



**Titre:** Modélisation de la diffusion des rayons X par des nanostructures  
Title: auto-organisées

**Auteur:** Jacques-Edmond Paultre  
Author:

**Date:** 2003

**Type:** Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

**Référence:** Paultre, J.-E. (2003). Modélisation de la diffusion des rayons X par des nanostructures auto-organisées [Master's thesis, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/7149/>  
Citation:

 **Document en libre accès dans PolyPublie**  
Open Access document in PolyPublie

**URL de PolyPublie:** <https://publications.polymtl.ca/7149/>  
PolyPublie URL:

**Directeurs de recherche:** Rémo A. Masut, & Patrick Desjardins  
Advisors:

**Programme:** Unspecified  
Program:

In compliance with the  
Canadian Privacy Legislation  
some supporting forms  
may have been removed from  
this dissertation.

While these forms may be included  
in the document page count,  
their removal does not represent  
any loss of content from the dissertation.



UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

MODÉLISATION DE LA DIFFUSION DES RAYONS X PAR DES  
NANOSTRUCTURES AUTO-ORGANISÉES

JACQUES-EDMOND PAULTRE

DÉPARTEMENT DE GÉNIE PHYSIQUE  
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION  
DU DIPLOME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES  
(GÉNIE PHYSIQUE)

AOÛT 2003





National Library  
of Canada

Bibliothèque nationale  
du Canada

Acquisitions and  
Bibliographic Services

Acquisitions et  
services bibliographiques

395 Wellington Street  
Ottawa ON K1A 0N4  
Canada

395, rue Wellington  
Ottawa ON K1A 0N4  
Canada

*Your file    Votre référence*

*ISBN: 0-612-86426-X*

*Our file    Notre référence*

*ISBN: 0-612-86426-X*

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

**Canada**

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

MODÉLISATION DE LA DIFFUSION DES RAYONS X PAR DES  
NANOSTRUCTURES AUTO-ORGANISÉES

présenté par : PAULTRE, Jacques-Edmond

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. YELON, Arthur, Ph.D., président

M. MASUT, Remo A., Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M. DESJARDINS, Patrick, Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M. LAVOIE, Christian, Ph.D., membre

## Remerciements

Je remercie tout d'abord Arthur Yelon pour avoir accepté de présider le jury d'examen de ce mémoire et Christian Lavoie pour sa contribution à l'évaluation.

Mes remerciements les plus chaleureux vont à mes directeurs de recherche Remo Masut et Patrick Desjardins. Leur grande confiance, leur vision scientifique élargie, leur motivation soutenue, leur disponibilité et leurs « coups de pied au derrière » opportuns ont été indispensables à la bonne réalisation de ce travail. Je les remercie plus particulièrement pour m'avoir donné la chance de présenter mes travaux au *XIX Congress and General Assembly of the International Union of Crystallography* à Genève en août 2002. Je tiens à souligner également la précieuse contribution de Marie-France Pépin au niveau logistique et également lors de la rédaction et de la correction de ce mémoire.

Ma profonde reconnaissance va à ma famille pour son soutien engagé de tous les moments. La présence d'Anna lors du dernier droit de la rédaction a été des plus délicieuse et bénéfique.

J'exprime ma gratitude au Conseil de recherches en sciences naturelles et génie du Canada (CRSNG) ainsi qu'à Abitibi-Consolidated Inc. pour leur soutien financier. Je leur suis reconnaissant pour leur implication dans la relève universitaire de haut niveau.

Au cours de ces dernières années de recherche, j'ai eu la chance d'avoir d'intéressantes discussions scientifiques qui ont eu plusieurs impacts importants sur la tournure des événements. Pour cela, je

remercie plus particulièrement Jean-Nicolas Beaudry, Maxime Cadotte, Cédrik Coïa, Suzie Poulin, Éric Saulnier, Jean-Philippe Sylvestre, Christian Trempe, Stéphane Turcotte, ainsi que les professeurs Normand Mousseau et Vaclav Holý.

Finalement, je remercie les gangs de Poly-Théâtre et de Poly-Photo pour leur motivation créatrice constante, et tout spécialement Caro pour son énergie et ses « visions » !

## Résumé

Depuis plusieurs années, les nanostructures auto-organisées semi-conductrices sont utilisées pour obtenir un confinement tridimensionnel des électrons. Ces nanostructures, ou îlots, sont étudiées afin de pouvoir être intégrées à des dispositifs électroniques de plus en plus performants. Les caractéristiques structurales des îlots ont une influence directe sur leur faisabilité d'intégration, et par la suite, sur leurs propriétés d'émission de lumière. Ces caractéristiques structurales sont : la forme, la taille, la contrainte cristalline interne, l'arrangement spatial des îlots et l'épaisseur de la couche de mouillage toujours présente dans les nanostructures auto-organisées.

Les techniques de diffusion et de diffraction des rayons X (RX) ont l'avantage de ne pas détruire les échantillons analysés et sont sensibles aux îlots en surface comme à ceux enfouis sous une couche d'encapsulation. Les paramètres structuraux qui sont extraits des mesures RX sont des valeurs moyennes recueillies sur un très grand nombre d'îlots, typiquement de l'ordre de  $10^7$  à  $10^8$ . Cependant, l'obtention de ces paramètres à partir des mesures de l'intensité RX diffusée ne se fait pas de façon directe, les contributions à la diffusion de chacun des paramètres n'étant pas indépendantes. La caractérisation rigoureuse nécessite ainsi l'utilisation de modèles théoriques adéquats.

Dans ce travail, une démarche en quatre étapes est proposée pour la caractérisation complète et générale des nanostructures par les techniques RX. À chacune des étapes, un seul paramètre structural est extrait à partir de simulations numériques de l'intensité diffusée.

Ce paramètre est ensuite réintégré dans les procédures d'extraction de l'étape suivante.

La première étape consiste à extraire la forme, la taille et la distribution de taille par des mesures RX de diffusion à petit angle et incidence rasante, à très faible cohérence temporelle, c'est-à-dire en utilisant une grande largeur spectrale pour le faisceau incident. À la deuxième étape de la démarche, la largeur spectrale de la source est diminuée de façon continue afin de révéler l'arrangement spatial des îlots. La troisième étape comporte des mesures de diffraction à incidence rasante pour déterminer les champs de contraintes internes et externes aux îlots. La dernière étape consiste à faire des mesures de diffraction à grand angle et haute résolution ainsi que de réflectivité spéculaire afin de caractériser la couche de mouillage.

Dans ce mémoire, les équations théoriques pour les trois premières étapes sont présentées dans la première approximation de Born (approche cinématique). Les simulations numériques des mesures de diffusion des rayons X sont réalisées seulement pour les deux premières étapes de la démarche. Les calculs de la première étape, soit la détermination des caractéristiques des îlots pris individuellement, montrent qu'il est possible de connaître la forme et la taille d'un îlot unique (ou plusieurs îlots identiques). La diffusion de plusieurs formes d'îlots est simulée, soient pour un cylindre, un dôme, un cône et une cloche. Pour toutes ces formes, on peut représenter l'intensité diffusée dans l'espace réciproque par une surface dont une des caractéristiques principales est de contenir un sillon dont l'orientation dépend du rapport d'aspect de l'îlot. Dans le cas du cylindre, les phénomènes de réflexion/réfraction à la surface du

substrat font que le sillon n'est pas visible expérimentalement. Lorsque la taille des îlots n'est pas uniforme et montre une certaine distribution, les informations concernant la taille et la forme peuvent être extraites seulement si cette distribution n'est pas trop grande. Quand la dispersion de taille devient trop importante, il n'est plus possible de déterminer la forme des îlots sans ambiguïté.

Pour la deuxième étape de la démarche, soit la caractérisation de l'arrangement spatial des îlots, plusieurs réseaux bidimensionnels ont été générés selon trois modèles différents : avec ordre à longue portée (OLP), à moyenne portée (OMP) et à courte portée (OCP). Chacun de ces modèles représente des cas observés expérimentalement. Les simulations numériques de mesures de diffusion à cohérence temporelle variable ont été effectuées afin, dans un premier temps, d'être capable de distinguer chacun des types réseaux entre eux, et dans un deuxième temps, d'extraire les paramètres structuraux de ces réseaux. La caractérisation du réseau OLP se fait aisément à partir du rapport des intensités des deux premiers pics d'interférence de la courbe de l'intensité diffusée, à condition de connaître la taille moyenne des îlots. Cette condition est remplie lors de la première étape de la démarche. L'analyse du réseau OMP se fait de la même façon que celle du réseau OLP. Cependant, sa caractérisation n'est que partielle et il n'est malheureusement pas possible de le distinguer d'avec le réseau OLP. En ce qui concerne la caractérisation du réseau OCP, la distance moyenne entre les îlots premiers voisins s'obtient en faisant l'intégration des mesures en diffusion sur l'angle azimutal du faisceau incident. Ce type de réseau se distingue aisément des autres par ses caractéristiques de diffusion.

Nos résultats montrent que l'utilisation d'une faible cohérence temporelle est bénéfique pour la caractérisation des îlots isolés, et ce, peu importe leur arrangement spatial. Des mesures à deux ou trois différentes valeurs de cohérence temporelle sont suffisantes pour caractériser pleinement des réseaux avec ordre à longue portée. Les simulations de l'intensité diffusée par des réseaux avec ordre à moyenne portée n'ont pas montré d'apport significatif de la cohérence variable. Les mesures de caractérisation proposées dans ce travail peuvent se faire aisément sur un montage expérimental exploitant le rayonnement synchrotron.



## Abstract

Self-assembled nanostructures such as quantum dots (QDs) are the subject of intense research due to their electron confinement properties. They are mainly intended to improve performance when integrated in state-of-the-art optoelectronic devices, such as semiconductor laser diodes. The structural properties of these nanostructures have a strong influence on their light emission properties. These properties are: shape and size of the structure (QD), internal strain fields, spatial arrangement of the QDs, and the thickness of the wetting layer frequently present in these structures.

X-ray techniques such as diffraction and scattering have the advantage of being non destructive and are capable of probing both freestanding and buried nanostructures. The structural parameters extracted from x-ray measurements are average values, collected from a large number of dots or nano-islands (typically  $10^7$  to  $10^8$ ). It is not possible, however, to extract these parameters directly from the measurements because of the interdependence of structural contributions. Full characterization requires appropriate theoretical models.

In this work, a four-step method is presented for the full structural characterization of self-assembled nano-islands by x-ray techniques. At each step, only one structural parameter is extracted from numerical simulations of the scattered intensity. This parameter is then reinserted to the extraction procedure for the next step.

The first step consists of the extraction of the shape, the size, and the size distribution of the islands from grazing-incidence small-angle x-ray scattering measurements, at very low temporal coherence that is using a large spectral width of the incident x-ray beam. In the second step, we decrease the spectral width of the source. By so doing, the coherence of the incident is increased, which revealing spatial organisation of the islands. The third step uses grazing-incidence diffraction measurements to determine the strain field inside and outside of the islands. The final step consists of large-angle high-resolution x-ray diffraction and specular x-ray reflectivity measurements to characterize the thickness of the wetting layer.

In this work, the theoretical equations for the first three steps are presented, in the first Born approximation (kinematical approach). The numerical simulations of the x-ray scattering measurements are performed only for the first two steps of the outlined procedure. The calculations for the first step, i.e. the characterization of the properties of an isolated island from the scattered intensity, show that it is possible to know its size and shape. We simulate the scattering for four different shapes: cone, cylinder, bell and lens-shape. For all these shapes, one can represent the scattered intensity in reciprocal space by a surface containing a characteristical furrow. The orientation of the furrow depends upon the aspect ratio of the island. In the case of the cylindrical shape, the reflection/refraction phenomena occurring at the substrate surface blur the furrow and render it unobservable experimentally. When the island size distribution is not uniform, the information about the size and the shape of the islands can still be extracted if the size distribution is small. When the size distribution is

highly non-uniform, it becomes impossible to unambiguously determine the shape.

To carry out the second step of the procedure, the characterization of the spatial arrangement of the islands, many bi-dimensional arrays were generated according to three different models containing long-range (LRO), medium-range (MRO) and short-range order (SRO), since each of these circumstances has been experimentally observed. The numerical simulations of the scattered intensity at variable temporal coherence are presented and explained. The principal aim is first, to be able to distinguish each type of array and second, to extract the parameters of the arrays. The characterization of LRO arrays is easily obtained from the ratio of the first two interference peaks of the scattered intensity. This is correct only if we know the mean size of the islands (which is done in the first step of the workflow). The characterization of MRO arrays is done in the same way as for LRO arrays. However, only a partial characterization is achieved, since we cannot entirely distinguish them from LRO arrays. In the case of SRO arrays, the average distance between nearest-neighbour islands is extracted from measurements of the scattered intensity integrated over azimuthal angle of the incident beam. SRO arrays are easily distinguishable from other types of arrays by their scattered intensity.

Our results show that the use of low temporal coherence improves the characterization of the isolated islands, whatever their spatial arrangement. Measurements done with two or three different values of the spectral width of the source are sufficient to fully characterize LRO arrays. The numerical simulations of the scattered

intensity of the other types of arrays show no significant improvement from the use of variable coherence to characterize them. All suggested measurements can be easily carried out on an experimental set-up using synchrotron radiation.

## Table des matières

Remerciements.....	iv
Résumé.....	vi
Abstract .....	x
Table des matières .....	xiv
Liste des figures .....	xvii
Liste des sigles et abréviations.....	xxv
Liste des notations et symboles .....	xxviii
1 Introduction.....	1
2 État actuel des connaissances.....	9
2.1 Configurations de l'espace réciproque .....	9
2.2 Efforts de caractérisation .....	13
2.2.1 Caractérisations par modèles en couches minces.....	13
2.2.2 Réflectivité hors-spéculaire .....	16
2.2.3 Diffusion à petit angle et incidence rasante.....	17
2.3 Efforts de modélisation .....	19
2.3.1 Taille et forme des îlots .....	19
2.3.2 Traitement de la fonction d'interférence .....	21
2.3.3 Contrainte cristalline.....	23
2.4 Utilisation de la cohérence .....	26
2.4.1 Recherche de la cohérence maximale .....	26
2.4.2 Cohérence variable .....	27
3 Formalisme.....	29
3.1 Description de la démarche générale.....	29
3.2 Système de coordonnées .....	34
3.3 Diffraction cinématique par une forme arbitraire.....	35
3.4 Cas particulier de la diffusion .....	38

3.4.1	Première approximation de Born.....	38
3.4.2	Approximation de Born par onde modifiée .....	40
3.5	Variation de la cohérence temporelle.....	43
3.6	Génération de réseaux d'îlots bidimensionnels .....	45
3.6.1	Ordre à longue portée .....	45
3.6.2	Ordre à moyenne portée .....	46
3.6.3	Ordre à courte portée .....	46
3.7	Apport original.....	49
4	Détermination de la taille des îlots .....	51
4.1	Effets de la forme et de la taille .....	52
4.2	Effets de l'approximation de Born par onde modifiée .....	57
4.2.1	Cas d'un îlot à la surface .....	58
4.2.2	Cas d'un îlot enfoui .....	61
4.3	Réseaux d'îlots.....	64
4.3.1	Distribution de taille excluant la position.....	64
4.3.2	Distribution de taille incluant la position .....	74
5	Arrangement spatial des îlots auto-organisés .....	78
5.1	Réseau périodique .....	80
5.1.1	Cohérence temporelle infinie et taille uniforme.....	80
5.1.2	Cohérence infinie et distribution de taille.....	85
5.1.3	Variation de la cohérence .....	87
5.2	Réseaux avec ordre à longue portée .....	91
5.2.1	Génération des réseaux .....	91
5.2.2	Simulations à cohérence variable.....	93
5.3	Réseaux avec ordre à moyenne portée .....	99
5.3.1	Génération des réseaux .....	99
5.3.2	Simulations à cohérence variable.....	100
5.4	Réseaux avec ordre à courte portée.....	109

5.4.1	Génération des réseaux .....	109
5.4.2	Simulations à cohérence variable.....	111
6	Discussion .....	118
6.1	Validité des approximations et des calculs .....	118
6.1.1	Hypothèse sur le facteur de diffusion .....	118
6.1.2	Analyse de la fonction d'interférence .....	120
6.1.3	Validité des calculs de simulations numériques .....	121
6.2	Comparaison avec les résultats de la littérature .....	122
6.3	Retour sur les résultats des simulations .....	125
6.3.1	Forme, taille et distribution de taille .....	125
6.3.2	Calcul de la fonction d'interférence .....	127
6.3.3	Réseaux avec ordre à longue portée .....	128
6.3.4	Réseaux avec ordre à moyenne portée.....	129
6.3.5	Réseaux avec ordre à courte portée.....	130
6.4	Comparaison avec le programme de Lazzari .....	131
6.5	Vue générale de l'intégration à la démarche .....	133
6.6	Faisabilité des mesures expérimentales.....	134
7	Conclusion et perspectives .....	138
7.1	Conclusion générale.....	138
7.2	Perspectives.....	139
	Références.....	142
	Annexe 1 .....	149
	Annexe 2 .....	150

## Liste des figures

Figure 2.1 Configurations de l'espace réciproque (adapté de Chason, 1997) .....	10
Figure 3.1 Paramètres structuraux d'un réseau de NIAO .....	29
Figure 3.2 Schéma de la démarche générale de caractérisation par RX .....	31
Figure 3.3 Géométrie du système de coordonnées.....	34
Figure 3.4 Définition de la forme d'un îlot.....	39
Figure 3.5 Schéma des quatre processus de diffusion à la surface (ABOM) .....	41
Figure 3.6 Schéma de la génération des réseaux OCP .....	47
Figure 3.7 Schéma de construction de la cellule de Voronoi, seuls les îlots gris sont considérés comme les premiers voisins de l'îlot noir. ....	49
Figure 4.1 Transformée de Fourier d'un cylindre, $b = 5$ nm et $P = 15$ nm (la fonction de contour est en médaillon) .....	53
Figure 4.2 Transformée de Fourier d'un cône, $b = 5$ nm et $P = 15$ nm (la fonction de contour est en médaillon) .....	54
Figure 4.3 Transformée de Fourier d'un dôme, $b = 5$ nm et $P = 15$ nm (la fonction de contour est en médaillon) .....	55
Figure 4.4 Transformée de Fourier d'une cloche, $b = 5$ nm et $P = 15$ nm (la fonction de contour est en médaillon) .....	56
Figure 4.5 Parcours dans l'espace réciproque pour les quatre processus de l'approximation de Born par onde modifiée en surface ( $\lambda = 0,154$ nm; $\theta_i = 0$ ; $\theta_f = 0,1^\circ$ ; $\alpha_i = 0,2^\circ$ ; $\alpha_f = [0^\circ, \dots, 3^\circ]$ ).....	58
Figure 4.6 Comparaison du calcul l'intensité diffusée par un îlot cylindrique en surface, dans l'AB et dans l'ABOM, pour trois	



angles d'incidence ( $\alpha_i = 0,1^\circ, 0,25^\circ, 0,5^\circ$ ;  $\alpha_c = 0,3^\circ$ ,  $\theta_i = 0$ ,  $\theta_f = 0,1$ ).

a-c-e) : AB et somme des quatre processus ABOM; b-d-f) : intensité des quatre processus ABOM pris séparément..... 60

Figure 4.7 Comparaison du calcul l'intensité diffusée par un îlot enfoui dans l'AB et dans l'ABOM, pour deux angles d'incidence ( $\alpha_i = 0,15^\circ, 0,7^\circ$  et  $\alpha_c = 0,3^\circ$ ). a-b) : modification du vecteur de diffusion : partie réelle au-dessus de la surface (cercles), partie réelle sous la surface (triangles hauts), partie imaginaire sous la surface (triangles bas); c-d) : intensités AB et ABOM pour un îlot enfoui de 20 nm..... 63

Figure 4.8 Intégration de l'intensité diffusée sur la distribution de taille des îlots à  $q_z = 0$ , pour quatre formes: a) cône, b) cylindre, c) dôme, d) cloche. .... 65

Figure 4.9 Courbes de diffusion pour deux distributions d'îlots de forme et de taille différentes. Indiscernabilité de ces courbes. .... 67

Figure 4.10 Intégration sur la distribution de taille de l'intensité diffusée pour un ensemble d'îlots avec  $\sigma_P/P_0 = 20\%$ , en comparaison avec un îlot unique. a-b) : cylindre; c-d) : cône; e-f) : dôme ..... 68

Figure 4.11 Intégration de l'intensité diffusée sur la distribution de taille des îlots à  $q_z = 3 \text{ nm}^{-1}$ , pour quatre formes: a) cône, b) cylindre, c) dôme, d) cloche. .... 70

Figure 4.12 Schéma de l'équation de la droite du sillon dans l'espace réciproque, en fonction du rapport d'aspect et de la forme..... 71

Figure 4.13 Intégration de l'intensité diffusée pour quatre tailles moyennes d'îlots de quatre formes différentes : a) cône, b) cylindre, c) dôme, d) cloche. Toutes les courbes ont été normalisées à 1. .. 72

Figure 4.14 Intensité en fonction du vecteur de diffusion pour quatre tailles de de cône (figure 4.13a). Schéma de l'extraction de la pente à petit  $q_r$ . ..... 73

Figure 4.15 Calcul de l'intensité diffusée pour un ensemble d'îlots en forme de dôme; en pointillé : sans tenir compte de la position; en trait plein : en tenant compte de la position et de la faible cohérence temporelle. a)  $q_z = 0 \text{ nm}^{-1}$ , b)  $q_z = 1 \text{ nm}^{-1}$ , c)  $q_z = 2 \text{ nm}^{-1}$ . Le réseau de 300 îlots est généré selon un algorithme OCP avec  $W^m = 76 \text{ nm}$  et  $W^\sigma = 21 \text{ nm}$ . À chaque fois, les deux courbes sont décalées pour plus de clarté. .... 75

Figure 5.1 Intensité diffusée dans l'espace réciproque par un réseau périodique parfait contenant  $10 \times 10$  îlots identiques, de période  $W = 90 \text{ nm}$ . a) intensité diffusée selon  $q_x$  et  $q_y$ ; b) intensité diffusée selon  $q_y$  et  $q_z$ . .... 81

Figure 5.2 Intensité diffusée dans l'espace réciproque par un îlot unique, pour quatre formes différentes dans la première approximation de Born. Pour toutes les formes :  $P = 15 \text{ nm}$ ,  $b = 5 \text{ nm}$  et  $q_z = 0 \text{ nm}^{-1}$ . .... 84

Figure 5.3 Intensité diffusée par deux réseaux périodiques de 144 îlots en fonction du vecteur de diffusion. Comparaison entre cohérence infinie (ligne pleine) et l'intensité sans la fonction d'interférence (ligne pointillée) :  $W = 100 \text{ nm}$  et  $P_0 = 16 \text{ nm}$ . a) distribution de taille de 5,1%; b) distribution de taille de 21%. .... 86

Figure 5.4 Analyse de la fonction d'interférence en fonction de la variation de cohérence temporelle pour un réseau parfait unidimensionnel. a) intensité de la fonction d'interférence en fonction du vecteur de diffusion; b-c) variation de la pleine largeur à mi-hauteur (PLMH) en fonction de la largeur spectrale de la

source, pour les 6 premiers ordres de diffraction pour  $N=20$  (b),  $N=50$  (c); d) variation de la pleine largeur à mi-hauteur (PLMH) en fonction de la largeur spectrale de la source, pour le premier ordre de diffraction pour trois tailles de réseau..... 88

Figure 5.5 Intensité diffusée par deux réseaux parfaits de  $12 \times 12$  îlots en fonction du vecteur de diffusion pour trois valeurs de largeur spectrale de la source, soient  $\Delta\lambda/\lambda_0 = 0, 0,005$  et  $0,02$ , comparées à la diffusion sans la fonction d'interférence.  $W = 100$  nm et  $P_0 = 16$  nm. a) distribution de taille de  $5,3\%$ ; b) distribution de taille de  $22\%$ . ..... 90

Figure 5.6 Exemples de réseaux avec ordre à longue portée pour quatre valeurs de désordre, avec leur fonction de densité radiale associée. a-b)  $W = 60$  nm et  $\tau = 0$ ; c-d)  $W = 60$  nm et  $\tau = 0,1$ ; e-f)  $W = 60$  nm et  $\tau = 0,2$ ; g-h)  $W = 60$  nm et  $\tau = 0,4$ . Les fonctions de densité radiale sont calculées pour des réseaux de  $625$  îlots..... 92

Figure 5.7 Exemples de réseaux hexagonaux avec ordre à longue portée pour deux valeurs de désordre, avec leur fonction de densité radiale associée. a-b)  $W = 60$  nm et  $\tau = 0,5$ ; c-d)  $W = 60$  nm et  $\tau = 0,25$ . Les fonctions de densité radiale sont calculées pour des réseaux de  $625$  îlots. .... 93

Figure 5.8 Intensité diffusée par six réseaux OLP de  $12 \times 12$  îlots en fonction du vecteur de diffusion pour trois valeurs de largeur spectrale de la source, soient  $\Delta\lambda/\lambda_0 = 0, 0,005$  et  $0,02$  et l'intensité calculée sans la fonction d'interférence (pointillé).  $W = 100$  nm et  $P_0 = 16$  nm. a)  $\tau = 0,05$  et distribution de taille ( $\sigma_P$ ) de  $4,9\%$ ; b)  $\tau = 0,05$  et  $\sigma_P = 20\%$ ; c)  $\tau = 0,1$  et  $\sigma_P = 5,2\%$ ; d)  $\tau = 0,1$  et  $\sigma_P = 22\%$ ; e)  $\tau = 0,2$  et  $\sigma_P = 4,7\%$ ; f)  $\tau = 0,2$  et  $\sigma_P = 21\%$ . ..... 95

Figure 5.9 Analyse de la fonction d'interférence en fonction de la variation de cohérence temporelle. a) variation de la PLMH du pic d'ordre 1 en fonction de la largeur spectrale; b) variation de la PLMH du pic d'ordre 2 en fonction de la largeur spectrale; c) variation de l'intensité du pic d'ordre 1 en fonction de la largeur spectrale; d) variation de l'intensité du pic d'ordre 2 en fonction de la largeur spectrale; e) rapport de l'intensité des pics d'ordre 1 et 2 en fonction de la largeur spectrale; f) rapport de l'intensité des pics d'ordre 1 et 2 en fonction du paramètre de désordre..... 97

Figure 5.10 Exemples de réseaux de ~400 îlots avec ordre à moyenne portée, avec leur fonction de densité radiale associée.

$L_{MP} = 350 \text{ nm}$ ;  $\tau_I = 0,03$  et  $0,1$ ;  $0,1 < \tau_0 < 0,5$  avec  $\tau_I < \tau_0$ . .... 100

Figure 5.11 Analyse de la fonction d'interférence en fonction de la variation de cohérence temporelle pour des réseaux OMP dans le cadre de la première hypothèse. a) exemple d'un réseau typique avec  $\tau_I = 0,03$ ,  $\tau_0 = 0,125$  et  $L_{MP} = 450 \text{ nm}$ ; b) fonction d'interférence du réseau en a) pour  $\Delta\lambda/\lambda = 0,001$  et  $0,1$ ; c) PLMH du pic de premier ordre de la fonction d'interférence en fonction de la largeur spectrale, pour six valeurs de la taille de la zone ordonnée; d) rapport des intensités des deux premiers pics d'interférence en fonction de la largeur spectrale. .... 102

Figure 5.12 Rapport des intensités des pics d'ordre 1 et 2 de la diffusion de réseaux avec OMP. a) en fonction de la largeur spectrale, pour six valeurs de  $L_{MP}$ , comparaison avec deux réseaux OLP; b) en fonction du paramètre de désordre  $\tau_{OLP}$ , pour cinq simulations numériques homogènes, comparaison avec le  $\tau_{eq}$ ... 104

Figure 5.13 Analyse de la fonction d'interférence en fonction de la variation de cohérence temporelle pour des réseaux OMP dans le

cadre de la deuxième hypothèse. a) exemple d'un réseau typique avec  $\tau_1 = 0,03$ ,  $\tau_0 = 0,07$  et  $L_{MP} = 350$  nm; b) fonction d'interférence du réseau en a) pour  $\Delta\lambda/\lambda = 0,001$  et  $0,1$ ; c) PLMH du pic de premier ordre de la fonction d'interférence en fonction de la largeur spectrale, pour six valeurs de la taille de la zone ordonnée; d) rapport des intensités des deux premiers pics d'interférence en fonction de la largeur spectrale; e) rapport des intensités des deux premiers pics d'interférence en fonction du paramètre de désordre externe; f) inverse de la PLMH des deux premiers pics d'interférence en fonction du paramètre de désordre externe. ... 105

Figure 5.14 Rapport des intensités des pics d'ordre 1 et 2 de la diffusion de réseaux avec OMP. a) en fonction de la largeur spectrale, pour six valeurs de  $\tau_0$ , comparaison avec trois réseaux OLP; b) en fonction du paramètre de désordre  $\tau_{OLP}$ , comparaison avec le calcul de  $\tau_{eq}$ . .... 106

Figure 5.15 Pleine largeur à mi-hauteur des deux premiers pics d'interférence de la diffusion d'un réseau OLP et un réseau OMP. a) PLMH des pics d'ordre 1 et 2 pour un réseau OLP en fonction de la largeur spectrale; b) inverse de PLMH en fonction du paramètre de désordre OLP; c) PLMH des pics d'ordre 1 et 2 pour un réseau OMP en fonction de la largeur spectrale; d) inverse de PLMH en fonction du paramètre de désordre externe OMP. .... 108

Figure 5.16 Quatre exemples de réseaux avec ordre à courte portée, avec la taille moyenne de  $P = 15$  nm et la distribution de taille de  $\sigma_P = 15\%$ . a)  $W^m = 75,4$  nm et  $W^\sigma = 15,1$  nm; b)  $W^m = 75,7$  nm et  $W^\sigma = 20,7$  nm; c)  $W^m = 75,4$  nm et  $W^\sigma = 27,2$  nm; d)  $W^m = 75,7$  nm et  $W^\sigma = 32,8$  nm. .... 110

Figure 5.17 Fonction d'interférence de quatre réseaux avec OCP. À gauche, simulations en fonction de  $q_r$  pour trois angles azimutaux de  $0^\circ$ ,  $45^\circ$  et  $90^\circ$ ; à droite, simulation intégrée sur 21 angles azimutaux, pour trois largeurs spectrales de la source de 0,005, 0,015 et 0,05. a)  $W^m = 75,4$  nm et  $W^\sigma = 15,1$  nm; b)  $W^m = 75,7$  nm et  $W^\sigma = 20,7$  nm; c)  $W^m = 75,4$  nm et  $W^\sigma = 27,2$  nm; d)  $W^m = 75,7$  nm et  $W^\sigma = 32,8$  nm..... 112

Figure 5.18 Rapports des valeurs de diffusion de réseaux avec OCP en fonction du pourcentage de désordre. En médaillon, schéma montrant comment sont prises les valeurs correspondant à chaque réseau..... 114

Figure 5.19 Fonction d'interférence d'un réseau avec OCP. À gauche, simulations en fonction de  $q_r$  pour trois angles azimutaux de  $0^\circ$ ,  $45^\circ$  et  $90^\circ$ ; à droite, simulation intégrée sur 21 angles azimutaux, pour trois largeurs spectrales de la source de 0,005, 0,015 et 0,05;  $W^m = 78,9$  nm et  $W^\sigma = 42,6$  nm. .... 115

Figure 5.20 Intégration azimutale de la fonction d'interférence pour deux réseaux avec OLP en fonction du vecteur de diffusion. a) exemple de réseau OLP avec  $W = 70$  nm et  $\tau = 0,1$ ; b) simulation intégrée sur l'angle azimutal avec un pas de  $4,5^\circ$  d'un réseau de 625 îlots avec  $W = 70$  nm et  $\tau = 0,1$ ; c) exemple de réseau OLP avec  $W = 70$  nm et  $\tau = 0,4$ ; d) simulation intégrée sur l'angle azimutal avec un pas de  $4,5^\circ$  d'un réseau de 625 îlots avec  $W = 70$  nm et  $\tau = 0,4$ ..... 117

Figure 6.1 Carré du facteur de diffusion d'un îlot cylindrique ( $P = 15$  nm,  $b = 5$  nm), avec  $q_z = 0$ , pour quatre valeurs de la largeur spectrale de la source ( $\Delta\omega/\omega = 0$ , 0,005, 0,02 et 0,03). Les

courbes sont décalées pour plus de clarté. La figure en médaillon	
montre les mêmes courbes non décalées. ....	119
Figure 6.2 Schéma du calcul des simulations numériques.....	122

## Liste des sigles et abréviations

AB	Approximation de Born ( <i>BA</i> )
ABOM	Approximation de Born par onde modifiée ( <i>DWBA</i> )
AML	Approximation de monodispersité locale ( <i>LMA</i> )
ATPD	Approximation de taille et position découplées ( <i>DA</i> )
BQ	Boîtes quantiques ( <i>QB</i> )
DGA	Diffraction à grand angle ( <i>LAD</i> )
DIR	Diffraction à incidence rasante ( <i>GID</i> )
DPAIR	Diffusion à petit angle et incidence rasante ( <i>GISAXS</i> )
DRX(HR)	Diffraction des rayons X ( <i>(HR)XRD</i> )
E <sub>BI</sub>	Énergie de bande interdite ( <i>E<sub>GAP</sub></i> )
EPVOM	Épitaxie en phase vapeur aux organométalliques ( <i>MOVPE</i> )
ÉQM	Écart quadratique moyen ( <i>RMS</i> )
FQ	Fil quantique ( <i>QWW</i> )
HR	Haute résolution
MC	Monocouche ( <i>ML</i> )
MCI	Monte-Carlo inverse ( <i>RMC</i> )
MET(HR)	Microscope électronique en transmission ( <i>(HR)TEM</i> )
MFA	Microscope à force atomique ( <i>AFM</i> )
NIAO	Nano-îlots auto-organisés ( <i>SAQD</i> )
OCP	Ordre à courte portée ( <i>SRO</i> )



OLP	Ordre à longue portée ( <i>LRO</i> )
OMP	Ordre à moyenne portée ( <i>MRO</i> )
PL	Photoluminescence
PLMH	Pleine largeur à mi-hauteur ( <i>FWHM</i> )
PPV	Plus proches voisins
PQ	Puits quantique ( <i>QW</i> )
RHSRX	Réflectivité hors-spéculaire des rayons X ( <i>NSXRR</i> )
RSRX	Réflectivité spéculaire des rayons X ( <i>SXRR</i> )
SK	Stranski-Krastanow
TCA	Théorie cinématique atomique ( <i>AKT</i> )
TF	Transformée de Fourier

