les deux échantillons, nous remarquons la présence de la texture de fibre (0001), un peu plus intense dans le cas du réacteur 8". L'intensité maximale sur la fibre (0001) enregistré à  $\text{Chi} = 62,5^\circ$  augmente de 376 à 432 cps, en passant du réacteur 2" au réacteur 8".

La présence d'une fibre quasi-parfaite montre qu'il n'y a pas de relation d'orientation entre les grains de la couche d'AlN et ceux du silicium (100). Les colonnes d'AlN ne sont donc pas bien organisées dans le plan. Néanmoins, nous notons la présence des renforcements pour les deux couches d'AlN étudiées, renforcements qui peuvent éventuellement évoluer vers une relation d'orientation entre la couche d'AlN et le Si(100).

Nous avons ensuite réalisé des Phi scans de la figure de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  pour l'angle  $2\theta = 37,89^\circ$  pour montrer la présence des renforcements pour les deux échantillons (Figure 37).



(a)



(b)

**Figure 37:** XRD Phi-scans de la figure de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  ( $2\theta = 37,89^\circ$ ) d'AlN-h pour les angles de tilt ( $\text{Chi} = 57,5^\circ - 62,5^\circ$  avec un pas de  $2,5^\circ$ ) pour les films d'AlN déposés sur Si(100) par DCMS : (a) réacteur 2" (b) réacteur 8".

Comme nous avons vu sur les figures pôles  $\{10\bar{1}1\}$ , l'intensité maximale sur la fibre (0001) d'AlN-h à  $\chi = 62,5^\circ$  est importante dans le cas de la couche d'AlN déposée dans le réacteur 8" par rapport au film déposé dans le réacteur 2". En revanche, nous constatons la présence d'un seul renforcement dans le cas du film d'AlN déposé par DCMS dans le réacteur 8", contrairement au film d'AlN élaboré dans le réacteur 2", qui présente deux renforcements.

### 3.5. Influence de l'orientation de substrat sur l'acuité de la fibre (0001) de l'AlN-h pour les films d'AlN déposés par DCMS

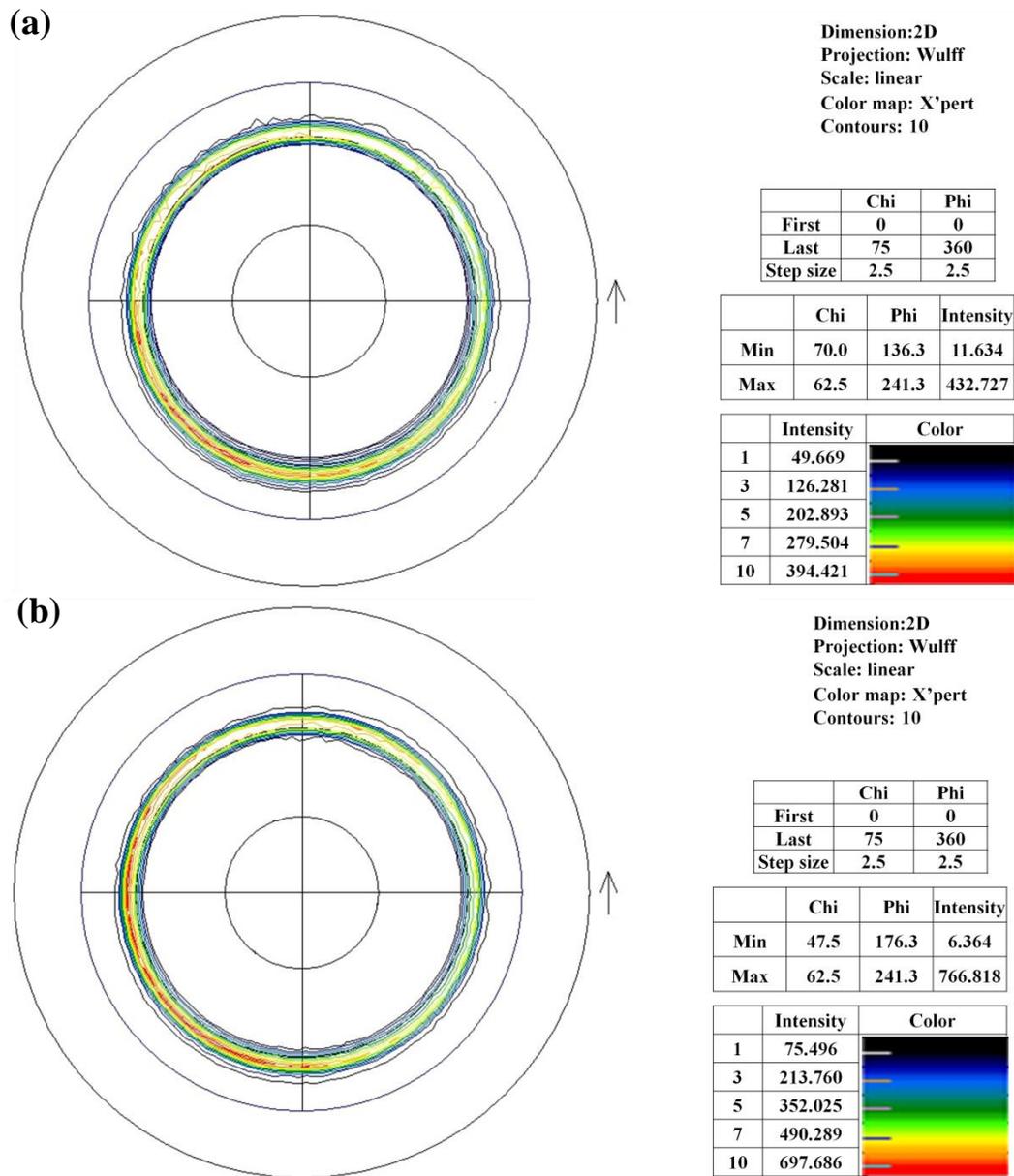
Nous avons vu que la croissance d'une couche d'AlN élaborée par pulvérisation magnétron à basse température, sur un substrat de silicium d'orientation (100) ne permet pas le développement d'une couche épitaxiée d'AlN. Nous avons utilisé des substrats de silicium possédant deux orientations différentes (100) et (111), pour étudier l'influence de l'orientation du substrat sur la croissance de la couche d'AlN. Pour cela, nous avons choisi deux échantillons ayant subi les mêmes conditions d'élaboration. Le tableau 5 présente les deux échantillons que nous avons utilisés pour cette analyse de texture.

**Tableau 5 :** Échantillons utilisés dans l'étude de l'influence de l'orientation du substrat.

Échantillons	Épaisseur de la couche	Rc (°)
AlN/Si(100)	640 nm	2,9
AlN/Si(111)		2,2

Nous constatons que la valeur de la mosaïcité diminue de  $2,9^\circ$  à  $2,2^\circ$ . L'utilisation d'un substrat de silicium d'orientation (111) a permis donc d'améliorer la mosaïcité de la couche d'AlN formée. Cela est dû au désaccord de maille qui est moins important entre l'AlN-h et le Si(111), par rapport au Si (100).

La figure 38 présente les figures de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  de l'AlN-h pour les films d'AlN déposés sur Si(100) et Si(111) par DCMS.

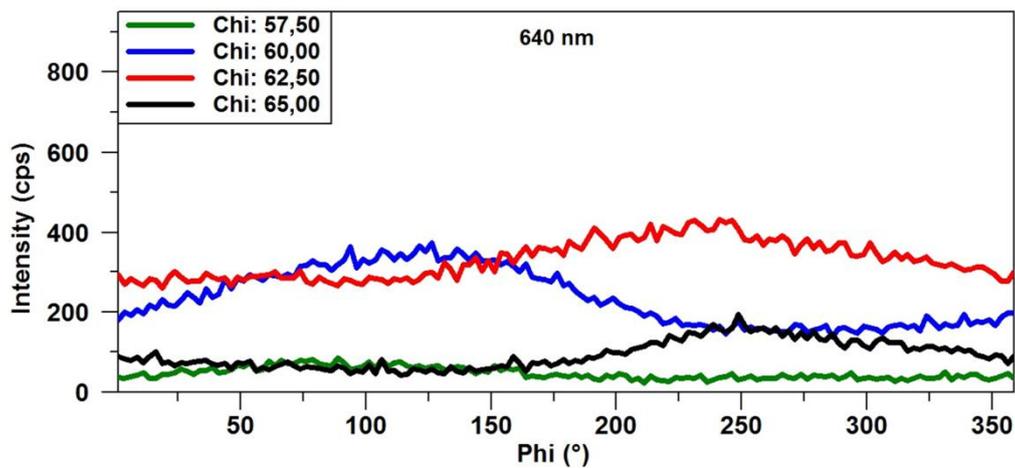


**Figure 38:** Figures de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  ( $2\theta = 37,89^\circ$ ) d'AlN-h pour les films d'AlN déposés par DCMS, en utilisant le réacteur 8" sur : (a) Si(100) et (b) Si(111).

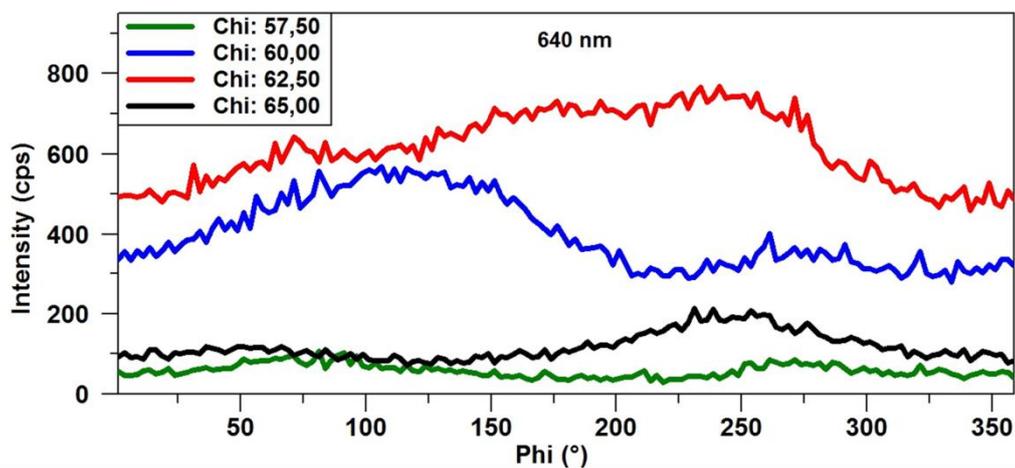
Nous remarquons la présence de la fibre (0001), quel que soit le substrat utilisé Si(100) ou Si(111), ce qui confirme l'absence d'une croissance épitaxiale de l'AlN sur Si. Il est néanmoins important de noter la présence de renforcements sur la fibre(0001), qui pourraient conduire à une croissance épitaxiale d'AlN sur Si, si l'épaisseur augmente. Comme la fibre

(0001) est plus intense dans le cas du film d'AlN déposé sur Si(111) par rapport au film déposé sur Si(100), la possibilité d'une croissance épitaxiale devrait être plus élevée [72].

Nous avons tracé les Phi-scans de la figure de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  d'AlN-h pour l'angle de tilt Chi (de  $57,5^\circ$  à  $65^\circ$  avec un pas de  $2,5^\circ$ ) pour le film d'AlN/Si(100) et (111) (Figure 39).



(a)



(b)

**Figure 39:** XRD Phi-scan de la figure de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  ( $2\theta = 37,89^\circ$ ) d'AlN-h pour les angles de tilt (Chi =  $57,5^\circ$  -  $65^\circ$  avec un pas de  $2,5^\circ$ ) des films d'AlN déposés, par DCMS en utilisant le réacteur 8", sur (a) AlN/Si(100) et (b) AlN/Si(111).

Nous pouvons confirmer que l'intensité enregistrée sur la fibre (0001) de l'AlN-h pour le film d'AlN/Si(111) est plus importante par rapport à celle du film déposé sur Si(100). Cette différence d'intensité confirme que les films d'AlN déposés sur des substrats de Si(111) sont globalement de meilleure qualité cristalline que ceux déposés sur Si(100), grâce à leur plus faible désaccord de maille, qui est estimé à 19%, pour Si(111), alors qu'il est de 42 % pour Si(100). En effet, l'interface AlN/Si(111) adapte ce désaccord paramétrique en réalisant un quasi-accord de maille, sur la base d'une relation 4/5 : la distance entre quatre plans de silicium parallèles à l'axe c est très proche de la distance entre cinq plans de l'AlN parallèles à l'axe c, dans le plan de l'interface, ce qui permet de créer un réseau périodique de dislocations dites de rattrapage. Ce mécanisme est appelé '*domain matching*' [8, 9]. Les auteurs montrent par MET, par l'intermédiaire des dislocations, il est possible de faire correspondre les plans cristallins à l'interface par le rapport de plan 4/5. Cette configuration conduit a priori à un désaccord de 1,2%. La présence d'un seul renforcement pour les deux cas étudiés (Figure 39) révèle qu'il n'y a pas d'ordre dans le plan pour les films d'AlN déposés sur Si quelle que soit l'orientation du silicium (100) ou (111).

### **3.6. Influence de la nature du substrat sur la texture des films d'AlN déposés par DCMS**

Les paramètres précédents (épaisseur de la couche, taux d'azote, réacteur et orientation du substrat) permettent l'amélioration de la qualité recherchée de la fibre (0001) avec l'apparition de renforcements plus ou moins marqués. Cette amélioration est optimale quand l'épaisseur augmente, l'utilisation de substrat (111), le réacteur 8" et un taux d'azote de 35%, mais on reste loin de l'épitaxie souhaitée. Rappelons que, pour un film d'AlN épitaxié, six renforcements espacés de 60° doivent être présents sur la fibre (0001) de l'AlN-h.

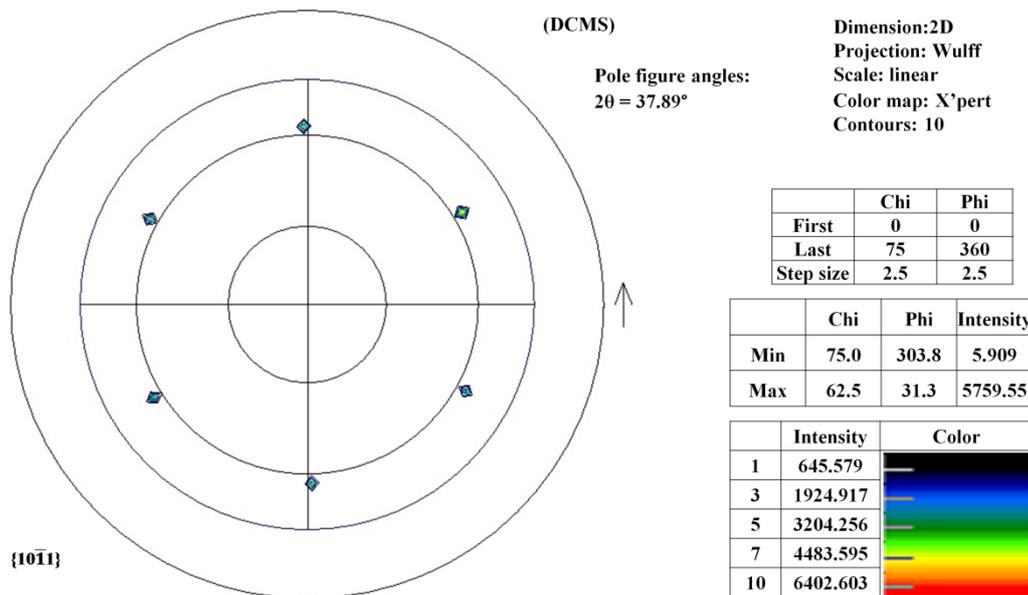
Comme les conditions ne peuvent pas être réunies pour réaliser une épitaxie sur silicium, nous avons considéré la possibilité d'obtenir des films d'AlN-h épitaxiés avec d'autres substrats que le Si. Nous avons utilisé du carbure de silicium (SiC-6H) ; une application possible pour ce film est la réalisation de « puces atomiques » pour des expériences en optique quantique et physique des atomes froids [8] ou pour les dispositifs SAW aux bandes GHz [80].

Nous avons vérifié la possibilité d'épitaxie car le substrat (SiC-6H), est connu pour être favorable à la croissance épitaxiale d'AlN [80] ; en effet, AlN-h et SiC-6H ont le même

groupe d'espace et des paramètres de maille proches (cf. tableau 6), le désaccord de maille entre SiC-6H et AlN-h est de +1,3% sans stratégie d'adaptation. La figure 40 présente la figure de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  d'AlN-h pour un film d'AlN de 400 nm déposé sur SiC à une température de 200 à 250 °C.