(seuls les termes anglais couramment utilisés dans la littérature sont présentés ici)

<i>AFM</i>	<i>Atomic force microscopy</i>
<i>AKT</i>	<i>Atomistic kinematical theory</i>
<i>BA</i>	<i>Born approximation</i>
<i>DA</i>	<i>Decoupling approximation</i>
<i>DWBA</i>	<i>Distorted-wave Born approximation</i>
<i>E<sub>GAP</sub></i>	<i>Band-gap energy</i>

<i>FWHM</i>	<i>Full width at half maximum</i>
<i>GID</i>	<i>Grazing incidence diffraction</i>
<i>GISAXS</i>	<i>Grazing-incidence small-angle x-ray scattering</i>
<i>HRXRD</i>	<i>High-resolution x-ray diffraction</i>
<i>LAD</i>	<i>Large angle diffraction</i>
<i>LMA</i>	<i>Local monodisperse approximation</i>
<i>LRO</i>	<i>Long-range order</i>
<i>ML</i>	<i>Monolayer</i>
<i>MOVPE</i>	<i>Metal-organic vapor-phase epitaxy</i>
<i>MRO</i>	<i>Medium-range order</i>
<i>NSXRR</i>	<i>Non-specular x-ray reflectivity</i>
<i>RMS</i>	<i>Root mean square</i>
<i>QB</i>	<i>Quantum box</i>
<i>QW</i>	<i>Quantum well</i>
<i>QWW</i>	<i>Quantum wire</i>
<i>RMC</i>	<i>Reverse Monte-Carlo</i>
<i>SAQD</i>	<i>Self-assembled quantum dots</i>
<i>SRO</i>	<i>Short-range order</i>
<i>SXRR</i>	<i>Specular X-ray reflectivity</i>
<i>TEM</i>	<i>Transmission electron microscope</i>
<i>XRD</i>	<i>X-ray diffraction</i>

## Liste des notations et symboles

$(A_x, A_y, A_z)$	composantes du vecteur <b>A</b> en coordonnées cartésiennes
$(A_r, A_\theta, A_z)$	composantes du vecteur <b>A</b> en coordonnées cylindriques
$x^*$	valeur conjuguée de $x$
$\tilde{q}_z$	valeur de $q_z$ modifiée par la réfraction à une interface
$\alpha_i, \alpha_f$	angles zénithaux incident et émergent (degré)
$\alpha_c$	angle critique pour la réflexion totale externe (degré)
$\chi(\mathbf{r})$	polarisabilité du matériau
$\lambda$	longueur d'onde électromagnétique (nm)
$\Lambda(\omega, \omega_0, \Delta\omega)$	fonction de distribution spectrale d'une source lumineuse
$\Omega(\mathbf{r})$	facteur de forme d'un îlot
$\sigma_p$	écart-type de la distribution du rayon des îlots (nm)
$\tau$	paramètre de désordre d'un réseau OLP
$\tau_I$	paramètre de désordre interne d'un réseau OMP
$\tau_O$	paramètre de désordre externe d'un réseau OMP
$\theta_i, \theta_f$	angles azimutaux incident et émergent (degré)
$a(z)$	fonction de contour (du facteur de forme)
$b$	hauteur d'un îlot (nm)
$D_0(\mathbf{q})$	facteur de diffusion d'un îlot (AB)

$D_{\text{enf}}(\mathbf{q})$	facteur de diffusion d'un îlot enfoui (ABOM)
$D_{\text{surf}}(\mathbf{q})$	facteur de diffusion d'un îlot à la surface (ABOM)
$f_j(\mathbf{h})$	facteur de diffusion atomique
$\mathbf{g}$	combinaison des vecteurs de base du réseau réciproque
$\mathbf{h}$	vecteur de diffraction
$\mathbf{k}$	vecteur d'onde électromagnétique ( $\text{nm}^{-1}$ )
$J_n(x)$	fonction de Bessel de première espèce, d'ordre $n$
$L_c$	longueur de cohérence d'une source lumineuse (nm)
$L_{\text{MP}}$	taille de la zone ordonnée d'un réseau OMP (nm)
$n_s$	indice de réfraction du substrat
$N$	nombre total d'îlots d'un réseau
$P$	rayon de la base d'un îlot de symétrie de révolution (nm)
$\mathbf{q}$	vecteur de diffusion dans l'espace réciproque ( $\text{nm}^{-1}$ )
$R(\alpha)$	coefficient de Fresnel en réflexion
$\mathbf{R}_m$	position du $m^{\text{ème}}$ îlot d'un réseau plan
$r_e$	rayon classique de l'électron ( $\approx 2,82 \times 10^{-6}$ nm)
$S_h(\mathbf{q})$	facteur de structure d'un cristal
$T(\alpha)$	coefficient de Fresnel en transmission
$u(\mathbf{r})$	champ de contraintes
$V_{\text{el}}$	volume de la maille cristalline élémentaire
$W$	distance nominale entre deux îlots d'un réseau (nm)

$W^m$	distance moyenne entre îlots PPV (nm)
$W^\sigma$	écart-type de la distance entre îlots PPV (nm)
$z_0$	distance sous la surface d'un plan d'îlots enfouis (nm)

## 1 Introduction

Depuis plusieurs dizaines d'années, les hétérostructures semi-conductrices à confinement quantique sont l'objet de nombreuses recherches, tant fondamentales qu'appliquées. Le confinement quantique consiste à piéger un électron dans un puits de potentiel selon une ou plusieurs directions de l'espace. Lorsque la dimension d'un tel puits est suffisamment petite, il en résulte une quantification observable des niveaux d'énergie et ainsi, une discrétisation des transitions optiques permises. Lorsque l'électron est libre de se déplacer dans deux directions (selon  $x$  et  $y$  par exemple) mais est confiné dans la direction  $z$ , on parle alors de puits quantique (PQ). S'il est libre de se déplacer seulement le long de la direction  $x$ , on parle de fil quantique (FQ) et s'il est confiné dans les trois directions, on parle de boîte quantique (BQ). La largeur et la profondeur des puits de potentiel multidimensionnels ont une influence directe sur les longueurs d'ondes lumineuses émises lors des transitions électroniques. C'est pourquoi les structures à confinement quantique sont intégrées dans la fabrication de dispositifs électroluminescents de plus en plus performants. Dans ce contexte, on cherche à diminuer la consommation d'énergie de fonctionnement, à avoir un contrôle précis de la longueur d'onde d'émission et de la largeur spectrale ainsi qu'une grande stabilité de ces caractéristiques en fonction de la température.

Dans cette perspective, la recherche sur les BQ est très prometteuse. Il a été montré théoriquement, il y a déjà plus de 20 ans, que des dispositifs électroluminescents basés sur un confinement tridimensionnel des porteurs de charge auraient un courant-seuil très

faible et indépendant de la température (Arakawa, 1982). Le principe de confinement le plus technologiquement répandu consiste à placer un semi-conducteur cristallin de petite énergie de bande interdite ( $E_{BI}$ ) à l'intérieur d'un autre semi-conducteur cristallin possédant une  $E_{BI}$  plus élevée. Les dimensions des inclusions semi-conductrices doivent avoir une taille d'au plus quelques dizaines de nanomètres afin d'observer les effets d'un confinement quantique.

Pour pouvoir être exploitées à l'échelle industrielle, les BQ doivent répondre à certains critères. D'abord, on veut avoir la plus grande intensité émise possible. Cela s'obtient non seulement par une grande densité volumique de BQ, mais aussi par un arrangement périodique de ces boîtes. On cherche également à contrôler la longueur d'onde d'émission. Cela se fait par le choix des matériaux (qui offrent une gamme de valeurs de  $E_{BI}$ ) et aussi par le contrôle de la forme et de la taille moyenne des BQ et de leurs contraintes cristallines internes (qui ont une influence directe sur la structure de bandes électroniques). En ce qui a trait à la largeur de bande d'émission, qu'on désire la plus petite possible, il a été observé que la largeur d'une raie d'émission optique d'une BQ unique est très faible : inférieure à 0,1 meV (Marzin, 1994). Cependant, l'émission intégrée sur un ensemble de BQ est beaucoup plus large, typiquement de l'ordre de 50 à 100 meV, une des meilleures performances étant de 19 meV (Yamaguchi, 2000). Cet élargissement est dû à la distribution de taille, qu'on veut la plus petite possible. Bref, on voit ici toute l'importance du contrôle de la fabrication et, par le fait même, de la caractérisation adéquate des BQ.

Plusieurs techniques exploitant des structures à confinement quantique existent actuellement pour fabriquer des dispositifs électroluminescents (Zunger, 1998). La plupart utilisent les procédés de croissance hétéroépitaxiale de semi-conducteurs en couches minces. Une façon de faire est de compléter le confinement tridimensionnel d'une couche mince, possédant déjà un confinement dans une direction, par la gravure de motifs nanométriques. Cependant, les techniques conventionnelles de lithographie utilisées pour ce faire sont limitées par la résolution optique, qui empêche d'atteindre les dimensions voulues pour les boîtes, et par les dommages résiduels associés à la gravure, qui affectent la qualité du confinement.

Une autre façon de procéder est de tirer profit du choix des matériaux. Lors de la croissance épitaxiale d'une couche mince d'un matériau cristallin sur un autre, les contraintes résultant des différences de paramètres de maille entre les divers semi-conducteurs utilisés peuvent devenir suffisantes pour que la formation de structures non planes s'avère énergétiquement favorable. Le mode de croissance Stranski-Krastanow (SK) est un mode d'évolution de la morphologie de surface de couches contraintes particulièrement intéressant. Lorsque ce mode de croissance est favorisé, une couche de mouillage parfaitement plane croît lors des premières étapes du procédé. Puis, lorsque le dépôt de quelques monocouches (MC) atomiques est complété, la contrainte élastique accumulée devient suffisante pour favoriser la formation d'îlots (Ohring, 1992). Lorsque les conditions expérimentales sont bien contrôlées, les îlots obtenus sont de taille étonnamment semblable et répartis de façon relativement uniforme. On parle alors de nano-îlots auto-organisés (NIAO). Les



tailles typiques de ces îlots varient entre 10 et 150 nm pour la base et entre 3 et 8 nm pour la hauteur, la taille variant avec le désaccord paramétrique des matériaux cristallins en présence. Ils sont cohérents avec la matrice monocristalline et ne contiennent généralement pas de dislocations si les conditions de croissance sont bien choisies (Eaglesham & Cerullo, 1990).

Plusieurs techniques complémentaires ont été mises au point pour caractériser les NIAO, chacune ayant des avantages et inconvénients. Dans la microscopie à force atomique (MFA), une pointe très fine se déplace sur la surface d'un échantillon en la sondant avec une précision de l'ordre du nanomètre. On peut ainsi connaître en détail la forme, la taille et la répartition spatiale des îlots sur des surfaces de plusieurs  $\mu\text{m}^2$ . Cependant, cette technique ne donne aucunement accès à la contrainte cristalline, ni aux îlots enfouis sous une couche d'encapsulation. Or, ce sont ces derniers qui ont une importance technologique, les NIAO en surface ne sont d'intérêt que pour la recherche.

Dans la microscopie électronique en transmission (MET), un faisceau d'électrons traverse un échantillon préparé en lame très mince ( $< 100$  nm). Par visualisation directe, on peut observer l'arrangement spatial des îlots, ainsi que les champs de contraintes autour ces îlots et ce, sur des surfaces comparables à celles sondées par la MFA. De plus, avec la MET à haute résolution, on peut apercevoir la position de chaque colonne d'atomes à l'intérieur d'un îlot. Malheureusement, la préparation des échantillons est très longue et fastidieuse en plus d'être destructive. De plus, l'analyse quantitative des contraintes n'est

pas aisée (Laval, 2002) ni statistiquement fiable, la région sondée étant petite.

Dans les techniques exploitant la photoluminescence (PL), on mesure les transitions optiques qui se produisent à l'intérieur d'un échantillon. Dans un premier temps, cela donne la confirmation qu'il y a effectivement confinement quantique. Dans un deuxième temps, la largeur spectrale de la raie d'émission associée aux BQ donne une valeur semi-quantitative de la distribution de taille étant donné qu'un très grand nombre d'îlots sont sondés (plusieurs dizaines de milliers en général). Cependant, la caractérisation quantitative et structurale par PL des BQ demande la mise au point de modèles théoriques poussés intégrant l'influence de la forme, de la taille et de la contrainte cristalline sur les structures de bandes électroniques et, par conséquent, sur les transitions optiques permises.

Les mesures aux rayons X (RX) ont un fort potentiel pour la caractérisation structurale, tant en diffraction qu'en diffusion. Il s'agit de techniques non-destructives qui permettent d'observer des îlots autant en surface qu'enfouis. Selon les choix de l'angle d'incidence et de l'angle de détection du faisceau de rayons X, on peut caractériser la forme et la taille des îlots ou encore la contrainte cristalline interne. Cependant, plusieurs facteurs font que l'interprétation des mesures obtenues n'est pas immédiate. D'abord, plusieurs effets des éléments structuraux du matériau sur les mesures ne sont pas indépendants. De plus, la technique ne permet pas de caractériser un seul îlot à la fois; on obtient généralement une moyenne pondérée sur un grand nombre d'entre eux. L'arrangement spatial des NIAO peut être obtenu, mais à l'intérieur d'un certain volume qui dépend des longueur et

largeur de cohérence de la source incidente. La première valeur vient de la qualité de la monochromaticité et la deuxième de la divergence du faisceau incident. Ces valeurs sont de l'ordre du micromètre pour la plupart des sources de rayons X à haute résolution.

Deux types de théorie sont utilisés pour modéliser les mesures RX sur des structures cristallines. La théorie dynamique tient compte de l'interaction cohérente des processus de diffusion multiple (Cowley, 1981). La théorie cinématique quant à elle, aussi appelée première approximation de Born (AB), pose que l'onde incidente est la même pour tous les centres de diffusion. Il s'agit donc d'une approximation de « diffusion unique ». Cette théorie permet des calculs beaucoup plus simples que la théorie dynamique, mais elle est applicable seulement dans les cas où l'intensité diffusée est faible par rapport à l'intensité incidente. Dans le cas des nanostructures auto-organisées, c'est l'approche de l'AB qui est le plus souvent utilisée. Elle est justifiée par le fait que les îlots ont un volume très petit (de l'ordre de 500 à 1000 nm<sup>3</sup>) par rapport au substrat et ainsi la probabilité de diffusions multiples est extrêmement faible.

C'est dans cette lignée que s'inscrit ce travail de maîtrise. Les objectifs généraux sont de :

- proposer une démarche complète de caractérisation non destructive des NIAO enfouis par RX;
- démontrer par modélisation la faisabilité de cette démarche;
- fournir des outils numériques pour l'analyse quantitative des données de mesures RX obtenues sur des NIAO, qui donnent accès, par des mesures indépendantes, à leur taille, leur forme, leur champ de contraintes interne et leur arrangement spatial.

De façon plus particulière, l'atteinte de ces objectifs a nécessité la réalisation des étapes suivantes :

- modéliser l'interaction des RX et des NIAO dans l'approximation cinématique;
- justifier l'approche de l'utilisation de la cohérence variable pour la caractérisation des NIAO;
- utiliser une méthode Monte-Carlo pour déterminer les paramètres d'un réseau de NIAO.

Les chapitres suivants de ce mémoire sont organisés comme suit. Le chapitre deuxième présente la revue de la littérature pertinente au niveau de l'analyse des clichés de diffraction et de diffusion de RX. L'accent est mis sur les modélisations de mesures et les théories sous-jacentes, en mettant en évidence les lacunes de celles-ci. Le chapitre troisième présente une démarche en quatre étapes de caractérisation complète des NIAO par différentes méthodes RX; il expose le formalisme théorique utilisé dans la suite du mémoire, autant les équations classiques que celles développées spécifiquement pour ce travail. Les travaux de modélisation qui font l'objet du présent mémoire se limitent aux deux premières étapes de cette démarche. Dans ce contexte, le chapitre quatrième montre les résultats de calculs des équations du chapitre troisième pour la première étape, c'est-à-dire la détermination de la forme et de la distribution de taille des îlots. Le chapitre cinquième montre les résultats de calculs pour la deuxième étape de la démarche, soit l'étude de l'arrangement spatial des îlots par la cohérence variable et la méthode de Monte-Carlo. Le chapitre sixième présente une discussion des résultats de simulation, de leur validité et de leur pertinence. Après la conclusion et les recommandations pour un éventuel suivi de ce travail, se retrouve en

annexe le code de l'outil de modélisation mis au point en langage Matlab.

## **2 État actuel des connaissances**

Ce chapitre résume les efforts qui ont été réalisés pour la caractérisation des îlots auto-organisés.

La première section présente un survol des configurations de l'espace réciproque. Chacune des techniques de caractérisation utilisant les rayons X (RX) revient en fait à sonder des régions précises de cet espace, selon différents parcours. La deuxième section résume les efforts de caractérisation des nano-îlots auto-organisés (NIAO). Souvent, des modèles conçus pour la caractérisation de structures en couches minces planes ont été utilisés, après les avoir adaptés, pour extraire la taille moyenne et la composition chimique des îlots, et ce, sans trop se questionner sur leur validité dans ce contexte. Par la suite, des techniques pour détecter spécifiquement les îlots furent développées, avec une interprétation semi-quantitative des mesures obtenues. La troisième section aborde les intérêts et faiblesses des quelques modèles théoriques développés pour décrire l'interaction RX-NIAO. Finalement, la dernière section présente la façon dont on a tiré profit de la cohérence du faisceau incident pour explorer les volumes de très petites dimensions dans l'étude de la structure de matériaux amorphes.

### **2.1 Configurations de l'espace réciproque**

L'espace réciproque peut être vu comme l'espace des fréquences spatiales. Les techniques RX sont sensibles aux structures allant de la position des atomes jusqu'à la disposition spatiale de plusieurs centaines d'îlots d'atomes. Dans le cas d'un échantillon en couches

minces (l'épaisseur des couches étant très petite par rapport à leurs dimensions latérales), cet espace est généralement décomposé pour montrer ce qui se passe dans la direction perpendiculaire à la surface (vecteur  $q_z$ ) et dans celles parallèles (vecteurs  $q_x$  et  $q_y$ , avec  $q_x$  dans le plan formé par le faisceau incident et la normale à la surface). La configuration expérimentale à adopter pour sonder les zones de l'espace réciproque est présentée à la section 3.2. Les vecteurs de base de cet espace,  $\mathbf{a}_x^*$ ,  $\mathbf{a}_y^*$  et  $\mathbf{a}_z^*$  sont définis par rapport à la maille élémentaire du réseau cristallin du substrat. Lorsque des mesures sondent les environs de l'origine de l'espace réciproque ( $|\mathbf{q}| \ll |\mathbf{a}^*|$ ), on parle de mesures en diffusion (figure 2.1). Celles-ci ne sont pas sensibles à la contrainte cristalline, mais seulement à la variation de la densité électronique. Lorsque les mesures sondent des régions de l'espace réciproque qui sont proches des combinaisons linéaires de ses vecteurs de base, on parle de mesures en diffraction.

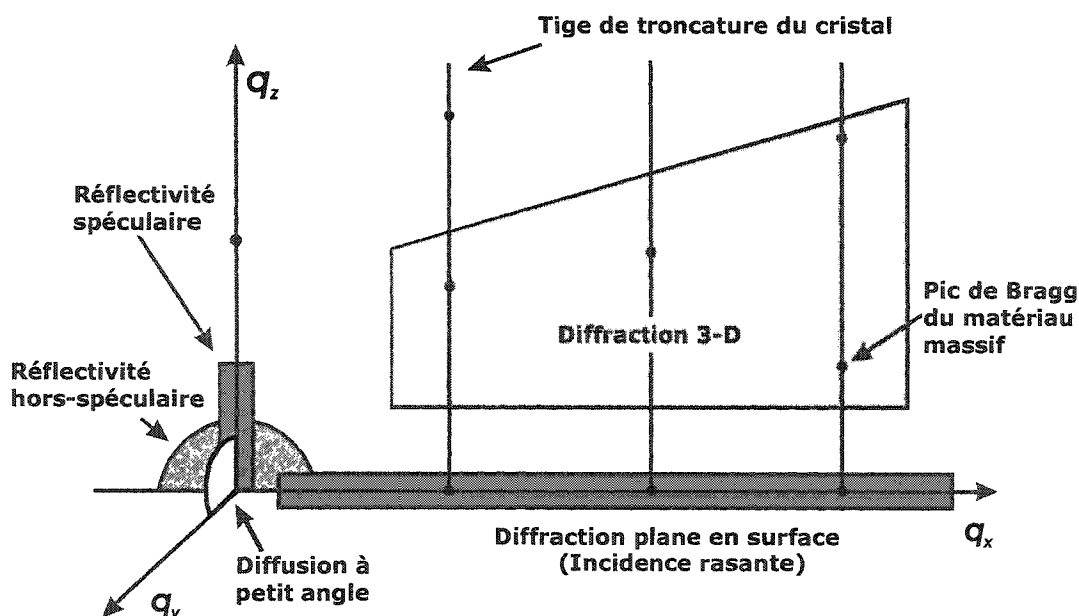


Figure 2.1 Configurations de l'espace réciproque (adapté de Chason, 1997)

Un fait important se produit lorsque l'angle d'incidence du faisceau RX sur un substrat plat est inférieur à un certain angle critique  $\alpha_c$ , de l'ordre de  $0,2^\circ$  à  $0,5^\circ$  pour la plupart des matériaux (à  $\lambda = 0,154$  nm). On observe une réflexion totale externe à cause de la différence des indices de réfraction entre l'air et l'échantillon (Born & Wolf, 1980). Cependant, la partie imaginaire dans l'indice de l'échantillon fait en sorte qu'une partie du faisceau incident est absorbée. Il en résulte une onde évanescente dans le matériau qui peut être utilisée pour sonder la surface, comme il sera mentionné plus loin.

La réflectivité spéculaire (RSRX) sonde l'origine du réseau réciproque, pour  $q_x$  et  $q_y$  égaux à 0. Elle offre donc des informations sur la variation de la densité électronique dans la direction perpendiculaire à la surface et permet de déduire, par exemple, l'épaisseur de couches minces (voir par exemple Chason, 1997). La réflectivité hors-spéculaire (RHSRX) quant à elle, sonde  $q_z$  proche de l'origine pour de petites valeurs de  $q_x$ . On en tire des informations sur la forme des structures perpendiculairement et parallèlement à la surface, comme les types de rugosité d'interface (voir par exemple Holý & Baumbach, 1994).

Les deux types de mesures précédentes sont réalisées lorsque le faisceau RX incident, le faisceau RX diffusé et la normale à la surface de l'échantillon reposent tous dans un même plan (configuration dite coplanaire). Lorsque le faisceau diffusé ne fait plus partie du plan de réflexion (direction du vecteur  $q_y$ ), on parle de mesures de diffusion à petit angle. C'est dans cette configuration que sont visibles les effets de petits volumes finis. Toutes ces mesures se font dans les environs de l'origine de l'espace réciproque.



Lorsque l'on est dans la région où  $q_x \gtrsim |\mathbf{a}_x^*|$  et  $q_z \ll |\mathbf{a}_z^*|$ , on parle de diffraction de surface à incidence rasante (DIR). En général, l'angle d'incidence est inférieur à l'angle critique de réflexion totale  $\alpha_c$  : une onde évanescente pénètre dans le matériau et la zone sondée est par conséquent très proche de la surface (pénétration de quelques dizaines de nanomètres, tout au plus). Cette mesure permet d'obtenir de l'information sur les plans cristallins qui sont perpendiculaires à la surface de l'échantillon. C'est dans cette configuration que les contraintes cristallines internes aux îlots sont les plus visibles.

Lorsque  $q_z \gtrsim |\mathbf{a}_z^*|$ , une région beaucoup plus profonde est sondée. On peut donc parler de diffraction par un volume tridimensionnel. En raison de la longueur de pénétration finie des RX dans la matière, on parvient à voir seulement quelques micromètres sous la surface. Cependant, lorsqu'un échantillon contient une ou plusieurs couches minces déposées à sa surface, des figures de diffraction supplémentaires s'observent en raison du fait que la dimension verticale de ces couches est beaucoup plus petite que ses dimensions latérales. De plus, la présence de la surface provoque une rupture de symétrie verticale qui fait apparaître des « tiges de troncature » dans la direction de  $\mathbf{a}_z^*$ , c'est-à-dire que les « points » de l'espace réciproque associés aux atomes de la surface s'étirent de façon importante en raison d'un relâchement de la condition de Bragg.

Les différentes configurations de l'espace viennent d'être survolées. Les prochaines sections présentent comment chacune d'elles a été exploitée pour caractériser les NIAO. Le lecteur intéressé à avoir des informations plus détaillées sur l'ensemble des techniques

RX pourra se référer à « *High-Resolution X-Ray Scattering from Thin Films and Multilayers* » (Holý, Pietsch et Baumbach, 1999)

## **2.2 Efforts de caractérisation**

### **2.2.1 Caractérisations par modèles en couches minces**

Les îlots auto-organisés issus du mode de croissance SK sont fabriqués à partir des techniques de dépôt de couches minces de matériaux cristallins. La croissance épitaxiale se fait d'abord uniformément en deux dimensions, puis, après avoir dépassé une certaine épaisseur critique, il y a apparition d'îlots. Ces derniers peuvent donc être vus comme une perturbation d'une couche plane. C'est pourquoi une des approches les plus simples et évidentes pour détecter la présence d'îlots, et ensuite leur caractérisation, a été d'utiliser les modélisations déjà existantes pour les structures en couches minces (comme celles de Takagi-Taupin par exemple). L'idée principale est de regarder comment la présence d'îlots aux interfaces peut modifier la figure de diffraction (ou de réflectivité) par rapport à des simulations numériques pour des couches considérées planes avec des interfaces abruptes.

#### **2.2.1.1 Mesures en réflectivité**

Une des premières études de réflectivité sur des îlots a été menée par Williams *et al.* (1991). Leur but était d'observer à quel moment se produisait la transition 2D-3D dans un mode de croissance SK et ainsi déterminer une épaisseur critique de formation des îlots de germanium sur silicium. Ils mentionnent explicitement que lorsque la croissance est bidimensionnelle, les modèles couramment utilisés de mesure en

réflectivité (Parratt, 1954; Born & Wolf, 1980) sont adéquats, mais lorsque cette épaisseur est dépassée, un autre formalisme s'impose. Ils ont donc développé le leur qui est basé sur une analyse de la variation verticale de la densité électronique dans le matériau contenant les îlots. Cette modélisation tient compte de la hauteur moyenne des îlots et du mode de croissance épitaxiale. À partir de la simulation des courbes de réflectivité engendrées par leur description du profil de la densité électronique, ils décrivent comment se fait la transition 2D-3D (formation d'îlots, diffusion du germanium, etc.). Ils sont cependant très conscients que cette étude n'est que grossière en raison de la simplicité de leur modèle.

Un seul groupe (Krost, 1999) a affirmé pouvoir mesurer la hauteur moyenne des îlots par réflectivité spéculaire des rayons X (RSRX). Cette équipe a comparé des mesures RSRX de leur échantillon, nominale 15 X [21 nm GaAs / 1,4 nm InGaAs / 1,6 MC InAs] / GaAs(001) (les matériaux entre crochets représentent la période répétée 15 fois), à des simulations basées sur un modèle de couches minces dont elle ne précise pas la nature. Les valeurs alléguées pour les couches de InGaAs, décrites plus haut, sont une épaisseur de 1,5 nm avec un écart quadratique moyen (EQM) de rugosité de  $1,3 \pm 0,1$  nm (il est à noter qu'ils ont considéré l'ensemble (InGaAs/InAs) comme étant une seule couche). Ils attribuent d'emblée cette rugosité calculée à la présence d'îlots sur la couche de mouillage, sans se questionner sur la validité du modèle.

Le modèle le plus couramment utilisé pour l'évaluation de la rugosité est celui de Névot-Croce (1980). Il n'est cependant valable que pour des largeurs d'interface petites devant l'épaisseur de la couche, ce

qui n'est manifestement pas le cas ici. La plupart des autres auteurs qui utilisent la RSRX pour caractériser leurs échantillons en utilisant ce modèle de rugosité (par exemple : Meduña, 2001) obtiennent des rugosités calculées similaires : par exemple une couche de SiGe de 1,3 nm avec une rugosité EQM de 1 nm. Cependant, ils ne se prononcent pas sur l'interprétation à donner à ces valeurs.

### **2.2.1.2 Mesures en diffraction**

Quelques groupes ont fait des analyses assez complètes d'échantillons à NIAO regroupant plusieurs différentes techniques RX. Dans l'analyse des mesures de diffraction RX à haute résolution (DRXHR), Krost *et al.* (1999) ont utilisé la fonction enveloppe (extinction de certains pics du superréseau) pour déterminer le ratio des épaisseurs des couches de GaAs et de InGaAs (cette dernière contenant les îlots). L'argument de ces auteurs pour justifier la validité de l'utilisation de la DRXHR sur de tels échantillons est qu'ils réussissent à reproduire plusieurs courbes de diffraction dans différentes orientations ((004), (224), (113)) et ce avec les mêmes paramètres de simulation. Ces mêmes auteurs affirment, mais sans figure à l'appui, que les meilleurs accords sont obtenus pour un modèle à deux couches ( $\text{In}_{0,235}\text{Ga}_{0,765}\text{As}/\text{InAs}$ ) plutôt qu'à une seule ( $\text{In}_{0,43}\text{Ga}_{0,57}\text{As}$ ) comme suggéré par les mesures RSRX. Malheureusement, aucun questionnement rigoureux sur la validité de ces simulations n'est posé.

Cette même analyse (Krost, 1999) présente une mesure de figure de pôle (mesure pendant laquelle on change de façon continue l'angle azimutal du faisceau RX incident) de laquelle ils peuvent tirer la

composition chimique des îlots, ce qui n'était pas possible par RSRX, comme étant  $\text{In}_{0,86}\text{Ga}_{0,14}\text{As}$ . Par conséquent, la composition en indium de la couche de mouillage a dû fortement diminuer pendant la croissance.

Un autre groupe (Pal, 2001) s'est inspiré des travaux de Krost pour étudier leurs échantillons de  $6 \times [\text{In}(\text{GaAl})\text{As} / \text{GaAs}] / \text{GaAs}(001)$  dont la contrainte moyenne perpendiculaire au plan de croissance est de l'ordre de  $1,7 \times 10^{-3}$  par rapport au substrat. Par MET à haute résolution, ils ont d'abord mesuré l'épaisseur de la couche de mouillage à 5 nm et la hauteur des îlots à 3 nm. Ensuite, ils ont défini deux modèles pour simuler numériquement leurs résultats de DRXHR, en appliquant l'approche de Krost :

- a) un modèle à deux couches (3 nm  $\text{In}_{0,15}(\text{Ga}_{0,9}\text{Al}_{0,1})_{0,85}\text{As}$  /  
5 nm  $\text{In}_{0,3}(\text{Ga}_{0,9}\text{Al}_{0,1})_{0,7}\text{As}$ )
- b) un modèle à une seule couche (7,8 nm  
 $\text{In}_{0,248}\text{Ga}_{0,675}\text{Al}_{0,077}\text{As}$ )

En présentant les figures de simulations à l'appui, ils concluent que le modèle à une couche donne un meilleur accord avec les mesures. De plus, ils obtiennent un bon appariement dans les trois configurations (004), (224), (113) en utilisant les mêmes paramètres. Ici encore, les auteurs ne se questionnent pas la validité des données extraites par simulation. Le simple fait que « les valeurs semblent bonnes » les satisfait.

### **2.2.2 Réflectivité hors-spéculaire**

Dans la configuration de la réflectivité hors-spéculaire des rayons X (RHSRX), ce sont les directions  $q_x$  et  $q_z$  qui sont balayées. On

a ainsi de l'information sur les propriétés de corrélation latérale des surfaces et interfaces et aussi sur leur degré de réplication verticale. En effet, les fréquences spatiales de ces phénomènes correspondent à la région proche de l'origine de l'espace réciproque.

Dans la direction  $q_x$ , les différents types de transition d'interfaces (rugosité intrinsèque, gradient de composition latéralement homogène, etc.) ont des effets particulièrement marqués et masquent les effets des îlots. Pour cette raison, aucun auteur ne semble tirer des caractéristiques structurales des îlots à partir de ce type de mesure. Dans la direction  $q_z$ , c'est le degré de réplication verticale qui est visible. Darhuber *et al.* (1997) utilisent donc cette technique pour caractériser l'alignement vertical des îlots et ainsi déterminer une certaine longueur de corrélation verticale. Ils sont cependant conscients que la distribution de taille des îlots affecte cette valeur.

D'autres auteurs poussent un peu plus loin l'analyse (Meduña, 2001) et utilisent la RHSRX pour déterminer, dans une multicouche d'îlots, un angle de réplication vertical entre la direction de croissance et la direction de réplication, c'est-à-dire un décalage de la position d'un îlot par rapport à celui de la couche inférieure. Ces mesures n'ont cependant pas été comparées avec des observations directes au MET

### **2.2.3 Diffusion à petit angle et incidence rasante**

Les mesures de diffusion à petit angle et incidence rasante (DPAIR) se font pour des angles d'incidence et de détection qui sont, en général, proches de l'angle  $\alpha_c$ . Dans cette configuration non-coplanaire, toutes les structures ayant une symétrie de translation (homogénéité latérale) ne contribuent pas à la diffusion (Stangl, 2000). Le substrat,

les couches minces et la rugosité d'interface présentent une telle symétrie. Par contre, un réseau d'îlots n'en possède pas. C'est donc, en théorie, la configuration idéale pour étudier les NIAO.

Au départ, cette technique était vue comme une combinaison de diffusion à petit angle et de réflectivité de surface et était utilisée pour caractériser la germination lors de la croissance de couches minces. Elle a été utilisée pour la première fois pour des NIAO en surface il y a quelques années (Schmidbauer, 1998). Ces auteurs ont caractérisé des pyramides tronquées de  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}(001)$ . À l'aide de leurs mesures de DPAIR, ils ont pu déterminer la distance moyenne entre les îlots ainsi que des directions préférentielles pour l'alignement latéral de ceux-ci. Quant à la forme, ils ont simplement déterminé les facettes exposées des pyramides grâce à la trace des tiges de troncature, ces facettes étant de type  $\{111\}$ . La forme précise et les dimensions des îlots ont été obtenues par microscopie électronique à balayage. Ce groupe est le premier à noter la similitude entre les figures de DPAIR et le spectre de puissance des images de MFA, et à les comparer entre elles. En effet, pour des îlots en surface, ces deux techniques donnent la même information sous certaines conditions. Zhang *et al.* (2000) ont également utilisé cette technique pour des îlots d'InAs sur GaAs(001). Ils déterminent la distance moyenne entre les îlots et une anisotropie dans leur distribution spatiale. À l'aide des tiges de troncature, ils observent des facettes  $\{111\}$  et  $\{101\}$ , ce qui suggère des îlots de base octogonale.

Stangl *et al.* (1999) ont analysé des îlots de Ge(C)/Si(001). Ils observent que l'arrangement spatial des îlots est isotrope et que leurs îlots sont de symétrie de révolution. Dans ce contexte, ils ont développé

un modèle simple basé sur la transformée de Fourier de la fonction de densité de probabilité de la distance entre îlots proches voisins. Ce modèle leur permet de calculer la distance moyenne entre les îlots et de déterminer approximativement la forme et les dimensions des îlots. Le meilleur accord avec les mesures donne des îlots en forme de dôme (*lens-shape*).

## 2.3 Efforts de modélisation

### 2.3.1 Taille et forme des îlots

Afin de déterminer la taille et la forme de très petits volumes, cristallins ou non, la technique de diffusion des RX à petit angle existe depuis les années 1940. L'approche théorique la plus couramment utilisée est celle de Guinier & Fournet (1955). Pour une particule dont on considère que la densité électronique est constante, l'intensité diffusée est donnée par

$$I(\mathbf{q}) = \rho^2 |\Omega^{\text{TF}}(\mathbf{q})|^2 \quad [2.1]$$

où  $\mathbf{q}$  est le vecteur de diffusion,  $\rho$  est la densité électronique et  $\Omega^{\text{TF}}(\mathbf{q})$  est la transformée de Fourier de  $\Omega(\mathbf{r})$ , le facteur de forme de la particule. Cette équation n'est valable que pour de petites valeurs de  $|\mathbf{q}|$  et implique que l'on connaît a priori la forme de la particule. Afin de s'affranchir de cette dernière condition, les auteurs ont développé la technique dite du graphe de Guinier (*Guinier plot*). Lorsque l'on a  $(|\mathbf{q}|X_D) \ll 1$ , où  $X_D$  est la dimension de la particule, alors la pente de l'intensité diffusée dans un graphe de  $\text{Log}(I(|\mathbf{q}|))$  vs  $|\mathbf{q}|^2$  donne le rayon de giration de la particule. Quand on regarde un ensemble de



particules désordonnées, le rayon de giration obtenu est moyenné sur toutes les orientations possibles des particules.

Dans le cas d'îlots proches de la surface (en surface ou enfouis peu profondément), la présence de cette surface rend l'interprétation d'un graphe de Guinier moins directe. Pour en tenir compte, Rauscher *et al.* (1995 et 1999) ont adapté une théorie appelée « approximation de Born par onde modifiée » (ABOM). Cette théorie a d'abord été développée par Sinha *et al.* (1988) pour décrire certains types de rugosités d'interface. L'ABOM contient les corrections pour les phénomènes de réflexion et réfraction à la surface qui surviennent avant et après la diffusion par les NIAO. Les effets les plus visibles de cette théorie se font remarquer dans des mesures de DPAIR, c'est pourquoi cette technique est la plus utilisée pour la valider. Elle sera d'ailleurs utilisée dans la suite de ce mémoire.

Bien que leur théorie permette en principe d'inclure un terme décrivant la position des îlots, Rauscher *et al.* (1999) posent que la disposition spatiale des îlots est totalement aléatoire et l'intensité diffusée est simplement un multiple de l'intensité d'un îlot isolé. La forme des îlots décrits dans cet article est pyramidale à base triangulaire, la symétrie d'ordre 3 ayant été clairement mise en évidence.

Stangl *et al.* (2000) ont développé un formalisme pour décrire plus particulièrement les îlots organisés en multicouches (donc enfouis). Leur théorie tient compte de la taille, de la forme et de l'arrangement vertical et latéral des îlots. La grande force de l'approche de Stangl est qu'en choisissant judicieusement l'angle d'incidence du

faisceau incident, on contrôle la profondeur de pénétration de RX et donc le nombre de couches d'îlots sondées. Malheureusement, il n'est plus possible de comparer les résultats avec les mesures de MFA en raison de la présence de la couche d'encapsulation. Les îlots qui sont considérés dans cet article sont ellipsoïdaux et les mesures présentées sont sensibles à la longueur du petit axe et du grand axe de ces formes.

Lazzari (2002) a intégré un grand nombre de modèles récents dans un logiciel conçu spécifiquement pour simuler numériquement des mesures DPAIR pour une grande variété d'échantillons selon les diverses théories. Tous les modèles présentement disponibles dans la littérature prétendent extraire la forme, la taille et l'arrangement spatial des îlots (ce dernier point sera traité plus loin dans ce chapitre). Malheureusement, la grande majorité des auteurs de ces modèles ne discute, ou même évoque, le fait que la distribution de tailles des îlots rend l'identification de la forme beaucoup plus difficile, même si Guinier l'avait déjà remarqué il y a plus de 40 ans (Guinier, 1963). En fait, seul Lazzari donne un aperçu des conséquences de la distribution de forme dans des exemples d'application du logiciel qu'il a développé.

### **2.3.2 Traitement de la fonction d'interférence**

Dans l'approximation cinématique, l'intensité diffusée par un ensemble d'îlots s'écrit (Cowley, 1981)

$$I(\mathbf{q}) \propto \left| \sum_{m=1}^N D_m(\mathbf{q}) e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}_m} \right|^2 \quad [2.2]$$

où  $D_m(\mathbf{q})$  est le facteur de diffusion pour un îlot,  $\mathbf{R}_m$  est la position de cet îlot et  $N$  est le nombre total d'îlots. Les effets de taille et de forme

discutés précédemment sont inclus dans le terme du facteur de diffusion. La sommation sur les positions des îlots est appelée « fonction d'interférence ». C'est dans cette fonction que l'on retrouve l'influence de l'arrangement des îlots. Une mise à jour assez complète des fonctions d'interférence ayant déjà été réalisée (Lazzari, 2002), un simple résumé sera présenté ici.

La façon la plus simple de décrire l'arrangement spatial est de supposer que la position des îlots est totalement aléatoire et ainsi, la sommation sur les positions se moyenne à 1 : le signal détecté est celui d'un îlot individuel (Rauscher, 1999). Une autre approximation, un peu moins grossière, est de poser que la taille des îlots est indépendante de leur position : approximation de taille et position découplée (ATPD). Autrement dit, le terme  $D_m(\mathbf{q})$  est sorti de la sommation. Ceci permet de calculer l'intensité diffusée comme un produit de deux termes : celui de la diffusion d'un îlot de taille moyenne et celui d'une fonction d'interférence d'un réseau de points. Le premier terme qui dépend uniquement des îlots individuellement,  $D_m(\mathbf{q})$ , a été détaillé dans la section 2.3.1.

Pour effectuer directement la sommation du second terme, cela suppose que l'on connaît parfaitement la position de tous les îlots. Ceci peut être fait sur un réseau généré numériquement ou à partir des informations d'une image de microscopie. Mais si on s'intéresse seulement aux valeurs statistiques, comme la distance moyenne entre les îlots par exemple, la sommation se transforme en intégrale continue sur les probabilités de trouver un îlot à telle ou telle position. On obtient ainsi des modèles statistiques qui ne dépendent que de quelques paramètres. Un modèle statistique d'ordre à courte portée

couramment utilisé est basé sur la théorie des processus stationnaires aléatoires (Pukite, 1985). Dans le cas de multicouches d'îlots, on peut considérer deux fonctions de distribution, une parallèle à la direction de croissance et l'autre perpendiculaire à cette direction.

Il est important de noter que dans l'ATPD, tout niveau d'ordre à moyenne portée est ignoré. Par ce terme, on entend une zone où la taille des îlots est plus uniforme qu'ailleurs, ou encore une zone où les îlots sont mieux ordonnés. En fait, c'est seulement par des mesures de MFA que ce genre d'arrangement a pu être observé (par exemple : Stangl, 2000).

Dans la pratique, pour certains types d'échantillons, il existe une meilleure approximation que l'ATPD qui est appelée approximation de monodispersité locale (AML) (Lazzari, 2002). Elle consiste à supposer que les îlots proches les uns des autres sont de la même taille. Ensuite, une variation lente de la taille moyenne des îlots dans l'échantillon est prise en considération par l'introduction d'une fonction enveloppe.

### **2.3.3 Contrainte cristalline**

Comme mentionné précédemment, la contrainte cristalline à l'intérieur des îlots ne peut être extraite à partir des mesures de DPAIR. La technique la plus répandue pour ce faire est la diffraction à incidence rasante (DIR). Dans cette configuration, lorsque l'angle d'incidence est de l'ordre de  $\alpha_c$  (ou inférieur), la longueur de pénétration sous la surface de l'échantillon est très courte ( $< 20$  nm). Ainsi, on ne verra que peu le substrat par rapport aux îlots. Trois

différentes approches ont été proposées dans la littérature pour modéliser la contrainte cristalline.

Holý *et al.* (1998) utilisent un modèle basé sur les fonctions de Green. Ils définissent la fonction de Green pour une source ponctuelle de déformation, à partir des propriétés des matériaux telles que le paramètre de maille, le coefficient de Poisson et la composition chimique. Ensuite le champ de déplacement est calculé comme étant la superposition des contributions des sources ponctuelles, autrement dit, en faisant l'intégrale de la fonction de Green sur le volume de l'îlot. Les simulations numériques qu'ils obtiennent pour des cartographies du réseau réciproque correspondent bien aux mesures expérimentales d'îlots de SiGe/Si(001). Il faut toutefois faire attention à leurs interprétations car les hypothèses pour l'utilisation de la fonction de Green sont assez drastiques : on néglige l'anisotropie élastique ainsi que la différence entre les constantes élastiques des différents matériaux formant les îlots et la matrice.

Une autre approche intéressante a été développée par Kegel *et al.* (1999, 2000) pour des nanostructures en surface pour lesquelles les contraintes sont élevées tels que InAs/GaAs(001). Le point de départ est de considérer que la base d'un îlot a le même paramètre de maille que le substrat (GaAs dans leur cas) alors que le sommet est complètement relaxé (paramètre de maille de l'InAs). Ainsi, dans l'espace réciproque, tout le champ de contrainte à l'intérieur de l'îlot sera compris entre les positions des pics  $(hk0)_{\text{InAs}}$  et  $(hk0)_{\text{GaAs}}$ . Ensuite (toujours dans l'espace réciproque), perpendiculairement à cette direction, on se déplace sur une ligne où la contrainte à l'intérieur de l'îlot est constante. Dans cette direction, on ne sera sensible qu'à la

forme de la zone dans laquelle la contrainte est constante (zone d'iso-contrainte, selon leur appellation). On peut donc reconstruire la forme de l'îlot sans la supposer au départ, il « suffit » de connaître la variation de la concentration de gallium en fonction de la hauteur de l'îlot. Cette méthode, bien qu'astucieuse, pose deux problèmes. D'abord, afin de connaître la forme des îlots, on doit poser l'hypothèse d'un champ de contrainte. Ensuite, cette méthode n'est valable que pour des îlots en surface. En effet, pour des îlots enfouis, il est bien connu qu'il peut y avoir diffusion des atomes autour des îlots et, par conséquent, la composition chimique au sommet de l'îlot peut être modifiée.

La dernière approche présentée ici a été suggérée, mais non encore modélisée (ou calculée pour des îlots). Afin de calculer les contraintes dans un multi-puits quantique, Grundmann & Krost (2000) proposent la théorie cinématique atomique (TCA). Cette théorie revient simplement à calculer le facteur de structure pour une immense cellule élémentaire qui englobe toute la multicouche. Pour ce faire, il est nécessaire de connaître la position de chaque atome. Grundmann & Krost ont calculé ces positions en minimisant l'énergie de contrainte par l'intermédiaire du modèle de Keating. Le nombre d'atomes considéré n'est pas mentionné, mais on peut l'estimer de l'ordre de  $10^5$  à  $10^6$ . Pour des figures DRXHR de multicouches planes, leur théorie donne des résultats très proche de la théorie dynamique. Ces auteurs proposent explicitement d'appliquer cette théorie pour modéliser des NIAO. Cependant, elle semble peu applicable en pratique. En effet, afin de bien modéliser les contraintes, il faudrait déterminer les positions atomiques à l'intérieur et à l'extérieur de chaque îlot car la déformation de la matrice due à l'îlot s'étend sur une distance de plusieurs fois la taille de l'îlot. Le nombre d'atomes

nécessaire à placer serait de l'ordre de  $10^9$  et encore là, ça ne serait que pour un seul îlot.

## **2.4 Utilisation de la cohérence**

La cohérence du faisceau RX incident sur un échantillon a une importance capitale sur la qualité des mesures qui sont réalisées. Les longueur et largeur de cohérence déterminent le volume de matière qui sera « vu » à la fois, c'est-à-dire la distance entre des sources ponctuelles qui produisent des phénomènes d'interférence. La longueur de cohérence (cohérence temporelle) vient de la qualité de la monochromatisation de la source tandis que la largeur de cohérence (cohérence spatiale) vient de la divergence du faisceau incident (Saleh, 1991).

### **2.4.1 Recherche de la cohérence maximale**

Robinson *et al.* (2001) ont montré expérimentalement que lorsque le volume de cohérence associé au faisceau de rayons X incident était plus grand que la nanostructure sondée, il était possible de faire la transformée de Fourier inverse et de reconstruire la forme originale de cette nanostructure. L'échantillon étudié était constitué de microcristaux d'or (de la taille du micromètre) sur une couche de  $\text{SiO}_2$ . Étant donné que chaque cristal est orienté de façon aléatoire, les pics de diffractions (hkl) de chacun d'eux sont également répartis aléatoirement. Il est donc possible d'isoler spatialement un pic diffracté provenant d'un seul nanocristal et par la suite, faire la transformée inverse de l'intensité mesurée et ainsi connaître la taille et la forme précise de l'îlot.

Malheureusement, cette option n'est pas envisageable pour les NIAO principalement parce que ceux-ci sont cohérents avec le substrat, et par conséquent, leur orientation cristalline est commune. On obtiendrait ainsi la contribution d'un grand nombre d'îlots.

Dans le cas des îlots qui nous intéressent plus particulièrement (qui ont une taille de l'ordre de  $25 \times 25 \times 5 \text{ nm}^3$ ), le volume de cohérence est presque toujours beaucoup plus grand que les îlots individuels. Mais comme on en sonde un grand nombre à la fois, seules les valeurs moyennes sont accessibles. Tel qu'il sera discuté au chapitre suivant, la recherche de la cohérence maximale permet plutôt d'obtenir le degré d'ordre à longue portée pour les échantillons bien ordonnés. Tous les auteurs qui s'intéressent à ce problème savent que la qualité de la corrélation latérale des îlots ne s'apprécie qu'à l'intérieur de la longueur de cohérence de la source.

#### **2.4.2 Cohérence variable**

Dans la pratique, la seule raison pour laquelle on renonce parfois à avoir un haut degré de cohérence, c'est pour obtenir le maximum d'intensité au niveau de la source. En effet, la seule façon d'augmenter la cohérence temporelle d'une source est de filtrer le faisceau RX incident à l'échantillon.

Dans le domaine des analyses utilisant les RX, la variation de la cohérence n'a jamais été exploitée. Du moins, cela n'a pas été publié. Les seules études exploitant la variation de la cohérence de la source ont été réalisées à l'aide d'un faisceau d'électrons par Treacy & Gibson (1996). Ceux-ci ont caractérisé la structure de couches minces amorphes de germanium par microscopie électronique en



transmission. En variant systématiquement la cohérence spatiale du faisceau d'électrons, ils constatent sur leurs images que certaines régions deviennent brillantes pour des valeurs précises de largeur de cohérence. En analysant la variation de contraste en fonction d'un paramètre de cohérence, ils en déduisent des zones avec ordre à moyenne portée dont la taille est de l'ordre de 15-20 Å.

L'utilisation de la cohérence variable ainsi que la contribution de cette approche pour les nanostructures auto-organisées sont présentées au chapitre suivant.

### 3 Formalisme

Le formalisme utilisé dans le cadre de ce mémoire est présenté dans ce chapitre. Le système de notation, qui se veut le plus près possible de celui utilisé dans les références les plus pertinentes du domaine, sera le même au cours des chapitres suivants.

#### 3.1 Description de la démarche générale

La mesure brute de rayons X à laquelle l'expérimentateur a accès est l'intensité diffusée en fonction de: la longueur d'onde, de l'orientation du faisceau incident sur l'échantillon et de l'orientation du faisceau émergent (position du détecteur). Ces trois paramètres permettent d'explorer une partie de l'espace réciproque associé à l'échantillon. On cherche à déterminer la contribution de chacun des paramètres structuraux des îlots sur l'intensité diffusée dans l'espace réciproque. La figure 3.1 montre schématiquement ces paramètres : forme des îlots, taille et distribution de taille, contraintes cristallines internes, arrangement spatial et présence de la couche de mouillage.

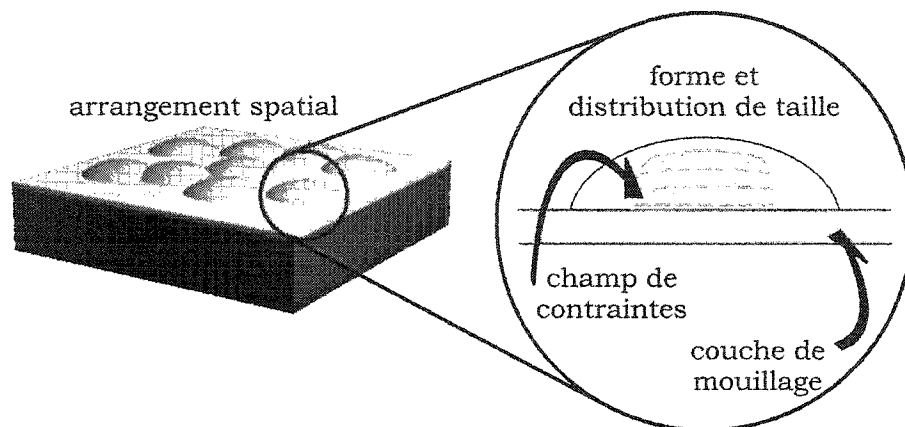


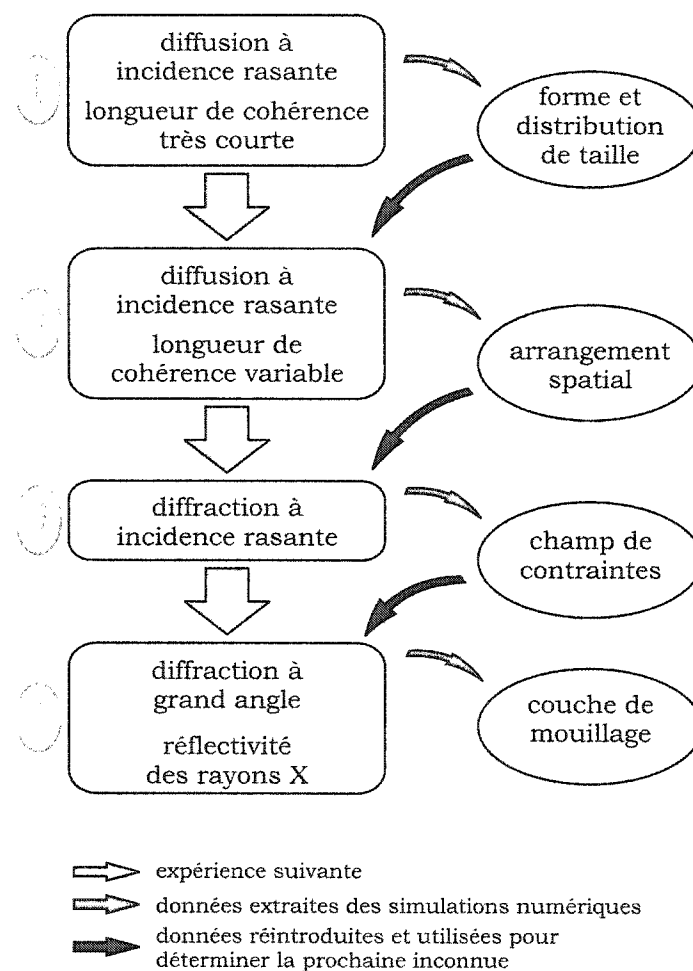
Figure 3.1 Paramètres structuraux d'un réseau de NIAO

Tous ces paramètres structuraux peuvent être extraits par des mesures aux rayons X. L'échantillon est illuminé sur une grande surface et on obtient ainsi des valeurs statistiques, et non pour des îlots individuellement.

La plupart des effets de ces paramètres sur les figures de diffraction et de diffusion ont déjà été décrits théoriquement dans la littérature. Cependant, il est difficile de faire le processus inverse, c'est-à-dire d'extraire les paramètres structuraux à partir des mesures, principalement en raison des recoupements des signatures caractéristiques. C'est pourquoi ce chapitre présente une démarche générale pour extraire un paramètre à la fois, en faisant le moins d'hypothèses préalables possible. Chacune des étapes de cette démarche introduit seulement un paramètre inconnu, en utilisant comme données d'entrée, les paramètres déterminés aux étapes précédentes.

Voici succinctement les étapes de la démarche. La première étape consiste à isoler l'effet de la forme et de la taille des îlots par des mesures DPAIR à longueur de cohérence très courte. Une fois ces paramètres connus, la longueur de cohérence est augmentée à la deuxième étape afin de voir une zone de plus en plus grande sur l'échantillon et ainsi en tirer des informations sur l'arrangement spatial des îlots. La troisième étape comporte des mesures de DIR pour sonder les contraintes cristallines à l'intérieur des îlots. Finalement, à la dernière étape, les mesures de DRXHR et RSRX sont utilisées dans le but de mesurer l'épaisseur de la couche de mouillage, si elle est présente, ainsi que son état de contraintes.

La figure 3.2 présente de façon schématique la démarche d'analyse qui est proposée. On y voit les quatre étapes avec les techniques et conditions expérimentales requises pour comparer les figures de diffraction/diffusion avec des simulations numériques et ainsi extraire les paramètres structuraux pertinents. Ce schéma montre clairement l'ordre dans lequel ces paramètres doivent être



**Figure 3.2 Schéma de la démarche générale de caractérisation par RX**

déterminés afin de pouvoir les réintégrer dans la procédure lors de l'étape suivante. Il est important de préciser que cette démarche a été

conçue spécifiquement pour la caractérisation des îlots enfouis, mais elle est tout à fait applicable à la caractérisation d'îlots en surface.

La principale différence entre les mesures en diffraction et en diffusion, c'est que la diffraction est sensible à la position relative des atomes (cristallinité et contraintes) alors que la diffusion est sensible seulement à la densité électronique. Comme il le sera montré à la section 3.3, l'effet de la forme peut être séparé de celui du champ de contraintes, mais pas l'inverse. C'est pourquoi les premières étapes de la démarche sont faites en diffusion. Chaque îlot diffuse les RX en fonction de sa forme et les ondes diffusées s'additionnent de façon cohérente. Ceci est vrai à condition que la différence de parcours entre ces ondes soit plus petite que la longueur de cohérence ( $L_c$ ) de la source (voir un cours d'optique, par exemple Pérez, 1991). Ceci se fait en fixant la largeur spectrale de la source (voir section 3.5). L'originalité de l'approche présentée dans ce mémoire est de réduire la longueur de cohérence de façon à ce que chaque îlot ne voit plus que lui-même, c'est-à-dire que le volume où il y a interférence cohérente se limite à celui de l'îlot. Ainsi, seuls les effets de taille et de forme des îlots seront détectés, indépendamment de leur position.

Une fois la forme et la taille des îlots évaluées,  $L_c$  est progressivement augmentée. De ce fait, les figures d'interférence provenant des interactions îlot-îlot deviennent de plus en plus visibles, dévoilant ainsi l'organisation des îlots les uns par rapport aux autres. Lorsque  $L_c$  est approximativement de la taille d'une zone avec ordre à moyenne portée, il sera possible de détecter la taille de cette zone. De même, un pseudo-réseau périodique d'îlots devrait pouvoir être détecté.

Les mesures en mode diffusion permettent de connaître l'arrangement spatial des NIAO. Comme il n'est pas possible dans cette configuration de connaître comment les atomes sont arrangés à l'intérieur des îlots, des mesures complémentaires en mode diffraction en incidence rasante permettront d'obtenir l'information sur les champs de contraintes créés par la présence des NIAO. Ainsi, au terme de la troisième étape de la démarche, la forme et la distribution de taille, l'arrangement spatial ainsi que les contraintes cristallines internes et externes aux NIAO sont déterminés.

Le propos de la quatrième étape est la détection de la couche de mouillage qui supporte les îlots, et par la suite la détermination de ses paramètres structuraux (épaisseur, composition chimique). Comme il a été mentionné au chapitre précédent, les tentatives de caractérisation de cette couche ont, la plupart du temps, été faites en utilisant des modèles de structure en couches minces qui ne tiennent aucunement compte des structures tridimensionnelles aux interfaces. La présence d'îlots aux interfaces modifie-t-elle de façon non prédictible la caractérisation des couches minces par les analyses conventionnelles? L'intégration des données structurales extraites dans les trois premières étapes de la démarche dans un modèle complet de diffraction à grand angle (DGA) devrait répondre à cette question.

Les prochaines sections de ce chapitre présentent le formalisme sous-jacent à l'ensemble de cette démarche. L'emphasis est mise sur les deux premières étapes, car ce sont celles-ci seront analysées numériquement dans la suite de ce mémoire.

### 3.2 Système de coordonnées

Le système de coordonnées utilisé est schématisé à la figure 3.3. Il est défini par rapport à la surface d'un échantillon plan macroscopiquement, le plan  $z = 0$  représentant cette surface.  $\mathbf{k}$  est le vecteur d'onde ( $|\mathbf{k}| = 2\pi/\lambda$ , avec  $\lambda$  la longueur d'onde),  $\theta$  et  $\alpha$  sont

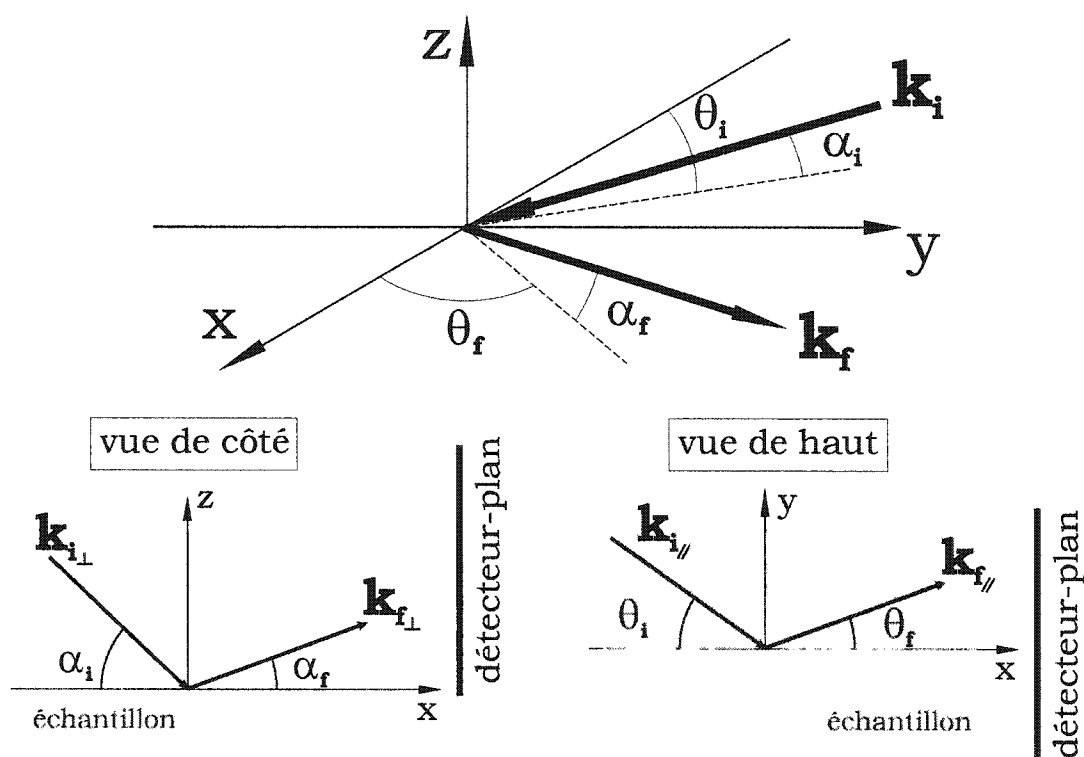


Figure 3.3 Géométrie du système de coordonnées

respectivement les angles azimutal et zénithal, les indices  $i$  et  $f$  correspondent respectivement aux faisceaux incident et émergent. Expérimentalement, le faisceau émergent correspond à celui qui atteint le détecteur. Dans cette configuration, le vecteur de diffusion  $\mathbf{q}$  dans l'espace réciproque est défini par  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i$ . Il est donné par le système d'équations :

$$\begin{aligned}
q_x &= \frac{2\pi}{\lambda} (\cos(\alpha_f) \cos(\theta_f) - \cos(\alpha_i) \cos(\theta_i)); \\
q_y &= \frac{2\pi}{\lambda} (\cos(\alpha_f) \sin(\theta_f) + \cos(\alpha_i) \sin(\theta_i)); \\
q_z &= \frac{2\pi}{\lambda} (\sin(\alpha_f) + \sin(\alpha_i));
\end{aligned} \tag{3.1}$$

et l'on utilise également  $q_r = (q_x^2 + q_y^2)^{1/2}$ . L'origine du système de coordonnées est placée au centre de l'échantillon.