**Tableau 6 :** Paramètres de maille de l'AlN et du SiC-6H

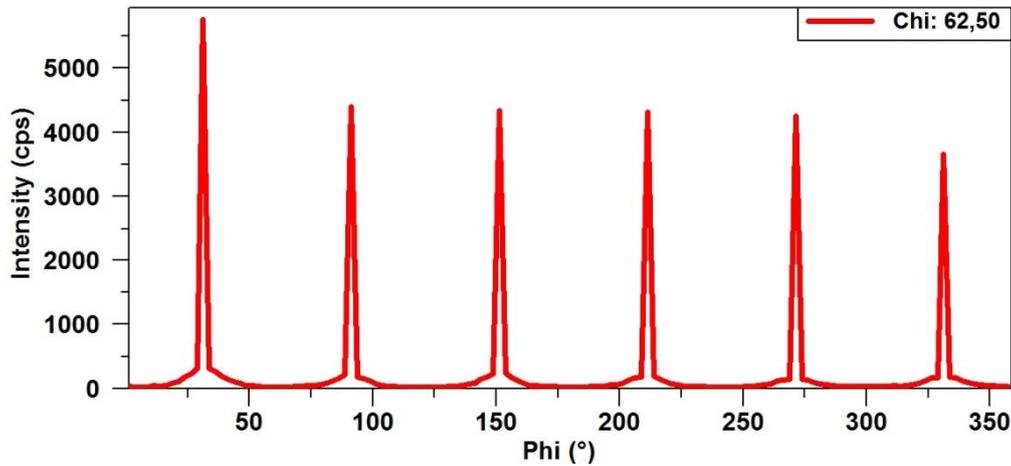
Paramètre de maille	a (nm)	c (nm)	Groupe d'espace
AlN-h	0,311	0,308	$P_{63mc}$
SiC-6H	0,498	1,512	$P_{63mc}$



**Figure 40:** Figure de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  pour l'angle  $2\theta = 37,89^\circ$  d'AlN-h pour le film d'AlN déposé sur SiC-6H par DCMS dans le réacteur 8".

Nous observons la présence de six pôles à  $\text{Chi} = 62,5^\circ$ , sans la fibre (0001), la couche AlN-h semble donc bien épitaxiée sur le substrat. Il faut remarquer cependant que ces pôles peuvent être attribués aux plans (0002) d'AlN-h mais également aux plans (0006) du SiC, les  $2\theta$  étant très proches, respectivement  $36,04^\circ$  pour les premiers et  $35,6^\circ$  pour les seconds. Cette dernière possibilité est tout de même faible, du fait de l'épaisseur importante du film. En plus, les Phi-

scans de la figure 41 montrent nettement une seule réponse. La considération d'un film plus mince peut lever certainement cette ambiguïté.



**Figure 41:** XRD Phi-scan de la figure de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  ( $2\theta = 37,89^\circ$ ) pour le film d'AlN déposé sur SiC-6H dans le réacteur 8".

### 3.7. Influence d'une couche tampon d'AlN

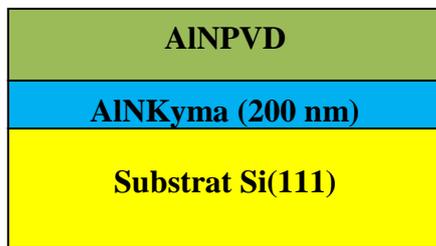
Dans cette dernière partie de l'étude des films d'AlN déposés par DCMS, nous avons considéré l'utilisation de substrats multicouches, on parle de couche 'tampon'. L'objectif principal est de faire une reprise de croissance d'AlN PVD à basse température, sur de l'AlN épitaxié à haute température, pour la croissance de GaN dans le but de réaliser des structures transistor à haute mobilité électronique HEMTs. La présence d'une fibre (0001) est préjudiciable à la croissance de GaN.

Nous avons utilisé deux types d'AlN épitaxié à haute température sur du silicium (111) :

- de l'AlN commercial (de la société Kyma Corporation nommé Kyma dans la suite de ce travail)
- de l'AlN déposé en épitaxie par jet moléculaire (MBE) fourni par le Centre de Recherche sur l'hétéro-épitaxie et ses Applications (CRHEA) dans le cadre du projet ANR CREATIVEPI [81].

### 3.7.1. Influence de la couche d'AlN Kyma sur l'évolution de la texture des films d'AlN déposés par DCMS

Le substrat composite utilisé dans cette étude est une couche d'AlN Kyma, élaborée par dépôt physique de nano-colonnes en phase vapeur (PVDNC) sur un substrat de Si(111). Ce procédé de dépôt, développé par Kyma Technologie, consiste à faciliter la croissance épitaxiale de GaN grâce à la présence des nano-colonnes en surface de la couche « buffer » d'AlN. En effet, l'existence des nano-colonnes permet de réduire les contraintes lors de la croissance du GaN permettant ainsi d'augmenter son épaisseur. Un schéma explicatif de la bicouche formée est montré sur la figure 42.

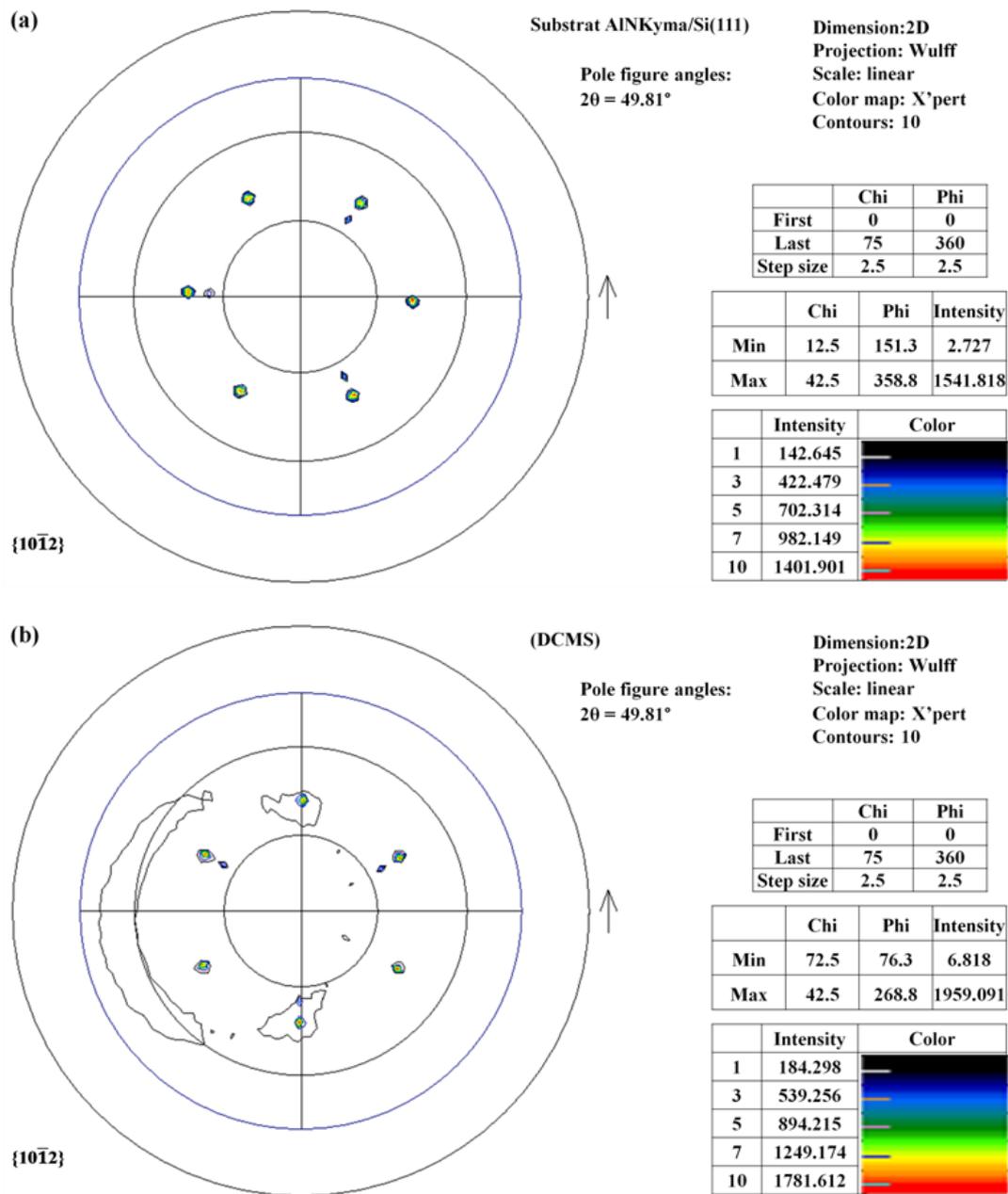


**Figure 42:** Schéma explicatif de la bicouche formée d'AlNPVD/AlNKyma/Si (111).

Pour voir s'il y a une reprise d'épitaxie d'AlN PVD sur ces substrat composites d'AlN kyma/Si(111), nous avons considéré deux échantillons. Comme l'épaisseur de la couche d'AlNKyma est importante, nous avons caractérisé en premier lieu la texture du substrat d'AlNKyma/Si(111), pour évaluer la différence d'intensité après le dépôt d'AlNPVD. Il faut noter que la croissance d'AlN PVD sur les substrats d'AlN Kyma/Si(111) donne une meilleure mosaïcité que celle obtenue directement sur un substrat de silicium. Ainsi, pour l'épaisseur 1200 nm considérée dans notre travail, elle est de  $0,9^\circ$  dans le cas de la bicouche AlNPVD/AlNKyma, nettement plus faible que celles obtenues sur des substrats de silicium (cf. tableau 5).

Dans cette partie de l'étude, nous avons travaillé avec les figures de pôles  $\{10\bar{1}2\}$  ( $2\theta=49,81^\circ$ ), pour montrer s'il existe une relation d'épitaxie entre le film d'AlN déposé par PVD et le substrat du silicium orienté (111). Les figures de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  ne permettent pas de voir simultanément les deux réponses, celle du film ( $2\theta=37,89^\circ$ ) loin de celle du substrat

(47,70°). La figure 43 montre les figures de pôles {10 $\bar{1}2$ } de l'AlN-h du substrat d'AlNKyma déposé sur Si(111) et de la bicouche formée d'AlNPVD déposé sur AlNKyma/Si(111).



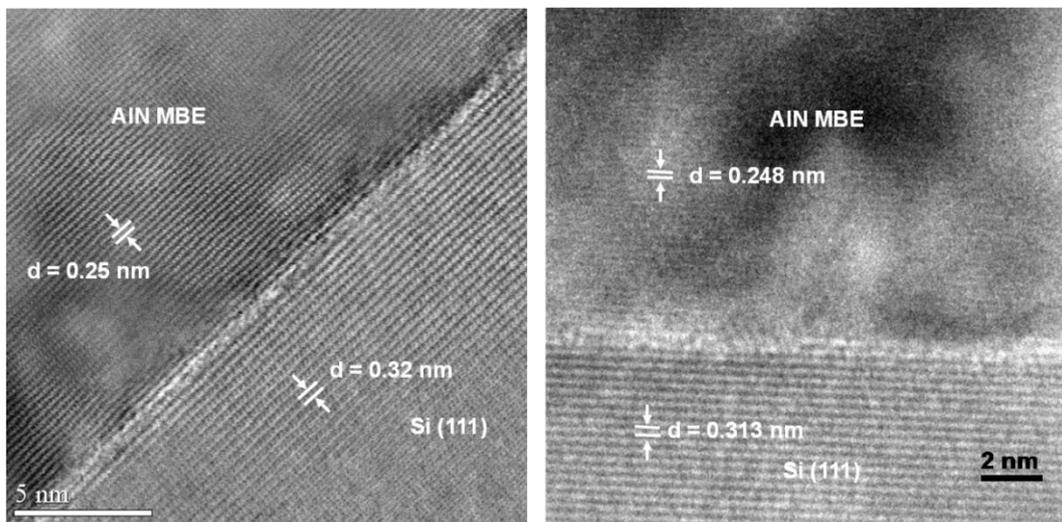
**Figure 43:** Figures de pôles {10 $\bar{1}2$ } d'AlN-h ( $2\theta = 49,81^\circ$ ) pour :  
(a) AlNKyma/Si(111) et (b) AlNPVD/ AlNKyma/Si(111) par DCMS par le réacteur 8". La réponse du symétrie 3 correspond au silicium ( $2\theta = 47,70^\circ$ ).

Nous observons six pôles à  $\text{Chi} = 42,5^\circ$  pour les deux échantillons. Nous remarquons que l'intensité maximale augmente de 1541 (pour AlNKyma) à 1959 cp après dépôt de 1200 nm

d'AlN PVD. Nous pouvons dire que la qualité de la couche tampon est meilleure que celle du film d'AlN, vue la faible variation d'intensité observée, malgré l'épaissement important de la couche d'AlNPVD. Nous notons la présence d'une certaine dispersion ou de cristallites mal orientées, à cause de la rugosité de surface d'AlN Kyma, estimée à 12 nm. Cette dernière diminue de 12 à 2 nm avec l'épaissement de la couche d'AlN PVD.

### 3.7.2. Influence de la couche d'AlNMBE sur l'évolution de la couche d'AlN déposée par DCMS

Le but d'utiliser une couche d'AlN élaborée par épitaxie par jet moléculaire (MBE) comme couche tampon est de profiter de l'interface AlNMBE/Si qui est de meilleure qualité que l'AlN PVD/Si. Cela peut permettre de conserver l'ordre dans le plan initié par l'AlN MBE. Sur la figure 44, nous remarquons que l'interface entre l'AlNMBE et le Si(111) est bien marquée.

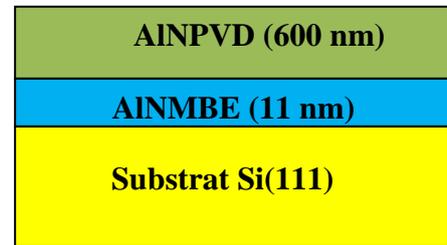


**Figure 44:** Clichés MET de l'interface AlNMBE / Si à différents agrandissements [8].

### Caractérisation de la texture d'AlN-h pour le film d'AlN déposé sur AlN MBE (11 nm) sur Si(111)

Nous avons caractérisé la texture d'un substrat composite d'AlN-h MBE de 11 nm sur Si(111) et d'AlN PVD déposé sur ce substrat composite.

L'objectif est de montrer une éventuelle reprise d'épitaxie, par comparaison des intensités de l'échantillon étudié par rapport au substrat utilisé. La figure 45 nous montre un schéma explicatif de la bicouche formée dans cette étude.



**Figure 45:** Schéma explicatif d'une bicouche formée d'AlNPVD/AlNMBE(11nm)/Si(111).

La figure 46 montre les figures de pôles  $\{10\bar{1}2\}$  du substrat d'AlNMBE (11 nm)/Si(111) et l'échantillon AlNPVD déposé sur AlNMBE (11 nm)/Si(111). Nous remarquons la présence de six renforcements à  $\chi = 42,5^\circ$  avec une faible dispersion sur les deux figures de pôles. L'intensité maximale enregistrée augmente de 100 à 2248 pour le dépôt de 600 nm d'AlN PVD, ce qui confirme la reprise de la croissance d'AlNPVD sur le substrat composite d'AlNMBE (11 nm)/Si(111).

La figure 47 montre les angles entre les différents pôles. Les plans  $\{10\bar{1}2\}$  font un angle de  $\sim 43^\circ$  avec le centre de la figure de pôles et des angles de  $39.68^\circ$ ,  $72.02^\circ$  et  $85.50^\circ$  entre eux. Les valeurs calculées correspondent aux valeurs angulaires théoriques, le film d'AlNPVD est donc bien monocristallin, nous avons ainsi une reprise de croissance sur la couche d'AlNMBE de 11 nm.