### 3.3 Diffraction cinématique par une forme arbitraire

L'approche cinématique, ou première approximation de Born, suppose que l'onde incidente est la même pour tous les centres de diffusion. Il s'agit d'une approximation de « diffusion unique », elle est applicable seulement dans les cas où l'intensité diffusée est faible par rapport à l'intensité incidente. Dans cette approximation, le champ électrique diffracté par un volume cristallin est donné par (Holý, 1999) :

$$E(\mathbf{p}) \approx -\frac{k^2}{4\pi} E_0 C \frac{e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}}}{|\mathbf{p}|} \sum_{\mathbf{g}} S_{\mathbf{g}} (\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i + \mathbf{g}) \tag{3.2}$$

où  $\mathbf{p}$  est la position de l'observateur,  $\mathbf{k}$  est le vecteur d'onde défini précédemment,  $E_0$  est l'amplitude du champ électrique incident,  $\mathbf{g}$  est une combinaison linéaire des vecteurs de base du réseau réciproque,  $S_{\mathbf{g}}$  est le facteur de structure du cristal étudié et  $C$  est une constante dépendant de la polarisation; la sommation se fait donc sur tous les points du réseau réciproque. Cette équation est valable seulement dans les cas où la région observée est petite par rapport à la distance d'observation (approximation de Fraunhofer), ce qui est généralement le cas dans les mesures expérimentales. L'intensité mesurée par



l'observateur est donc simplement proportionnelle au carré de l'amplitude du champ électrique

$$I(\mathbf{p}) \propto |E(\mathbf{p})|^2. \quad [3.3]$$

Le calcul de l'équation 3.2 se fait en tenant compte de tous les vecteurs de diffraction. Cependant, toutes les ondes associées à ces vecteurs n'apportent pas la même contribution. Dans la pratique, on peut souvent considérer qu'une seule onde plane intense, ayant comme vecteur d'onde  $\mathbf{h}$  qu'on observe. Dans la littérature, cette approximation est dite de « deux faisceaux ». Dans ce contexte, le facteur de structure du cristal  $S_{\mathbf{h}}$  est donné par

$$S_{\mathbf{h}}(\mathbf{q}) = \int d^3\mathbf{r}' \chi(\mathbf{r}') \Omega(\mathbf{r}') e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}'} \quad [3.4]$$

où  $\chi(\mathbf{r})$  est la polarisabilité du cristal, qui est directement reliée à la densité électronique. Le terme  $\Omega(\mathbf{r})$  est le facteur de forme du cristal qui est égal à 1 lorsque l'on est à l'intérieur du cristal et égal à 0 à l'extérieur.  $\chi(\mathbf{r})$  contient les informations sur la position relative des atomes à l'intérieur du cristal et  $\Omega(\mathbf{r})$  exprime le caractère fini de ce même cristal. Dans le cas d'un cristal parfait, on utilise une fonction périodique pour la position de chaque atome pour calculer  $\chi(\mathbf{r})$  en faisant la somme des contributions de tous les atomes de la maille élémentaire du cristal

$$\chi_{\mathbf{h}} = -\frac{1}{V_{el}} \frac{4\pi r_e}{k^2} \sum_j^n f_j(\mathbf{h}) e^{i\mathbf{h} \cdot \mathbf{r}_j}. \quad [3.5]$$

La sommation se fait sur les  $n$  atomes de la maille.  $f_j(\mathbf{h})$  est le facteur de diffusion atomique de l'atome  $j$  situé à la position  $\mathbf{r}_j$ ,  $V_{el}$  est le volume de la maille et  $r_e$  est le rayon classique de l'électron. Le facteur

$f_j(\mathbf{h})$  est calculé à partir des données de référence (Ibers, 1973). Dans le cas où le volume du cristal est beaucoup plus grand que celui de la maille élémentaire, on peut écrire

$$S_{\mathbf{h}}(\mathbf{q}) = \chi_h \int d^3\mathbf{r}' \Omega(\mathbf{r}') e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}'} . \quad [3.6]$$

Dans un cristal réel, les atomes ne sont pas placés de façon parfaitement périodique, mais peuvent être déplacés sous l'effet de la contrainte. Pour en tenir compte, on introduit un champ de contrainte  $\mathbf{u}(\mathbf{r}')$  dans le facteur de structure. Il s'écrit ainsi :

$$S_{\mathbf{h}}(\mathbf{q}) = \int d^3\mathbf{r}' \chi_h(\mathbf{r}') e^{-i\mathbf{h} \cdot \mathbf{u}(\mathbf{r}')} \Omega(\mathbf{r}') e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}'} \quad [3.7]$$

À partir de cette formulation, et en considérant un arrangement d'îlots comme un réseau de tels « cristaux », on définit le facteur de structure d'un tel réseau comme étant

$$F_{\mathbf{hD}}(\mathbf{q}) = \sum_{m=1}^N D_{\mathbf{hm}}(\mathbf{q}) e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_m} \quad [3.8]$$

où  $N$  est le nombre d'îlots,  $D_{\mathbf{hm}}(\mathbf{q})$  est le facteur de diffusion du  $m^{\text{ième}}$  îlot et  $\mathbf{R}_m$  sa position. À partir de l'expression de  $F_{\mathbf{hD}}(\mathbf{q})$ , on tient compte seulement de la contribution des îlots dans l'intensité diffractée. Le facteur de diffusion de l'îlot doit également englober l'environnement dans lequel celui-ci est placé. Dans le cas où un îlot est incorporé dans une structure en multicouches, on doit soustraire le réseau « parfait » pour le remplacer par le réseau perturbé par la présence de l'îlot. Ainsi, le facteur de diffusion de cet ensemble s'écrit (Darhuber, 1997)

$$D_{\mathbf{hm}}(\mathbf{q}) = \int_{V_D} d^3\mathbf{r}' \left[ \frac{\Omega_m(\mathbf{r}')(\chi_{\mathbf{hD}} - \chi_{\mathbf{hL}}) e^{i\mathbf{h} \cdot \mathbf{u}_D(\mathbf{r}')}}{A} + \frac{\chi_{\mathbf{hL}}(e^{i\mathbf{h} \cdot \mathbf{u}_L(\mathbf{r}')} - 1)}{B} + \frac{\chi_{\mathbf{hD}}(e^{i\mathbf{h} \cdot \mathbf{u}_{DL}(\mathbf{r}')} - 1)}{C} \right] e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}'} \quad [3.9]$$

où  $V_D$  est le volume contenant l'îlot (défini de façon telle que l'effet de la perturbation est négligeable en dehors de ce volume),  $\chi_{hD}$  et  $\chi_{hL}$  sont respectivement les polarisabilités de l'îlot et de la matrice environnante,  $\mathbf{u}_D(\mathbf{r}')$ ,  $\mathbf{u}_L(\mathbf{r}')$  et  $\mathbf{u}_{WL}(\mathbf{r}')$  sont respectivement les champs de contrainte à l'intérieur de l'îlot, de la matrice environnante et de la couche de mouillage. Dans cette dernière équation, le terme A est le volume de la matrice qui est « enlevé » pour être remplacé par celui de l'îlot, le terme B est la contrainte dans la matrice autour de l'îlot qui est ajoutée et le terme C est la contrainte sous l'îlot, dans la couche de mouillage, qui est également ajoutée. Le terme C ne fait pas partie de l'équation originale de Darhuber (1997). Finalement, l'intensité diffractée est donc proportionnelle à

$$I_h(\mathbf{q}) \propto |F_{hD}(\mathbf{q})|^2 = \left| \sum_{m=1}^N D_{hm}(\mathbf{q}) e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_m} \right|^2. \quad [3.10]$$

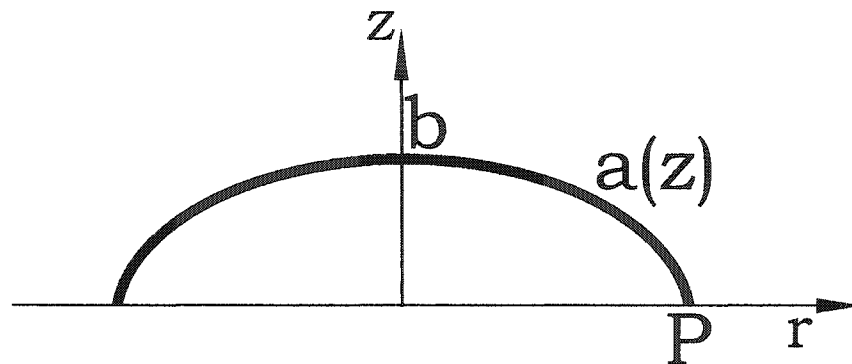
### 3.4 Cas particulier de la diffusion

#### 3.4.1 Première approximation de Born

Si l'on pose le vecteur de diffraction  $\mathbf{h} = 0$  dans l'équation 3.9, on remarque que tous les termes relatifs à la contribution de la contrainte cristalline disparaissent. Ainsi, on ne parle plus de diffraction, mais plus simplement de diffusion des rayons X. Dans ce cas, le facteur de diffusion d'un îlot  $m$  s'écrit

$$D_{0m}(\mathbf{q}) = (\chi_{0D} - \chi_{0L}) \int d^3\mathbf{r}' \Omega_m(\mathbf{r}') e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}'} \quad [3.11]$$

qui est simplement la transformée de Fourier du facteur de forme de cet îlot. Il existe dans la littérature plusieurs descriptions du facteur de



**Figure 3.4 Définition de la forme d'un îlot**

forme qui ont été revues par Lazzari (2002). On ne s'intéresse ici seulement qu'à ceux qui ont une symétrie de révolution, de hauteur  $b$  et de rayon de base  $P$  (figure 3.4). On appelle  $a(z)$  la fonction de contour qui exprime la variation verticale du rayon d'un îlot.

Selon la forme particulière de l'îlot, la fonction de contour s'écrit de différentes façons, pour  $0 \leq z \leq b$  :

$P$ ; cylindre

$$a(z) = P(1 - z/b); \quad \text{cône} \quad [3.12]$$

$$P\sqrt{(1 - z/b)}; \quad \text{dôme}$$

Le facteur de diffusion s'obtient ensuite en faisant la transformée de Fourier du facteur de forme. En réécrivant l'équation 3.11 dans un système de coordonnées cylindriques, on obtient :

$$\begin{aligned}
D_0(\mathbf{q}) &= (\chi_{0D} - \chi_{0L}) \int_0^b dz \int_0^{a(z)} r dr \int_0^{2\pi} e^{i(r \cos \theta q_r \cos q_\theta + r \sin \theta q_r \sin q_\theta + q_z z)} d\theta \\
&= 2\pi(\chi_{0D} - \chi_{0L}) \int_0^b e^{iq_z z} dz \int_0^{a(z)} r J_0(r q_r) dr \\
&= 2\pi(\chi_{0D} - \chi_{0L}) \int_0^b \frac{a(z)}{q_r} J_1(a(z) q_r) e^{iq_z z} dz
\end{aligned} \tag{3.13}$$

où  $J_n(x)$  est une fonction de Bessel de première espèce, d'ordre  $n$ . L'intégrant de l'équation ci-dessus est un résultat bien connu en diffraction classique (diffraction par une ouverture circulaire). Lorsque la détection est effectuée dans la direction spéculaire ( $q_r \rightarrow 0$ ), l'équation 3.13 se réduit à

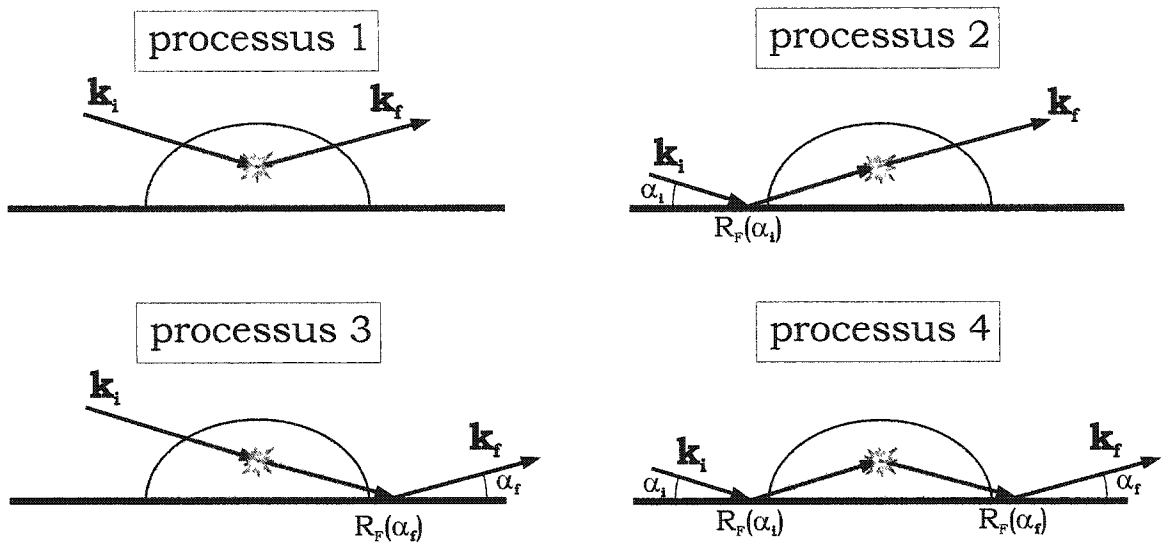
$$D_0(q_z, q_r \rightarrow 0) = \pi(\chi_{0D} - \chi_{0L}) \int_0^b a(z)^2 e^{iq_z z} dz \tag{3.14}$$

ce qui permet d'obtenir une indication directe de la forme. Cependant, cette zone de l'espace réciproque est « envahie » par la diffusion provenant de la rugosité de la surface et des interfaces des multicouches de l'échantillon. Cette dernière équation est donc inutilisable en pratique.

### 3.4.2 Approximation de Born par onde modifiée

Jusqu'ici, la description de la diffusion a été limitée à un seul îlot illuminé directement par le faisceau incident. Cependant, comme il a été mentionné dans le chapitre 2, les mesures expérimentales ont montré que l'approximation de Born est trop grossière pour permettre une interprétation rigoureuse. La présence de la surface doit être prise en considération et c'est dans ce contexte que l'approximation de Born par onde modifiée (ABOM) a été introduite par Rauscher (1995, 1999).

Dans le cas d'îlots situés à la surface de l'échantillon, l'ABOM consiste à considérer la diffusion causée par les faisceaux réfléchis par la surface. Il y a quatre cas possibles : pas de réflexion, le faisceau incident seulement est réfléchi, le faisceau diffusé seulement est



**Figure 3.5 Schéma des quatre processus de diffusion à la surface (ABOM)**

réfléchi, les deux faisceaux sont réfléchis (figure 3.5). Lorsque le faisceau incident atteint l'interface air/îlot avec un angle d'arrivée plus grand que quelques degrés, la déviation que subit celui-ci est négligeable. Cet aspect sera détaillé dans le chapitre suivant lors de l'étude numérique portant sur le coefficient de Fresnel en réflexion.

On remarque que le changement de signe de  $\alpha_i$  et  $\alpha_f$  a des répercussions importantes sur la composante verticale  $q_z$  (voir équation 3.1) Chaque processus de diffusion est pondéré par le coefficient de réflexion à la surface, mieux connu sous le nom de coefficient de Fresnel  $R$ . Celui-ci dépend de l'angle d'incidence du faisceau et de l'indice de réfraction des deux milieux :

$$R(\alpha) = \frac{n_1 \sin \alpha - n_2 \sin \alpha_r}{n_1 \sin \alpha + n_2 \sin \alpha_r} \quad [3.15]$$

$$\text{avec } \frac{\cos \alpha}{\cos \alpha_r} = \frac{n_2}{n_1} \quad [3.16]$$

où  $\alpha_r$  est l'angle de réfraction,  $n_1$  et l'indice de réfraction du milieu supérieur et  $n_2$  est l'indice de réfraction du milieu inférieur. L'équation 3.16 est communément appelée la loi de Snell. Finalement, le facteur de diffusion d'un îlot à la surface est la somme cohérente des facteurs de diffusion pour les quatre processus :

$$D_{surf}(\mathbf{q}) = \sum_{p=1}^4 A_p D_0(q_r, q_{zp}) \quad [3.17]$$

$$\begin{array}{ll} \text{avec} & \begin{array}{ll} A_1 = 1; & q_{z1} = 2\pi/\lambda(\sin \alpha_f + \sin \alpha_i); \\ A_2 = R(\alpha_i); & q_{z2} = 2\pi/\lambda(\sin \alpha_f - \sin \alpha_i); \\ A_3 = R(\alpha_f); & q_{z3} = 2\pi/\lambda(-\sin \alpha_f + \sin \alpha_i); \\ A_4 = R(\alpha_i)R(\alpha_f); & q_{z4} = 2\pi/\lambda(-\sin \alpha_f - \sin \alpha_i); \end{array} \end{array} \quad \text{et} \quad [3.18]$$

Dans le cas d'îlots enfouis, il faut considérer qu'il y a transmission à la surface. On note  $z_0$  la profondeur, sous la surface, du plan sur lequel reposent les îlots enfouis. Étant donné que l'indice de réfraction comporte généralement une partie imaginaire (absorption du milieu), cela a comme conséquence que  $\mathbf{q}$  est un vecteur complexe. Le vecteur de diffusion et le coefficient de Fresnel en transmission s'écrivent alors

$$\tilde{q}_z = \tilde{k}_{f,z} - \tilde{k}_{i,z}, \quad \text{avec} \quad \tilde{k}_{if,z} = -\sqrt{n_s^2 k^2 - |\mathbf{k}_{if,r}|^2} \quad [3.19]$$

$$\text{et} \quad T(\alpha) = \frac{2n_1 \sin \alpha}{n_1 \sin \alpha + n_2 \sin \alpha_r} \quad [3.20]$$

où  $n_s$  est l'indice de réfraction du substrat,  $k$  est la norme du vecteur d'onde,  $k_{i,z}$  est la composante verticale du vecteur d'onde incident et  $k_{f,z}$  est la composante verticale du vecteur d'onde émergent. Ainsi, le facteur de diffusion pour un îlot enfoui s'écrit

$$D_{enf}(\mathbf{q}) = D_0(q_r, \tilde{q}_z) T(\alpha_i) T(\alpha_f) e^{-i\tilde{q}_z z_0} \quad [3.21]$$

Il faut cependant faire attention au terme exponentiel dans la dernière équation. Il provient du fait que la transformée de Fourier du facteur de forme se fait en intégrant de  $z = 0$  à  $z = b$  (dans l'équation 3.13). Ce terme pourrait donc être omis si l'intégration se faisait de  $z = -z_0$  à  $z = -z_0 + b$ .

### 3.5 Variation de la cohérence temporelle

Une source de rayonnement électromagnétique est caractérisée par sa distribution spectrale. Dans le cas d'un rayonnement quasi-monochromatique, la distribution est centrée sur la fréquence  $\omega_0$  avec une largeur caractéristique  $\Delta\omega$  dépendant d'une forme particulière pour cette distribution (gaussienne, lorentzienne, etc.). Avec  $|\Delta\omega/\omega| = |\Delta\lambda/\lambda|$ , on définit la longueur de cohérence par

$$L_c = \lambda^2 / 2\Delta\lambda \quad [3.22]$$

Lorsqu'une différence de parcours optique est plus grande que cette longueur caractéristique, on perd les effets de cohérence. Avec les sources de rayonnement conventionnelles dans le domaine des rayons X, on a accès à des valeurs de  $\Delta\lambda/\lambda$  de l'ordre de  $10^{-2}$  à  $10^{-5}$ , ainsi  $L_c$  est de l'ordre de 10 nm à 10  $\mu\text{m}$ .



Pour simuler l'effet de la cohérence temporelle variable, on introduit dans l'équation 3.13 une fonction de distribution spectrale  $\Lambda(\omega, \omega_0, \Delta\omega)$  et on impose que

$$\int_0^\infty \Lambda(\omega, \omega_0, \Delta\omega) d\omega = 1 \quad [3.23]$$

Il suffit ensuite d'intégrer le signal de diffusion du réseau d'îlots sur la distribution spectrale. En posant que cette distribution est gaussienne

$$\Lambda_g(\omega, \omega_0, \Delta\omega) = \frac{1}{\Delta\omega\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{2(\Delta\omega)^2}\right) \quad [3.24]$$

l'intégration sur la distribution spectrale se pose comme

$$I(\mathbf{q}) \propto \int \Lambda_g(\omega, \omega_0, \Delta\omega) \left| \sum_{m=1}^N D_m\left(\frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q}\right) e^{i\frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_m} \right|^2 d\omega. \quad [3.25]$$

Une hypothèse importante mais raisonnable est que le facteur de diffusion des îlots est beaucoup moins influencé par la distribution spectrale de la source que le facteur de phase, pour les valeurs de  $\mathbf{q}$  et de  $\Delta\omega/\omega_0$  considérées. Le résultat de l'intégration donne alors :

$$I(\mathbf{q}) \propto \sum_{1 \leq j < k \leq N} \left( D_k(\mathbf{q}) D_j^*(\mathbf{q}) e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_j)} + D_j(\mathbf{q}) D_k^*(\mathbf{q}) e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_k)} \right) \times e^{\left( \frac{-(\mathbf{q} \cdot (\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_j))^2}{2} \left( \frac{\Delta\omega}{\omega_0} \right)^2 \right)} + \sum_{m=1}^N |D_m(\mathbf{q})|^2 \quad [3.26]$$

L'hypothèse précédente est prise en compte mathématiquement par le fait que l'on prend

$$|D(\mathbf{q})|^2 \approx \int D\left(\frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q}\right) D^*\left(\frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q}\right) \Lambda_g(\omega, \omega_0, \Delta\omega) d\omega. \quad [3.27]$$

Le développement du passage de l'équation 3.25 à l'équation 3.26 est présenté en annexe. Il existe donc une solution analytique permettant

de décrire l'influence de la cohérence temporelle sur l'intensité diffusée. Le nombre de termes à sommer est de  $N(N+1)/2$ .

### 3.6 Génération de réseaux d'îlots bidimensionnels

Dans toutes les équations présentées jusqu'ici, la position  $\mathbf{R}_m$  de chaque îlot est supposée précisément connue. Cette section traite l'arrangement bidimensionnel des îlots, c'est-à-dire la façon dont sont générés les réseaux d'îlots qui seront ensuite utilisés pour simuler les mesures en diffusion. Cette approche est une alternative à l'utilisation directe de fonctions statistiques dans le calcul de la diffusion. Trois types de réseaux sont générés, chacun correspondant à des situations observées expérimentalement.

#### 3.6.1 Ordre à longue portée

Dans un réseau synthétique avec ordre à longue portée (OLP), un réseau de points parfaitement périodique est d'abord généré. Les points sont ensuite déplacés légèrement autour de la position périodique. Ce type d'arrangement de point est appelé « imperfection du premier type » (Guinier, 1963). Le motif du réseau de base peut avoir plusieurs formes : carré ou hexagonal par exemple. Dans le cas d'un réseau carré de type OLP, la distance entre les plus proches voisins (PPV) est  $W$  et la variation autour de la position d'équilibre dépend de deux variables aléatoires :  $\varphi$  (loi de distribution uniforme sur  $[0, 2\pi]$ ) et  $\eta$  (loi de distribution normale  $N(0,1)$ ). Dans ces conditions, la position de chaque point est

$$\begin{aligned} X_m &= W(m_x + \tau\eta \cos \varphi) \\ Y_m &= W(m_y + \tau\eta \sin \varphi) \end{aligned} \tag{3.28}$$

où  $\tau$  est l'amplitude du déplacement et  $m_x$  et  $m_y$  sont les positions des points du réseau parfait. Généralement, on garde  $\tau$  petit ( $< 0,1$ ) pour éviter que les îlots se chevauchent. Lorsque  $\tau > (1/6 - P/3W)$ , il est possible que les îlots de ce type de réseau se recouvrent, auquel cas les deux îlots sont remplacés par un îlot localisé à la position moyenne de ses parents. Pour la suite,  $\tau$  est appelé le paramètre de désordre.

### 3.6.2 Ordre à moyenne portée

Dans un réseau synthétique avec ordre à moyenne portée (OMP), on définit une zone de taille  $L_{MP} = sW$ , avec  $s$  de l'ordre de 5 à 10, où l'arrangement est mieux ordonné que dans ses environs. On définit  $\tau_I$  comme étant le paramètre de désordre à l'intérieur de la zone  $L_{MP}$  et  $\tau_O$  ( $> \tau_I$ ) le paramètre de désordre à l'extérieur de cette zone. Par exemple, on peut bâtir, à partir d'un réseau synthétique de type OLP (avec les définitions de l'équation 3.28) une zone de taille  $L_{MP} = 8W$  où  $\tau_I = 0,1$  dans un réseau où  $\tau_O = 0,25$ . Un autre type d'ordre à moyenne portée envisageable est celui où à l'intérieur de la zone  $L_{MP}$ , la taille des îlots est plus uniforme qu'à l'extérieur.

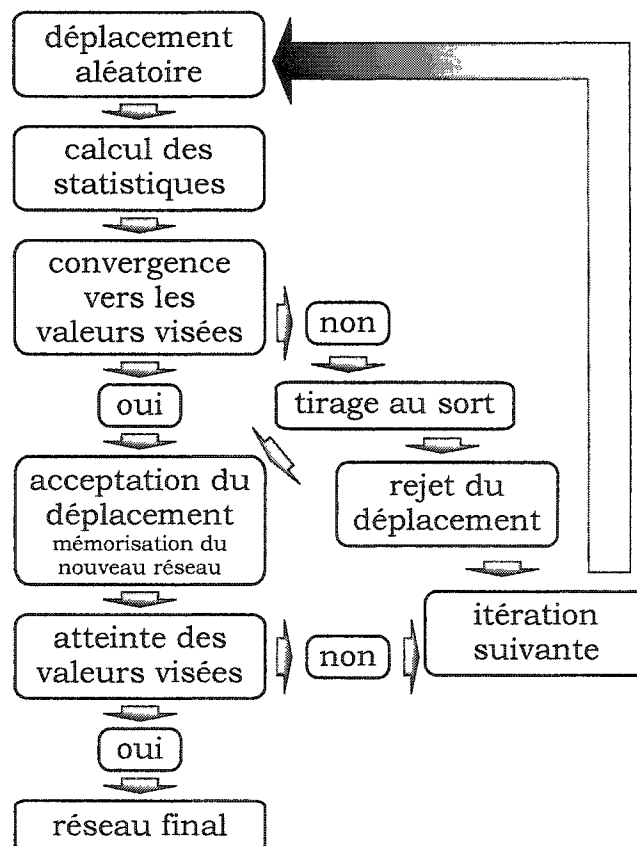
### 3.6.3 Ordre à courte portée

En une dimension, on appelle  $A_n$  la position du  $n^{\text{ème}}$  point,  $a$  la distance entre deux plus proches voisins (PPV) d'un réseau idéal et  $A_n A_m$  la distance entre les points  $n$  et  $m$ . Si la fluctuation de  $(A_n A_0 - na)$  est indépendante de  $n$ , alors on a une « imperfection du premier type » (Guinier, 1963). Si cette fluctuation n'est pas indépendante de  $n$ , alors on est en présence « d'imperfections du second type ». Générer ce type

de réseau en une dimension est très facile. La position du  $n^{\text{ème}}$  point est simplement définie à partir de la position du  $(n-1)^{\text{ème}}$  point.

En deux dimensions, il n'est pas aisé de construire un tel réseau sans introduire de direction préférentielle, c'est-à-dire assumer que les statistiques (distance moyenne entre les PPV et écart-type de la distribution de cette distance) soient isotropes dans le plan.

Afin de générer un réseau synthétique avec ordre à courte portée (OCP), une simple approche de Monte-Carlo est utilisée. On fixe d'abord des statistiques à atteindre, soit  $W^m$  la distance moyenne entre les PPV et  $W^s$  l'écart-type de la distribution de ces distances. On génère

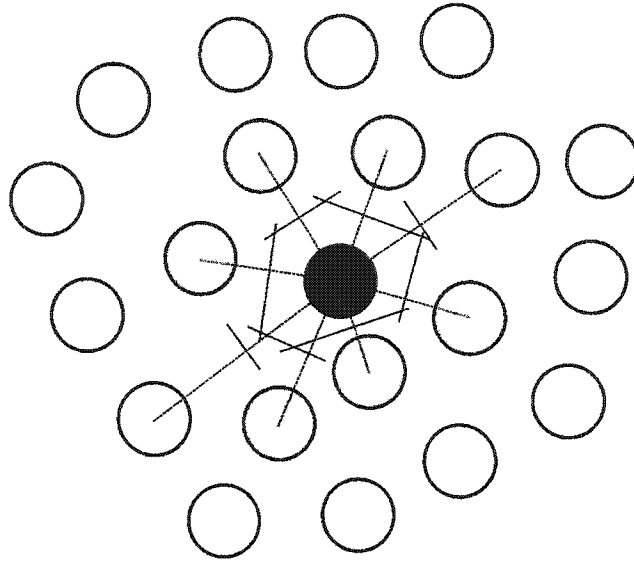


**Figure 3.6 Schéma de la génération des réseaux OCP**

un réseau de départ quelconque et les statistiques de ce réseau sont calculées. On utilise ensuite la procédure suivante (figure 3.6).

- 1) Déplacement aléatoire d'un point pris au hasard et calcul des statistiques du réseau de transition.
- 2) Si les statistiques de ce déplacement se rapprochent des statistiques à atteindre, le mouvement est accepté.
- 3) Si les statistiques de ce déplacement s'éloignent des statistiques à atteindre, le mouvement est rejeté avec une certaine probabilité.
- 4) On recommence à 1) tant que l'on n'obtient pas les statistiques voulues.

Les îlots plus proches voisins sont déterminés par la cellule de Voronoi de chacun des îlots du réseau. Dans un réseau désordonné, cette cellule se construit de la même façon que la cellule de Wigner-Seitz (qui est associée à un réseau périodique). Pour chaque point  $P_k$  du réseau, on trace une droite à mi-distance de chacun de ses voisins, perpendiculairement à la droite joignant ces points. Les droites autour de  $P_k$  formant le polygone fermé déterminent la cellule de Voronoi (figure 3.7).



**Figure 3.7 Schéma de construction de la cellule de Voronoi, seuls les îlots gris sont considérés comme les premiers voisins de l'îlot noir.**

L'ensemble des points associés à chaque arête de ce polygone est considéré comme étant les PPV. Ce sont les distances de l'ensemble des îlots PPV qui entrent dans le calcul des statistiques. Étant donné que l'on travaille avec des réseaux de taille finie, seuls les points qui ont des cellules de Voronoi fermées sont pris en compte dans le calcul. Les autres points servent seulement de points-frontière.

### **3.7 Apport original**

La modélisation des nano-îlots auto-organisés par rayons X n'est pas nouvelle. Les améliorations par rapport aux modèles existants sont faites souvent à partir de la théorie classique légèrement modifiée.

Ce mémoire va dans le même sens. Deux nouvelles approches à ce domaine sont proposées afin de mieux comprendre la structure des matériaux à NIAO. Celles-ci proviennent des techniques d'analyse des

matériaux amorphes, soient la cohérence variable et la méthode de Monte-Carlo. D'abord, la cohérence variable a été introduite afin de séparer les contributions des îlots de leur fonction d'interférence. Ensuite, la méthode de Monte-Carlo est utilisée pour détecter des ensembles possibles d'arrangements d'îlots, plus particulièrement concernant les réseaux avec ordre à moyenne portée.

Les deux prochains chapitres présentent les calculs qui découlent des équations de ce chapitre afin de tester l'efficacité de ces approches.

## 4 Détermination de la taille des îlots

La première étape de la démarche de caractérisation est présentée dans ce chapitre, soit la méthode générale pour déterminer la forme, la taille moyenne et la distribution de taille des îlots à partir de mesures de diffusion à petit angle à incidence rasante (DPAIR) et à faible cohérence temporelle. Des simulations numériques sont faites pour investiguer comment l'intensité RX diffusée par des îlots dans l'espace réciproque varie en fonction de leurs paramètres structuraux.

Afin de sonder la région de l'espace réciproque, la source de rayons X, l'échantillon et le détecteur doivent se retrouver dans des orientations relatives bien précises. Dans une mesure de DPAIR, ceux-ci sont disposés selon quatre angles qui peuvent être variés au cours de la prise de mesure :  $\alpha_i$ ,  $\theta_i$ ,  $\alpha_f$  et  $\theta_f$ . (voir la figure 3.3 pour la géométrie du système de coordonnées). Pour que les simulations puissent être comparées facilement avec l'expérience, celles-ci ont été calculées dans la configuration d'un détecteur-plan, c'est-à-dire que les angles d'incidence  $\alpha_i$  et  $\theta_i$  sont gardés constants et ce sont les angles émergents  $\alpha_f$  qui  $\theta_f$  qui sont balayés. Dans la configuration d'un détecteur linéaire, un des deux angles émergents est simplement fixé.

La première section de ce chapitre introduit la transformée de Fourier du facteur de forme pour quatre formes d'îlots différentes présentant une symétrie de révolution. Ceci permet de connaître en première approximation l'influence de la géométrie d'un îlot unique sur l'intensité diffusée. Dans la deuxième section, l'effet de l'ABOM est incorporé aux calculs afin d'obtenir des simulations qui se rapprochent le plus possible des mesures expérimentales. Finalement, dans la



troisième section, un réseau d'îlots est introduit et les calculs numériques sont faits en intégrant une très faible cohérence temporelle afin de s'affranchir de la fonction d'interférence.

À cette étape-ci, il est important de souligner que les simulations des deux premières sections tiennent en compte seulement la diffusion provenant des îlots, c'est-à-dire que la cohérence temporelle n'entre pas dans le calcul à ce stade-ci. C'est seulement à partir de la troisième section que la fonction d'interférence et la faible cohérence temporelle sont incluses dans le calcul. La discussion concernant les bornes de cohérence requise pour ce type d'étude est présentée à la section 4.3.2.

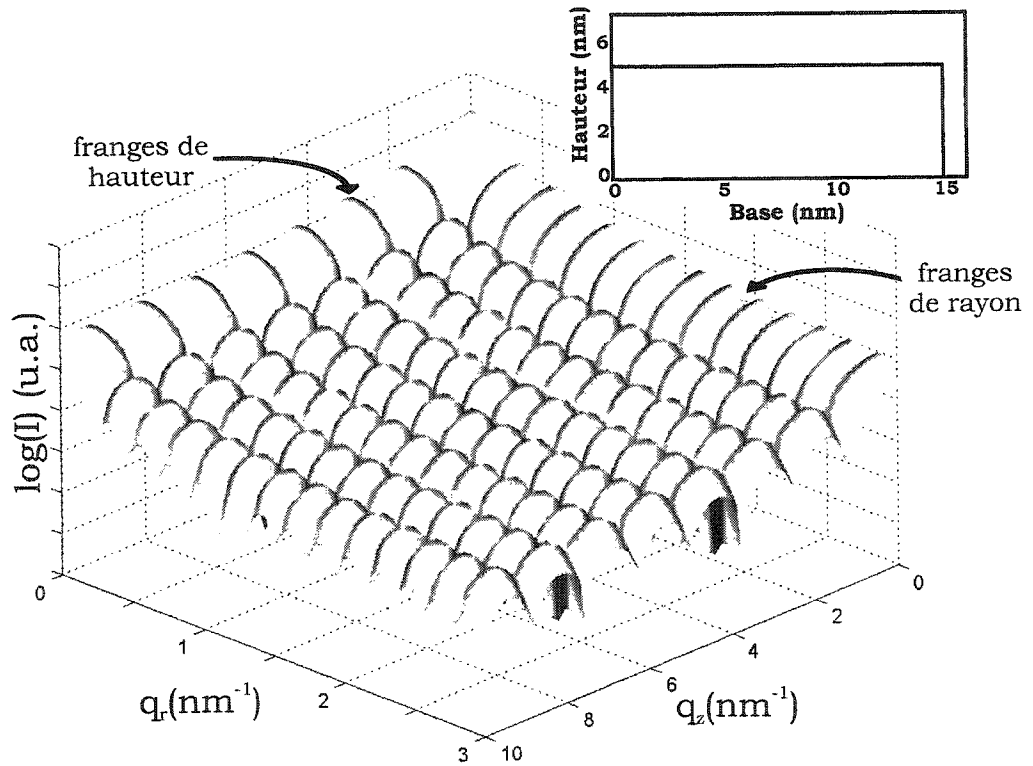
#### **4.1 Effets de la forme et de la taille**

La première étape des calculs prend seulement en compte le facteur de forme d'un îlot. La base de cet îlot est circulaire de rayon  $P$  et sa hauteur est  $b$ . La fonction de contour  $a(z)$  décrit la variation verticale de son rayon, avec  $0 \leq z \leq b$  (figure 3.4). C'est en modifiant cette fonction que l'on change la forme d'un îlot. Pour cette section, quatre formes sont étudiées, soient un cylindre, un cône, un dôme et une cloche.

La fonction de contour la plus simple est celle d'un cylindre, donnée par  $a(z) = P$ . Dans ce cas particulier, le calcul de la transformée de Fourier se résout analytiquement. Le résultat est le produit d'une fonction de  $q_z$  et d'une fonction de  $q_r$ .

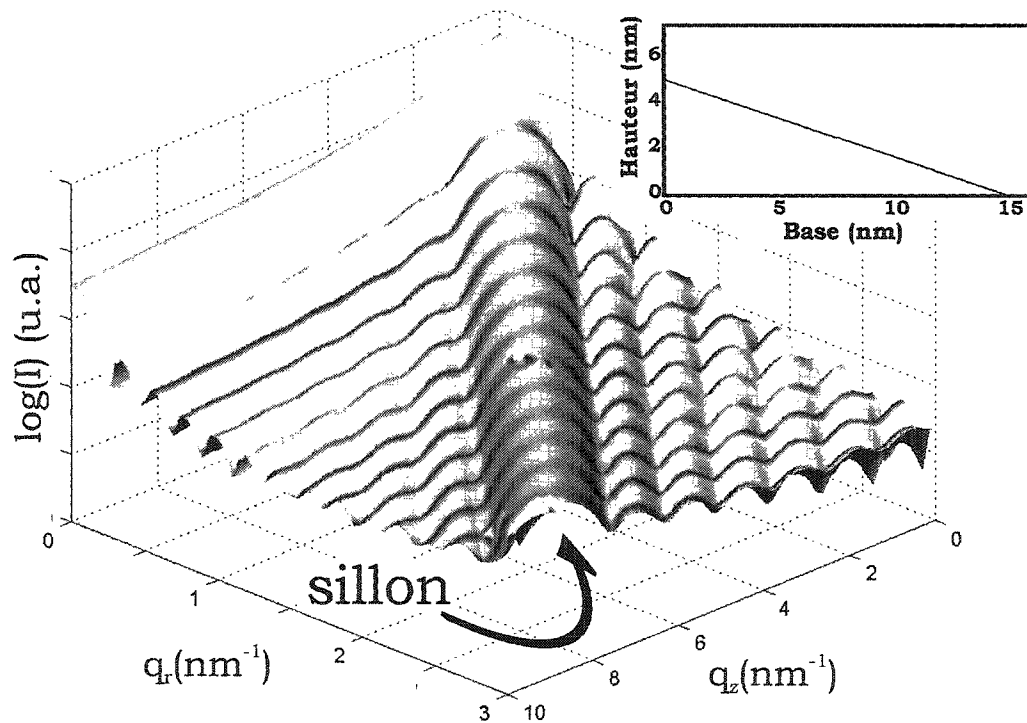
$$\begin{aligned}
 \Omega^{\text{TF}}(\mathbf{q}) &= \frac{1}{2\pi} \int_0^b \frac{a(z)}{q_r} J_1(a(z)q_r) e^{iq_z z} dz \\
 &= \frac{1}{2\pi} \left( \frac{P}{q_r} J_1(Pq_r) \right) \left( \int_0^b e^{iq_z z} dz \right)
 \end{aligned}
 \quad [4.1]$$

Il n'y a donc pas de couplage dans les composants du vecteur de diffusion. Ainsi, pour  $q_r$  constant, on obtient un sinus cardinal, typique de la diffraction Fraunhofer classique par une fente. La position du premier minimum et les oscillations qui s'ensuivent donnent la hauteur de l'îlot. Pour  $q_z$  constant, on obtient une fonction de Bessel, typique de la diffraction Fraunhofer classique par une ouverture circulaire. La position du premier minimum et les oscillations qui s'ensuivent permettent, en principe, de déterminer le rayon de l'îlot (figure 4.1).