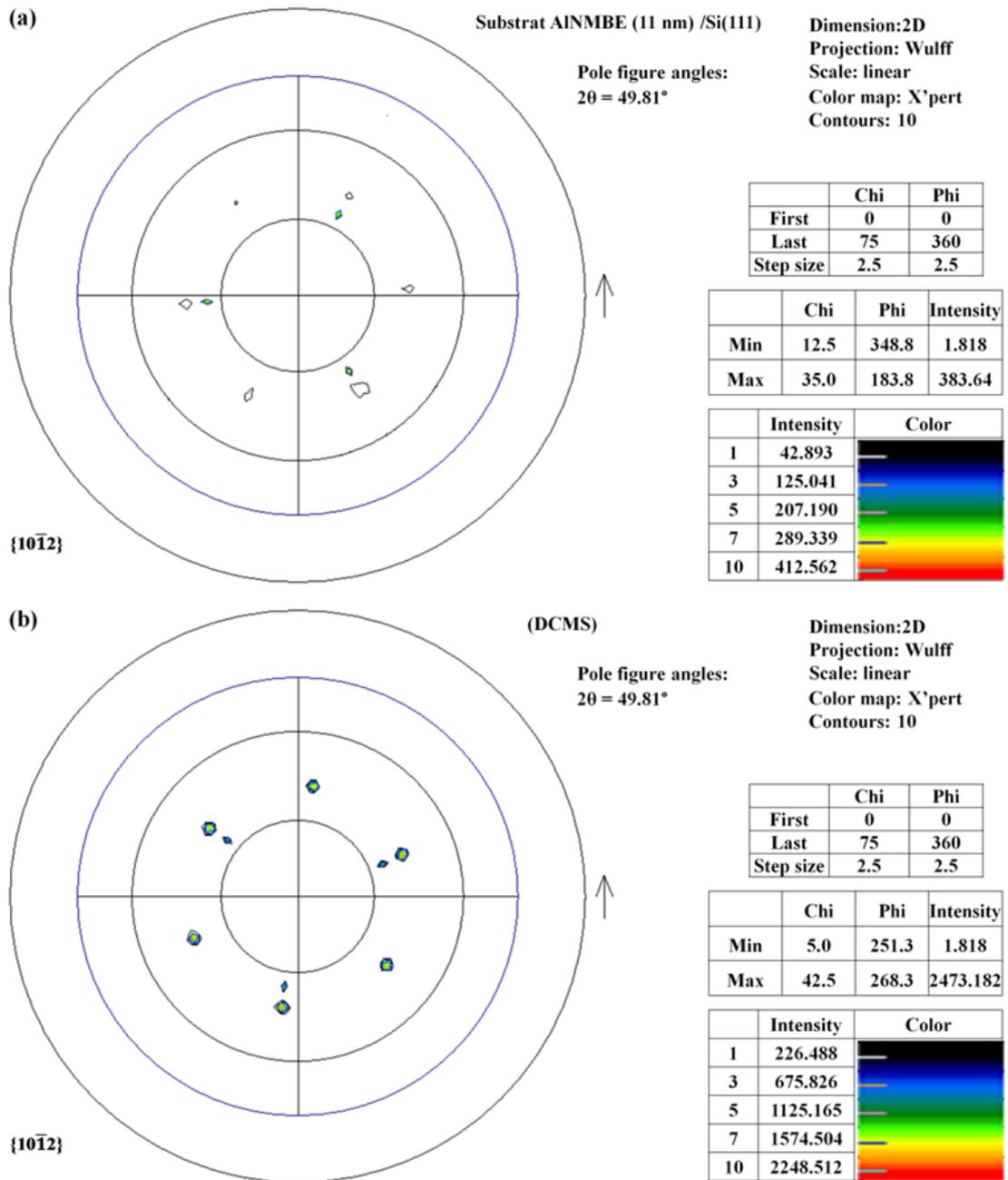
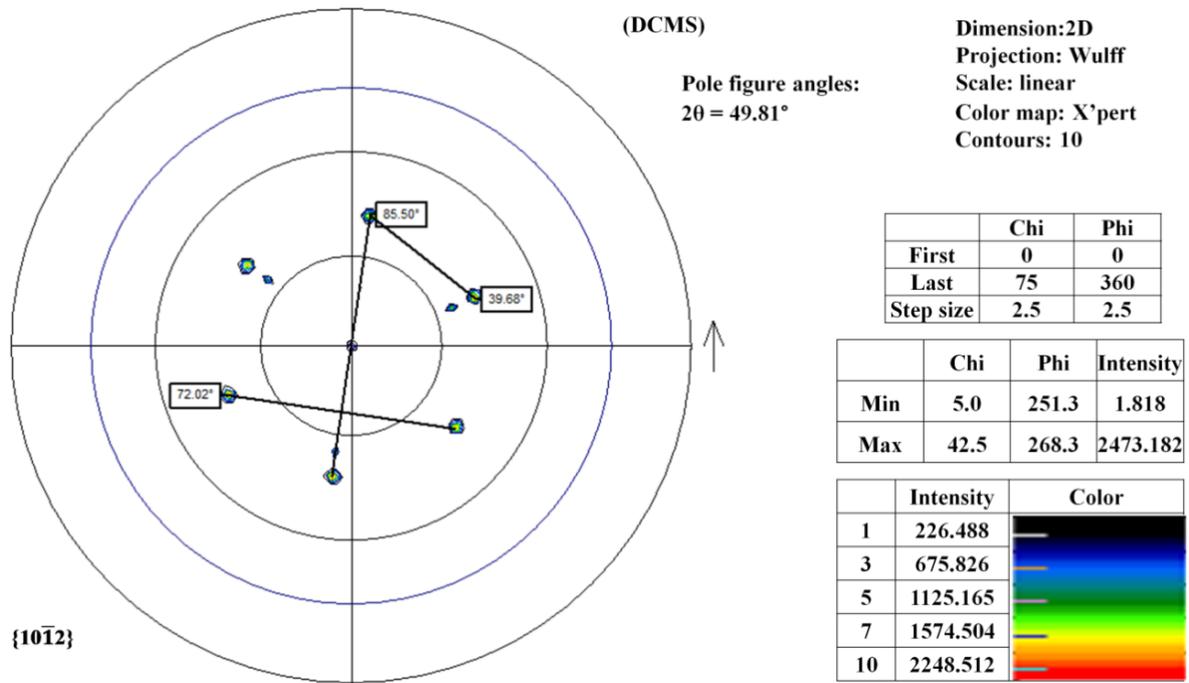


Figure 46: Figures de pôles {10 $\bar{1}2$ } pour l'angle  $2\theta = 49,81^\circ$  d'AlN-h pour déposé sur : (a) AlNMBE (11 nm)/Si(111) et (b) AlNPVD/AlNMBE (11 nm)/Si(111).



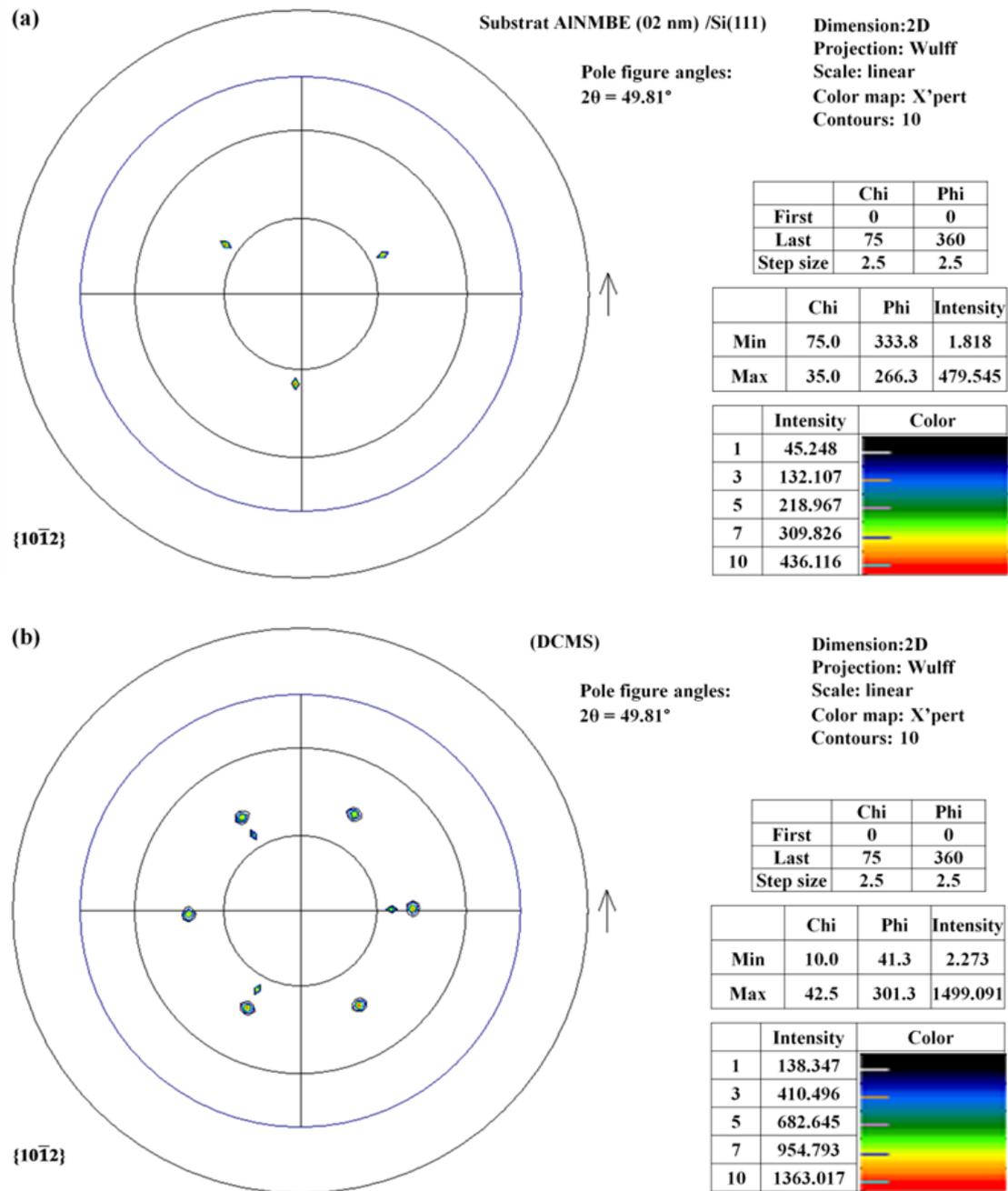
**Figure 47:** Angles entre les pôles {10 $\bar{1}2$ } d'AlN-h pour : AlNPVD/ AlNMBE (11 nm) /Si(111) déposé par DCMS.

La morphologie des différents films déposés par DCMS sur différents substrats a été observée par microscope électronique à balayage (MEB) (voire annexe 2). Les images MEB de la tranche montrent que le film d'AlN déposé sur AlNMBE(11nm)/Si(111) a une meilleure cristallinité colonnaire par rapport aux films d'AlN déposés directement sur Si(100) et Si(111).

### Caractérisation de la texture d'AlN-h pour le film d'AlN déposé sur AlNMBE (2 nm) sur Si(111)

Comme déjà mentionné, l'élaboration d'un substrat composite d'AlNPVD sur silicium à basse température est principalement destinée à la croissance des films GaN. Par conséquent, il est intéressant de réduire l'épaisseur de la couche de l'AlNMBE, afin de comprendre les mécanismes de croissance d'AlNPVD. Nous avons utilisé un substrat d'AlNMBE/Si dont l'épaisseur de la couche AlNMBE est de l'ordre de 2 nm. Contrairement au substrat composite d'AlNMBE utilisé précédemment, il n'y a pas d'interrogation liée à la contribution d'une couche de 2 nm d'épaisseur, car le film est trop mince pour être détecté en DRX.

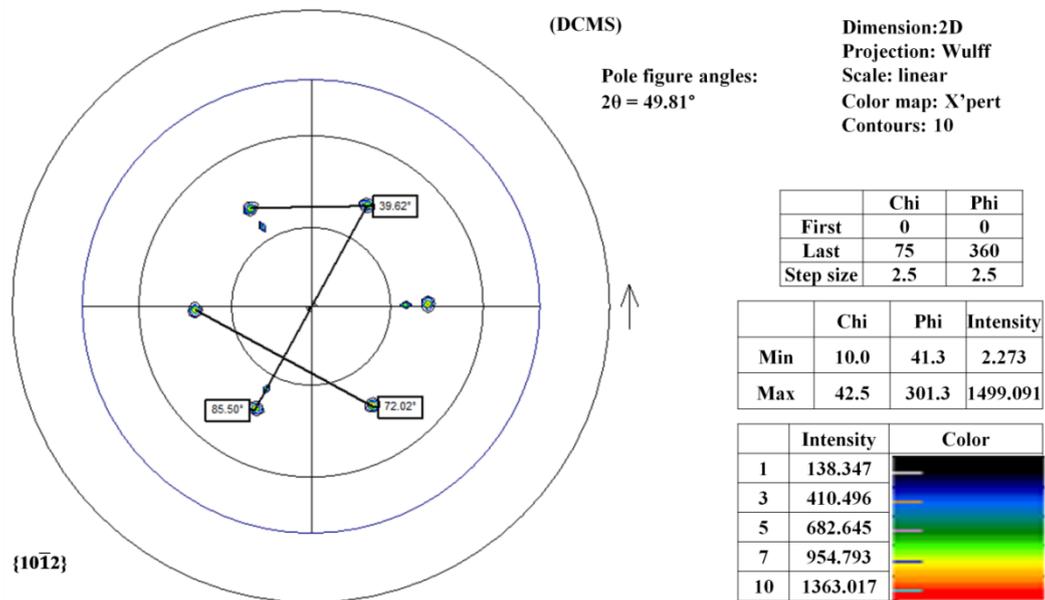
La figure 48 montre les figure de pôle  $\{10\bar{1}2\}$  pour le substrat d'AlNMBE (2 nm)/Si(111) et d'AlNPVD déposé sur AlNMBE (02nm)/Si(111), respectivement.



**Figure 48:** Figures de pôles  $\{10\bar{1}2\}$  ( $2\theta = 49,81^\circ$ ) d'AlN-h pour :

(a) AlNMBE (02 nm)/Si(111) et (b) AlNPVD/AlNMBE (02 nm)/Si(111).

La symétrie d'ordre six correspondant au substrat composite n'est pas observée, mais nous observons toujours la présence des six renforcements à  $\chi = 42,5^\circ$ , qui correspondent à la réponse de l'AlN-h, nous retrouvons les mêmes valeurs angulaires que celle de la figure 47. Ces observations montrent qu'il y a également une reprise de croissance d'AlNPVD, même sur une couche de très faible épaisseur (2 nm) d'AlNMBE sur Si(111). La symétrie d'ordre trois observée sur les deux figures de pôles est bien sûr liée à la réponse des plans {220} du Si(111).



**Figure 49:** Calculs des angles entre la famille de plans {10 $\bar{1}2$ } d'AlN-h pour le film d'AlNPVD/ AlNMBE (02 nm) /Si(111) déposé par DCMS dans le réacteur 8".

### Conclusion

Les principaux objectifs de ce chapitre concernent l'étude de l'influence des paramètres de dépôt sur l'évolution de la qualité structurale de la phase AlN-h obtenus par DCMS. Nous avons considéré l'épaisseur de la couche, le taux d'azote, les dimensions du réacteur utilisé, l'orientation et la nature du substrat. La phase AlN-h est toujours caractérisée par une texture de type fibre (0001).

- les premiers résultats ont montré que l'épaisseur influe sur la fibre de l'AlN-h, avec l'apparition de renforcements plus ou moins marqués sur les figures de pôles quand l'épaisseur augmente. Les colonnes de la couche d'AlN évoluent et acquièrent la même orientation avec des plans (0001) parallèles à la surface du substrat, la fibre devient plus intense. La présence de renforcements sur la fibre (0001) montre que les colonnes de la couche d'AlN présentent des orientations préférentielles dans le plan, mais nous sommes encore loin de couches épitaxiées, souhaitées pour la croissance de GaN.

- Pour les deux taux d'azote étudiés, les films d'AlN ont toujours la même texture de fibre (0001) et nous avons constaté la présence de renforcements dans les deux cas, plus marqués dans le cas de 35% d'azote. Ces renforcements peuvent éventuellement évoluer, au cours de la croissance, vers une relation d'épitaxie entre le film d'AlN et le Si(100). Nous avons noté également que la dispersion diminue, pour 35% par rapport à 20% de taux d'azote.

- Nous avons toujours la texture de fibre (0001) avec la présence des renforcements mais, avec l'utilisation du réacteur 8", nous observons une amélioration de la mosaïcité ( $2,9^\circ$ ) par rapport à l'utilisation du réacteur 2" ( $3,2^\circ$ ).

- L'influence de l'orientation du substrat Si apparaît surtout sur l'intensité de la fibre (0001) qui existe toujours, mais elle est plus marquée dans le cas du Si(111) par rapport au Si(100). La fibre (0001) est plus intense dans le cas du Si(111) avec des renforcements un peu plus marqués, la possibilité d'une croissance épitaxiale devrait être plus élevée.

- L'utilisation d'un substrat SiC-6H, en accord de maille avec l'AlN-h a permis d'obtenir une croissance épitaxiale d'un film d'AlN de 400 nm, avec la présence de taches (0002) montrant une structure monocristalline, sans présence de fibre.

- la qualité des films obtenus avec l'utilisation de couches tampon, AlNKyma et AlNMBE, est variable. Dans le dernier cas, la présence d'une reprise de croissance épitaxiale d'AlN PVD est observée, même pour les faibles épaisseurs de la couche d'AlNMBE. Dans le cas d'AlNKyma, malgré l'épaississement important de la couche d'AlNPVD, on observe une faible variation d'intensité avec une certaine dispersion de la réponse.

**Chapitre 4 :**

**Influence des deux méthodes DCMS et HiPIMS sur l'évolution de la phase hexagonale.**

**Mise en évidence de la phase cubique.**

### Introduction

Les recherches actuelles dans le domaine du dépôt physique en phase vapeur PVD portent essentiellement sur le développement des processus. La pulvérisation magnétron pulsée de grande puissance (HiPIMS) est une technique de dépôt, récemment introduite dans les milieux académiques et industriels, elle permet une ionisation élevée du matériau pulvérisé, par rapport à la technique DCMS. La décharge HiPIMS donne une forte dissipation de puissance au niveau de la cible durant chaque impulsion, conduisant ainsi à la génération d'un plasma de haute densité, qui peut conduire à une auto-pulvérisation de la cible. Cette forte ionisation permet d'obtenir des conditions favorables à la fabrication de films très denses. Certains auteurs [8,13] ont montré, par diffraction des rayons X en mode  $\theta$ - $2\theta$ , que les films d'AlN de faibles épaisseurs élaborés par HiPIMS sont de meilleure qualité que ceux déposés par DCMS.

L'AlN peut cristalliser sous deux phases, la wurtzite hexagonale et la zinc blende cubique. La phase hexagonale est la plus largement étudiée, car elle est thermodynamiquement plus stable dans les conditions normales. La phase cubique est généralement considérée comme métastable, elle a été beaucoup moins considérée, mais elle attire de plus en plus l'attention, du fait de ses propriétés importantes par rapport à celles de la structure hexagonale telles que la conductivité thermique, la résistivité électrique et la dureté ; elle possède également un degré de symétrie supérieur ; elle peut être obtenue en réalisant l'épitaxie par MBE sur des substrats cubiques orientés, tels que le silicium ou MgO [82] (cf. Chapitre 1).

La phase cubique reste, malgré tout, difficile à synthétiser par la technique PVD. De plus, il est impossible de l'observer par DRX en mode  $\theta$ - $2\theta$ , méthode généralement utilisée dans l'étude des films. Dans notre travail, l'analyse des figures de pôles expérimentales a permis de la mettre en évidence. Sa caractérisation est devenue au cours de l'étude l'un des principaux objectifs et a permis l'obtention de résultats originaux [83].

Nous avons considéré en premier lieu l'évolution de la texture de la phase hexagonale pour différents paramètres pour les films déposés par DCMS (cf. chapitre 3). Dans ce chapitre, nous procédons à une étude comparative entre les qualités des films d'AlN obtenus par HiPIMS et par DCMS.

Cemin et al. [84] ont montré que l'utilisation de la technique HiPIMS a rendu possible la croissance épitaxiale de Cr directement sur Si(100) par PVD à basse température. Nous avons également étudié l'influence de la texture cristallographique sur la qualité de ces films d'AlN, d'épaisseur 3µm, déposés directement sur Si(100) par DCMS et HiPIMS dans le réacteur 8", en considérant les deux phases, cubique et hexagonale.

Comme nous avons déjà vu, le Si(111) permet d'avoir une relation épitaxiale unique avec l'AlN-h (cf.§3.5). Cependant, c'est le Si(100) qui est le plus utilisé en microélectronique, grâce à ses propriétés électroniques et notamment son coût. Ainsi du point de vue industriel et économique, il est préférable d'utiliser le Si(100) au lieu de Si(111). De plus, si on vise une intégration des fonctionnalités des matériaux III-N dans la filière silicium, il faudrait réaliser l'épitaxie directement sur Si(100) (cf.§1.1). Il est important de noter, dans le cadre des perspectives de ce travail, que l'optimisation de l'orientation des cristallites cubiques, pourrait améliorer l'orientation des colonnes d'AlN-h sur un substrat Si(100).

### 4.1. Diagramme $\theta$ - $2\theta$ des films d'AlN déposés sur Si(100) par DCMS et HiPIMS

Les diagrammes DRX des films d'AlN/Si(100) obtenus par DCMS et HiPIMS sont présentés sur la figure 50. Ces diagrammes montrent que tous les films présentent un seul pic de diffraction relatif au plan (0002), avec une intensité plus élevée pour le film d'AlN déposé par HiPIMS. La position  $2\theta$  du pic de diffraction (0002) de l'échantillon élaboré par HiPIMS est de  $35,75^\circ$ , contre  $35,99^\circ$  pour l'échantillon obtenu par DCMS. La position du pic de diffraction correspondant aux plans (0002) étant directement reliée au paramètre de maille  $c$  de l'AlN et la valeur théorique est  $2\theta=36,04^\circ$ , il en résulte un état de contrainte plus important dans le cas du film obtenu par HiPIMS. Le taux d'ionisation ainsi que l'énergie des ions qui sont plus importants en HiPIMS induisent des contraintes en compression biaxiales beaucoup plus élevées, ce qui entraîne une augmentation du paramètre de maille  $c$ . Une augmentation de la pression de travail permet de réduire la contrainte dans les couches d'AlN, sans pour autant perdre en qualité cristalline.

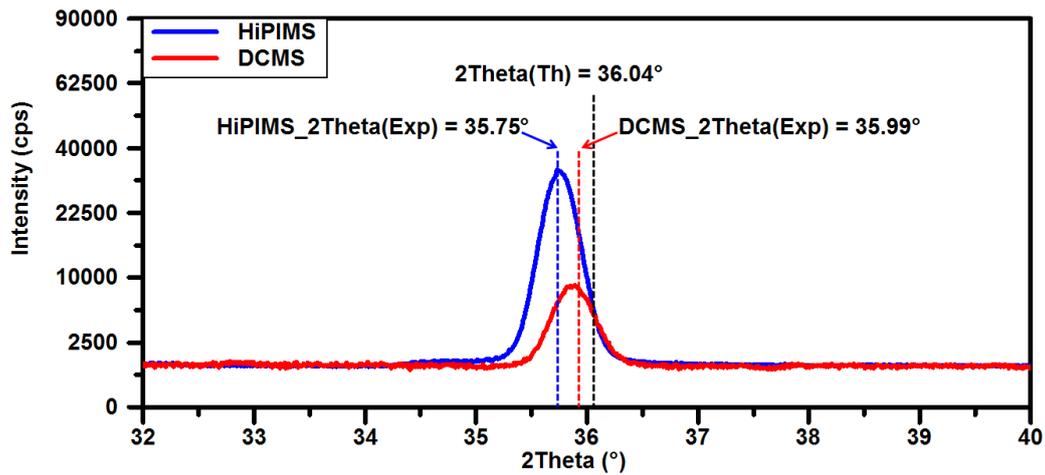


Figure 50 : Diagrammes de DRX des films d'AlN/Si(100) par DCMS et HiPIMS.

La position du pic (0002) de DRX en  $\theta$ - $2\theta$  peut être utilisée comme un indicateur de la contrainte résiduelle dans les films d'AlN élaborés par HiPIMS. Par ailleurs, il faut noter qu'aucun pic de la phase cubique n'a été observé.

#### 4.2. Caractérisation de la phase hexagonale d'AlN pour les films déposés sur Si(100) par DCMS et HiPIMS

Nous avons réalisé les figures de pôles {0002} pour les films d'AlN déposés sur Si(100) par les deux méthodes DCMS et HiPIMS (Figure 51). Nous remarquons que la texture (0001) de l'AlN-h est bien visible pour les deux méthodes de dépôt DCMS et HiPIMS, avec une réponse asymétrique pour le premier cas. Comme nous avons mentionné dans le chapitre précédent, les figures de pôles (0001), seules, ne donnent pas d'informations sur le type de texture (fibre, épitaxie, isotropie...ext). Pour ce, nous avons enregistré et tracé les figures de pôles  $\{10\bar{1}2\}$  d'AlN-h (Figure 52). Elles confirment la présence de la fibre (0001), quelle que soit la méthode de dépôt utilisée DCMS ou HiPIMS, ce qui montre l'absence d'une croissance épitaxiale de l'AlN sur Si(100). La fibre (0001) est bien symétrique dans le cas du film déposé par HiPIMS, alors qu'elle est tiltée de  $2,5^\circ$  dans le cas du film déposé par DCMS. Cette différence de texture peut être expliquée par le bombardement ionique, qui est plus intense pour une décharge HiPIMS que dans une décharge DCMS [85].

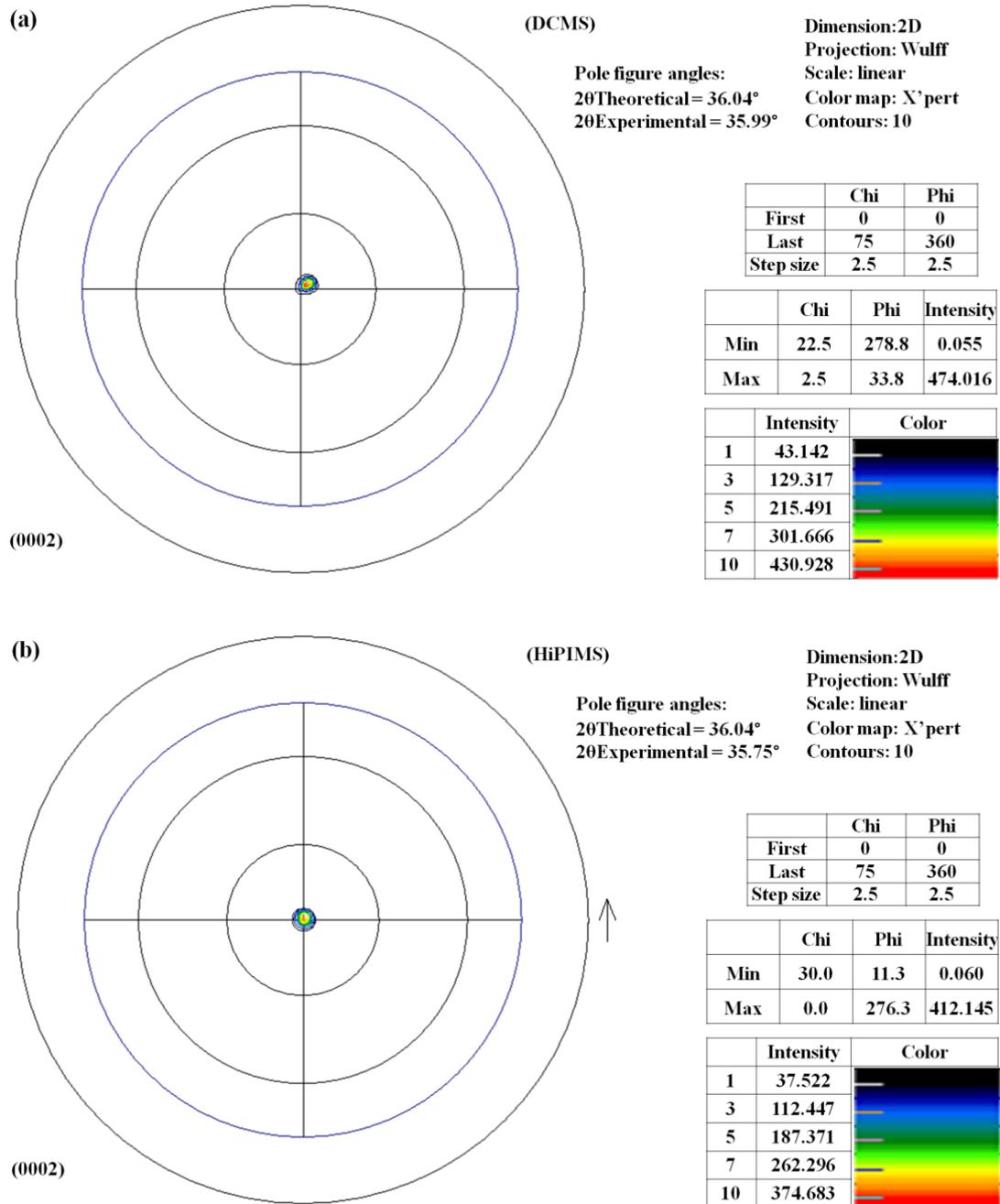


Figure 51: Figures de pôles {0001} de l'AlN-h pour le film d'AlN déposé sur Si(100) par :  
 (a) DCMS et (b) HiPIMS.

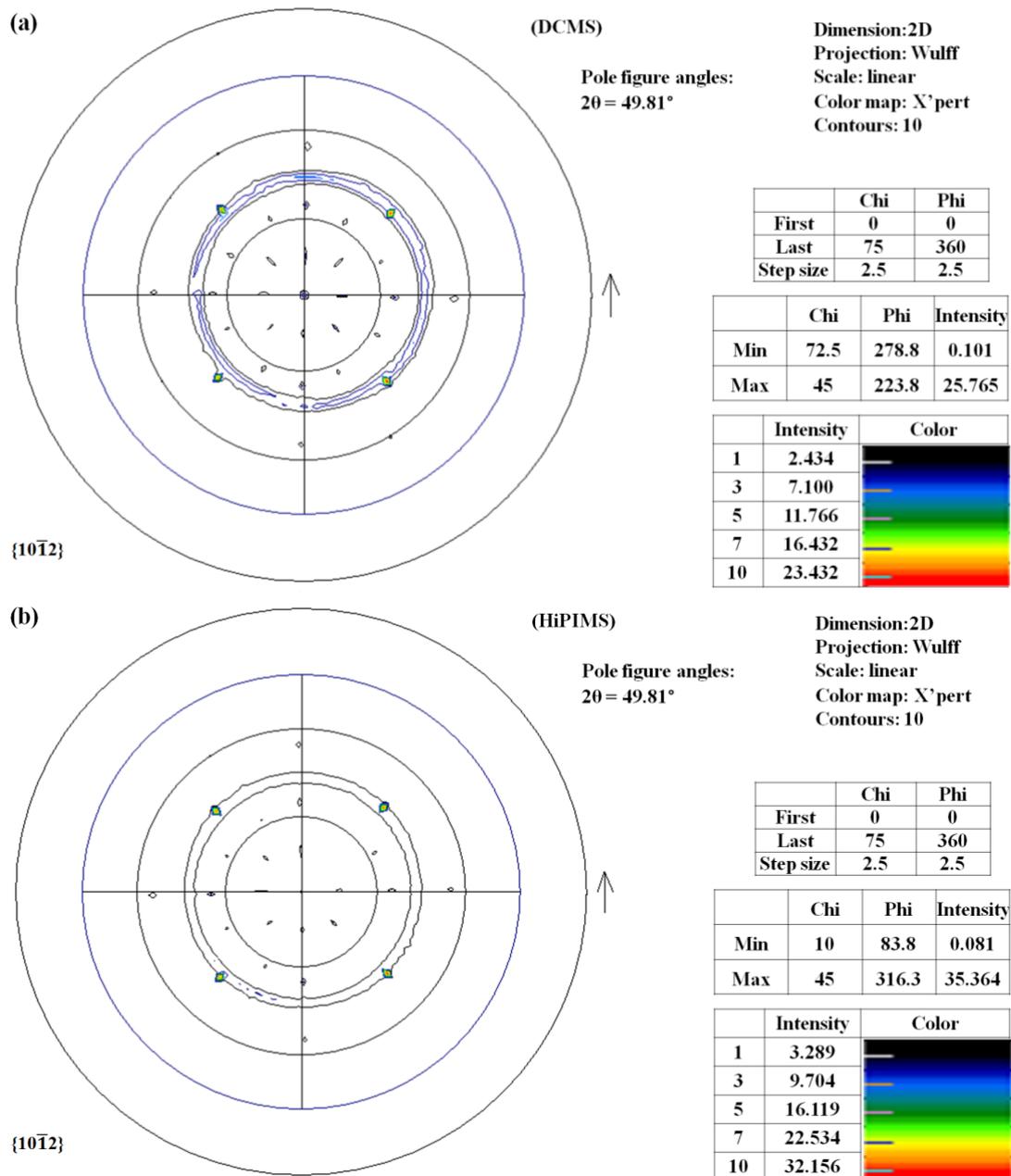


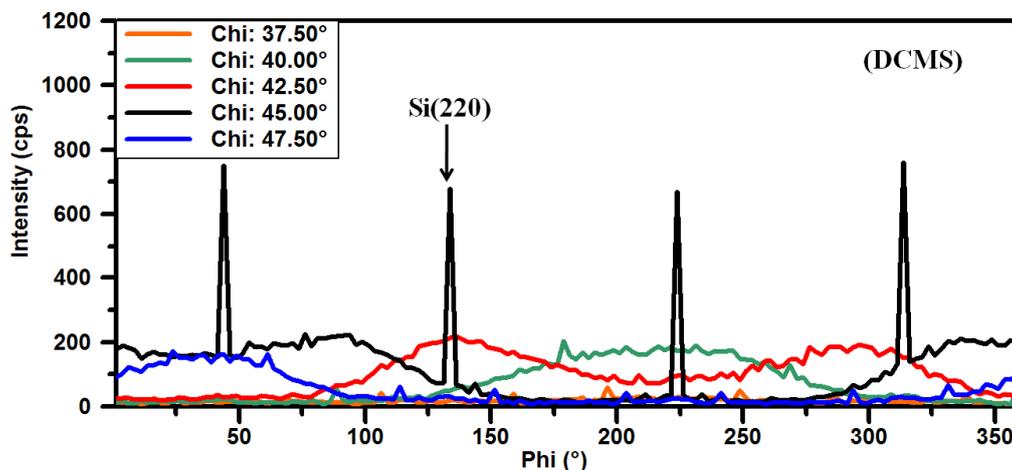
Figure 52: Figures de pôles  $\{10\bar{1}2\}$  d'AlN-h pour le film d'AlN déposé sur Si(100) par :

(a) DCMS et (b) HiPIMS.

Nous constatons également la présence de renforcements sur la fibre(0001), qui pourraient conduire à une croissance épitaxiale d'AlN sur Si, si l'épaisseur augmente. Comme la fibre (0001) est plus intense dans le cas du film d'AlN déposé par DCMS par rapport au film déposé par HiPIMS (Figure 52), la possibilité d'une croissance épitaxiale devrait être plus élevée.

D'autres réflexions, de faibles intensité, ont été également observées sur les deux figures de pôles  $\{10\bar{1}2\}$ . Ce sont ces pôles, qui ne peuvent pas être attribués au substrat Si(100), qui nous ont permis de confirmer la réponse de l'AlN cubique (cf.§4.3) [83].