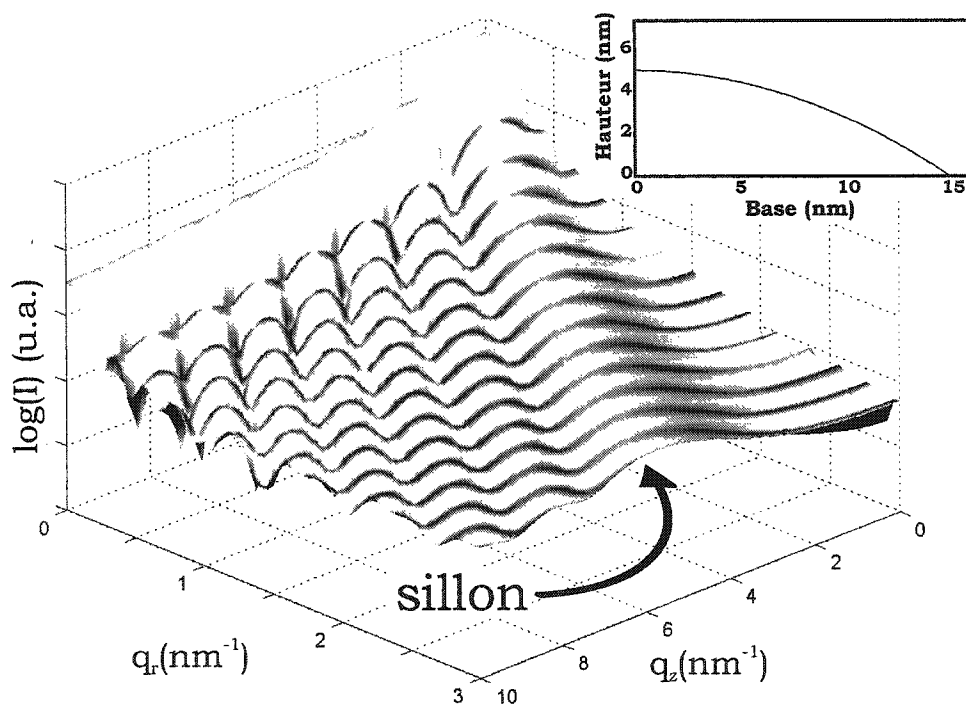
**Figure 4.1** Transformée de Fourier d'un cylindre,  $b = 5 \text{ nm}$  et  $P = 15 \text{ nm}$  (la fonction de contour est en médaillon)

Une autre forme simple est celle d'un cône, où  $a(z)$  est une droite décroissante. La transformée de Fourier de cette forme ne se résout pas analytiquement. Une solution numérique est présentée à la figure 4.2. On remarque l'apparition d'un sillon prédominant partant de l'origine. L'angle que forme ce sillon avec l'axe  $q_r = 0$  permet d'obtenir directement le rapport d'aspect ( $b/P$ ) de l'îlot, comme il sera vu plus loin dans ce chapitre. De plus, on observe que les franges donnant le rayon de la base (parallèles à l'axe  $q_z = 0$ ) sont toujours très visibles en tous points. Cependant, celles donnant la hauteur ne sont visibles que pour les petites valeurs de  $q_z$ ; elles ont tendance à presque disparaître pour des valeurs de  $q_z$  au-delà du sillon. Il est important de noter ici que les cas du cône et du cylindre sont plutôt académiques car il est peu probable de les observer dans un système cristallin d'îlots auto-assemblés.



**Figure 4.2** Transformée de Fourier d'un cône,  $b = 5 \text{ nm}$  et  $P = 15 \text{ nm}$  (la fonction de contour est en médaillon)

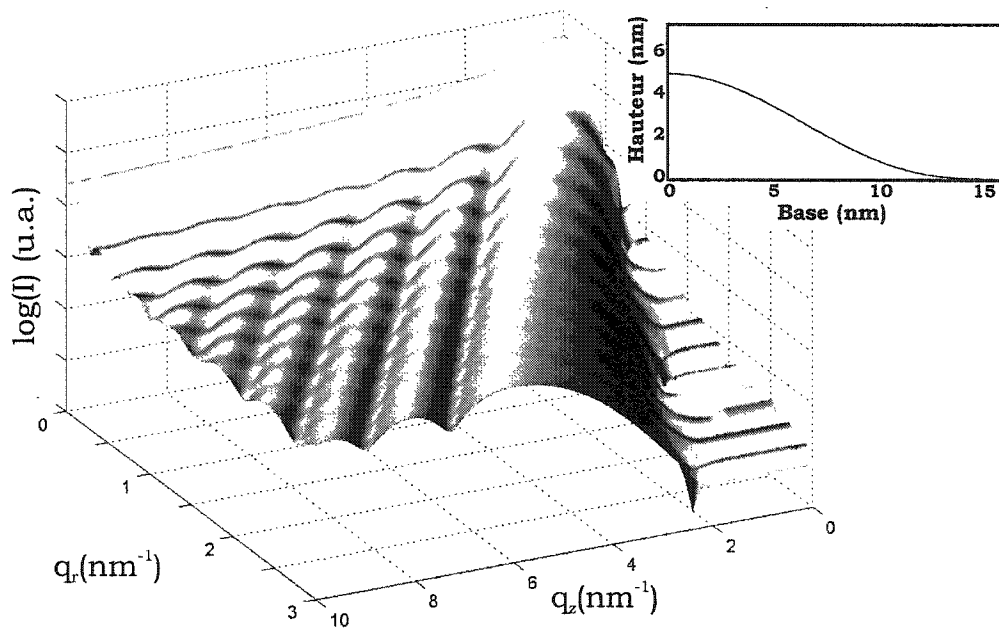
Une forme plus envisageable est le dôme dont le calcul numérique de la transformée de Fourier est montrée à la figure 4.3. Pour cette forme, on remarque d'abord la présence d'un sillon prédominant dépendant du rapport d'aspect comme dans le cas du cône, mais on note que celui-ci est beaucoup plus aplati. Les franges associées à la base de l'îlot (pour  $q_z$  constant) demeurent cependant très visibles. Une différence avec le cône est que les franges de hauteur disparaissent cette fois-ci pour les petites valeurs de  $q_z$  (en deçà du sillon). Finalement, on remarque que l'axe  $q_z = 0$  constitue un minimum local pour toutes les coupes à  $q_r$  constant.



**Figure 4.3 Transformée de Fourier d'un dôme,  $b = 5 \text{ nm}$  et  $P = 15 \text{ nm}$  (la fonction de contour est en médaillon)**

La dernière forme étudiée dans ce chapitre est celle appelée cloche, le calcul numérique de sa transformée de Fourier est présenté à la figure 4.4. Le sillon dépendant du rapport d'aspect est toujours

présent. Il est mieux défini que pour le dôme, mais on remarque que sa largeur augmente au fur et à mesure qu'on s'éloigne de l'origine. Comme pour le dôme, les franges de rayons sont toujours visibles, mais que celles de hauteur disparaissent pour les petites valeurs de  $q_z$ . Ici encore, il y a un minimum local en  $q_z = 0$  pour les coupes de l'espace réciproque à  $q_r$  constant.



**Figure 4.4 Transformée de Fourier d'une cloche,  $b = 5$  nm et  $P = 15$  nm (la fonction de contour est en médaillon)**

En résumé, l'allure générale de la transformée de Fourier permet de déterminer le type de forme. On retient également que la transformée de Fourier de chaque forme montre des franges de volume fini qui permettent de connaître les dimensions des îlots. À l'exception du cylindre, pour lequel l'intensité selon  $q_r$  et  $q_z$  sont indépendantes, on observe un sillon prédominant dont l'orientation dépend du rapport d'aspect ( $b/P$ ). Ces informations sont importantes car dans la première approximation de Born, l'intensité diffusée par un îlot est directement

proportionnelle à  $|\Omega^{\text{TF}}(\mathbf{q})|^2$ . La section suivante raffine cette approximation.

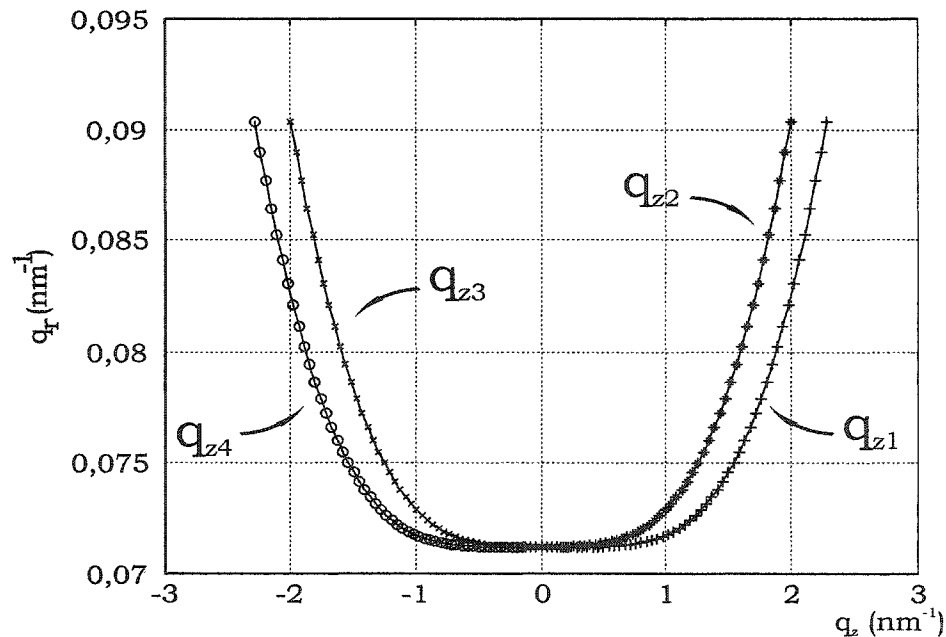
## 4.2 Effets de l'approximation de Born par onde modifiée

Le signal diffusé par un îlot dans l'espace de Fourier est approximé par sa transformée de Fourier. L'expérience montre que ceci est valable seulement dans les cas où les angles zénithaux  $\alpha_i$  et  $\alpha_f$  sont grands par rapport à  $\alpha_c$ , l'angle critique pour la réflexion totale externe. Lorsque l'on souhaite simuler numériquement l'intensité diffusée par un îlot pour des angles proches de  $\alpha_c$ , on doit incorporer dans le calcul la modification du vecteur d'onde provoquée par l'environnement de l'îlot, généralement la surface, tel que mentionné dans le chapitre précédent.

L'utilisation de l'approximation de Born par onde modifiée (ABOM) permet de remplir cette condition (environnement de l'îlot). Elle implique deux considérations : premièrement la modification du vecteur  $\mathbf{q}$  pour prendre en compte la réflexion/réfraction à la surface et deuxièmement, l'incorporation des coefficients de Fresnel qui pondèrent la contribution de chaque processus d'interaction. Il est important de noter que la courbe de l'amplitude diffusée en fonction de  $\mathbf{q}$  est la même pour chaque processus, c'est-à-dire que la forme de cette courbe est la même et que les minima sont situés aux mêmes endroits dans l'espace réciproque. Cependant, quand les mesures sont représentées en fonction des angles de détection  $\alpha_f$  et  $\theta_f$ , le calcul du vecteur de diffusion  $\mathbf{q}$  change localement dans l'îlot dépendamment du processus (voir figure 3.5 et équation 3.18).

### 4.2.1 Cas d'un îlot à la surface

L'effet de la réflexion/réfraction sur le vecteur d'onde est de changer sa composante verticale  $k_z$  alors que les composantes  $k_x$  et  $k_y$  demeurent inchangées. En conséquence, seulement la composante  $q_z$  du vecteur de diffusion doit être modifiée dans l'approche de l'ABOM. L'interaction d'un îlot avec la surface se décompose en quatre processus de diffusion représentés à la figure 3.5. Pour chacun de ces processus, on peut illustrer l'évolution des composantes de  $\mathbf{q}$  en fonction des angles zénithaux  $\alpha_i$  et  $\alpha_f$  (figure 4.5). Le calcul de  $q_r$  provient de l'équation 3.1 et le calcul des  $q_{zp}$  est basé sur l'équation 3.18 en utilisant les paramètres indiqués dans la légende de la figure ci-dessous. On remarque que la réflexion de l'onde incidente à la surface provoque un décalage des valeurs de  $q_z$  ( $q_{z1}$  vs  $q_{z2}$  et  $q_{z3}$  vs  $q_{z4}$ ), tandis que la réflexion de l'onde diffusée provoque une inversion de signe de  $q_z$  (pour  $q_{z3}$  et  $q_{z4}$ ).

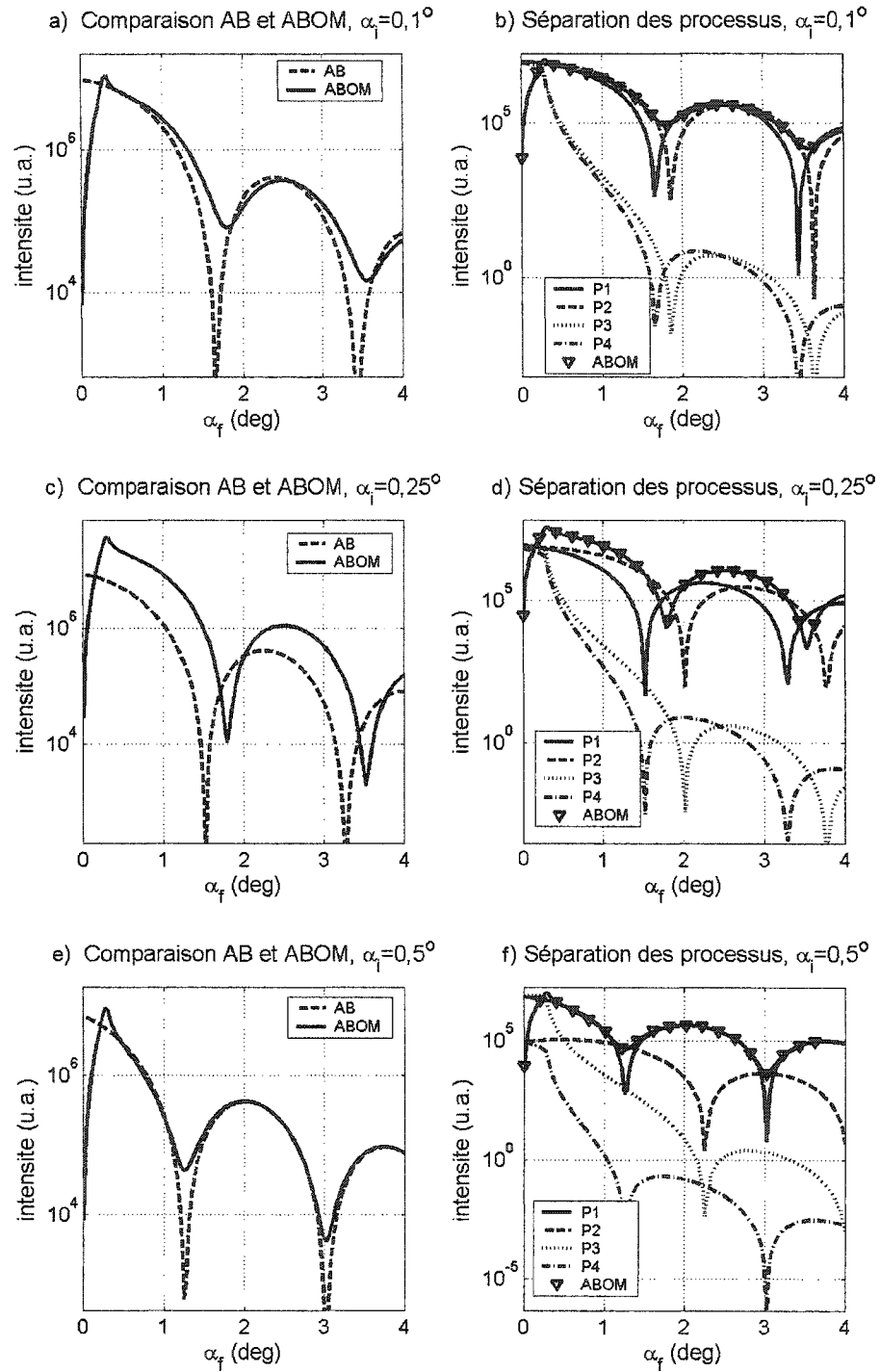


**Figure 4.5** Parcours dans l'espace réciproque pour les quatre processus de l'approximation de Born par onde modifiée en surface ( $\lambda = 0,154$  nm;  $\theta_i = 0$ ;  $\theta_r = 0,1^\circ$ ;  $\alpha_i = 0,2^\circ$ ;  $\alpha_f = [0^\circ, \dots, 3^\circ]$ )

Cependant, la contribution à la diffusion n'est pas égale pour chaque processus. Elle est pondérée par les coefficients de Fresnel en réflexion  $R_F(\alpha)$  (équations 3.18). En première approximation,  $R_F(\alpha)$  est égal à 1 pour  $\alpha < \alpha_c$  et  $R_F(\alpha) \propto (\alpha/\alpha_c)^{-4}$  pour  $\alpha > \alpha_c$  (Chason, 1997). En gros, on peut affirmer que la contribution d'un processus est appréciable seulement lorsque l'angle correspondant  $\alpha < \alpha_c$ ; elle peut être négligée autrement.

L'amplitude diffusée par un îlot en surface est la somme cohérente des quatre processus de diffusion. La figure 4.6 montre la comparaison des résultats de calculs de l'intensité diffusée calculée dans l'AB et dans l'ABOM pour un îlot cylindrique. Les trois paires de graphiques (ab, cd, ef) correspondent à trois valeurs différentes de  $\alpha_i$ , tandis qu'on fait varier  $\alpha_f$ . Les trois graphiques de gauche (a, c, e) présentent la courbe de l'AB et la somme des quatre processus de l'ABOM. Les trois graphiques de droite (b, d, f) montrent l'intensité de chacun des quatre processus regardés séparément. Lorsque l'on compare les résultats de calculs dans l'AB et dans l'ABOM, deux conséquences sont immédiatement observables. Premièrement, l'intensité décroît très rapidement dès que  $\alpha_f < \alpha_c$  lorsque  $\alpha_f \rightarrow 0$ , par rapport à l'AB où l'intensité atteint un maximum à  $\alpha_f = 0$ . Deuxièmement, il y a un décalage des minima de la diffusion lorsque  $\alpha_i < \alpha_c$ . La première conséquence s'explique par le fait que lorsque  $(\alpha_i, \alpha_f) \rightarrow 0$ , la somme des quatre processus s'annule en raison de l'inversion de phase causée par la réflexion à la surface. Ensuite, on constate que peu importe la valeur de  $\alpha_i$ , les processus 3 et 4 ne contribuent pratiquement pas à la diffusion lorsque  $\alpha_f > \alpha_c$  ( $\alpha_c = 0,3^\circ$  dans le cas de la figure).





**Figure 4.6** Comparaison du calcul l'intensité diffusée par un îlot cylindrique en surface, dans l'AB et dans l'ABOM, pour trois angles d'incidence ( $\alpha_i = 0,1^\circ$ ,  $0,25^\circ$ ,  $0,5^\circ$ ;  $\alpha_c = 0,3^\circ$ ,  $\theta_i = 0$ ,  $\theta_r = 0,1$ ). a-c-e) : AB et somme des quatre processus ABOM; b-d-f) : intensité des quatre processus ABOM pris séparément.

Ainsi la position du premier minimum de la courbe de l'intensité diffusée dans l'ABOM ne dépend que des deux premiers processus. La différence entre la position du premier minimum pour ces deux processus augmente avec  $\alpha_i$  (figure 4.6b, d et f), mais une fois que l'on a  $\alpha_i > \alpha_c$ , la contribution du deuxième processus devient négligeable, à l'exception de la zone des minima. Ainsi, le plus grand décalage entre les courbes de l'AB et de l'ABOM est obtenu lorsque  $\alpha_i = \alpha_c$ . Dans ce contexte, avec  $\alpha_i > \alpha_c$ , la courbe de diffusion est plus simple à interpréter « à l'œil », le premier minimum correspondant directement à la hauteur de l'îlot. Cependant, en raison de  $R_F(\alpha_i > \alpha_c) \ll 1$ , l'intensité diffusée est plus petite et on est plus sensible à la structure sous la surface à cause de la transmission dans le substrat. Dans le cas  $\alpha_i \leq \alpha_c$ , le premier minimum est simplement décalé d'une valeur comprise entre 0 et  $k_{iz}$  (composante verticale de  $k_i$  dans l'espace des  $\mathbf{q}$ ) selon la valeur de  $\alpha_i$ .

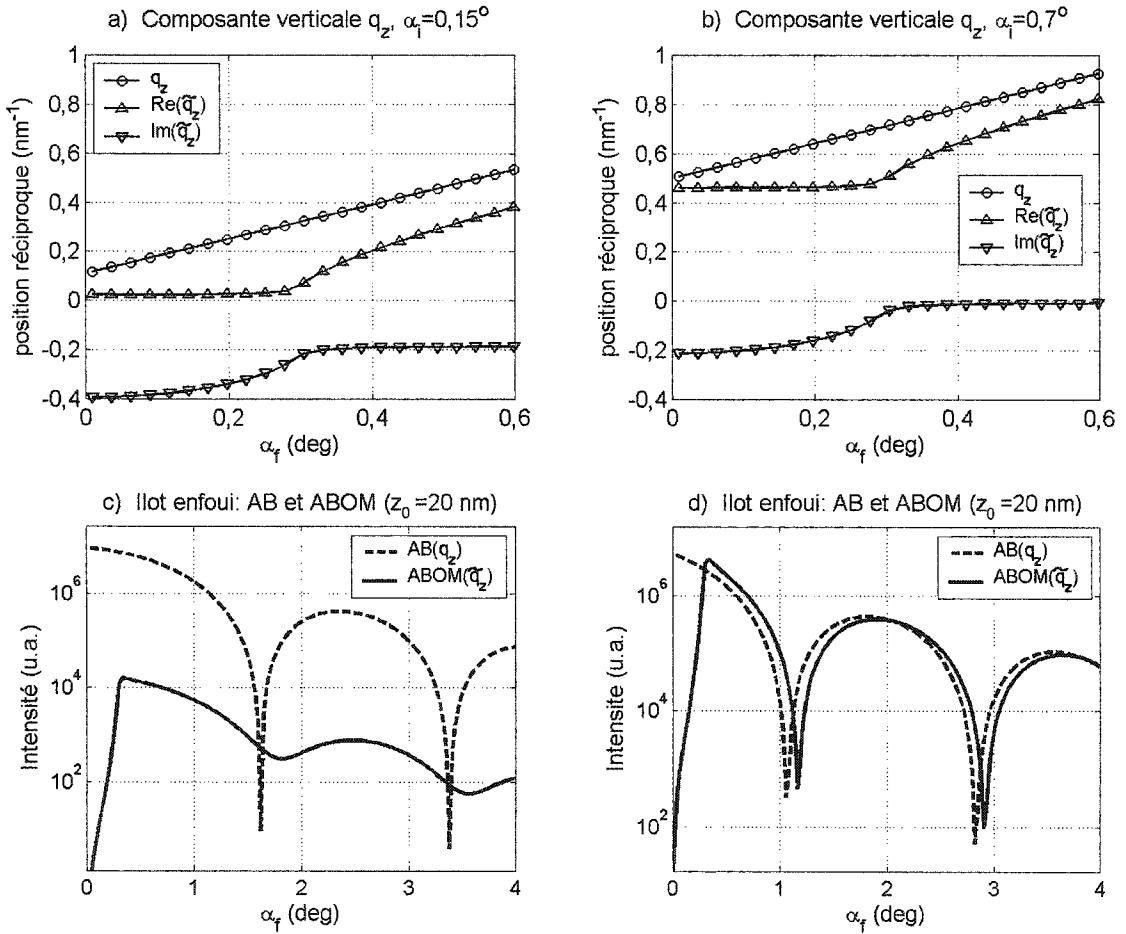
#### 4.2.2 Cas d'un îlot enfoui

Après avoir déterminé l'influence de l'ABOM pour un îlot à la surface, c'est le cas d'un îlot situé à une distance  $z_0$  sous la surface qui est étudié ici. L'intensité diffusée par un tel îlot est donnée par l'équation 3.21. On rappelle que  $\tilde{q}_z$  est la composante verticale du vecteur de diffusion  $\mathbf{q}$  corrigée par l'équation 3.19 pour la transmission à l'intérieur de l'échantillon. Dans cette configuration,  $\tilde{q}_z$  comporte une partie réelle et une partie imaginaire en raison de la valeur complexe de l'indice de réfraction de la couche d'encapsulation. La figure 4.7 présente la comparaison des calculs de l'AB et de l'ABOM pour un îlot enfoui à une distance de  $z_0 = 20$  nm. Sur cette figure, les deux graphiques du haut montrent le calcul du vecteur  $\tilde{q}_z$  pour  $\alpha_i = 0,15^\circ$  et

$0,7^\circ$  (avec  $\alpha_c = 0,3^\circ$ ), ainsi que la valeur de « référence »  $q_z$  au-dessus de la surface. On remarque que, lorsque  $\alpha_i$  et  $\alpha_f$  sont inférieurs à  $\alpha_c$  (graphique a), la partie imaginaire de  $\tilde{q}_z$  est très importante et la valeur absolue décroît jusqu'à atteindre une valeur constante non négligeable à partir de  $\alpha_f > \alpha_c$ . Quand  $\alpha_i$  et  $\alpha_f$  sont supérieurs à  $\alpha_c$  (graphique b), alors la partie imaginaire est négligeable. La contribution négative de la partie imaginaire se traduit par une grande absorption en raison du terme  $\exp(-i\tilde{q}_z z_0)$  dans l'équation 3.21. L'absorption est la seule conséquence de la présence de  $z_0$  dans cette équation. Finalement, on constate que plus  $\alpha_i$  augmente, plus la différence entre  $q_z$  et la partie réelle de  $\tilde{q}_z$  devient petite, aux grandes valeurs de  $\alpha_f$ .

Les deux graphiques du bas de cette même figure comparent les calculs de la diffusion dans l'AB et l'ABOM pour un îlot enfoui. Lorsque  $\alpha_i < \alpha_c$ , on remarque que l'intensité diffusée est beaucoup moins importante dans le calcul de l'ABOM par rapport à l'AB et que les minima de la courbe d'intensité (qui indiquent la taille finie de l'îlot) sont beaucoup moins nets et profonds. Ceci est simplement une conséquence de l'absorption des RX dans la couche d'encapsulation, c'est-à-dire l'effet d'une partie imaginaire de  $\tilde{q}_z$  non négligeable, et ce peu importe la valeur de  $z_0$ . Pour  $\alpha_i > \alpha_c$ , la valeur moyenne de l'intensité est comparable dans l'AB et dans l'ABOM car l'absorption est négligeable. On observe également que le premier minimum de la courbe d'intensité est décalé vers les  $\alpha_f$  croissants d'une valeur égale à  $\tilde{q}_z - q_z$  dans l'espace réciproque. Ce décalage devient de plus en plus petit quand  $\alpha_i$  augmente. Dans les deux cas,  $\alpha_i < \alpha_c$  et  $\alpha_i > \alpha_c$ , on remarque que l'intensité tend vers 0 pour  $\alpha_f \rightarrow 0$ . Ceci est simplement l'influence du coefficient de Fresnel en transmission qui tend vers 0 pour  $\alpha_f < \alpha_c$ . En

bref, on en conclut qu'il est préférable de fixer  $\alpha_i > \alpha_c$  pour faire des mesures de diffusion sur des îlots enfouis car cela n'affectera presque pas l'intensité mesurée (les calculs de l'AB et de l'ABOM donnent une intensité comparable) et que le décalage entre les différentes approximations est petit, indépendamment de  $z_0$ .



**Figure 4.7** Comparaison du calcul l'intensité diffusée par un îlot enfoui dans l'AB et dans l'ABOM, pour deux angles d'incidence ( $\alpha_i = 0,15^\circ, 0,7^\circ$  et  $\alpha_c = 0,3^\circ$ ). a-b) : modification du vecteur de diffusion : partie réelle au-dessus de la surface (cercles), partie réelle sous la surface (triangles hauts), partie imaginaire sous la surface (triangles bas); c-d) : intensités AB et ABOM pour un îlot enfoui de 20 nm.

### 4.3 Réseaux d'îlots

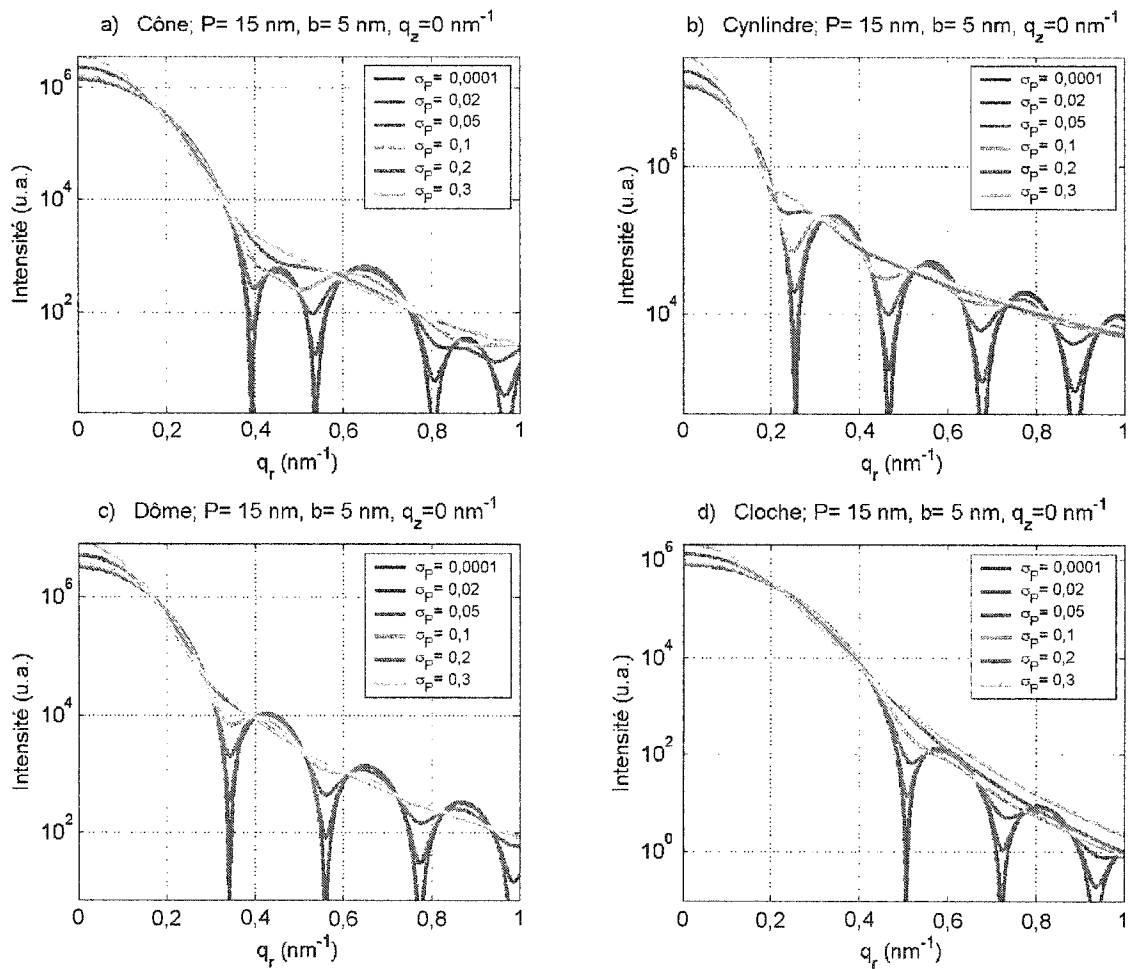
Jusqu'ici, toutes les simulations ont été faites pour un îlot unique, situé à la surface ou enfoui. C'est dans cette section qu'est introduite la non uniformité de taille au sein d'un ensemble d'îlots. Dans un premier temps, on s'intéresse seulement à la distribution de taille, sans tenir compte de la position des îlots. Par la suite, les positions des îlots et la faible cohérence temporelle sont incorporées aux calculs.

#### 4.3.1 Distribution de taille excluant la position

La principale caractéristique de la diffusion par un îlot unique (qui est la même, à une constante près, que celle d'un ensemble d'îlots identiques) est la présence de franges nettes dont la séparation est inversement proportionnelle à la taille de l'îlot. Est-ce toujours vrai lorsqu'il y a une distribution dans la taille des îlots? Pour répondre à cette question, on regarde dans un premier temps le comportement de ces franges au fur et à mesure que la dispersion de taille augmente. Dans un deuxième temps, on voit comment on peut caractériser un ensemble d'îlots comportant cette distribution de taille.