Pour vérifier si l'asymétrie observée est due au film d'AlN ou à l'échantillon, nous avons tracé les Phi-scan de la figure de pôles  $\{10\bar{1}2\}$  d'AlN-h, pour les angles de tilt (Chi= 37,5° à 47,5° avec un pas de 2,5°) pour l'AlN/Si(100) déposé par DCMS (Figure 53).



**Figure 53:** XRD Phi-scan de la figure de pôles  $\{10\bar{1}2\}$  pour les angles de tilt Chi (37,5° à 47,5°) pour l'AlN/Si(100) en DCMS.

La figure 53 confirme que c'est la fibre (0001) de l'AlN-h qui est bien asymétrique, vue la réponse des plans  $\{220\}$  du Si(100) à Chi = 45° qui sont bien symétriques. Cette texture de fibre indique également que les colonnes d'AlN ne sont pas organisées dans le plan. Néanmoins, nous constatons la présence de renforcements sur la fibre (0001).

Le tracé des Phi- Scans (Figure 54) de la figure de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  permet de mieux visualiser les renforcements de la fibre (0001). La variation maximale d'intensité (700 cps) sur la fibre (0001) d'AlN-h à Chi= 62,5° est importante dans le cas de la couche d'AlN déposée par la méthode DCMS par rapport au film déposé par HiPIMS, avec la présence des renforcements dans les deux cas à Chi=62,5°.

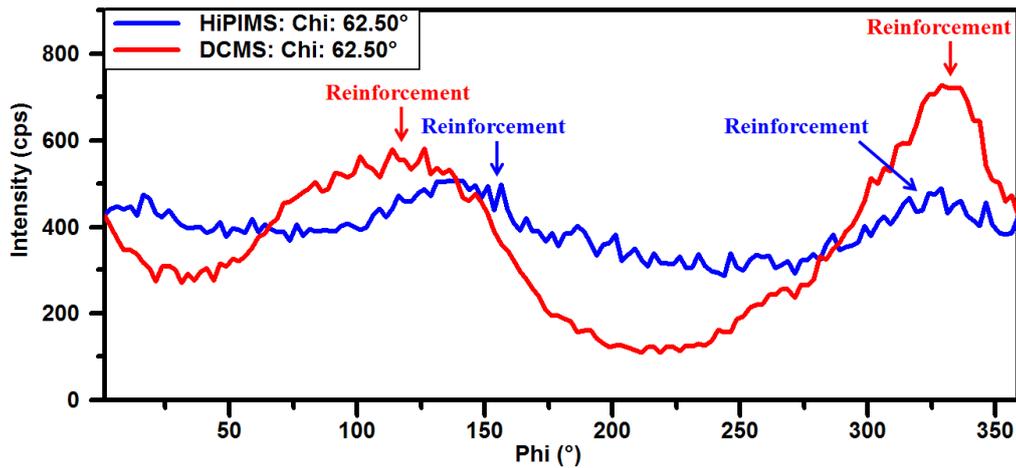


Figure 54: XRD Phi-scan de la figure de pôles  $\{10\bar{1}1\}$  pour l'angle de tilt  $\chi = 62,5^\circ$  pour les films d'AlN déposés sur Si(100) par DCMS et HiPIMS.

### 4.3. Caractérisation de la phase cubique d'AlN pour les films déposés sur Si(100) par DCMS et HiPIMS

L'étude de la phase cubique est plus complexe que celle de la phase hexagonale car, d'une part les raies sont moins marquées que celles de l'AlN-h et, d'autre part, il existe très peu de références en DRX qui permettent les comparaisons avec nos résultats.

La phase cubique est une phase largement minoritaire par rapport à la phase hexagonale. Sa mise en évidence dans notre travail est pratiquement fortuite, car totalement imprévue au départ. Nous avons décelé sa présence en analysant la figure de pôles (0002) de l'AlN-h, avec la visualisation d'autres taches, quand on élimine le centre de la FDP (figure 55) [86].

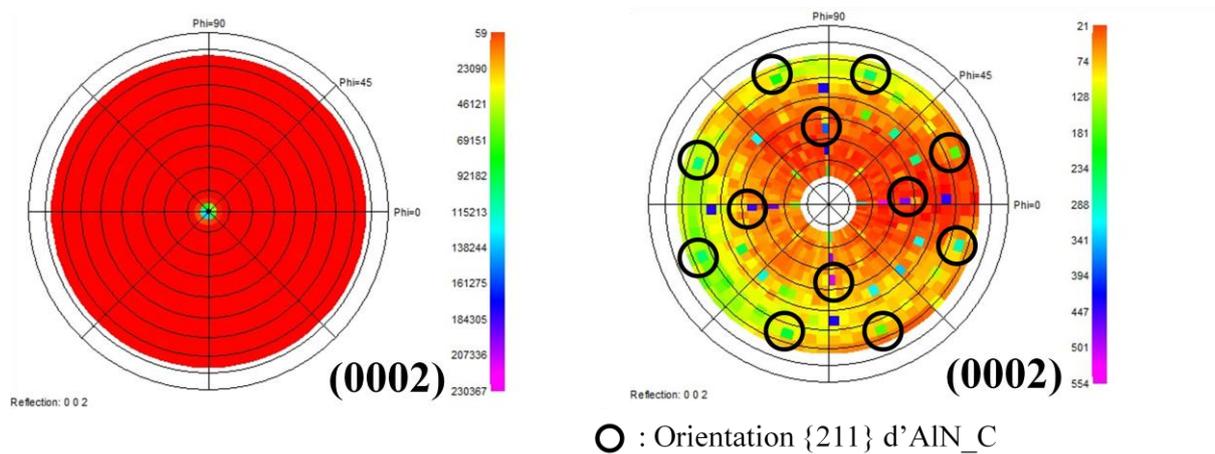
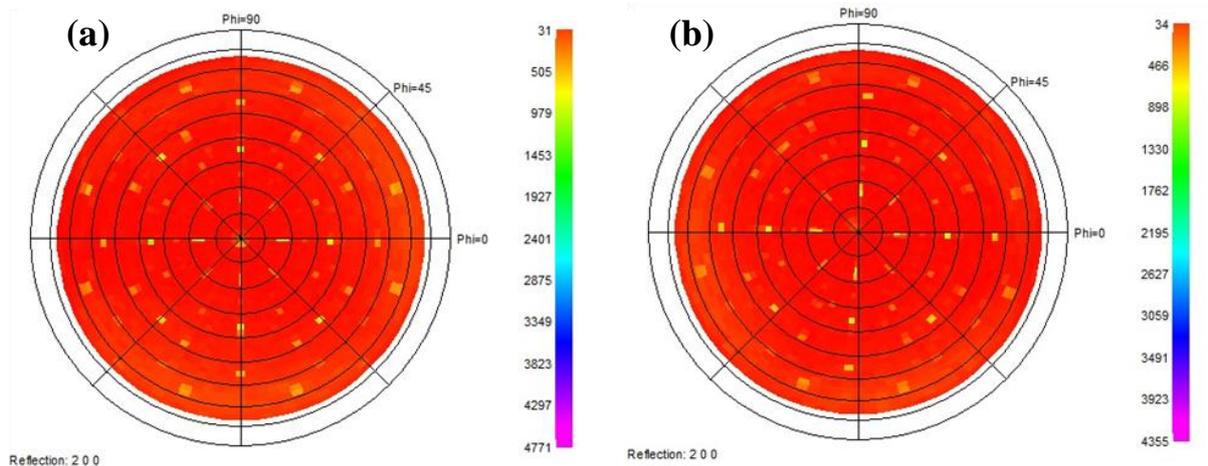


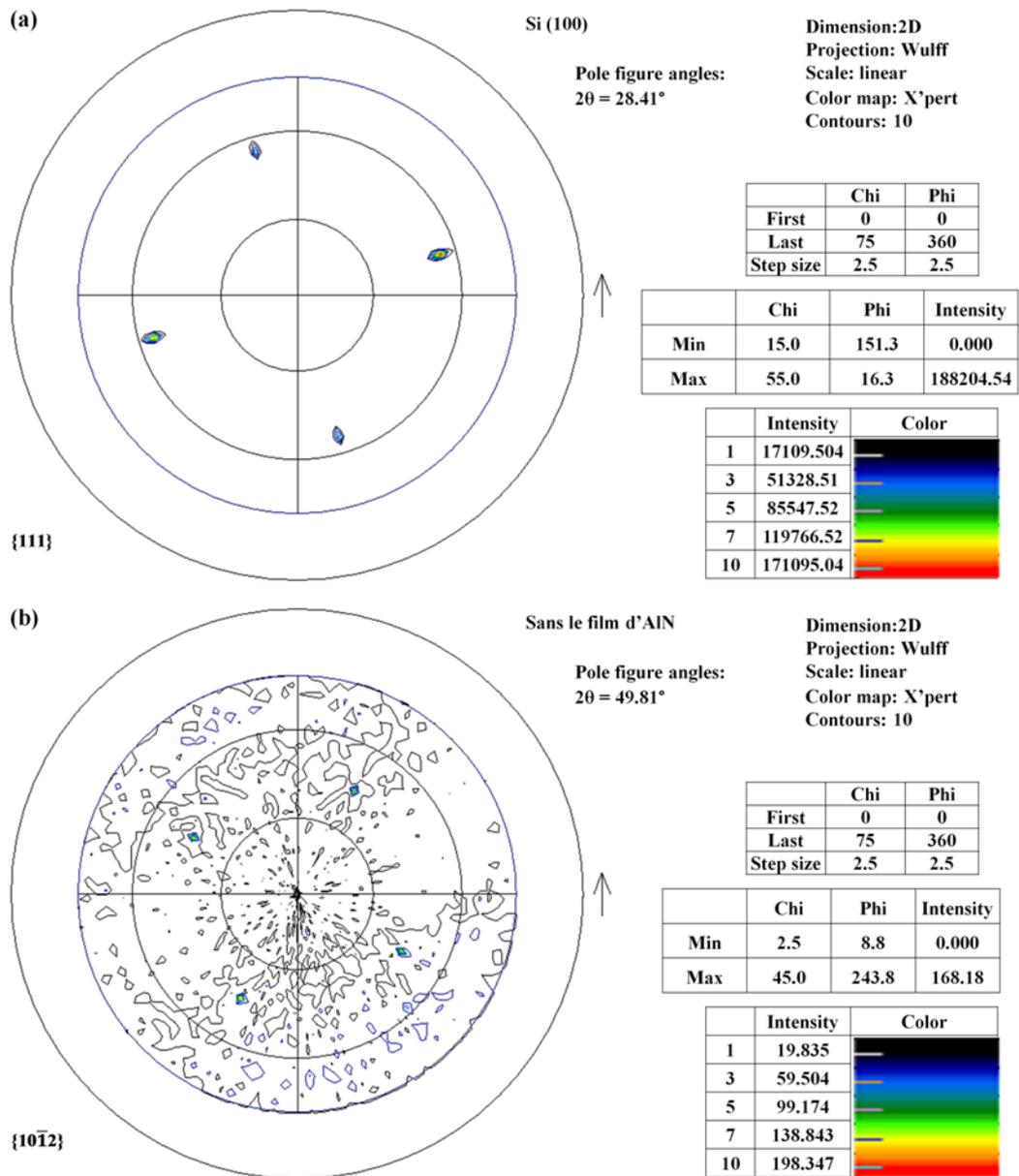
Figure 55: Figure de pôles expérimentales  $\{0002\}$  d'AlN-h (a)  $\chi = 0$  à  $75^\circ$  (b)  $\chi = 15$  à  $75^\circ$ .

Nous avons travaillé dans la suite de l'étude avec la figure de pôles  $\{200\}$  d'AlN-c ( $2\theta = 44,77^\circ$ ) qui est loin par rapport aux figures de pôles d'AlN-h, le  $2\theta$  d'AlN-h le plus proche est égal à  $49,81^\circ$  et correspond à la figure de pôles  $\{10\bar{1}2\}$ . La figure 56 montre la réponse expérimentale cubique  $\{200\}$  d'AlN-c pour les deux méthodes DCMS et HiPIMS, sur substrat Si(100).



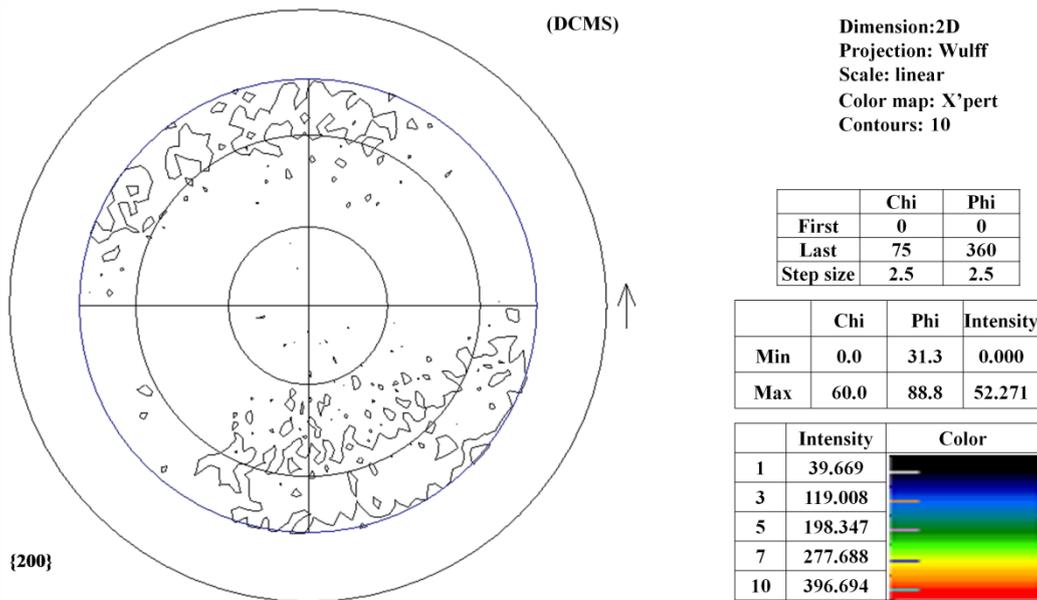
**Figure 56:** Figures de pôles expérimentales  $\{200\}$  ( $2\theta = 44,77^\circ$ ) de l'AlN-c pour les films d'AlN déposés par (a) DCMS (b) HiPIMS.

Dans le but de confirmer que la réponse multi cristalline appartient à l'AlN-c et non pas au substrat Si(100), nous avons réalisé les figures de pôles  $\{10\bar{1}2\}$  d'AlN-h et  $\{111\}$  du silicium pour un substrat de silicium sans le film d'AlN (Figure 57). La présence des 4 pôles sur les figures de pôles  $\{111\}$  et  $\{10\bar{1}2\}$  indique une réponse monocristalline. En revanche, aucune réponse multi-cristalline n'a été observée. Ces résultats de texture confirment que cette réponse multi-cristalline est due uniquement à la présence de la phase d'AlN-c et non pas au substrat de silicium orienté (100)



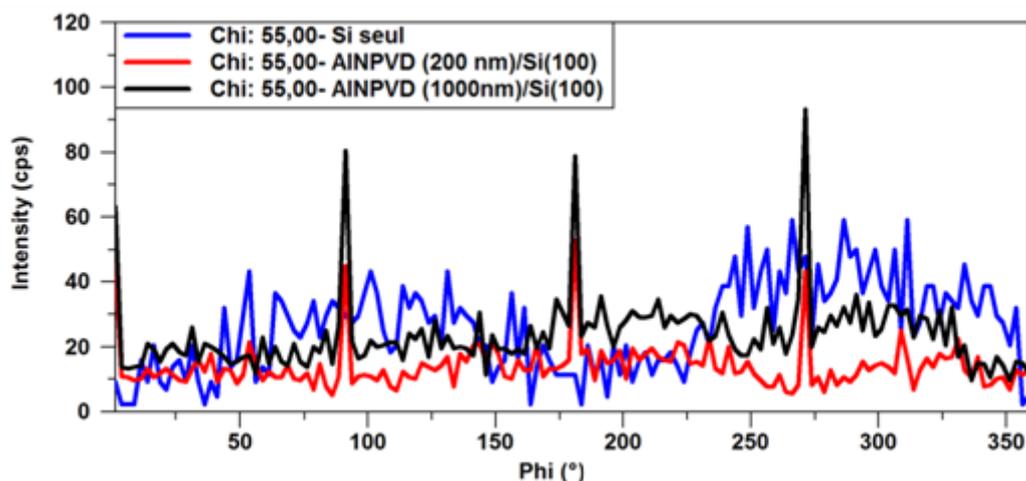
**Figure 57:** Figures de pôles (a)  $\{111\}$  ( $2\theta = 28,41^\circ$ ) du Si (b)  $\{10\bar{1}2\}$  ( $2\theta = 49,81^\circ$ ) d'AlN-h du substrat de Si(100) avant le dépôt de la couche d'AlN.

Nous avons tracé également la figure de pôles  $\{200\}$  d'AlN-c pour un substrat de silicium orienté (100) avant le dépôt d'AlN (figure 58). L'intensité est uniforme sur toute la figure de pôles et aucune symétrie n'a été observée sur cette figure de pôles.



**Figure 58:** Figure de pôles {200} ( $2\theta = 44,77^\circ$ ) de l'AlN-c pour le substrat du Si(100) avant le dépôt de la couche d'AlN.

Nous avons tracé les Phi-Scan de la figure de pôles {200} d'AlN-c de l'angle de tilt  $\text{Chi}=55^\circ$  pour le substrat Si(100), sans dépôt et après dépôt d'AlN pour deux épaisseurs, 200 nm et 1000 nm du film. Cette section ( $\text{Chi}=55^\circ$ ) permet de visualiser les raies {111} de la phase d'AlN-c (Figure 59).



**Figure 59:** XRD Phi-scan de la figure de pôles {200} ( $2\theta = 44,77^\circ$ ) d'AlN-c pour l'angle de tilt ( $\text{Chi} = 55^\circ$ ) pour : le Si(100) sans la couche d'AlN, l'AlN d'épaisseur de 200 nm et le film d'AlN de 1000 nm d'épaisseur.

Aucun pic de diffraction n'a été observé pour le substrat du silicium seul. Par contre, 4 pics de diffraction, espacés de 90°, correspondant à la famille de plans {111} d'AlN-c sont présents pour les deux autres cas. L'intensité de ces pics augmente avec l'épaisseur de la couche. Cela implique que cette réponse est bien due à la phase cubique du film d'AlN et non pas au substrat.

Les figures de pôles {200} indexées de la phase AlN-c des films d'AlN sont présentées sur la figure 60. Nous observons une réponse cristalline avec plusieurs orientations ou multicristalline, pour les deux méthodes DCMS et HiPIMS, avec des intensités plus marquées dans le cas de la méthode DCMS.

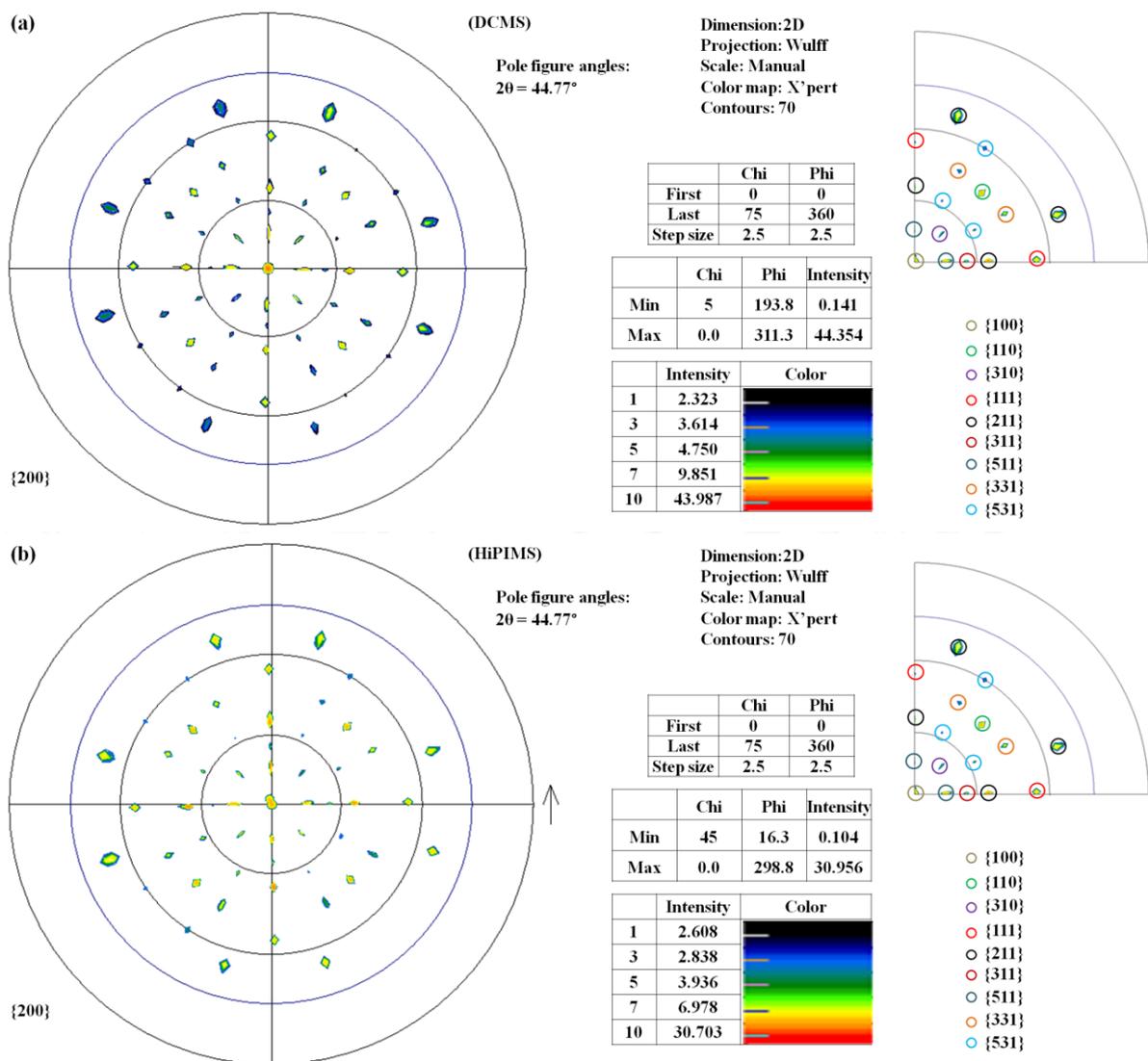


Figure 60: Figures de pôles {200} (2θ = 44,77°) de l'AlN-c pour les films d'AlN déposés par : (a) DCMS (b) HiPIMS.

Nous pensons que la croissance de films AlN commence par des cristallites d'AlN-c qui ont une orientation  $\{100\}$ . Au cours de la croissance, ces cristallites d'AlN-c d'orientation  $\{100\}$  observée au centre des figures de pôles se réorientent vers l'orientation  $\{111\}$ , observée à  $\text{Chi}=55^\circ$ , pour faciliter la croissance de l'AlN-h sous forme d'une fibre (0001).

S. Okubo et al. [82] ont montré que la couche d'AlN-c peut être formée à l'interface entre la couche d'AlN-h et un substrat MgO(100). Par contre, ils ont observé une croissance directe de l'AlN-h sur MgO(111). Nous avons utilisé l'analyse de ces auteurs pour mettre en place la mise en évidence de la phase l'AlN-c dans les films que nous avons caractérisés.

Nous avons calculé le désaccord de maille entre les différentes structures et orientations [83].

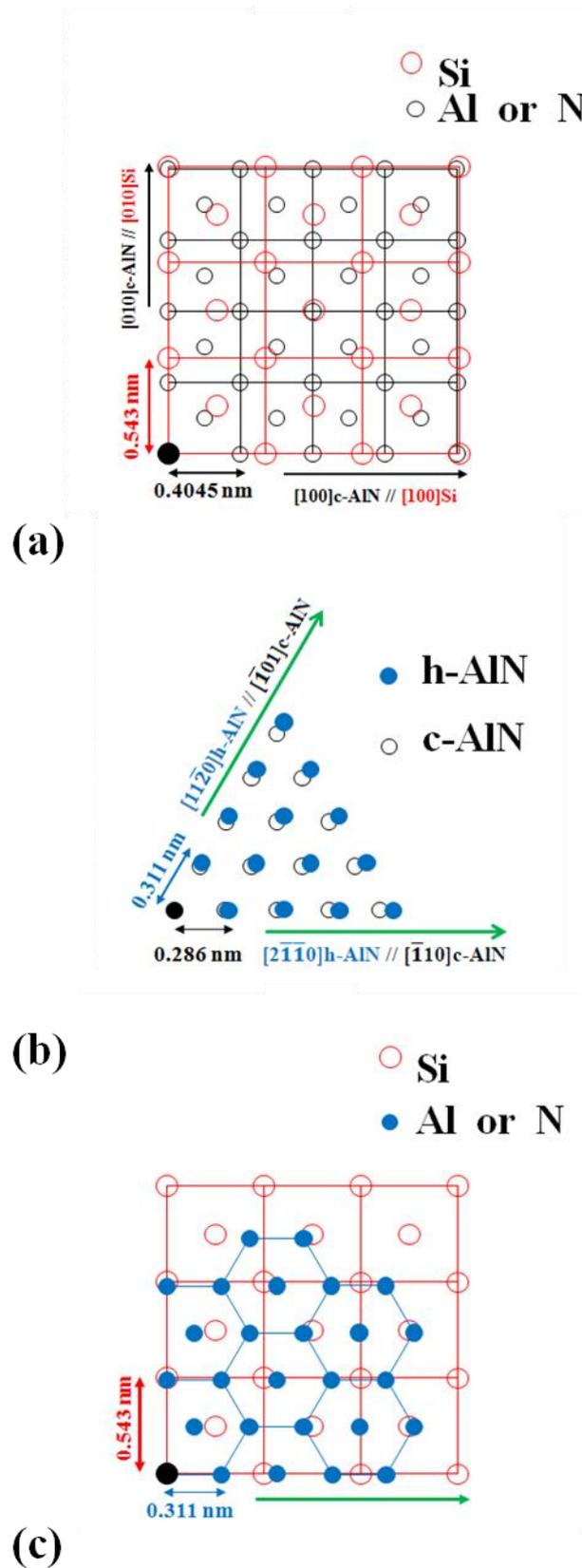
La figure 61 montre les arrangements atomiques de l'interface entre les différentes structures :

- d'AlN-c(100)/Si(100) projetée sur un plan  $\{100\}$ . Le désaccord de maille entre l'AlN-c (100) et le Si(100) est de 0,67% (Figure 61a).

- l'interface AlN-h (0002) / AlN-c (111) projetée sur un plan cubique  $\{111\}$  équivalent au plan hexagonal (0001). Le désaccord de maille entre l'AlN-h (0002) et l'AlN-c (111) est de 8,78% (Figure 61b).

- d'AlN-h(0002)/ Si(100) projetée sur un plan  $\{100\}$ , le désaccord de maille dans ce cas (Figure 61c) est de 42,72%, beaucoup plus important que le premier et aussi que le deuxième. Son obtention nécessitera obligatoirement une énergie plus importante.

Le réseau carré du plan Si(100) est en désaccord avec le réseau hexagonal du plan AlN-h (0002) [83, 87]. Ce cas est similaire à celui entre AlN-h(0002) / MgO(100) et h-AlN(0002) / TiN(100) [81, 88]. L'énergie interfaciale entre AlN-c / Si (100) pourrait être relativement faible par rapport à celle de l'interface entre h-AlN(0002) et Si(100). Le faible désaccord de maille entre AlN-h(0002) et AlN-c(111) rend facile la croissance de l'AlN-h sous forme d'une fibre (0001) sur Si(100). Nos résultats de texture de la phase hexagonale montrent que nous avons une texture de fibre. La figure 56 montre également la possibilité d'une croissance épitaxiale de l'AlN-h sur Si(100) grâce à la présence des renforcements à  $\text{Chi} = 62,5$  pour les deux méthodes de dépôt DCMS et HiPIMS.



**Figure 61:** Arrangements atomiques de : (a) AlN-c (100)/ Si(100), AlN-h (b) (0002)/AlN-c (111) et (c) AlN-h (0002)/ Si(100).

### Conclusion

Pour les deux méthodes de dépôt utilisées DCMS et HiPIMS, les films d'AlN ont une texture de fibre (0001). Cette dernière est symétrique pour la méthode HiPIMS alors qu'elle est tiltée de  $2,5^\circ$  dans le cas de la technique DCMS. La présence de renforcements sur la fibre (0001) montre que les colonnes de la couche d'AlN présentent des orientations préférentielles dans le plan, mais nous sommes encore loin de couches épitaxiées, nécessaires à la croissance de GaN.

La caractérisation de la texture par diffraction des rayons X (DRX) a permis la mise en évidence de la phase cubique d'AlN, qui se constitue très probablement comme une couche de transition entre l'AlN-h et le substrat Si(100). La phase cubique d'AlN montre une réponse cristalline avec plusieurs orientations, pour les deux méthodes DCMS et HiPIMS, avec des intensités plus marquées dans le cas de la méthode DCMS. Les calculs des misfits entre les différentes structures et orientations confirment que la croissance de l'AlN hexagonale sous forme de fibre (0001) est facilitée par cette phase cubique de l'AlN.

**Conclusions et Perspectives**

## Conclusions et Perspectives

---

L'objectif principal de ce travail est l'étude de l'influence de l'anisotropie sur la qualité des films d'AlN. Les films d'AlN sont déposés à basse température par le procédé magnétron (DCMS ou HiPIMS). L'AlN est un composé défini polymorphe, il peut se présenter sous forme stable hexagonale ou sous forme cubique, considérée comme métastable. Les recherches ont surtout porté sur la première phase, bien que la seconde possède des propriétés thermiques et électriques souvent plus performantes. Au cours de ce travail, nous avons étudié en premier lieu l'évolution de la texture de la phase hexagonale AlN-h par la technique de diffraction des rayons X. En second lieu, nous nous sommes intéressés à la phase cubique d'AlN, à partir de l'observation de taches de diffraction sur les figures de pôles de l'AlN-h. Nous avons alors accordé une attention particulière à cette phase cubique qui est moins étudiée dans la littérature. L'analyse des textures d'AlN-h (chapitre 3) a montré que :

- L'épaisseur de la couche influe sur la fibre de l'AlN-h à travers l'apparition de renforcements, plus ou moins marqués, sur les figures de pôles pour les films d'AlN déposés sur Si(100). Les colonnes de la couche d'AlN évoluent quand l'épaisseur augmente et acquièrent la même orientation avec des plans (0001) parallèles à la surface du substrat, la fibre (0001) devient plus intense.

- Pour les deux taux d'azote étudiés, 20% et 35%, les films d'AlN ont toujours une texture de fibre avec une plus faible dispersion dans le cas du film déposé à 35% de taux d'azote. Il n'y a pas de relation d'épitaxie entre les colonnes d'AlN et celles du silicium (100), mais nous avons constaté la présence de renforcements dans les deux cas.

- La fibre (0001) est toujours présente en passant du réacteur 2" au réacteur 8", mais les renforcements sont plus marqués dans le premier cas.

- L'utilisation d'un substrat Si(111) donne de même une fibre (0001), comme pour le Si(100). La croissance de la couche d'AlN élaborée par DCMS à basse température sur du Si ne permet donc pas une épitaxie de l'AlN. La présence de renforcements sur la fibre (0001), pourraient éventuellement conduire à une croissance épitaxiale d'AlN sur Si, si l'épaisseur augmente.

- L'utilisation d'un substrat SiC-6H, en accord de maille avec l'AlN-h a permis d'obtenir une croissance épitaxiale d'une couche d'AlN de 400 nm, avec la présence de pôles (0002) indiquant une structure monocristalline, sans présence de fibre.

- la qualité des couches d'AlNPVD obtenues avec l'utilisation de couches tampon, AlNKyma et AlNMBE, est variable. Dans le dernier cas, nous avons observé une reprise de croissance épitaxiale d'AlN PVD, même pour une couche de 2 nm d'AlNMBE. Dans le cas

## Conclusions et Perspectives

---

d'AlNk<sub>y</sub>ma, malgré l'épaississement important du film d'AlNPVD, on observe une faible variation d'intensité avec une certaine dispersion de la réponse.

- Pour les deux méthodes de dépôt utilisées DCMS et HiPIMS, les films d'AlN de 3µm d'épaisseur ont une texture de fibre (0001), avec un tilt de 2,5° dans le cas de la technique DCMS et une fibre parfaitement symétrique pour la technique HiPIMS.

L'analyse des textures par DRX a permis également de mettre en évidence la phase cubique d'AlN, contrairement à nos prévisions de départ. Nous avons montré, dans le chapitre 4, que c'est probablement une couche de transition entre l'AlN-h et le substrat de Si(100). La phase cubique d'AlN montre une réponse cristalline avec plusieurs orientations, pour les deux méthodes DCMS et HiPIMS, avec des intensités plus marquées dans le cas de la méthode DCMS.

Les calculs du misfit entre les différentes structures et orientations confirment que la croissance de la fibre (0001) de l'AlN hexagonale est facilitée par la présence de la phase cubique. Nous avons considéré les misfits entre : AlN-c(100)/Si(100), l'interface AlN-h (0002)/AlN-c(111) et AlN-h(0002)/Si(100). Dans ce dernier cas, qui correspond à une croissance directe de la fibre hexagonale (0001) sur Si(100), le désaccord de maille est de 42,72%. Par contre, si on considère une transition par la phase cubique, nous avons successivement deux désaccords de maille beaucoup plus faibles : 0,67% pour la croissance de l'AlN-c sur Si(100) et 8,78% pour la croissance l'AlN-h (0002) sur l'AlN-c (111). Dans ce dernier cas de croissance de la fibre (0001) à partir de la phase cubique, l'énergie interfaciale pourrait être relativement faible par rapport à celle de l'interface obtenue directement entre Si(100) et la fibre (0001) de la phase AlN-h.