La figure 4.8 montre l'intégration de l'intensité diffusée sur la distribution de taille des îlots pour quatre formes différentes. L'intégration numérique de la diffusion se fait sur une distribution gaussienne du rayon de la base avec une moyenne de 15 nm et des écarts-types de 0,01%, 2%, 5%, 10%, 20% et 30% de la valeur moyenne. Il est important de mentionner ici que tous les îlots conservent le même rapport d'aspect même si leurs dimensions changent. Dans l'espace réciproque, le déplacement effectué ici se fait selon  $q_r$  avec  $q_z = 0$ . La première observation que l'on peut faire concerne l'intensité diffusée à

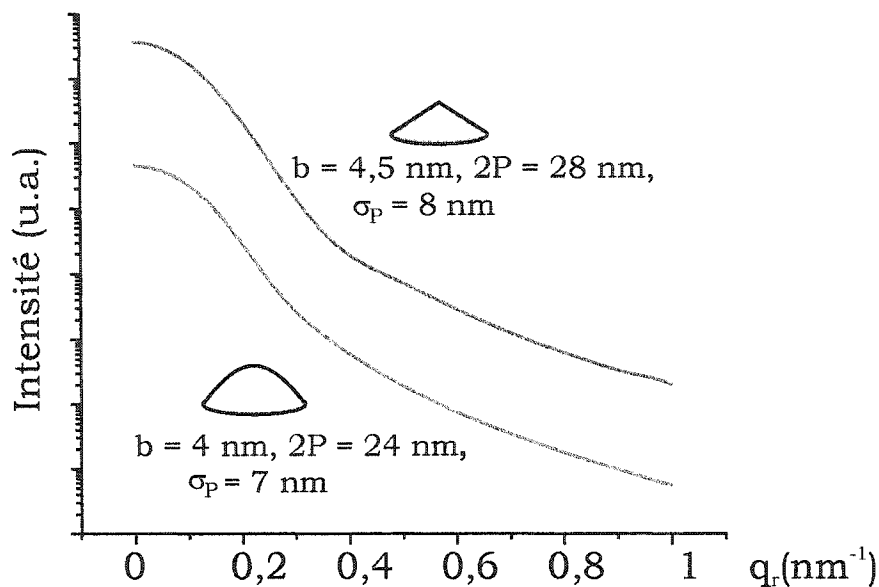
l'origine. En effet, à partir de l'inspection de l'équation 3.11, on voit que l'intensité diffusée par un îlot à  $|\mathbf{q}| = 0$  est directement proportionnelle au carré du volume de celui-ci. Ainsi sur la figure 4.8, on remarque que plus la dispersion de taille est importante, plus l'intensité à  $|\mathbf{q}| = 0$  est élevée. La première conséquence de la distribution de taille est donc d'augmenter la taille apparente des îlots, c'est-à-dire la taille que l'on déduirait si l'on ne tenait pas compte de la distribution, simplement à cause du fait que « les gros îlots diffusent plus que les petits ».



**Figure 4.8** Intégration de l'intensité diffusée sur la distribution de taille des îlots à  $q_z = 0$ , pour quatre formes: a) cône, b) cylindre, c) dôme, d) cloche.

L'autre observation concernant la largeur de la distribution de taille est que, indépendamment de la forme, les franges nettes tendent à s'estomper au fur et à mesure que la distribution augmente. Jusqu'à une largeur de distribution de 5%, il est possible de distinguer ces franges pour toutes les formes présentées. Une fois cette valeur de 5% dépassée, la largeur de la distribution pour laquelle les franges ne sont plus visibles dépend de la forme : 10% pour la cloche, 20% pour le dôme et le cône et plus de 30% pour le cylindre. À partir de cette constatation, on se rend compte qu'il ne reste plus qu'une seule façon pour déterminer la taille moyenne pour les grandes distributions. Il s'agit de la « pente », sur une échelle logarithmique, de la courbe de diffusion pour les petites valeurs de  $|q|$ . Plus cette pente est abrupte, plus la taille moyenne est grande. Cependant, ceci n'est valable que lorsque l'on connaît la forme *a priori*. En effet, en comparant plusieurs courbes de diffusion pour différentes formes, tailles et distributions, on constate que certaines sont presque superposables et ainsi plusieurs d'entre elles peuvent facilement se confondre les unes aux autres (Figure 4.9). Dans le cas particulier de cette dernière figure, on a une distribution de cônes dont le rayon moyen de la base est de 14 nm et la dispersion de taille est de 28%; également une distribution de dômes dont le rayon moyen de la base est de 12 nm et la dispersion de taille est de 29%. Ces deux courbes de diffusion sont tout à fait indiscernables.

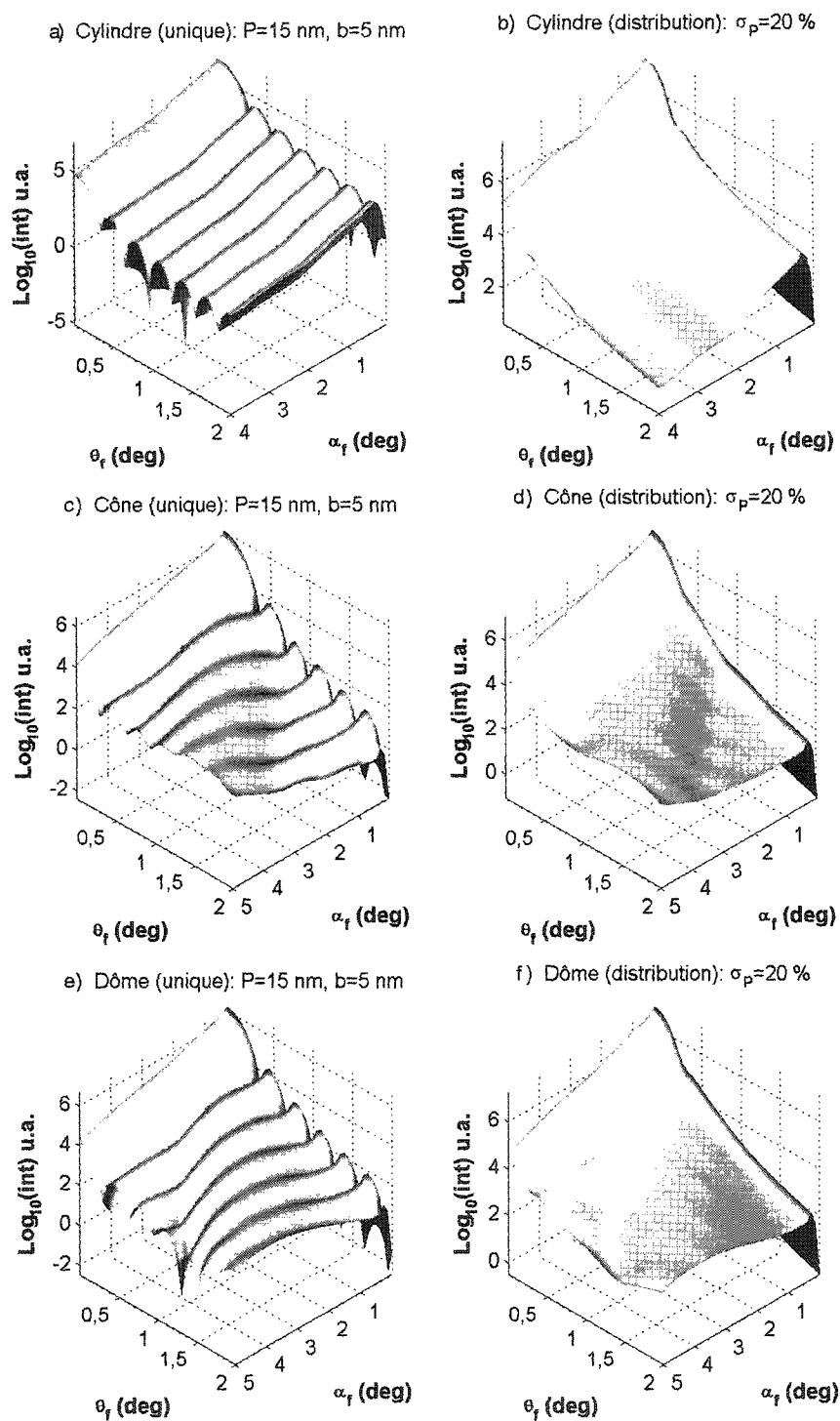
En bref, comme il a été mentionné dans la première section de ce chapitre, la taille et la forme ont une influence sur l'allure de la courbe de diffusion. C'est pourquoi il n'est pas possible de définir sans ambiguïté la forme des îlots quand leur taille n'est pas uniforme.



**Figure 4.9 Courbes de diffusion pour deux distributions d'îlots de forme et de taille différentes. Indiscernabilité de ces courbes.**

Jusqu'ici, toute la discussion sur l'effet de la distribution de taille était basée sur des simulations numériques de la diffusion unidimensionnellement dans l'espace réciproque. La figure 4.10 montre des simulations bidimensionnelles de l'intensité diffusée dans l'approximation de Born par onde modifiée. Les parties a), c) et e) montrent les simulations pour les îlots uniques de formes différentes, soient un cône, un cylindre et un dôme, dont le rayon de la base est de 15 nm. Les parties b), d) et f) montrent celles correspondant aux mêmes formes et dimensions, mais pour un ensemble d'îlots présentant une distribution de taille de 20% par rapport à la valeur moyenne.



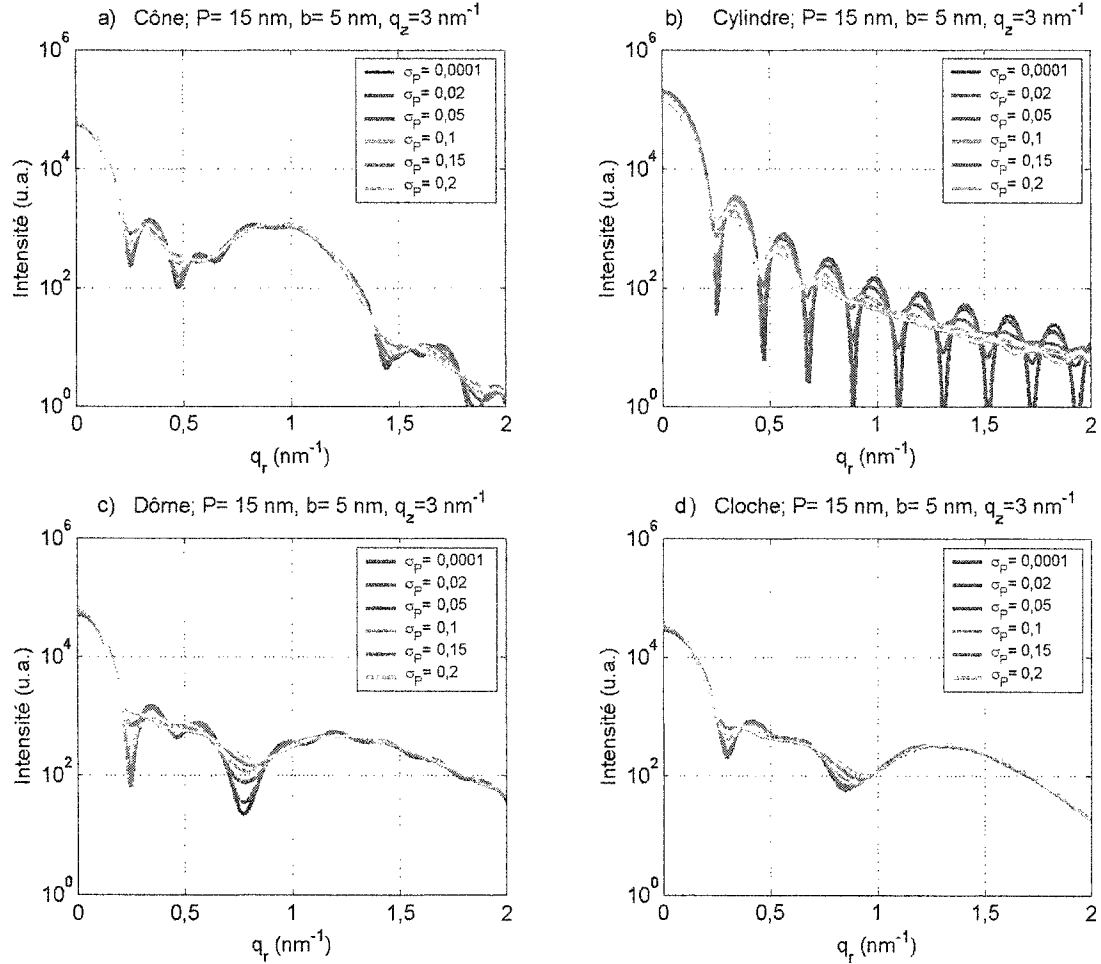


**Figure 4.10** Intégration sur la distribution de taille de l'intensité diffusée pour un ensemble d'îlots avec  $\sigma_P/P_0 = 20\%$ , en comparaison avec un îlot unique. a-b) : cylindre; c-d) : cône; e-f) : dôme

Le premier effet que l'on remarque est que les franges de volume fini, visibles pour un îlot unique, s'estompent considérablement. On observe également la présence d'un sillon dépendant du rapport d'aspect de l'îlot, comme cela avait été le cas dans la première section de ce chapitre, pour toutes les formes à l'exception du cylindre. Dans le cas d'une distribution de taille, ce sillon reste toujours visible (sauf évidemment pour le cylindre). La figure 4.11 montre l'intégration sur la distribution de taille, mais cette fois-ci pour  $q_z = 3 \text{ nm}^{-1}$ . À cette valeur de  $q_z$ , la coupe de l'espace réciproque révèle bien le sillon, bien que toutes les franges de volume fini disparaissent pour les grandes valeurs de la distribution de taille.

À ce stade-ci, il est pertinent de se demander quelles sont les grandeurs qui peuvent être caractérisées pour un ensemble d'îlots comportant une distribution de taille. À première vue, il semble possible d'extraire seulement le rapport d'aspect à partir du sillon étant donné que les franges de volume n'apparaissent plus. Cependant, la pente de l'intensité diffusée près des axes  $q_r = 0$  et  $q_z = 0$  (sur une échelle logarithmique) contient également l'information sur la taille : le rayon de la base ( $q_r$ ) et la hauteur ( $q_z$ ). Mais comme l'intensité diffusée dans la région près de  $q_z = 0$  est rendue inaccessible à cause des effets de l'ABOM (voir les figures 4.6 et 4.7), il ne reste que la région près de  $q_r = 0$  qui puisse donner la dimension de l'îlot, soit le rayon de la base. Un autre détail à considérer est que la ligne  $q_r = 0$  est pratiquement impossible à exploiter dans l'étude des îlots. En effet, c'est dans cette zone que se retrouve l'intensité de la réflectivité spéculaire du substrat, qui est beaucoup plus importante que celle provenant des îlots. Dans la plupart des mesures expérimentales, cette région est bloquée

physiquement par un obturateur afin de ne pas provoquer la saturation du détecteur.



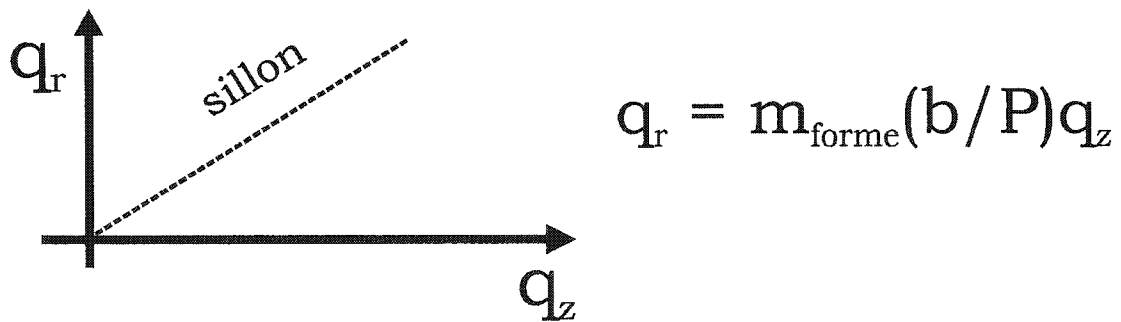
**Figure 4.11** Intégration de l'intensité diffusée sur la distribution de taille des îlots à  $q_z = 3$  nm<sup>-1</sup>, pour quatre formes: a) cône, b) cylindre, c) dôme, d) cloche.

Voici maintenant le moment de décrire comment sont extraits les paramètres d'un ensemble d'îlots comportant une certaine distribution de taille. La première étape est de constater ou non la présence des franges de volume fini. Si ces franges sont visibles, cela signifie que la distribution de taille est d'au plus de l'ordre de 25% dans le pire des cas. La comparaison des mesures expérimentales avec les simulations

numériques permet alors de déterminer aisément les paramètres recherchés. La taille moyenne des îlots s'obtient par largeur des franges de volume fini, la dispersion de taille s'obtient par la « profondeur des franges » (figure 4.8) et la forme est déterminée par l'angle entre le sillon et l'axe  $q_z = 0$  de l'espace réciproque. En effet, la présence des franges selon les axes  $q_z$  et  $q_r$  donnent directement la hauteur et le rayon de la base d'un îlot. En assimilant le sillon à une droite partant de l'origine du repère  $q_z O q_r$ , on obtient que la pente de cette droite est non seulement fonction du rapport d'aspect moyen de l'îlot, mais également fonction de la forme de l'îlot. Ainsi, on trouve que

$$q_{r,sillon} = m_{forme} \times \frac{b}{P} \times q_{z,sillon} \quad [4.2]$$

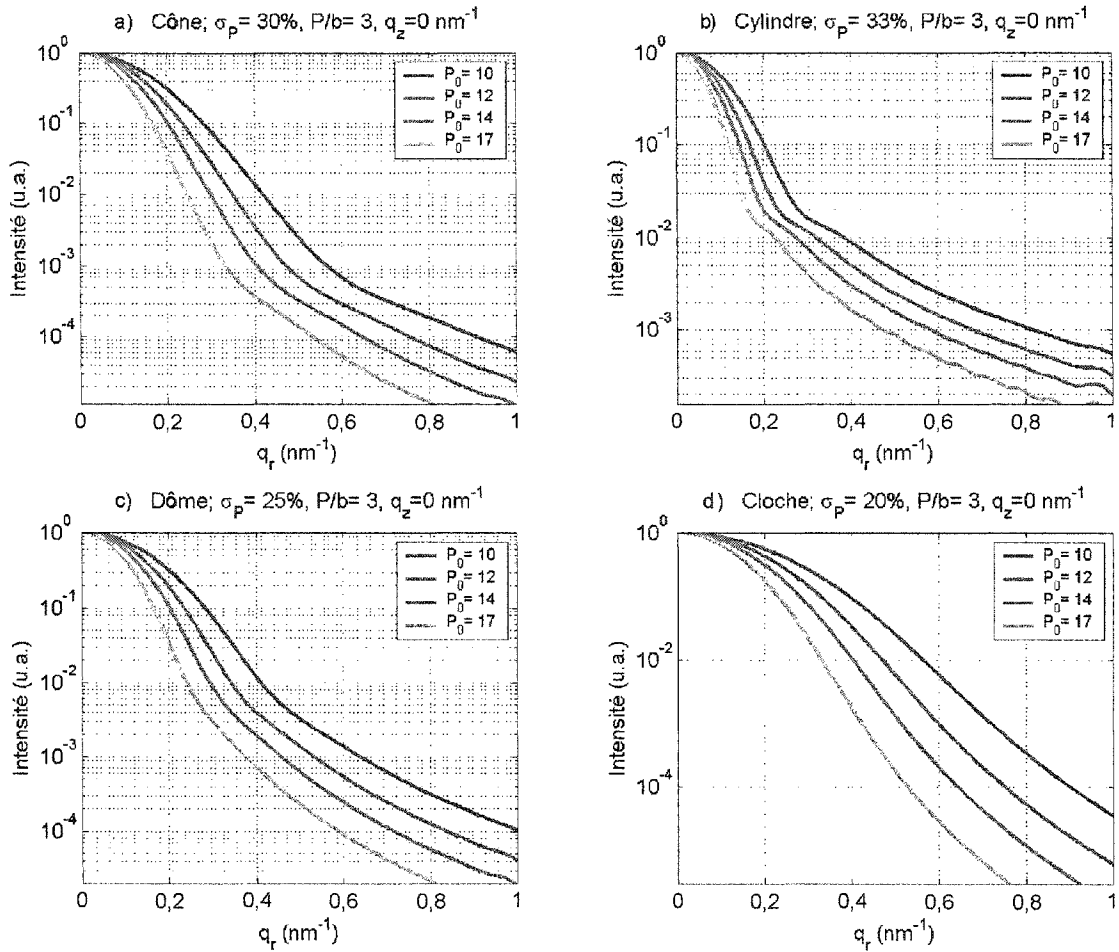
où  $m_{forme}$  est une constante dépendant de la forme de l'îlot et  $b/P$  est son rapport d'aspect. La figure 4.12 schématise cette dernière équation. Les constantes en question se déterminent aisément par simulations numériques.



**Figure 4.12** Schéma de l'équation de la droite du sillon dans l'espace réciproque, en fonction du rapport d'aspect et de la forme.

Pour se faire, il suffit de tracer l'intensité diffusée pour des îlots de différents rapports d'aspect et ensuite de faire le calcul de l'équation de la droite correspondant au sillon. De cette façon, on trouve que  $m_{cône} \approx 0,96$ ,  $m_{dôme} \approx 1,3$  et  $m_{cloche} \approx 1,4$ . Ces constantes ont été

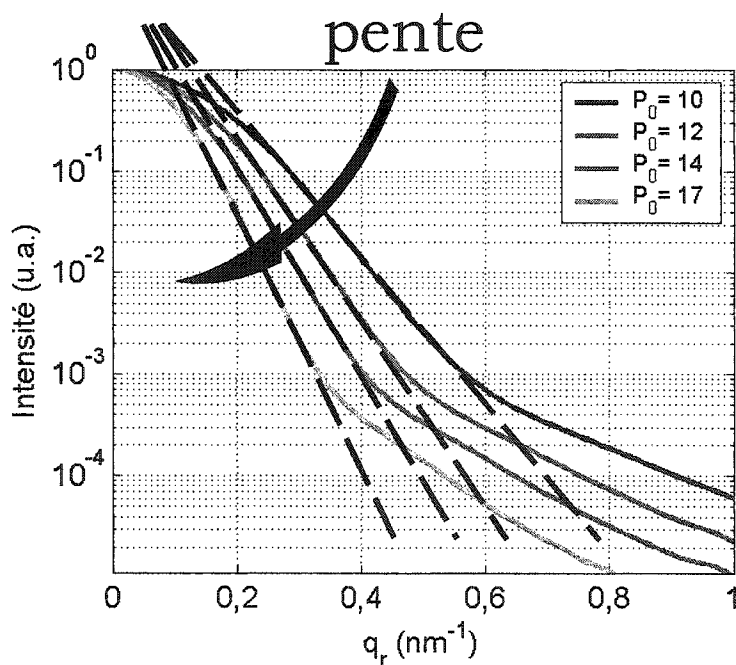
déterminées dans la limite de rapports d'aspect « réalistes » pour des NIAO, soit  $2 < P/b < 5$ .



**Figure 4.13 Intégration de l'intensité diffusée pour quatre tailles moyennes d'îlots de quatre formes différentes : a) cône, b) cylindre, c) dôme, d) cloche. Toutes les courbes ont été normalisées à 1.**

La tâche est légèrement différente lorsque les franges de volume fini n'apparaissent plus. Il ne reste plus que deux « signes » observables pour caractériser les îlots, soient la pente de la courbe pour  $q_r$  petit et la trace du sillon. En ce qui concerne le sillon, sa présence permet de tirer la même information que dans le cas où les franges sont visibles. Mais cette fois-ci, on ne connaît pas les valeurs de la base et de la hauteur

des îlots. En ce qui concerne la pente pour  $q_r$  près de l'origine, la figure 4.13 montre clairement comment celle-ci dépend de la taille de l'îlot, c'est-à-dire le rayon de la base dans ce cas-ci. Cette figure présente l'intensité diffusée pour des ensembles d'îlots ayant des distributions de taille assez grandes pour provoquer la disparition des franges de volume fini. On y voit que plus la taille moyenne est grande, plus la valeur absolue de la pente de la courbe de la diffusion augmente, et ce peu importe la forme. Cependant, le problème précédent revient encore : l'extraction précise de cette valeur dépend de la connaissance préalable de la forme. La figure 4.14 montre schématiquement comment on extrait cette pente pour les petites valeurs de  $q_r$  sur un graphique avec une échelle logarithmique (un peu de la même façon que suggérée par Guinier (1963)).



**Figure 4.14** Intensité en fonction du vecteur de diffusion pour quatre tailles de de cône (figure 4.13a). Schéma de l'extraction de la pente à petit  $q_r$ .

En résumé, toutes les caractéristiques d'un ensemble d'îlots de taille non uniforme peuvent être extraites à partir de mesures en

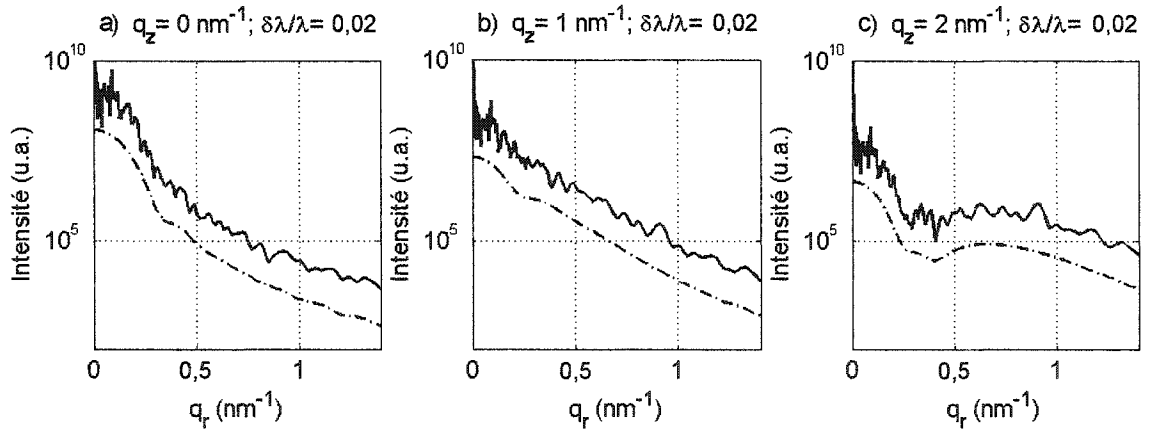
diffusion. Lorsque la dispersion de taille est faible, les franges de volume fini permettent de déterminer le rayon de la base et la hauteur moyenne des îlots. La présence et la position du sillon dépendent de la forme et du rapport d'aspect des îlots. Lorsque la dispersion de taille des îlots est assez grande pour provoquer la disparition des franges de volume fini, la détermination du rayon moyen de la base et du rapport d'aspect ne peut se faire qu'en supposant la forme *a priori*. Dans tous les cas, il n'y a pas de façon « intuitive » de déterminer la valeur de la largeur de la distribution de taille. La meilleure façon de le faire demeure la comparaison de simulations numériques avec les mesures expérimentales.

#### **4.3.2 Distribution de taille incluant la position**

À la section précédente, seul un ensemble d'îlots de même forme mais avec différentes distributions de taille a été traité : la position des îlots et la faible cohérence temporelle du faisceau de rayons X incident n'ont pas été incluses dans le calcul. Dans une mesure réelle, la position des îlots, via la fonction d'interférence, a une contribution importante dans l'intensité diffusée. Elle peut ainsi rendre difficile l'extraction des caractéristiques individuelles des îlots. C'est pour cette raison que l'on veut pouvoir connaître ces statistiques peu importe les positions des îlots. Dans le chapitre troisième, la proposition faite pour y arriver était d'utiliser une très faible cohérence temporelle. De cette façon, l'interférence dans le signal de diffusion provoquée par des îlots voisins serait négligeable. L'objectif de la présente section est donc de vérifier cette hypothèse au moyen de simulations numériques. C'est pourquoi les calculs suivants sont faits en incorporant la fonction d'interférence et une valeur de la largeur spectrale de la source de l'ordre de  $\Delta\lambda/\lambda \approx 0,02$ .

Ainsi, avec une aussi faible cohérence, chaque îlot ne « verra » pas ses voisins et chaque onde diffusée par un îlot s'additionnera aux autres de façon incohérente.

Une illustration du calcul de l'équation 3.26 a été fait et est présenté à la figure 4.15. Il s'agit de l'intensité diffusée par un réseau de 300 îlots en forme de dôme dont la taille moyenne est de 15 nm, avec une distribution de taille de 15% et un rapport d'aspect de 3. Le réseau d'îlots a été généré par un algorithme avec ordre à courte portée (OCP), dont les paramètres sont  $W^m = 76$  nm et  $W^o = 21$  nm (la présentation de l'algorithme de génération est faite à la section 3.6.3). La figure montre la comparaison entre le calcul qui ne tient pas compte du réseau et le calcul qui incorpore la fonction d'interférence et la faible cohérence temporelle, et ce pour trois valeurs différentes de  $q_z$ .



**Figure 4.15** Calcul de l'intensité diffusée pour un ensemble d'îlots en forme de dôme; en pointillé : sans tenir compte de la position; en trait plein : en tenant compte de la position et de la faible cohérence temporelle. a)  $q_z = 0$  nm<sup>-1</sup>, b)  $q_z = 1$  nm<sup>-1</sup>, c)  $q_z = 2$  nm<sup>-1</sup>. Le réseau de 300 îlots est généré selon un algorithme OCP avec  $W^m = 76$  nm et  $W^o = 21$  nm. À chaque fois, les deux courbes sont décalées pour plus de clarté.

La première chose que l'on remarque lors de l'introduction de la fonction d'interférence et de la faible cohérence est la présence d'une



série de petits pics situés proches de l'origine et qui n'apparaissent pas lorsque l'on somme l'intensité diffusée par des îlots pris individuellement. L'étude de ces pics d'interférence fait l'objet du chapitre suivant. Pour le moment, on s'intéresse seulement à savoir si leur présence influence la façon développée jusqu'ici pour caractériser les îlots. Pour la valeur de  $q_z = 0$ , on voit que la pente qui donne le rayon moyen de la base est toujours clairement visible, et ce malgré la présence des petites oscillations dues à l'introduction du réseau. Pour la valeur de  $q_z = 2 \text{ nm}^{-1}$ , la position du sillon reste encore tout à fait identifiable (dans le cas du graphique ci-dessus, on la remarque à la « bosse » qu'il y a à  $q_r = 0,6 \text{ nm}^{-1}$ ). Cet exemple permet d'illustrer comment, lorsque l'on introduit la position des îlots dans le calcul, la faible cohérence temporelle permet de retrouver le cas où seuls les îlots contribuent à la diffusion, et donc comment on peut caractériser les caractéristiques des îlots pris individuellement.

En résumé, la diffusion de chaque forme d'îlot est très caractéristique dans l'espace réciproque. Dans le cas d'un îlot unique, il est aisé de déterminer la forme, la hauteur et le rayon de cet îlot à partir de l'intensité qu'il diffuse. Pour un ensemble d'îlots de tailles relativement semblables mais présentant une certaine distribution, il est possible de déterminer également l'importance de la dispersion de taille. Lorsque la dispersion devient trop grande, il est possible de déterminer seulement le rayon moyen des îlots et leur rapport d'aspect. Mais pour ce faire, on doit *supposer* la forme, car la trop grande disparité dans les tailles d'îlots masque les informations de la forme. Lorsque l'on introduit la position des îlots dans le calcul de la diffusion, la faible cohérence temporelle permet d'obtenir un signal en diffusion qui reste caractéristique des îlots pris individuellement, c'est-à-dire qui n'est pas

perturbé de façon trop importante par la fonction d'interférence du réseau d'îlots. Le chapitre suivant montre comment on peut caractériser le réseau d'îlots à partir de l'étude de cette fonction d'interférence.

## 5 Arrangement spatial des îlots auto-organisés

La deuxième étape de la démarche générale est présentée dans ce chapitre, soit l'analyse de la configuration des îlots dans le plan, leur degré d'ordre et les distances caractéristiques les séparant.

Lors de l'étape précédente, la cohérence temporelle a été réduite à une valeur de  $\Delta\lambda/\lambda \approx 0,02$  afin de mesurer les caractéristiques individuelles des îlots. Une fois que ces paramètres sont connus, on veut déterminer l'organisation spatiale des îlots. C'est pourquoi la longueur de cohérence doit être augmentée de manière à sonder des distances de plus en plus grandes.

Ce chapitre présente les quatre types d'arrangement bidimensionnel des îlots : le réseau parfait, le réseau avec ordre à courte portée (OCP), avec ordre à moyenne portée (OMP) et avec ordre à longue portée (OLP). Dans tout le chapitre, les réseaux utilisés sont de taille finie et de forme carrée. La génération du réseau périodique est introduit à la section 5.1, alors que les trois autres réseaux ont déjà été introduits au troisième chapitre. Par la suite, les résultats des simulations numériques de l'intensité diffusée à cohérence temporelle variable sont présentés. La motivation principale est de pouvoir, dans un premier temps, distinguer les types de réseau et, dans un deuxième temps, de caractériser tous leurs paramètres structuraux.

Le premier type d'arrangement est le réseau périodique pour lequel les îlots sont situés sur les points d'un réseau périodique régulier. Ce type de réseau peut être observé dans le cas de nanostructures issues de techniques lithographiques, mais il est très peu probable d'apparaître pour des îlots auto-organisés. Dans ce mémoire, il est

principalement utilisé pour démontrer l'utilisation de la cohérence variable à déterminer l'arrangement spatial.

En ce qui concerne les trois autres types d'arrangement, les détails des méthodes utilisées pour les générer ont été présentés au troisième chapitre. Dans le présent chapitre, des exemples de ces réseaux sont générés, puis ceux-ci sont utilisés comme « sources » dans les calculs des simulations numériques de l'intensité diffusée.

Il est important de mentionner que les analyses présentées dans ce chapitre portent essentiellement sur la fonction d'interférence associée à un réseau particulier. Ainsi, toutes les informations vues au chapitre précédent qui sont contenues dans le facteur de diffusion  $D(\mathbf{q})$ , soient la taille, la forme, la distribution de taille et les conséquences de l'approximation de Born par onde modifiée (pour un îlot en surface ou enfoui) demeurent valables. Cependant, le facteur de diffusion n'a qu'une faible influence sur l'étude de la fonction d'interférence, étant donné que les échelles de distances ne sont pas les mêmes. En effet, les courbes de diffusion montrent plusieurs pics d'interférence, lorsque  $|\mathbf{q}|$  augmente, avant de rencontrer le premier minimum dû au facteur de diffusion. C'est pourquoi dans certains calculs, on a posé que  $D(\mathbf{q}) = 1$  lorsque cela simplifie grandement ces calculs et que les interprétations n'en sont pas affectées.