Au terme de cette étude sur les textures des films AlN, deux groupes de perspectives apparaissent, dans le cadre des méthodes de dépôt et celui de la caractérisation de texture :

- L'amélioration de l'interface AlN(PVD)/Si et la croissance épitaxiale de l'AlN directement sur Si(111) et Si(100), à basse température avec plusieurs séries d'échantillons, pour définir le rôle des différents paramètres de dépôt.
- La détermination des paramètres de calcul de la fonction texture, applicables au cas des couches minces, à travers la caractérisation quantitative de la phase hexagonale et la caractérisation de la phase cubique par EBSD et/ou MET.

**Bibliographie**

## Bibliographie

---

- [1] H. Yamashita, K. Fukui, S. Misawa, S. Yoshida, "Optical properties of AlN epitaxial thin films in the vacuum ultraviolet region", *J. Appl. Phys.* 50 (1979) 896.
- [2] V. Soukhoveev, O. Kovalenkov, V. Ivantsov, A. Syrkin, A. Usikov, V. Maslennikov, V. Dmitriev, "Recent results on AlN growth by HVPE and fabrication of free standing AlN wafers", *Phys. Stat. Sol.* 3 (2006) 1653-1657.
- [3] G. A. Slack, R. A. Tanzilli, R. O. Pohl, and J. W. Vandersande, "The intrinsic thermal conductivity of AlN", *J. Phys. Chem. Solids* 48, (1987) 641.
- [4] K. Tsubouchi, N. Mikoshiba, "Zero-temperature-coefficient SAW devices on AlN epitaxial films", *IEEE Transactions on Sonics and Ultrasonics* 32 (1985) 634-644.
- [5] Stefan Bengtsson, Mats Bergh, Manolis Choumas, Christian Olesen and Kjell O. Jeppson, "Applications of Aluminium Nitride films Deposited by Reactive Sputtering to Silicon-On-Insulator Materials", *Japanese Journal of Applied Physics*, Volume 35 (1996) 8.
- [6] V. Mortet, O. Elmazria, M. Nesladek, M.B. Assouar, G. Vanhoyland, J. D'Haen, et al., "Surface acoustic wave propagation in aluminum nitride-unpolished freestanding diamond structures", *Appl. Phys. Lett.* 81 (2002) 1720.
- [7] J. Li, J.Y. Lin, H.X. Jiang, "Growth of III-nitride photonic structures on large area silicon substrates", *Appl. Phys. Lett.* 88 (2006) 171909.
- [8] J. Camus, "Couches minces de nitrure d'aluminium à basse température pour la gestion thermique des composants de puissance", Thèse de doctorat, Université de Nantes, 2015.
- [9] Jean-Christophe MORENO, "Étude de la croissance et des propriétés de films d'AlN épitaxiés par jets moléculaires sur substrat silicium : application aux résonateurs acoustiques et perspectives d'hétérostructures intégrées sur silicium", Thèse de doctorat, Université de Nice-Sophia Antipolis-UFR sciences, 2009.
- [10] C. Duquenne, "Procédés plasmas pour l'optimisation des matériaux intervenant dans le management thermique et la passivation de composants de puissance hyperfréquences à base de GaN et AlGaN", Thèse de doctorat, Université de Nantes, 2008.

## Bibliographie

---

- [11] B. Abdallah, “Dépôt de couches minces de nitrures par pulvérisation magnétron (PVD) : étude de la structure et de la contrainte des films”, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 2008.
- [12] A. Soussou, “Synthèse de couches minces de nitrures d'aluminium et de Bore par pulvérisation cathodique magnétron classique et à très haute puissance pulsée pour la gestion thermique des composants à haute température de fonctionnement”, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 2011.
- [13] K. Ait Aissa, “Élaboration des couches minces de Nitrure d'Aluminium par pulvérisation magnétron réactive (DCMS, HiPIMS) pour la gestion thermique des dispositifs microélectroniques ”, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 2013.
- [14] B. Abdallah, C. Duquenne, M.P. Besland, E. Gautron, P.Y. Jouan, P.Y. Tessier, et al., “Thickness and substrate effects on AlN thin film growth at room temperature”, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* 43 (2008) 309–313.
- [15] Jérémy Legrand, “Étude de la photoluminescence de films d'AlN dopé erbium (AlN-Er) déposés par PVD magnétron RF”, Thèse de doctorat, 2013, Institut Jean Lamour – Université de Lorraine.
- [16] A. Bourret, A. Barski, J.L. Rouviere, G. Renaud, A. Barbier, “Growth of aluminum nitride on (111) silicon: Microstructure and interface structure”, *J. Appl. Phys.* 83 (1998) 2003.
- [17] K. Ait Aissa, N. Semmar, A. Achour, Q. Simon, A. Petit, J. Camus, C. Boulmer-Leborgne and M.A. Djouadi, “Achieving high thermal conductivity from AlN films deposited by high-power impulse magnetron sputtering”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, (47), (2014) 35.
- [18] H.nZhang, J.M. Liu, F.X. Lu, “Effect of nanostructured AlN coatings on the oxidation-resistant properties of optical diamond films “, *Applied Surface Sciences* 253 (2007) 3571.
- [19] G. Bu, D. Ciplys, M.Shur, L.J. Schowalter, S. Schujman, R. Gasko, “Electromechanical coupling coefficient for surface acoustic waves in single-crystal bulk aluminum nitride”, *Applied Physics Letters* 84 (2004) 4611-4613.

## Bibliographie

---

- [20] M. Okamoto, M. Yamaoka, Y.K. Yap, M. Yoshimua, “Epitaxial aluminum nitride thin films grown by pulsed laser deposition in various nitrogen ambients “, *Diamond and Related Materials* 9 (2000) 516-519.
- [21] J. Meinschien, G. Behme, F. Falk, H. Stafast, “Smooth and oriented AlN thin films deposited by laser ablation and their application for SAW devices ”, *Applied Physics A* 69 (1999) 683-686.
- [22] J.S. Wang and K.M. Lakin, “ Low-temperature coefficient bulk acoustic wave composite resonators”, *Applied Physics Letters* 40 (1982) 308-210.
- [23] M. Steoyama, M. Irie, H. Ohara, “Thermal stability of TiN/AlN superlattices” ,*Thin Solid Films* 341 (1999) 126.
- [24] D. G. Kim, T.Y. Seong, Y. Baik, “Oxidation behavior of TiN/AlN multilayer films prepared by ion beam-assisted deposition”, *Thin Solid Films* 397 (2001) 203.
- [25] I. C. Oliveira, K.G. Grigorov, H.S. Maciel, M. Massi, C. Otani, “High textured AlN thin films grown by RF magnetron sputtering; composition, structure, morphology and hardness”, *Vacuum* 75 (2004) 331–338.
- [26] K. Ait Aissa, A. Achour, J. Camus, L. Le Brizoual, P.-Y. Jouan, M.-A. Djouadi, “Comparison of the structural properties and residual stress of AlN films deposited by dc magnetron sputtering and high power impulse magnetron sputtering at different working pressures”, *Thin Solid films*. 550 (2014) 264-267.
- [27] R. Machunze, A.P. Ehiasarian, F. D. Tichelaar , G.C.A.M. Janssen, “Stress and texture in HIPIMS TiN thin films”, *Thin Solid Films* 518 (2009) 1561–1565.
- [28] D. Mattox, “Handbook of physical deposition (PVD) processing, Noyes”, Westwood, New Jersey, U.S.A., 1998.
- [29] W. Möller, “ Dynamic Monte Carlo Simulation of Ion Beam and Plasma Techniques”, *Symposium E – Low Energy Ion Beam and Plasma Modification of Materials(2011) Volume* 223.

## Bibliographie

---

- [30] J.A. Thornton, “The microstructure of sputter-deposited coatings”, *J Vac Sci Technol.* A4 (1986) 3059.
- [31] Lech Pawlowski, “Dépôts Physiques: Techniques, Microstructures et Propriétés”, *Coating processes* (2003) Presses polytechniques et universitaires romandes, CH-1015, Lausanne, Pages (99-113).
- [32] S. Mahieu, D. Depla, “Reactive sputter deposition of TiN layers: modelling the growth by characterization of particle fluxes towards the substrate”, *J. Phys. Appl. Phys.* 42 (2009) 053002.
- [33] A. Anders, “A structure zone diagram including plasma-based deposition and ion etching”, *Thin Solid Films*, 518 (2010) 4087– 4090.
- [34] D.Mattox, “Handbook of physical deposition (PVD) processing”, Noyes, Westwood, New Jersey, U.S.A., 1998.
- [35] K. Sarakinos, J. Alami, S. Konstantinidis, “High power pulsed magnetron sputtering: A review on scientific and engineering state of the art”, *Surf. Coat. Technol.* 204 (2010) 1661–1684.
- [36] Thierry Baudin, Daniel Chateigner, Claude Esling, Luca Lutterotti et Magali Morales, “Analyse des textures cristallographiques et des microstructures”, *Reflète phy*, 80-85, 2015, <https://doi.org/10.1051/refdp/20154445080>.
- [37] Fatima-Zohra MAMMERY, “Étude de l'évolution microstructurale au cours de la croissance des revêtements de nitrures, analyse par MEB-EDX-EBSD”, Thèse de magister Université de Constantine, 2006.
- [38] Guetaz V, “Caractérisation de l'état d'engagement de l'azote au cours du processus de transformation d'aciers calmés à l'aluminium : conséquences sur les propriétés d'emboutissabilité après recuit continu”, Thèse de Doctorat, Institut National des Sciences Appliquées, Lyon, (2002).
- [39] Bargel H.J. et Schulze G., *Werkstoffkunde*, Dusseldorf VDI-Verlag GmbH, (1988).

## Bibliographie

---

- [40] François Léon, Développement de l'analyse quantitative de texture utilisant des détecteurs bidimensionnels : application à la texture magnétique, Thèse de doctorat, Université de Caen, Soutenu en 2006.
- [41] Abdelhak AYAD, « Étude de l'influence de l'anisotropie sur la recristallisation et la croissance des grains. Simulation et application aux aciers IF », Thèse de doctorat, Université de Constantine 1, 2013
- [42] Bunge H.J et Esling.C, Quantitative Texture Analysis (1982), pages 551.
- [43] Merlin J., Fouquet F., Massardier V., «Métallurgie : Applications au cas des tôles minces en acier-Du processus de transformation à la mise en oeuvre», Cours CAST, (2001).
- [44] Raabe. D, "Modelling of active slip systems, Taylor factors and grain rotations during rolling and compression deformation of polycrystalline intermetallic  $L1_2$  compounds", Acta Metall Mater. 43(1995) 1531-1540.
- [45] Roe R.J, "Description of Crystallite Orientation in Polycrystalline Materials. III. General Solution to Pole Figure Inversion", J. Appl. Phys. 36 (1965) 2024-2031.
- [46] Bunge H.J, "Zur Darstellung allgemeiner Texturen", Z.Metallkunde. 56(1965)872-874.
- [47] Y.N. Wang, J.C. Huang, " Texture analysis in hexagonal materials", Materials Chemistry and Physics 81 (2003) 11–26.
- [48] Penelle R, Parniere P, École d'été Oléron, Ed. F. Moussy et P. Franciosi IRSID, p156, Paris, (1990).
- [49] Coulomb P, " Les textures dans les métaux de réseau cubique", Ed. Dunod, Paris, (1972).
- [50] Rosenberg A, Tiller W. A, "The relationship between growth forms and the preferred direction of growth", Acta Metallurgica 5, (1957) p 565.

## Bibliographie

---

- [51] Calnan E.A, Williams B.E, "Observations on the Tension Texture of Aluminium", Transactions A.I.M.E. V 194, p743, (1952).
- [52] Eric Derniaux, "Étude de structures NiCoCrAlY / Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> / TiO<sub>x</sub> / Pt / AlN déposées par pulvérisation cathodique sur superalliage base Ni pour capteurs de pression haute température", Thèse de doctorat de l'université de Caen, Soutenu en 2007.
- [53] C. V. Thompson and R. Carel, "Texture development in polycrystalline thin films", Mater. Sci. Eng., B 32, 211 (1995).
- [54] B. Aspar, R. Rodriguez-Clemente, A. Figueras, B. Armas, and C. Combescure, "Influence of the experimental conditions on the morphology of CVD AlN films" , J. Cryst. Growth 129, (1993) 56.
- [55] H. Suzuki, Bull, "Preparation and characterization of ferroelectric, Thin Films By SOL-GEL Method", Ceram. Soc. Jpn. 37, (2002) 152.
- [56] F. Martin, P. Muralt, M. A. Dubois, and A. Pezous, "Thickness dependence of the properties of highly c-axis textured AlN thin films" , J. Vac. Sci. Technol. A 22, (2004) 361.
- [57] J. M. E. Harper, K. P. Rodbell, "Microstructure control in semiconductor metallization", Journal of Vacuum Science & Technology B, 15 (1997), p763.
- [58] C. W. T. Bulle-Lieuwma, A. H Van Ommen, J. Hornstra, .N. A. M. Aussems, "Observation and analysis of epitaxial growth of CoSi<sub>2</sub> on (100) Si", Journal of Applied Physics, 71 (1992), p2211.
- [59] C. Detavernier, A.S. Ozcan, J. Jordan-Sweet, E.A. Stach, J. Tersoff, F.M. Ross, C. Lavoie, "An off-normal fibre-like texture in thin films on single-crystal substrates", Nature, 426 (2003), p641.
- [60] "X'Pert Texture User's Guide", Philips Analytical; First edition, January 1999.
- [61] Couterne, J-C, et G Cizeron. "Phénomène de défocalisation lié à la géométrie de la chambre de texture de Schulz et incidence sur l'intensité mesurée", Journal of Applied Crystallography 4, (1971) 461.

## Bibliographie

---

- [62] Heizmann, J-J, et C Laruelle. “Simultaneous measurement of several x-ray pole figures”, *Journal of Applied Crystallography* 19, 1986: 467-472.
- [63] François Léon, “Développement de l’analyse quantitative de texture utilisant des détecteurs bidimensionnels : application à la texture magnétique”, Thèse de doctorat, Université de Caen, Soutenu en 2006.
- [64] B. Moreau, F. Wagner, H. Gobel, “Optimization of texture determination of thin films from X-ray diffraction measurements”, *Materials Science Forum* Vol. 157-162 (1994), pp. 159-166.
- [65] D. Chateigner, P. Germi, M. Pernet, “X-ray texture analysis in films by reflection method: principal aspects and applications”, *Materials Science Forum* Vol. 157-162 (1994), pp. 1380-1386.
- [66] M. Van Meerssche, J. Feneau-Dupont, “Introduction à la cristallographie et à la chimie structurale”, Edition Peeters, Paris (1984).
- [67] D. Chateigner, “Combined Analysis: structure–texture–microstructure–phase–stresses–reflectivity determination by x-ray and neutron scattering”, (2006).
- [68] H. J. Bunge; Z, “Zur Darstellung allgemeiner texturen”, *Metallkde* Bd, 56 (1965) H. 12, pp. 872-874.
- [69] D. Ruer, R. Baro, "Méthode vectorielle d'analyse de la texture cristallographique", *Mémoires scientifiques revue métallurgie* – Juillet 1979.
- [70] S. Matthies and G. W. Vinel, “On the reproduction of the Orientation Distribution Function of texturized samples from reduced pole figures using the conception of a conditional ghost correction”, *Phys. Stat. Sol. B* 112 (1982), pp. K111-K120.
- [71] L. Yansheng, W. Fu, X. Jiazheng, L.Zhide, “Estimation of the true orientation distribution function determination of maximum entropy method by the Taylor model”; *J.Appl.Cryst.* 26 (1993), pp. 268-271.

## Bibliographie

---

- [72] B. Riah, A. Ayad, J.Camus, A. Djouadi & N. Rouag, “Textured growth of AlN films deposited on Si(100) and Si(111) by dc reactive magnetron sputtering”, 14<sup>th</sup> International Symposium on Reactive Sputter Deposition\_MIATEC-RSD, December 08-11, 2015\_Paris\_FRANCE.
- [73] B. Riah, A. Ayad, J.Camus, F.Boukari, A. Djouadi & N. Rouag, «Evolution of texture and residual stresses with the thickness for AlN films deposited by DCMS on Si (100)” », *5th International Conference on Welding, Non Destructive Testing and Materials and Alloys Industry (IC-WNDT-MI'16)* in Oran, Algeria on November 26<sup>th</sup> - 28<sup>th</sup>, 2016.
- [74] J.M.E. Harper, J.J. Cuomo, H.T.G. Hentzell, “Quantitative ion beam process for the deposition of compound thin films”, *Appl. Phys. Lett.* 43 (1983) 547.
- [75] V. Lebedev, J. Jinschek, U. Kaiser, B. Schröter, W. Richter and J. Kräußlich, “Epitaxial relationship in the AlN/Si(001) heterosystem”, *Appl. Phys. Lett.* 76, (2000), p 2029.
- [76] Sung-Ui Hong, Gee-Pyeong Han, Mun-Cheol Paek, Kyung-Ik Cho, and S-G Yoon, “A Model for the Growth of AlN Films on Silicon Substrates by Plasma-Assisted Molecular Beam Epitaxy”, *Electrochemical and Solid-State Letters*, 5 (7) (2002), p 54.
- [77] C-R. Aita, “Basal orientation aluminum nitride grown at low temperature by rf diode sputtering”, *J. Appl. Phys.* 53(3), March (1982), p 1807.
- [78] C-R. Aita et C.J. Gawlak, “The dependence of aluminum nitride film crystallography on sputtering plasma composition”, *J. Vac. Sci. Technol.* A1 (2), Apr.-June (1983), p 403.
- [79] M. He, N. Cheng, P. Zhou, H. Okabe and B. Halpern, “Preparation of nearly oxygen-free AlN thin films by pulsed laser deposition”, *J. Vacc. Technol. A* Vol 16 (1998), p 2372.
- [80] K.Uehara, “AlN epitaxial film on SiC-6H(0001) using for GHz-Band SAW devices”, Conference Paper *in* Proceedings of the IEEE Ultrasonics Symposium (2003) 905 - 908 Vol.1, Honolulu, HI, USA, USA.
- [81] CREATIVEPI, Projet ANR-09-NANO-024-01, 2011.
- [82] Soichiro Okubo, Noriyoshi Shibata, Tomohiro Saito, Yuichi Ikuhara, “Formation of cubic-AlN layer on MgO(100) substrate”, *Journal of Crystal Growth.* 189/190 (1998) 452-456.

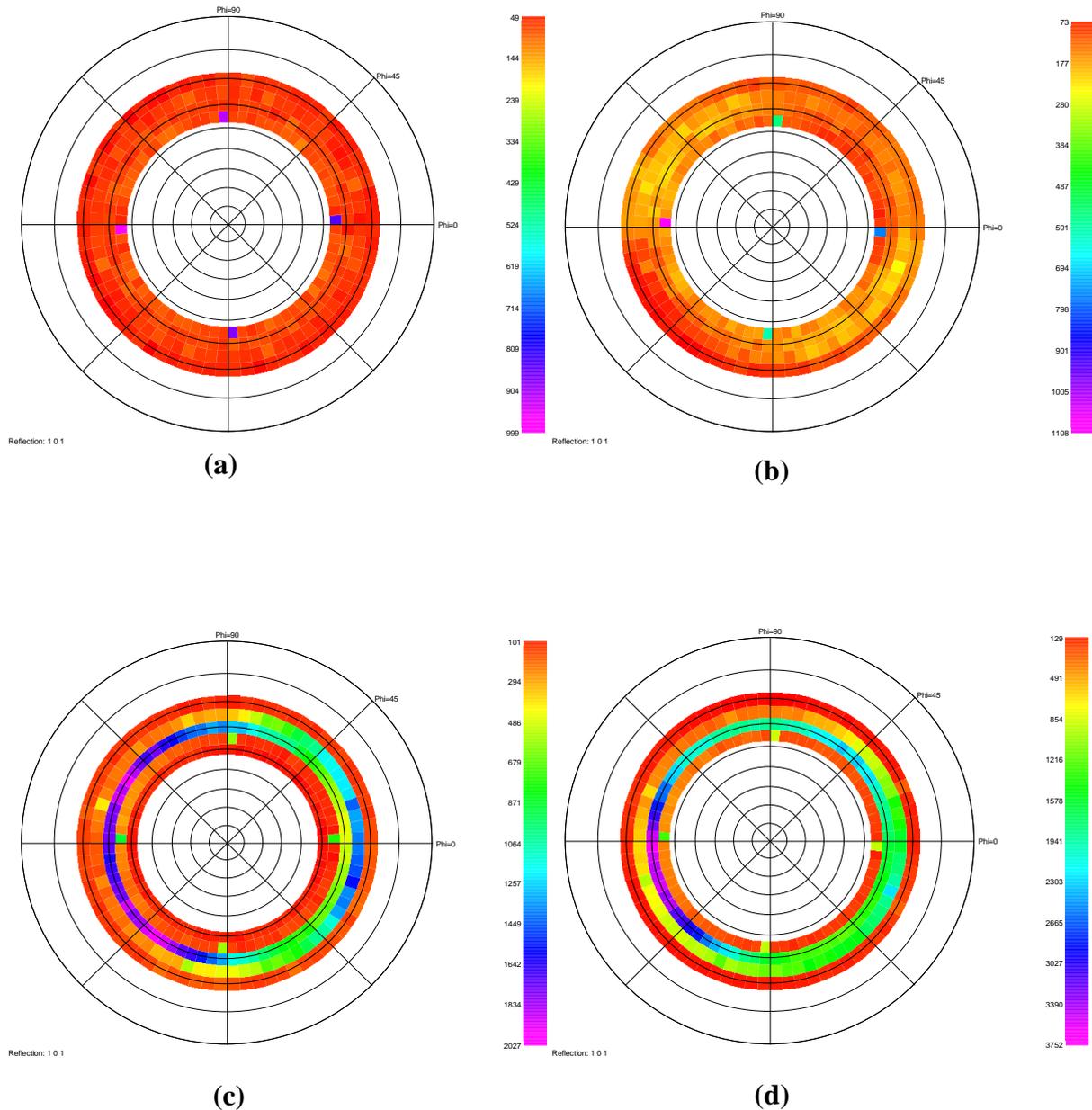
## Bibliographie

---

- [83] B. Riah, A. Ayad, J. Camus, M. Rammal, F. Boukari, L. Chekour, M.A. Djouadi, N. Rouag, “Textured hexagonal and cubic phases of AlN films deposited on Si (100) by DC magnetron sputtering and high power impulse magnetron sputtering”, *Thin Solid Films* 655 (2018) 34–40.
- [84] Felipe Cemin, Daniel Lundin, Clarisse Furgeaud, Anny Michel, Guillaume Amiard, Tiberiu Minea and Gregory Abadias, “Epitaxial growth of Cu(001) thin films onto Si(001) using a singlestep HiPIMS process”, *Scientific Reports*, 2017.
- [85] B. Riah, A. Ayad, J.Camus, F.Boukari, A. Djouadi & N. Rouag, “Textured growth of AlN films deposited on Si (100). Comparison between dc reactive magnetron sputtering (dcMS) and high power impulse magnetron sputtering (HiPIMS) methods”, (*JIPC2, Constantine, Algeria on Decembre 14<sup>th</sup> - 15<sup>th</sup>, 2016.*
- [86] B. Riah, A. Ayad, J.Camus, F.Boukari, A. Djouadi & N. Rouag, “Texture characterization of AlN films. Formation and influence of faceted cubic AlN layer on the growth of AlN hexagonal phase”, *2<sup>nd</sup> on multifunctional coatings 2016, october 9-11, Nantes, France* .
- [87] J.X. Zhang, H. Cheng, Y.Z. Chen, A. Uddin, Shu Yuan, S.J. Geng, S. Zhang, “Growth of AlN films on Si (100) and Si (111) substrates by reactive magnetron sputtering”, *Surf. Coat. Technol.* 198 (2005) 68–73.
- [88] A. Madan, I.W. Kim, S.C. Cheng, P. Yashar, V.P. Dravid, S.A. Barnett, “Stabilization of Cubic AlN in Epitaxial AlN/TiN Superlattices”, *Phys. Rev. Lett.* 78 (1997) 174.

**Annexes**

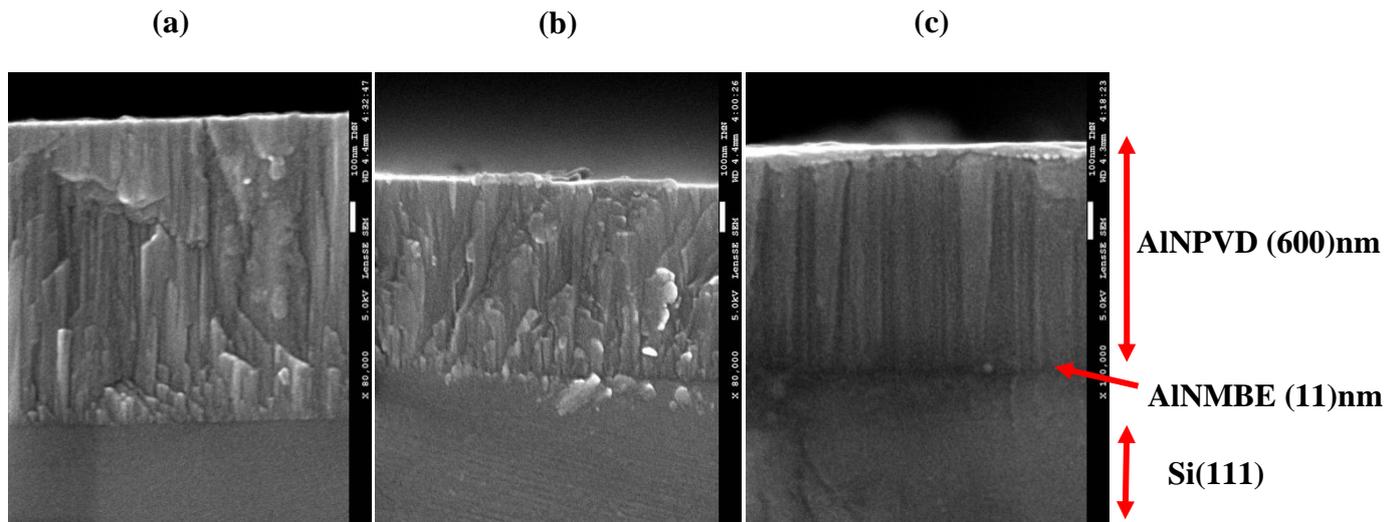
**Annexe 1:** Évolution de la fibre (0001) pour les films d'AlN déposés sur Si(100) pour un taux d'azote de 20 %.



Figures de pôles expérimentales  $\{10\bar{1}1\}$  pour l'angle  $2\theta = 37,89^\circ$  d'AlN-h en fonction de l'épaisseur de la couche d'AlN déposé sur Si(100) par DCMS (a) 20 nm, (b) 100 nm, (c) 640 nm et (d) 800 nm.

### Annexe 2: Étude de la morphologie

La morphologie des différents films déposés par DCMS sur différents substrats a été observée par microscope électronique à balayage (MEB). La figure suivante montre la microstructure des films observée sur les sections transverses des films.



Images MEB de la tranche pour les films d'AlN (a) AlN(600nm)/Si(100), (b) AlN(600 nm)/Si(111) et AlN(600 nm)/AlNMBE(11 nm)/Si(111). Le film d'AlN déposé sur AlNMBE/Si(111) montre une meilleure cristallinité colonnaire par rapport aux films d'AlN déposés directement sur Si(100) et Si(111).

# **Texture characterization of AlN thin films. Evolution during growth and influence on the properties of use**

## **Abstract**

The objective of this thesis is to study the influence of anisotropy on the quality of AlN thin films, developed by two physical vapor deposition (PVD) techniques, DCMS and HiPIMS. AlN exists in two phases: a stable hexagonal phase and a cubic one generally considered as metastable. We are interested particularly in highlighting the last mentioned phase. For this, we have analyzed the texture of several series of AlN films deposited on different substrates of different nature and orientations by X-ray diffraction (XRD). The hexagonal phase is present under the form of fiber (0001), with reinforcements more or less remarkable, when the film is deposited on Si substrate of orientations (100) and (111). It is important to mention that the fiber (0001) can be tilted with respect to the normal of the substrate, mainly when the thickness increases. The use of SiC-6H substrate with lattice agreement with AlN, makes epitaxial growth possible at a temperature from 200 to 250 °C. Following the diffracted intensity has shown the absence of epitaxial growth of AlN (PVD), at low temperatures, on a composite substrate of AlN Kyma/Si (111). Furthermore, the use of AlN buffer layer, 2 nm thick, developed at high temperatures, makes the epitaxial growth of AlN (PVD) possible on Si (111) and at low temperatures. The XRD texture analysis allowed, as well, the highlighting of the AlN cubic phase. This cubic phase was carefully studied especially when it is not much mentioned in literature. We have shown that it is a transition layer between h-AlN transition and the Si (100) substrate. The AlN cubic phase shows a crystalline response with several orientations for two methods, DCMS and HiPIMS, with a higher intensity in the case of DCMS. The lattice mismatch between the different structures and orientations confirm that the growth of hexagonal AlN under the form of (0001) fiber is facilitated by the presence of this AlN cubic phase.

**Keywords:** hexagonal AlN, cubic AlN, texture, fiber, epitaxy, PVD DCMS, HiPIMS, XRD

## دراسة البنية النسيجية لنتريج الألمنيوم. التطور خلال النمو و تأثيره على خصائص الإستعمال.

### ملخص

الهدف من هذا البحث هو دراسة تأثير تباين المناحي على جودة رقائق نتريج الألمنيوم (AIN) ، التي تم تطويرها بواسطة طريقة ترسيب البخار الفيزيائي (PVD) و ذلك بإستخدام طريقتين DCMS و HiPIMS. يتواجد AIN على شكل طورين : بنية سداسية مستقرة AIN-h ، و أخرى مكعبة غير مستقرة (AIN-c) . خلال هذه الدراسة تم تسليط الضوء على هذه الأخيرة. من أجل ذلك قمنا بدراسة البنية النسيجية لعدة رقائق من ال AIN التي تم تشكيلها على عدة قواعد تحتية ذات طبيعة و توجهات مختلفة، بإستخدام تقنية إنعراج الأشعة السينية (DRX). الطور السداسي ينمو على شكل نسيج ليفي (0001) متباين الكثافة و ذلك عند ترسيب ال AIN على قواعد من السيليسيوم ذات الإتجاهات (100) و (111). من المهم أن نشير أن النسيج الليفي (0001) يمكن أن يكون غير متناظر بالنسبة القاعدة Si(100) و خاصة عندما يزداد سمك رقائق ال (AIN). إستخدام طبقة تحتية من SiC-6H الذي يتوافق مع بنية ال AIN يمكن أن يقود إلى النمو المثالي في درجة حرارة تتراوح بين 200 إلى 250 درجة مئوية. لقد أظهر نتيج شدة إنعراج الأشعة السينية غياب النمو المثالي لـ AINPVD على الطبقة التحتية المركبة من AINkyma/Si(111)، في درجات حرارة منخفضة. علاوة على ذلك ، فإن استخدام طبقة عازلة من AINMBE ، سمكها 2 نانومتر ، شكلت على درجة حرارة مرتفعة ، يجعل النمو المثالي لـ AINPVD ممكن على Si(111) في درجات حرارة منخفضة . تعليلات الأشعة السينية (DRX) سمحت كذلك بتسليط الضوء على طور البنية المكعبية (AIN-c) التي أعطيت عناية خاصة لقلة الدراسات البيبليوغرافية المخصصة لها. إذ أظهرت نتائج هذه الدراسة أنها طبقة انتقالية بين AIN-h والطبقة التحتية Si(100). يُظهر AIN-c استجابة بلورية متعددة الاتجاهات لكلتا الطريقتين ، DCMS و HiPIMS ، مع شدة أعلى في حالة DCMS. إن حسابات معامل التوافق بين مختلف البنيات و التوجهات تؤكد أن نمو AIN-h على شكل ألياف (0001) ، يتم تسهيلها بوجود هذه الطبقة من AIN-c.

**الكلمات الدليلية:** AIN-h ، AIN-c ، تباين المناحي ، الألياف ، النمو المثالي ، DCMS ، PVD ، HiPIMS ، إنعراج الأشعة السينية (DRX).

## Résumé

L'objectif de ce travail de thèse est l'étude de l'influence de l'anisotropie sur la qualité des films minces d'AlN, élaborés par deux techniques de dépôt physique en phase vapeur (PVD), DCMS et HiPIMS. L'AlN existe sous deux phases, hexagonale et cubique. Pour le suivi de la phase stable hexagonale, nous avons analysé par DRX la texture de plusieurs séries de films d'AlN, déposés sur différents substrats, de nature et d'orientations différentes, avec différents paramètres de dépôt. La phase hexagonale est présente sous forme de fibre (0001), avec des renforcements plus ou moins marqués, quand le film est déposé sur les substrats de Si(100) et Si(111), avec un tilt important dans le premier cas, quand l'épaisseur augmente. L'utilisation d'un substrat SiC-6H a rendu possible une croissance épitaxiale à une température de 200-250°C. Il n'y a pas de reprise de croissance épitaxiale d'AlN, à basse température, sur un substrat composite d'AlN<sub>Kyma</sub>/Si(111). L'utilisation de couches tampons d'AlN élaborées à haute température, a rendu possible une croissance épitaxiale d'AlNPVD sur Si(111). L'analyse des textures par DRX a permis également de mettre en évidence la phase cubique d'AlN, phase considérée comme métastable et beaucoup moins étudiée dans la littérature. Nous avons montré que c'est probablement une couche de transition entre l'AlN-h et le substrat de Si(100). La phase cubique d'AlN montre une réponse cristalline avec plusieurs orientations, pour les deux méthodes DCMS et HiPIMS, avec des intensités plus marquées dans le cas de la méthode DCMS. Les calculs des misfits entre les différentes structures et orientations confirment que la croissance de la phase hexagonale d'AlN sous forme de fibre (0001) est facilitée par la présence de cette phase cubique de l'AlN.

**Mots clés :** AlN hexagonal, AlN cubique, texture, Fibre, Épitaxie, PVD, DCMS, HiPIMS, DRX.