À travers tout ce chapitre, un seul plan d'îlots est pris en compte à chaque simulation, c'est-à-dire que les superréseaux d'îlots ne sont pas considérés. Pour cette raison, les simulations sont calculées seulement dans les directions  $q_x$  et  $q_y$  de l'espace réciproque, la direction de  $q_z$  n'apportant aucune information sur la structure des réseaux. De plus, il a été expliqué au troisième chapitre qu'une des conséquences de l'ABOM

est de modifier la composante  $q_z$  alors que  $q_x$  et  $q_y$  restent inchangées. Ainsi, pour l'étude de la fonction d'interférence, faire les calculs dans l'AB ou dans l'ABOM n'apporte aucune différence.

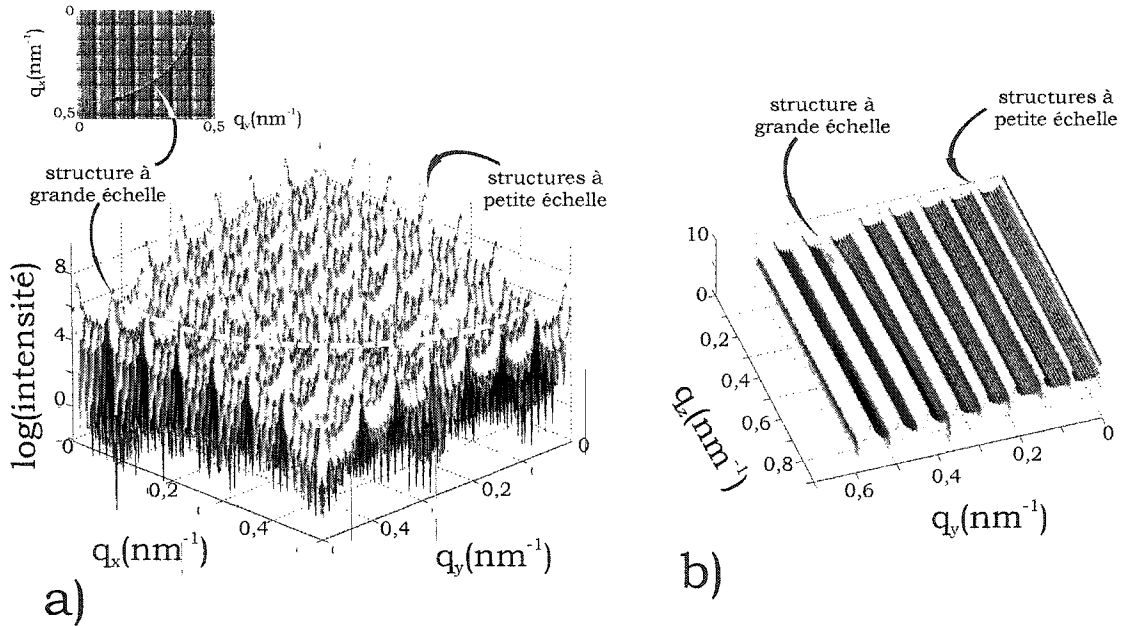
## 5.1 Réseau périodique

Le premier type de réseau d'îlots présenté est celui périodique. La génération de ce type de réseau est très simple. On peut le voir comme un réseau avec ordre à longue portée avec un paramètre de désordre  $\tau = 0$ . La « maille » de base peut être carrée, hexagonale, rectangulaire, etc. L'analyse de ce cas limite du réseau OLP permettra de rendre plus claire l'étude des « imperfections » dans les réseaux moins ordonnés.

### 5.1.1 Cohérence temporelle infinie et taille uniforme

On entend par « cohérence infinie » que le faisceau de rayons  $X$  incident sur l'échantillon est parfaitement monochromatique, autrement dit que  $\Delta\lambda = 0$ , de sorte que  $L_c = \lambda^2 / 2\Delta\lambda \rightarrow \infty$ . La figure 5.1 présente la simulation numérique de l'intensité diffusée pour un réseau carré, de période  $W = 90$  nm, d'îlots identiques en forme de dôme (avec  $P = 12$  nm et  $b = 4$  nm). Le réseau est de  $M \times M = 10 \times 10$  points. La partie de gauche de cette figure présente une cartographie de l'espace réciproque selon les axes  $(q_x, q_y; q_z = 0)$  et la partie de droite le montre pour les axes  $(q_y, q_z; q_x = 0)$ . Sur la partie a), on remarque clairement la superposition de trois types de structures : une à petite échelle qui est formée de pics très rapprochés, une à moyenne échelle formée de pics plus hauts et plus espacés que ceux de la petite échelle et une autre à grande échelle dont la variation est décroissante et lente par rapport aux autres structures. La structure à petite échelle est associée à la taille finie du réseau utilisé pour le calcul. Ceci est un paramètre important étant

donné que la longueur de cohérence est infinie. La distance entre ces pics est de  $\Delta q_{x(\text{petite})} = 0,0070 \text{ nm}^{-1}$ , ce qui correspond à la valeur de  $W \times M$ , donc de la taille totale dans la direction  $q_x$ . Sur l'axe  $q_y = 0$ , on voit que ces pics se retrouvent intercalés entre deux pics de moyenne échelle. On en dénombre  $8 = (M-2)$ , comme on s'y en attend d'après la théorie classique de la diffraction, cela est expliqué un peu plus loin dans cette section.



**Figure 5.1 Intensité diffusée dans l'espace réciproque par un réseau périodique parfait contenant  $10 \times 10$  îlots identiques, de période  $W = 90 \text{ nm}$ . a) intensité diffusée selon  $q_x$  et  $q_y$ ; b) intensité diffusée selon  $q_y$  et  $q_z$ .**

La structure à moyenne échelle dans la cartographie de l'espace réciproque est causée par l'interférence constructive des ondes diffusées par chaque îlot. Le pic le plus près de l'origine donne la distance entre deux îlots plus proches voisins. Par conséquent, on déduit cette distance à  $W = 2\pi/\Delta q_{x(\text{moyenne})}$ . On mesure  $\Delta q_{x(\text{moyenne})} = 0,070 \text{ nm}^{-1}$ , ce qui est en accord avec  $W = 90 \text{ nm}$  utilisé pour générer le réseau. Les autres pics situés plus loin de l'origine sont les harmoniques de cette périodicité. Étant donné que ce réseau est parfaitement périodique, l'intensité de ces

pics reste constante peu importe la valeur de  $q_x$  et  $q_y$ , si l'on néglige la variation lente causée par la structure à grande échelle. La périodicité est la même selon  $q_x$  et  $q_y$  parce que le réseau de base est carré. En fait, la position de tous les pics est déterminée par les vecteurs de l'espace réciproque du réseau d'îlots. Sur la figure 5.1a, on voit que les pics forment un réseau carré, ce qui implique que le réseau réel était bien carré.

Dans le cas d'un réseau parfait d'îlots identiques, sous illumination parfaitement monochromatique, l'intensité diffusée s'écrit simplement

$$I(\mathbf{q}) \propto \left| D_0(\mathbf{q}) \sum_{m=1}^N e^{(i\mathbf{q}\mathbf{R}_m)} \right|^2. \quad [5.1]$$

C'est cette équation qui a été calculée précédemment (figure 5.1). Cette expression devient très simple si l'on calcule l'intensité pour un réseau unidimensionnel. En effet, le calcul de l'intensité donne

$$\begin{aligned} I_{1D}(q_x) &\propto |D_0(q_x)|^2 \times \left| \sum_{m=0}^{N-1} e^{(iq_x W m)} \right|^2 \\ &= |D_0(q_x)|^2 \times \left( 2 \sum_{l=0}^{N-1} (N-l) \cos(q_x W l) - N \right) \\ &= |D_0(q_x)|^2 \times \frac{1 - \cos(q_x W N)}{1 - \cos(q_x W)} \end{aligned} \quad [5.2]$$

où  $W$  est la distance entre les îlots plus proches voisins. Ceci est le résultat bien connu de la diffraction classique pour un réseau de fentes également espacées. On y retrouve des maxima principaux pour  $|\mathbf{q}|W = 2\pi k$ , où  $k = 0, 1, 2, 3, \dots$ . La hauteur de ces pics est  $N^2$ . Entre ceux-ci se retrouvent  $(N-2)$  maxima secondaires. En faisant le développement limité à l'ordre 2, on trouve que la pleine largeur à mi-hauteur (PLMH)

des maximums principaux est donnée en première approximation par  $PLMH \approx 5,7/NW$ . Autrement dit, la largeur des pics est inversement proportionnelle à la taille du réseau quand le faisceau incident est parfaitement monochromatique. Dans le cas d'un réseau carré bidimensionnel, le résultat du calcul est simplement le produit des fonctions d'interférence dans les directions  $q_x$  et  $q_y$  :

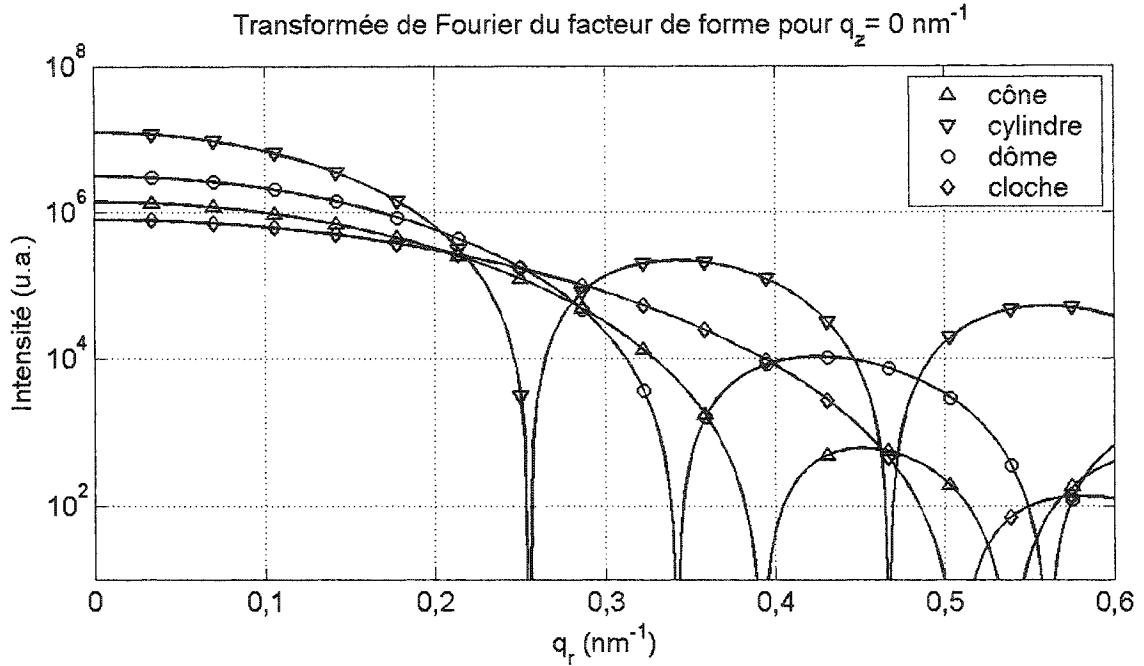
$$I_{2D}(q_x, q_y) \propto |D_0(q_x, q_y)|^2 \times \frac{1 - \cos(q_x W N_x)}{1 - \cos(q_x W)} \times \frac{1 - \cos(q_y W N_y)}{1 - \cos(q_y W)} \quad [5.3]$$

où  $N_x$  et  $N_y$  sont respectivement le nombre d'îlots dans la direction  $q_x$  et dans la direction  $q_y$ .

La structure à grande échelle provient du signal moyen diffusé par les îlots individuels. Dans ce cas-ci, les îlots sont tous identiques et on observe le premier minimum clairement défini pour  $q_{r0} = (q_{x0}^2 + q_{y0}^2)^{1/2} = 0,43 \text{ nm}^{-1}$  (Figure 5.1, en médaillon). Comme vu au chapitre précédent, il est possible de déterminer le rayon de la base d'un îlot à partir de ce premier minimum, lorsque l'on en connaît la forme. Dans la première approximation de Born (AB), à  $q_z = 0$ , on a que  $P = \text{cte}/q_{r0}$ , avec la constante égale à 3,83 (cylindre); 5,88 (cône); 5,16 (dôme) et 7,62 (cloche). La figure 5.2 résume cette situation. On y voit la transformée de Fourier pour les quatre formes mentionnées avec la position du premier minimum clairement défini. Dans le calcul de la cartographie (Figure 5.1a), on retrouve bien  $P = \text{cte}/q_{r0} = 12 \text{ nm}$ . Il est important de noter que ces valeurs ne sont valables que dans l'AB. En effet, dans l'ABOM, la valeur  $q_z = 0$  est inaccessible en raison des phénomènes de réfraction/réflexion à la surface. Afin de connaître les valeurs de ces constantes dans l'ABOM, il suffit de faire le calcul de la diffusion en



posant le  $q_z$  approprié qui tient compte de l'indice de réfraction du substrat et des angles zénithaux  $\alpha_i$  et  $\alpha_f$ .



**Figure 5.2 Intensité diffusée dans l'espace réciproque par un îlot unique, pour quatre formes différentes dans la première approximation de Born. Pour toutes les formes :  $P = 15 \text{ nm}$ ,  $b = 5 \text{ nm}$  et  $q_z = 0 \text{ nm}^{-1}$ .**

L'analyse de l'intensité en fonction de  $(q_y, q_z; q_x = 0)$  (figure 5.1b) révèle que les pics de petite et moyenne échelles se sont transformés en stries bien définies. Cela s'explique simplement en notant que les îlots sont tous disposés sur un même plan, avec une périodicité selon  $q_x$  et  $q_y$ . Le plan d'îlots étant perpendiculaire à l'axe de  $q_z$ , il n'y a aucune dépendance en  $q_z$  en raison du terme  $\exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_m)$  dans le calcul de l'intensité. La distance entre ces stries dans l'espace réciproque donne les mêmes informations que pour la partie a) de la même figure.

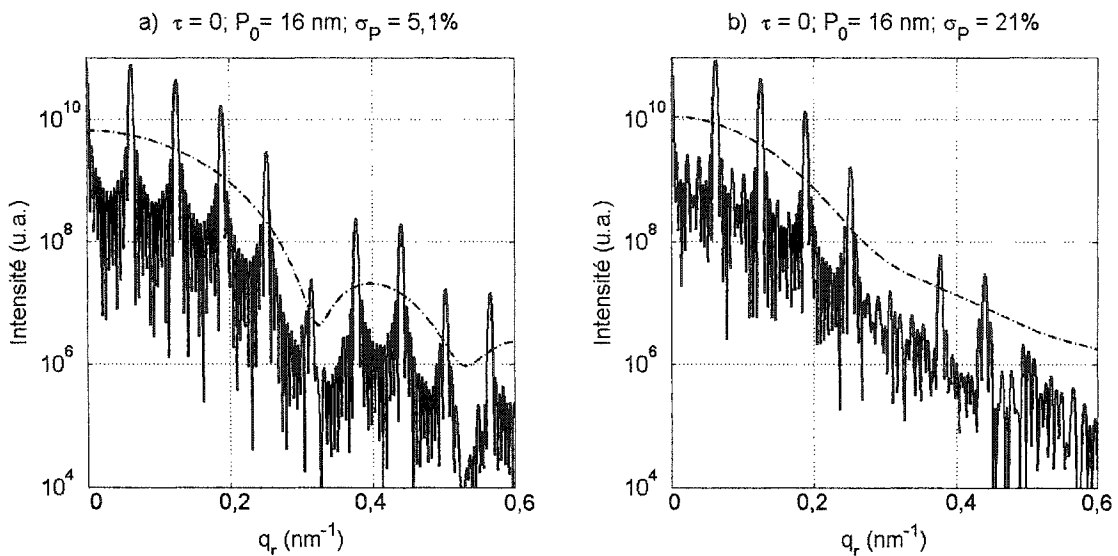
Sur ce graphique (figure 5.1b), la structure à grande échelle, correspondant à la signature d'un îlot unique, est toujours visible sous forme d'une mince tranchée profonde (voir flèche). Ce minimum permet

d'extraire le rayon de la base de l'îlot. Si l'on enlevait totalement la figure d'interférence, on obtiendrait les mêmes figures qu'à la section 4.1 (c'est-à-dire l'intensité diffusée en fonction de  $q_z$  et  $q_r$  pour un îlot unique).

### 5.1.2 Cohérence infinie et distribution de taille

Les réseaux analysés dans cette section sont de même type que dans la section précédente, sauf que cette fois-ci, la taille des îlots n'est plus uniforme mais présente une certaine distribution. Deux exemples de la diffusion par de tels réseaux sont présentés à la figure 5.3. Dans les deux cas, il s'agit d'un réseau de 144 îlots avec  $W = 100$  nm, la taille moyenne est de  $P_0 = 16$  nm et le rapport d'aspect est de 3. Les distributions de taille sont de  $\sigma_P = 5,1\%$  (graphique a) et de  $\sigma_P = 21\%$  (graphique b). Le patron précédent d'une structure à trois échelles demeure valable, montrant des pics provenant de la taille finie du réseau, de l'interférence des îlots et des îlots individuels. On ne voit cependant plus de minimum marqué de la structure à grande échelle (îlots) à cause de la distribution de taille des îlots. Sur la figure ci-dessous, la courbe en pointillé représente l'intensité diffusée quand on ne tient pas compte de la fonction d'interférence. Cette courbe est donc tout à fait similaire à celles de la figure 4.8. Lorsque la cohérence temporelle est infinie (ligne pleine), la fonction d'interférence masque encore plus la position du premier minimum de la structure à grande échelle. Celle-ci n'est visible que par une extinction d'un pic d'interférence (près de  $q_r \approx 0,3 \text{ nm}^{-1}$ ). On remarque également qu'une grande distribution de taille a tendance à amenuiser les pics d'interférence, et ce même si le réseau est parfait. La position d'un minimum dans le facteur de diffusion d'un îlot diminue de façon

importante la présence d'un pic d'interférence. Dans le cas d'une grande distribution de taille, les minima des facteurs de diffusion se retrouvent étalés (dans l'espace réciproque) et contribuent ainsi à provoquer l'extinction des pics d'interférence. Plus  $q_r$  est élevé, plus cet effet est visible car le décalage des minima entre des facteurs de diffusion de deux îlots de tailles différentes s'accroît avec  $q_r$ .



**Figure 5.3** Intensité diffusée par deux réseaux périodiques de 144 îlots en fonction du vecteur de diffusion. Comparaison entre cohérence infinie (ligne pleine) et l'intensité sans la fonction d'interférence (ligne pointillée) :  $W = 100$  nm et  $P_0 = 16$  nm. a) distribution de taille de 5,1%; b) distribution de taille de 21%.

Ainsi, on ne peut tirer de cette mesure qu'une valeur moyenne de la taille, sans connaître la dispersion de taille ni la forme. En effet, la dispersion de taille s'obtient par la forme que prend la courbe de l'intensité diffusée près de l'origine  $q_r = 0$  (figure 4.14). Ici malheureusement, l'extraction de cette information n'est pas disponible en raison de la fonction d'interférence qui la dissimule. C'est à ce stade-ci que la variation de la cohérence temporelle peut s'avérer utile.

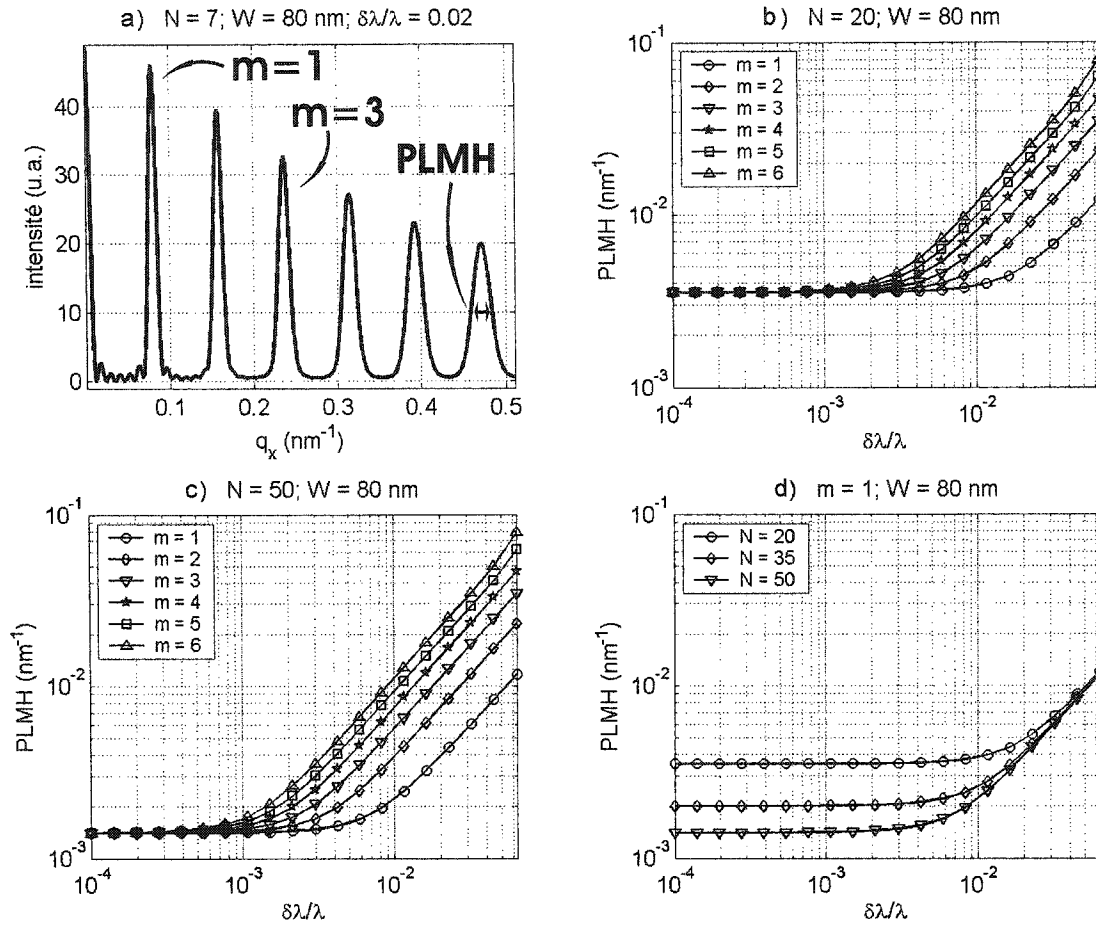
### 5.1.3 Variation de la cohérence

On vient de voir qu'on peut toujours extraire la valeur moyenne de la taille avec un réseau parfait à cohérence infinie, mais cela est quelque peu arbitraire car la fonction d'interférence masque grandement le signal des îlots. C'est pourquoi nous avons proposé de réduire la longueur de cohérence du faisceau incident. Ainsi, le volume où les ondes diffusées par les îlots s'additionnent de façon cohérente peut être réduit. On peut donc tirer des informations sur un volume de taille contrôlée. C'est ici que nous introduisons la notion de variation « progressive » de la cohérence temporelle.

L'utilisation d'un réseau unidimensionnel permet d'étudier simplement l'influence de la variation de la cohérence sur l'intensité diffusée. À partir de l'équation 3.25, on tire la fonction d'interférence d'un réseau périodique en une dimension, en tenant compte de la variation de la cohérence, qui s'écrit

$$I_{1D}^{pos}(q_x) = 2 \left( \sum_{l=0}^{N-1} (N-l) \cos(q_x W l) \exp\left(-\frac{1}{2} q_x^2 W^2 l^2 \left(\frac{\Delta\omega}{\omega_0}\right)^2\right) \right) - N \quad [5.4]$$

À partir de cette expression, on déduit que plus les îlots sont éloignés, moins leur contribution à l'interférence est importante en raison du terme de décroissance exponentielle. À la figure 5.4, nous avons tracé la PLMH des pics d'interférence pour les 6 premiers ordres de diffraction ( $m = 1, \dots, 6$ ) en fonction de  $\Delta\lambda/\lambda_0$ , la largeur spectrale de la source. Ces résultats proviennent directement du calcul de l'équation précédente, qui ne tient compte que de la fonction d'interférence (terme de positions des îlots), pour différentes valeurs de  $N$  et de  $\Delta\omega/\omega_0$ .



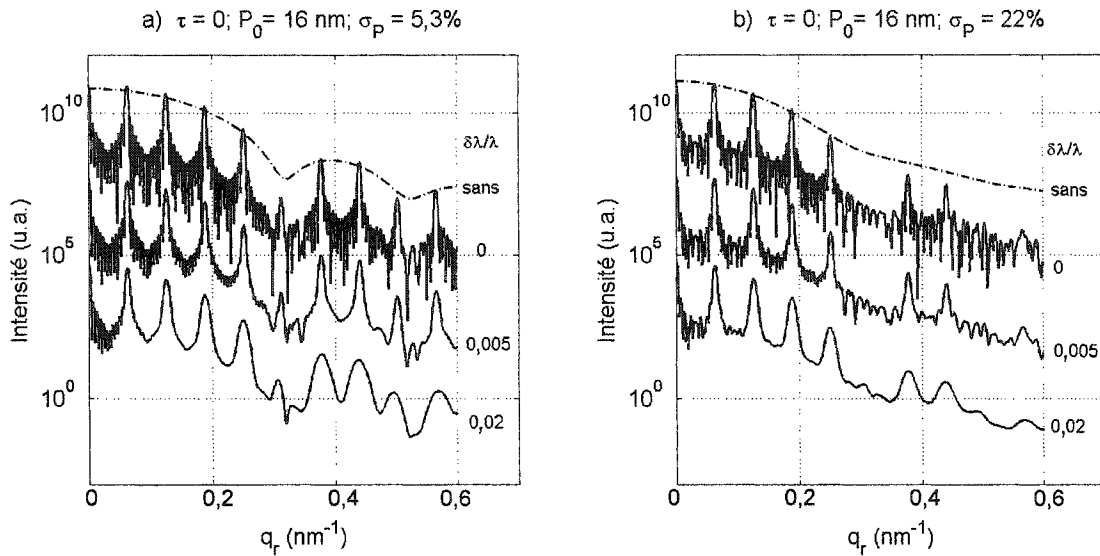
**Figure 5.4** Analyse de la fonction d'interférence en fonction de la variation de cohérence temporelle pour un réseau parfait unidimensionnel. a) intensité de la fonction d'interférence en fonction du vecteur de diffusion; b-c) variation de la pleine largeur à mi-hauteur (PLMH) en fonction de la largeur spectrale de la source, pour les 6 premiers ordres de diffraction pour  $N=20$  (b),  $N=50$  (c); d) variation de la pleine largeur à mi-hauteur (PLMH) en fonction de la largeur spectrale de la source, pour le premier ordre de diffraction pour trois tailles de réseau.

Sur cette figure, la partie a) montre une fonction d'interférence typique (pour  $N = 7$ ) et présente schématiquement les différentes quantités reliées à l'interprétation des autres graphiques de la même figure. Les parties b) et c) montrent la PLMH des 6 premiers pics de la fonction d'interférence en fonction de la largeur spectrale de la source, pour  $N = 20$  et  $50$ , respectivement. La première chose que l'on remarque sur

ces graphiques est qu'en dessous d'une certaine valeur de largeur spectrale (de l'ordre de  $10^{-3}$ ), la largeur des pics d'interférence est la même peu importe  $m$ , l'ordre des pics. Plus le réseau est grand ( $N$  grand), plus la « valeur-seuil » de  $\Delta\lambda/\lambda_0$  est petite. Autrement dit, la variation de la cohérence temporelle ne change plus rien lorsque la longueur de cohérence est plus grande que la largeur du réseau. La valeur minimale asymptotique de la PLMH des pics est la même que celle pour une cohérence infinie, soit  $5,7/NW$ . À l'autre extrémité des ces graphiques, on remarque que la valeur de la PLMH est indépendante de  $N$  pour les grandes valeurs de  $\Delta\lambda/\lambda_0$ . Ceci est particulièrement visible sur la partie d) de la figure où l'on montre la variation de la PLMH du premier ordre en fonction de la largeur spectrale pour  $N = 20, 35$  et  $50$ , où ces trois courbes convergent vers une même valeur. Ainsi, la taille du réseau n'est plus importante lorsque que la longueur de cohérence est plus petite que celui-ci. La dernière remarque est que plus l'ordre de diffraction est grand, plus la largeur du pic associé est grande. Cela provient simplement de la perte de cohérence qui affecte principalement les voisins éloignés qui voient leur diffusion s'additionner en intensité plutôt qu'en amplitude.

Maintenant, l'effet individuel des îlots est pris en compte dans les prochains calculs. En plus de la fonction d'interférence, le facteur de diffusion de chaque îlot est intégré à un réseau bidimensionnel. À la figure 5.5 sont présentées quelques simulations de l'intensité en fonction du vecteur de diffusion pour deux réseaux parfaits, mais dont la taille des îlots n'est pas uniforme. Les réseaux comportent 144 îlots dont le rayon moyen de la base est de  $P_0 = 16$  nm et la dispersion de taille est de  $\sigma_P = 5,3\%$  (graphique a) et  $\sigma_P = 22\%$  (graphique b). Chacune de ces simulations est réalisée pour trois valeurs de la largeur spectrale,

soit  $\Delta\lambda/\lambda_0 = 0, 0,005$  et  $0,02$ . Nous présentons aussi une simulation ne tenant pas compte de la fonction d'interférence. On remarque d'abord que les harmoniques donnant la distance entre plus proches voisins s'estompent de plus en plus rapidement à mesure que l'on diminue la cohérence temporelle, et ensuite que les structures de petite échelle (situées entre les pics intenses) disparaissent. Ceci est prévisible dans le sens où la variation de la cohérence touche le produit scalaire  $\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}$  (selon l'équation 3.26).



**Figure 5.5** Intensité diffusée par deux réseaux parfaits de 12x12 îlots en fonction du vecteur de diffusion pour trois valeurs de largeur spectrale de la source, soient  $\Delta\lambda/\lambda_0 = 0, 0,005$  et  $0,02$ , comparées à la diffusion sans la fonction d'interférence.  $W = 100$  nm et  $P_0 = 16$  nm. a) distribution de taille de 5,3%; b) distribution de taille de 22%.

Les structures qui ont de grandes distances caractéristiques sont affectées pour de petites valeurs de  $\mathbf{q}$ , alors que celles qui ont de petites distances caractéristiques ont des effets visibles à plus grandes valeurs de  $\mathbf{q}$ . Ce raisonnement a déjà été formulé pour un réseau unidimensionnel. L'observation notée à la figure 5.3 en ce qui a trait à la dispersion de taille est toujours valable dans le cas de la figure 5.5.

Cette fois-ci, la variation de la cohérence n'apporte rien de nouveau, mais rend simplement plus visible l'impact de la distribution de taille qui diminue l'intensité des pics d'interférence proche des minima de l'intensité provenant du facteur de diffusion. On peut se demander si cette observation peut aider à quantifier la distribution de taille des îlots. Il faut cependant garder à l'esprit que le cas du réseau parfait n'est qu'un cas académique. L'effet du cas plus réaliste du réseau avec ordre à longue portée est traité à la section suivante.

## **5.2 Réseaux avec ordre à longue portée**

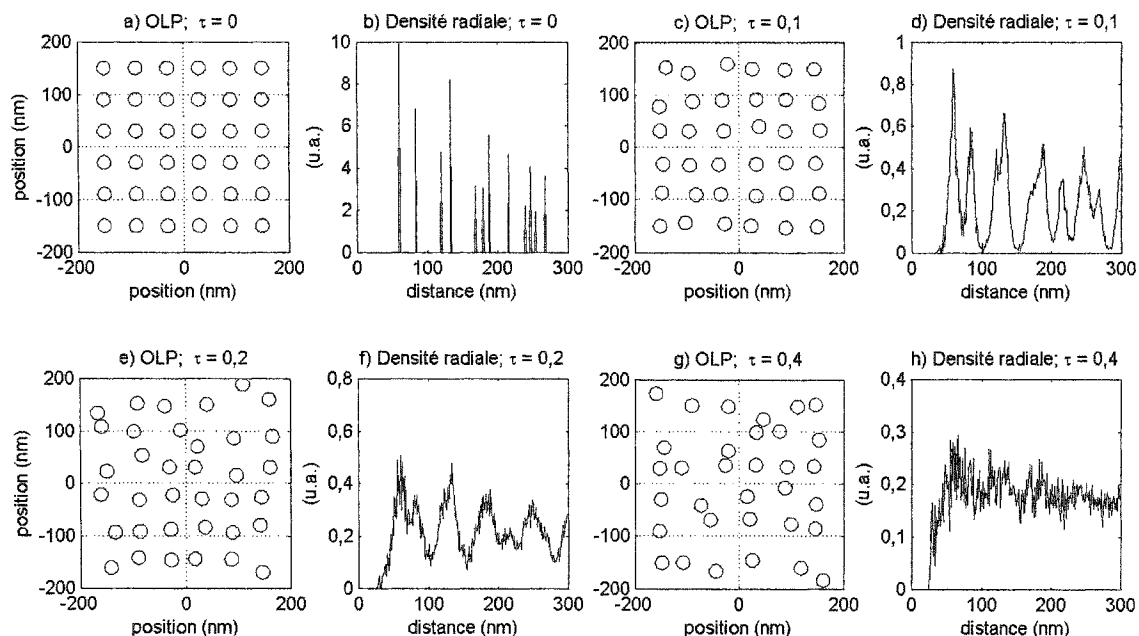
L'analyse du réseau parfait introduit à la section précédente a permis d'établir une procédure d'extraction de certaines valeurs telles que la taille moyenne des îlots et la distance entre les îlots PPV à partir des courbes de  $I(q_r)$  et également de déterminer l'influence de la variation de la cohérence temporelle sur la fonction d'interférence. Dans cette section, le réseau avec ordre à grande portée est analysé. Sa génération a été présentée au chapitre 3. Il découle directement du réseau parfait auquel est ajouté un paramètre de désordre  $\tau$ . Dans un premier temps, quelques exemples de réseaux sont montrés, ensuite l'intensité diffusée par ceux-ci est simulée et finalement, les paramètres caractéristiques sont extraits de ces simulations.

### **5.2.1 Génération des réseaux**

L'algorithme de la génération de réseaux à longue portée a été présenté à la section 3.6.1. Pour ce genre de réseau, trois paramètres sont importants : a) la structure du réseau cadre (carré, hexagonal, etc.), b) la longueur d'arête nominale  $W$  et c) le déplacement moyen autour de la position périodique  $\tau$ . Les deux premiers paramètres



découlent du réseau parfait alors que la troisième est typique du réseau OLP.

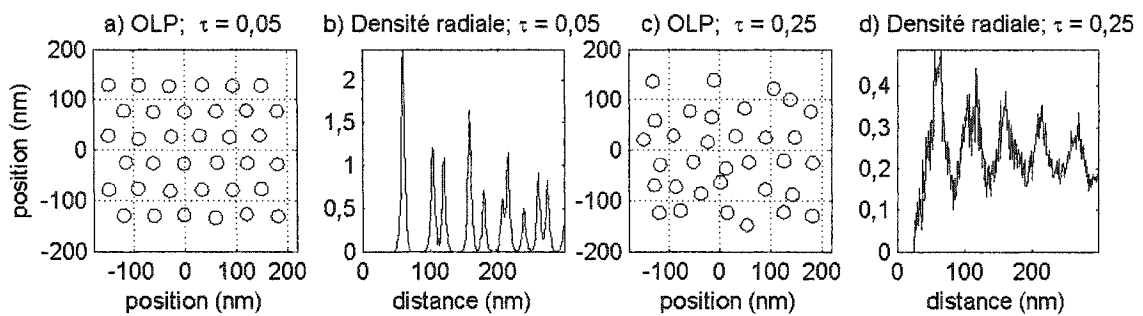


**Figure 5.6 Exemples de réseaux avec ordre à longue portée pour quatre valeurs de désordre, avec leur fonction de densité radiale associée. a-b)  $W = 60$  nm et  $\tau = 0$ ; c-d)  $W = 60$  nm et  $\tau = 0,1$ ; e-f)  $W = 60$  nm et  $\tau = 0,2$ ; g-h)  $W = 60$  nm et  $\tau = 0,4$ . Les fonctions de densité radiale sont calculées pour des réseaux de 625 îlots.**

Quelques exemples de réseaux carrés avec ces différents paramètres structuraux, ainsi que leur fonction de densité radiale correspondante sont présentés pour les valeurs  $\tau = 0, 0,1, 0,2$  et  $0,4$  (figure 5.6). Pour les faibles valeurs de  $\tau$ , on remarque que les pics associés aux distances caractéristiques des PPV d'un réseau carré ( $W, \sqrt{2}W, 2W, \sqrt{5}W, \dots$ ) demeurent visibles sur les graphiques de densité radiale. Ces pics s'élargissent au fur et à mesure que  $\tau$  croît jusqu'à une valeur de l'ordre 0,12 pour ensuite se recouper. À partir de  $\tau > 0,35$ , les pics de la densité radiale se sont presque tous estompés, de sorte que seuls ceux regroupés autour de  $W, \sqrt{5}W$  restent visibles. Pour les grandes valeurs de  $\tau$ , on rappelle que chaque réseau est analysé par une

fonction qui « enlève » les îlots qui se chevauchent, ce qui a pour conséquence de modifier les statistiques de la densité radiale.

Deux exemples de réseaux hexagonaux sont également présentés (figure 5.7). Les distances caractéristiques des PPV sont alors de  $W, \sqrt{3}W, 2W, \sqrt{7}W, \dots$ . Les observations sur le comportement en fonction de  $\tau$  sont semblables à celles du réseau carré.



**Figure 5.7 Exemples de réseaux hexagonaux avec ordre à longue portée pour deux valeurs de désordre, avec leur fonction de densité radiale associée.**

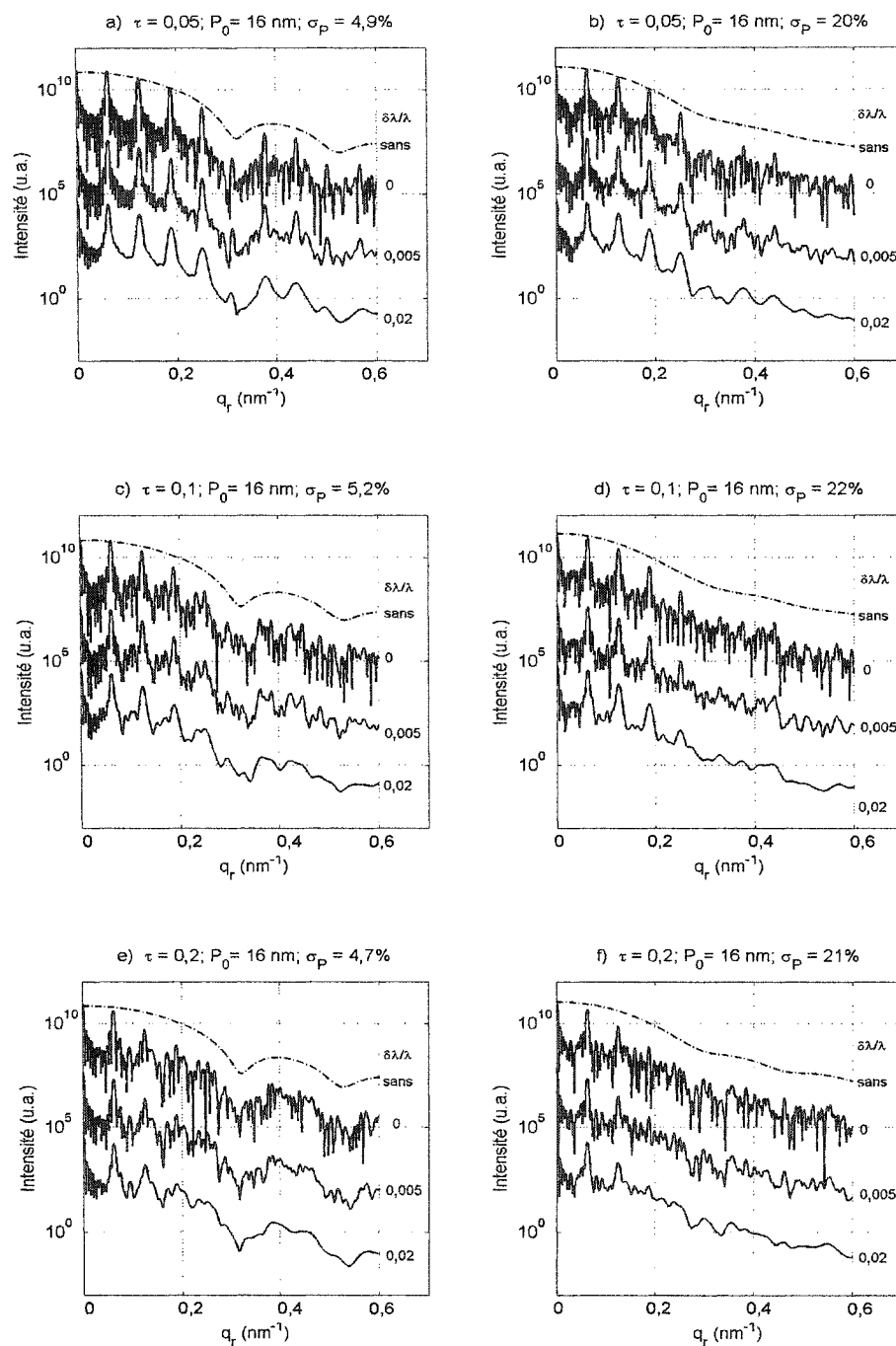
**a-b)  $W = 60$  nm et  $\tau = 0,5$ ; c-d)  $W = 60$  nm et  $\tau = 0,25$ . Les fonctions de densité radiale sont calculées pour des réseaux de 625 îlots.**

À partir des graphiques de densité radiale, il est difficile de faire la distinction entre un réseau carré et un réseau hexagonal pour de grandes valeurs de  $\tau$  ( $> 0,25$ ). En effet, les pics ont tendance à se regrouper en s'élargissant et par conséquent, on a l'impression d'avoir un effet d'harmoniques. Cependant, en raison du regroupement des pics, on remarque que pour un réseau carré à grand  $\tau$ , le premier pic est plus large que le second, alors que pour un réseau hexagonal, c'est l'inverse qui se produit.

### 5.2.2 Simulations à cohérence variable

Dans le cas d'un réseau parfait, la variation de la cohérence temporelle a pour principales conséquences d'élargir les pics

d'interférence au fur et à mesure que leur ordre augmente et également de faire disparaître rapidement la structure à petite échelle avec  $q_r$  croissant. Cette section présente les simulations de la diffusion à cohérence variable pour les réseaux d'îlots OLP, afin de connaître le potentiel de caractérisation de ce type de réseau. La figure 5.8 a comme but de montrer les effets des différents paramètres de simulation de façon qualitative, une analyse plus approfondie sera présentée par la suite. La figure montre quelques simulations de réseaux de 144 îlots OLP pour  $\tau = 0,05, 0,1$  et  $0,2$ ; deux valeurs de distributions de taille ont été utilisées, soient  $\sigma_P \approx 5\%$  et  $\approx 20\%$ . Chacune des simulations a été calculée pour trois valeurs de la cohérence temporelle, soient  $\Delta\lambda/\lambda_0 = 0, 0,005$  et  $0,02$ . À première vue, la variation de  $\tau$  a comme conséquence de provoquer l'estompement des pics d'interférence d'ordre élevé (moyenne échelle), mais ne semble pas affecter la PLMH de ces pics. La structure à grande échelle ne semble pas non plus être affectée par la variation du paramètre de désordre. Cette structure est visible seulement pour la petite distribution de taille, sous la forme d'un minimum à  $q_r \approx 0,3 \text{ nm}^{-1}$ , qui permet de déterminer la taille moyenne des îlots. Les calculs pour les deux distributions de taille font ressortir la dépendance entre les pics d'interférence et la taille des îlots, comme cela a été remarqué à la section précédente. Une grande dispersion de taille accélère la disparition des pics pour  $q_r$  croissant.

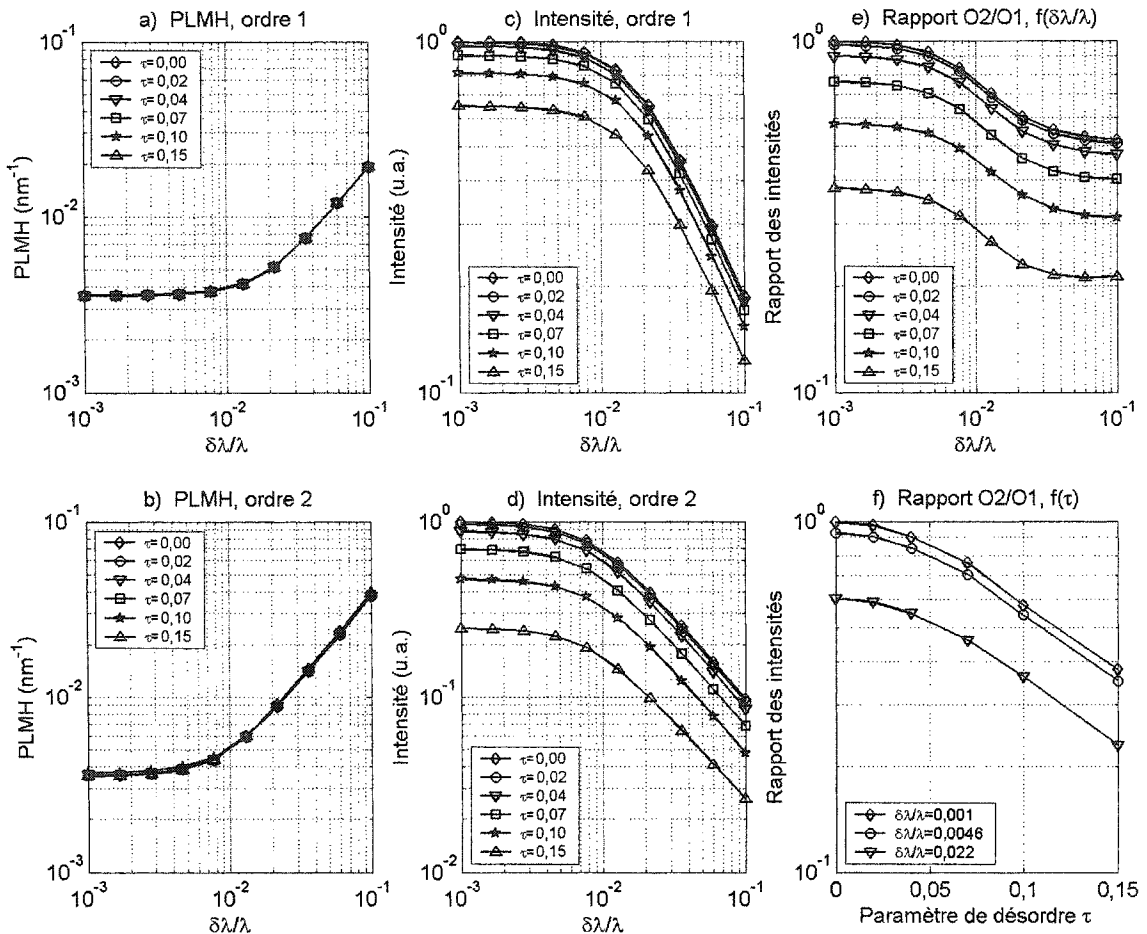


**Figure 5.8** Intensité diffusée par six réseaux OLP de 12x12 îlots en fonction du vecteur de diffusion pour trois valeurs de largeur spectrale de la source, soient  $\Delta\lambda/\lambda_0 = 0, 0,005$  et  $0,02$  et l'intensité calculée sans la fonction d'interférence (pointillé).  $W = 100$  nm et  $P_0 = 16$  nm. a)  $\tau = 0,05$  et distribution de taille ( $\sigma_P$ ) de 4,9%; b)  $\tau = 0,05$  et  $\sigma_P = 20\%$ ; c)  $\tau = 0,1$  et  $\sigma_P = 5,2\%$ ; d)  $\tau = 0,1$  et  $\sigma_P = 22\%$ ; e)  $\tau = 0,2$  et  $\sigma_P = 4,7\%$ ; f)  $\tau = 0,2$  et  $\sigma_P = 21\%$ .

La variation de la cohérence, quant à elle, a les mêmes effets que pour un réseau parfait, c'est-à-dire de faire disparaître les structures de petite échelle qui sont associées à la taille finie du réseau. Ceci est parce que la longueur de cohérence devient plus petite que le réseau. Cela a l'avantage de « lisser » cette courbe et de faire ressortir la forme de l'enveloppe qui est due à la diffusion des îlots individuels. L'autre effet de la variation de la cohérence est que la diminution de l'intensité des pics de moyenne échelle est de plus en plus marquée plus l'ordre de ces pics est élevé. Cette observation ressemble beaucoup à l'effet du paramètre de désordre et ce « couplage » éventuel est étudié directement au niveau de la fonction d'interférence.

La figure 5.9 compile les effets de ces deux paramètres, c'est-à-dire le désordre et la cohérence temporelle. Les calculs ont été réalisés pour un réseau carré de 400 îlots avec  $W = 80$  nm. Les graphiques a) et b) montrent la variation de la PLMH des pics de premier ordre et second ordre, respectivement, en fonction de la largeur spectrale de la source, pour six valeurs du paramètre de désordre  $\tau$ . Comme il a été noté dans la section précédente, la PLMH est indépendante de la longueur de cohérence lorsque celle-ci est grande, en raison de la taille finie du réseau utilisé. Lorsque la longueur de cohérence est petite, on note alors un élargissement des pics et cet élargissement est plus important pour les grands ordres de diffraction. Lorsqu'on varie  $\tau$  pour un réseau OLP, on remarque que ces courbes se superposent, indiquant que ce paramètre ne peut être déduit à partir de la PLMH. Les graphiques c) et d) montrent respectivement la variation de l'intensité du pic du premier ordre et du deuxième ordre. On remarque que plus la largeur spectrale de la source est grande, plus l'intensité des pics diminue. Ceci est particulièrement accentué à partir de  $\Delta\lambda/\lambda \approx 0,01$ , tant pour le premier

ordre que pour le deuxième. Cependant, les plages de variation de l'intensité de ces deux ordres ne sont pas les mêmes lorsque  $\tau$  change.



**Figure 5.9** Analyse de la fonction d'interférence en fonction de la variation de cohérence temporelle. a) variation de la PLMH du pic d'ordre 1 en fonction de la largeur spectrale; b) variation de la PLMH du pic d'ordre 2 en fonction de la largeur spectrale; c) variation de l'intensité du pic d'ordre 1 en fonction de la largeur spectrale; d) variation de l'intensité du pic d'ordre 2 en fonction de la largeur spectrale; e) rapport de l'intensité des pics d'ordre 1 et 2 en fonction de la largeur spectrale; f) rapport de l'intensité des pics d'ordre 1 et 2 en fonction du paramètre de désordre.

Étant donné que  $\tau$  est fixé pour un échantillon, le ratio de ces deux intensités permet de révéler quantitativement l'effet de  $\tau$  et ainsi de séparer les effets de ce paramètre. Le graphique e) montre le rapport des intensités des deux premiers pics d'interférence en fonction de la largeur

spectrale et le graphique f) montre les mêmes informations, mais en fonction du paramètre de désordre. On remarque d'abord que pour le réseau parfait ( $\tau = 0$ ), le rapport des intensités dépend grandement de la largeur spectrale. Plus le désordre augmente, plus ce rapport diminue et tend vers une valeur indépendante de  $\Delta\lambda/\lambda$  quand  $\Delta\lambda/\lambda$  est grand. Ainsi, le rapport des intensités pour une valeur de  $\Delta\lambda/\lambda$  permet de déduire le paramètre de désordre, mais deux ou trois mesures sont souhaitables pour plus de certitude.

Il est important de noter que les résultats de la figure précédente ont été obtenus en posant que le facteur de diffusion des îlots est constant ( $D(\mathbf{q}) = 1$ ), c'est-à-dire que l'on évalue uniquement la fonction d'interférence. Pour avoir des valeurs plus précises des rapports d'intensité des pics de premier et de deuxième ordre, il faut tenir compte de la décroissance causée par la diffusion des îlots individuellement. Cependant, la décroissance due à ce facteur est très lente pour les valeurs de  $\mathbf{q}$  qui sont en jeu. L'importance de cette décroissance dépend de la position du premier minimum du facteur de diffusion (taille moyenne des îlots) et de la position des deux premiers pics d'interférence (distance moyenne entre les îlots premiers voisins). Par exemple, pour un réseau parfait le rapport des intensités des deux premiers pics de la fonction d'interférence est de 1. Si on prend un réseau parfait avec  $W = 100$  nm contenant des îlots en dôme dont la taille moyenne est de  $P = 15$  nm, le rapport de ces intensités en tenant compte du facteur de diffusion est de 0,63. Cependant, ce rapport théorique est facilement déterminé par simulation numérique une fois que l'on connaît la taille moyenne des îlots.

### 5.3 Réseaux avec ordre à moyenne portée

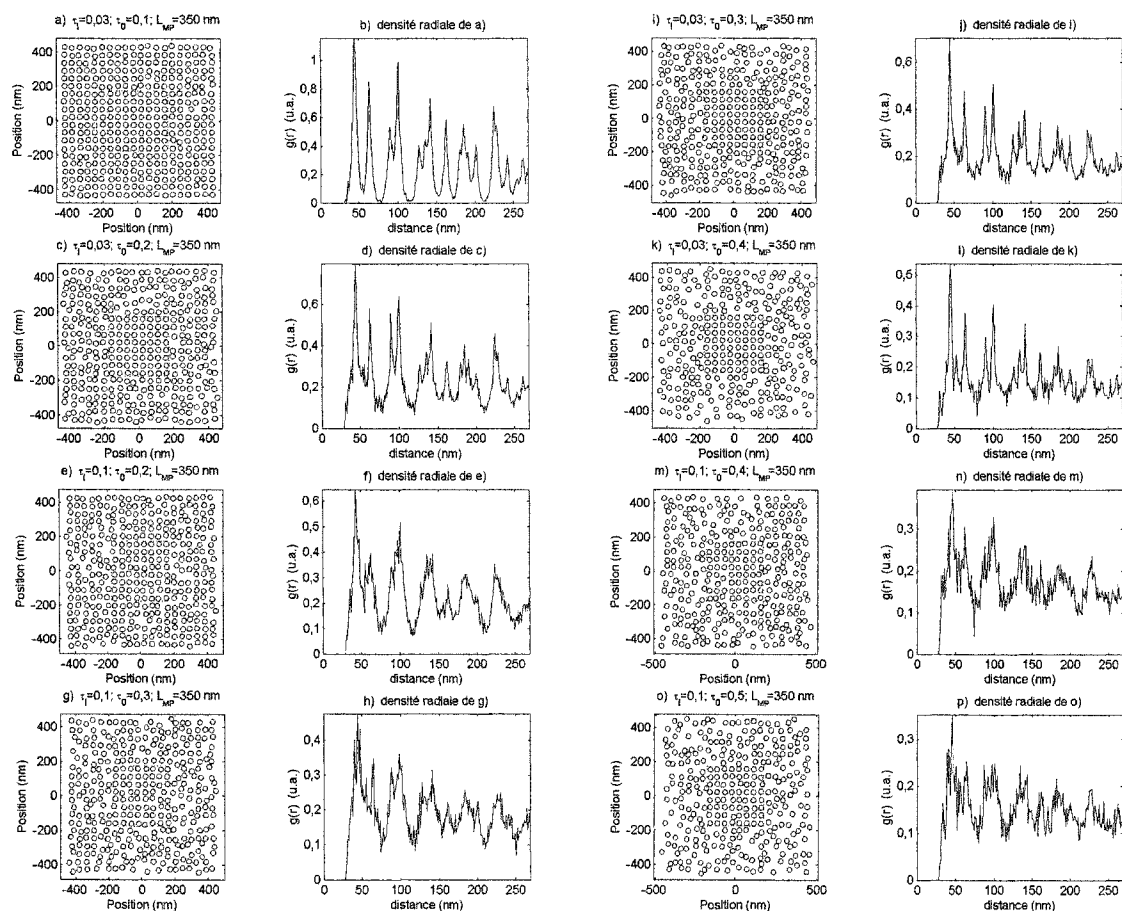
Les réseaux qui sont étudiés dans cette section introduisent une autre application du concept de taille finie. En effet, les réseaux avec ordre à longue portée étaient définis de façon « infinie » dans ce sens qu'ils sont limités dans leurs extensions spatiales que pour des considérations pratiques dues à la complexité des calculs de la diffusion. Les réseaux avec ordre à moyenne portée (OMP) comportent une zone de taille finie à l'intérieur d'un réseau de taille finie et dont les propriétés sont différentes. Ce type de configuration apparaît souvent comme un réseau OLP irrégulier.

#### 5.3.1 Génération des réseaux

La génération d'un réseau OMP implique la détermination de deux ensembles de statistique : celui pour les régions mieux « organisées » et celui pour les régions environnantes. La méthode pour les générer a été présentée au chapitre 3 et quelques exemples sont montrés à la figure 5.10. Les valeurs caractéristiques sont la taille de la zone ordonnée  $L_{MP}$ , ainsi que les paramètres de désordre interne et externe  $\tau_1$  et  $\tau_0$  (avec  $\tau_1 < \tau_0$ ). Dans tous les cas de la figure,  $L_{MP}$  est gardé constant à 350 nm et les paramètres de désordre ont des valeurs comprises entre 0,03 et 0,5. Pour chaque réseau montré, la courbe de densité radiale a été calculée. Sur ces courbes, la première chose qui frappe est la prédominance du premier pic de plus proche voisin (PPV). Également, on peut voir jusqu'au quatrième pic de PPV, et ce même pour des valeurs de  $\tau_0 = 0,5$ . On rappelle que pour le réseau OLP, la densité radiale pour un réseau avec  $\tau = 0,4$  montre plutôt de petites bosses que des pics définis (figure 5.6). De plus, pour les réseaux OMP avec  $\tau_1 = 0,03$ , les premiers pics de PPV ont une base étalée alors que leur



sommet est plutôt effilé. Ceci peut être considéré comme une signature de l'ordre à moyenne portée, dans le sens où l'ordre « à plus de trois voisins » est faible quand le désordre externe devient grand par rapport au désordre interne. Cette affirmation est valable seulement dans la limite où la taille de la zone ordonnée a été gardée constante sur cette dernière figure.



**Figure 5.10 Exemples de réseaux de ~400 îlots avec ordre à moyenne portée, avec leur fonction de densité radiale associée.  $L_{MP} = 350$  nm;  $\tau_1 = 0,03$  et  $0,1$ ;  $0,1 < \tau_0 < 0,5$  avec  $\tau_1 < \tau_0$ .**

### 5.3.2 Simulations à cohérence variable

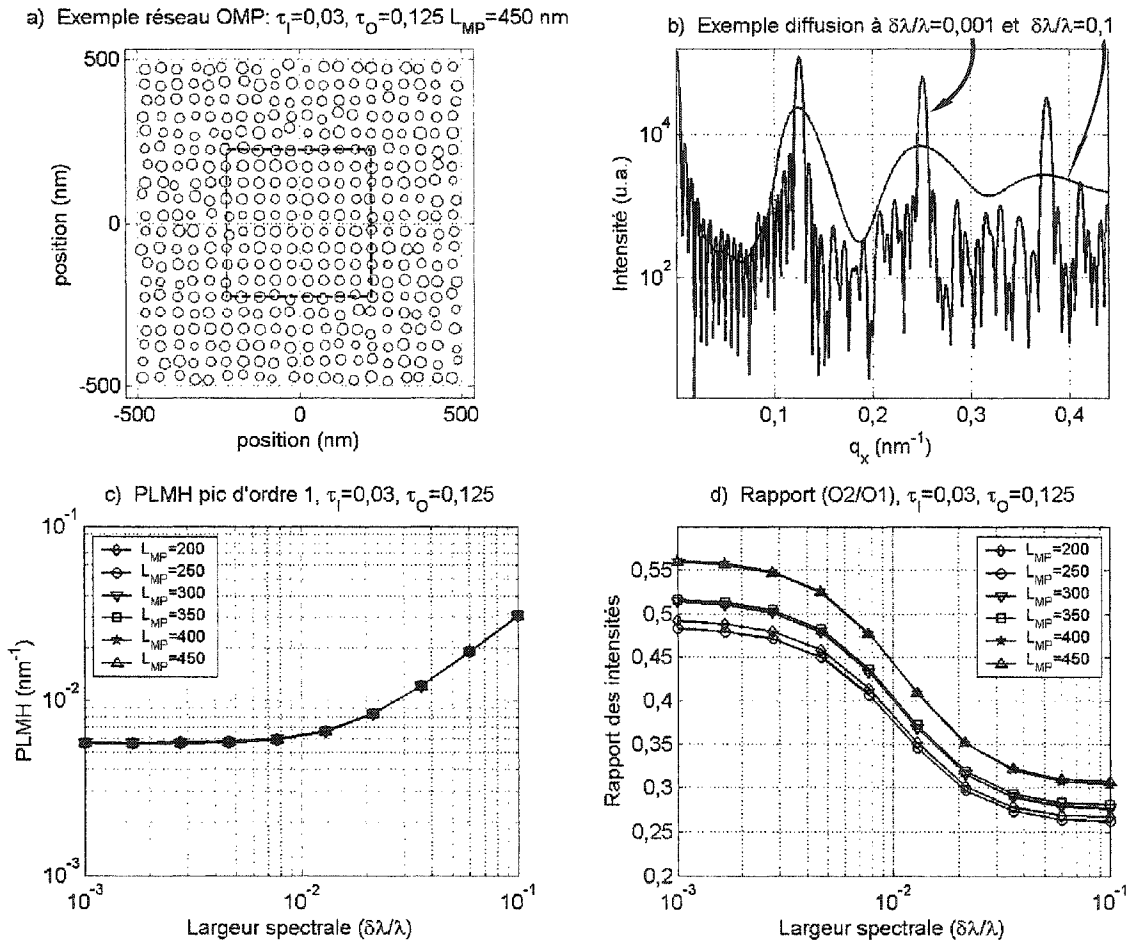
Dans cette section, les mêmes types de simulation que pour le réseau OLP sont présentées, c'est-à-dire que la largeur spectrale de la

source (cohérence temporelle) a été variée de façon systématique entre  $10^{-3}$  et  $10^{-1}$ . Comme auparavant, les motivations principales sont d'abord de pouvoir distinguer les caractéristiques de la diffusion des réseaux OMP d'avec celles des réseaux OLP. Par la suite, on veut extraire les paramètres structuraux des réseaux OMP à partir des simulations de l'intensité diffusée.

Pour ce faire, deux hypothèses de départ ont été envisagées. Dans un premier temps, la présence d'une zone ordonnée de taille finie devrait être particulièrement visible lorsque la longueur de cohérence approche la taille de cette zone. Dans un deuxième temps, dans le cas de réseaux avec un désordre externe élevé ( $\tau_0 > 0,15$ ), les simulations numériques à petite longueur de cohérence devraient tendre à révéler la zone ordonnée seulement (taille et désordre interne).

La figure 5.11 montre les résultats de calculs pour examiner la première hypothèse, c'est-à-dire la variation de la longueur de cohérence par rapport à la variation de la taille finie  $L_{MP}$ . Il est important ici de noter que plusieurs réseaux générés avec les mêmes paramètres statistiques  $\tau_1$ ,  $\tau_0$  et  $L_{MP}$  montraient des courbes simulées d'intensité diffusée quelque peu différentes entre elles. Pour cette raison, chaque courbe d'intensité simulée présentée à la figure 5.11 est la moyenne de la diffusion de cinq réseaux homogènes statistiquement (générés à partir des mêmes paramètres). Sur la partie a) de cette figure, un exemple de réseau simulé est montré; la zone ordonnée est indiquée par la démarcation pointillée. Les paramètres de ce réseau sont  $\tau_1 = 0,03$ ,  $\tau_0 = 0,125$  et  $L_{MP} = 450$  nm. Sur la partie b), un exemple de courbe de diffusion est montré pour les valeurs extrêmes utilisées de la largeur spectrale ( $10^{-3}$  et  $10^{-1}$ ). Les valeurs extraites de ces courbes sont la

PLMH des deux premiers pics, ainsi que leurs intensités relatives. Le pic de troisième ordre, ainsi que ceux d'ordres supérieurs, ne sont pas utilisés car ils n'ont plus de PLMH aux faibles valeurs de cohérence, c'est-à-dire que leur intensité est moins de deux fois celle du niveau moyen environnant le pic en question.

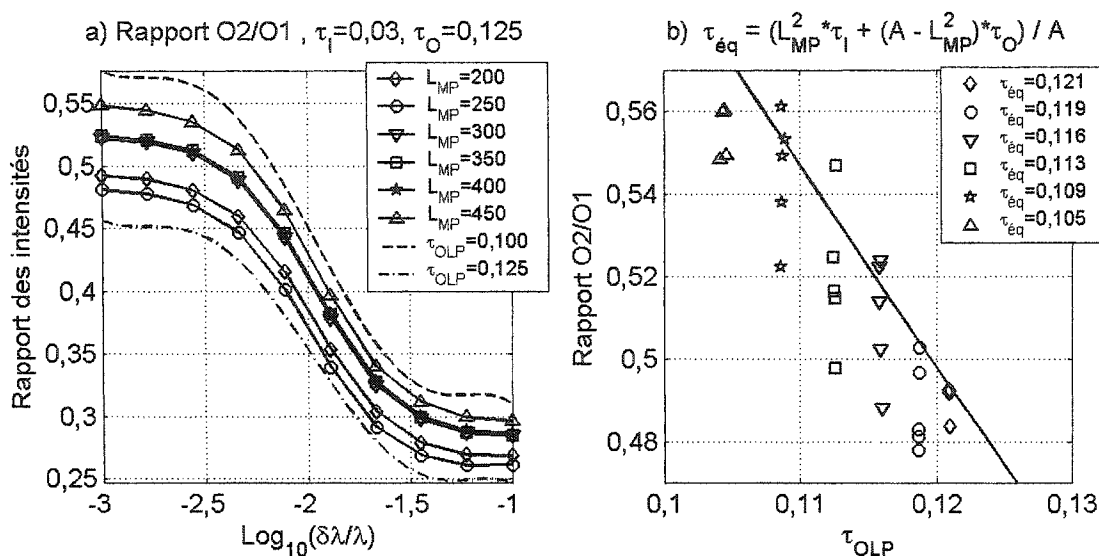


**Figure 5.11** Analyse de la fonction d'interférence en fonction de la variation de cohérence temporelle pour des réseaux OMP dans le cadre de la première hypothèse. a) exemple d'un réseau typique avec  $\tau_I = 0,03$ ,  $\tau_O = 0,125$  et  $L_{MP} = 450$  nm; b) fonction d'interférence du réseau en a) pour  $\Delta\lambda/\lambda = 0,001$  et  $0,1$ ; c) PLMH du pic de premier ordre de la fonction d'interférence en fonction de la largeur spectrale, pour six valeurs de la taille de la zone ordonnée; d) rapport des intensités des deux premiers pics d'interférence en fonction de la largeur spectrale.

Dans la partie c), la PLMH du pic de premier ordre est tracé en fonction de la largeur spectrale, pour six tailles différentes de la zone ordonnée. On constate que cette série de simulations donne la même information que les simulations similaires basées sur les réseaux OLP, c'est-à-dire que la variation de la PLMH en fonction de la cohérence est insensible au désordre et à la taille de la zone ordonnée, car toutes les courbes se superposent et il n'est pas possible de les dissocier. L'étape suivante a donc été de regarder la variation du rapport des intensités des pics d'ordre un et deux (partie d), toujours en fonction de la largeur spectrale. Cette fois-ci, la variation de la cohérence permet bien de distinguer les différents réseaux OMP entre eux, mais pas de les discerner des réseaux OLP. L'explication de cette constatation se trouve à la figure 5.12. En effet, lorsque l'on superpose les courbes précédentes (figure 5.11d) aux résultats des mêmes simulations pour des réseaux OLP, on remarque que les courbes se confondent, à condition de choisir un  $\tau_{OLP}$  approprié. Les deux courbes en pointillés de la partie a) de la figure ci-dessous correspondent à la variation du rapport de l'intensité des pics d'ordre 1 et 2 pour des réseaux OLP avec  $\tau_{OLP} = 0,1$  et  $0,125$ . On remarque que toutes les courbes des réseaux OMP se situent entre celles de ces réseaux OLP. Plus  $L_{MP}$  est petit, plus la courbe associée se rapproche de celle de  $\tau_{OLP} = 0,125$ . Cette constatation suggère en première approximation, pour chaque réseau OMP, un paramètre de désordre équivalent à un réseau OLP de la forme :

$$\tau_{eq} = \frac{\tau_I L_{MP}^2 + (A - L_{MP}^2) \tau_O}{A} \quad [5.5]$$

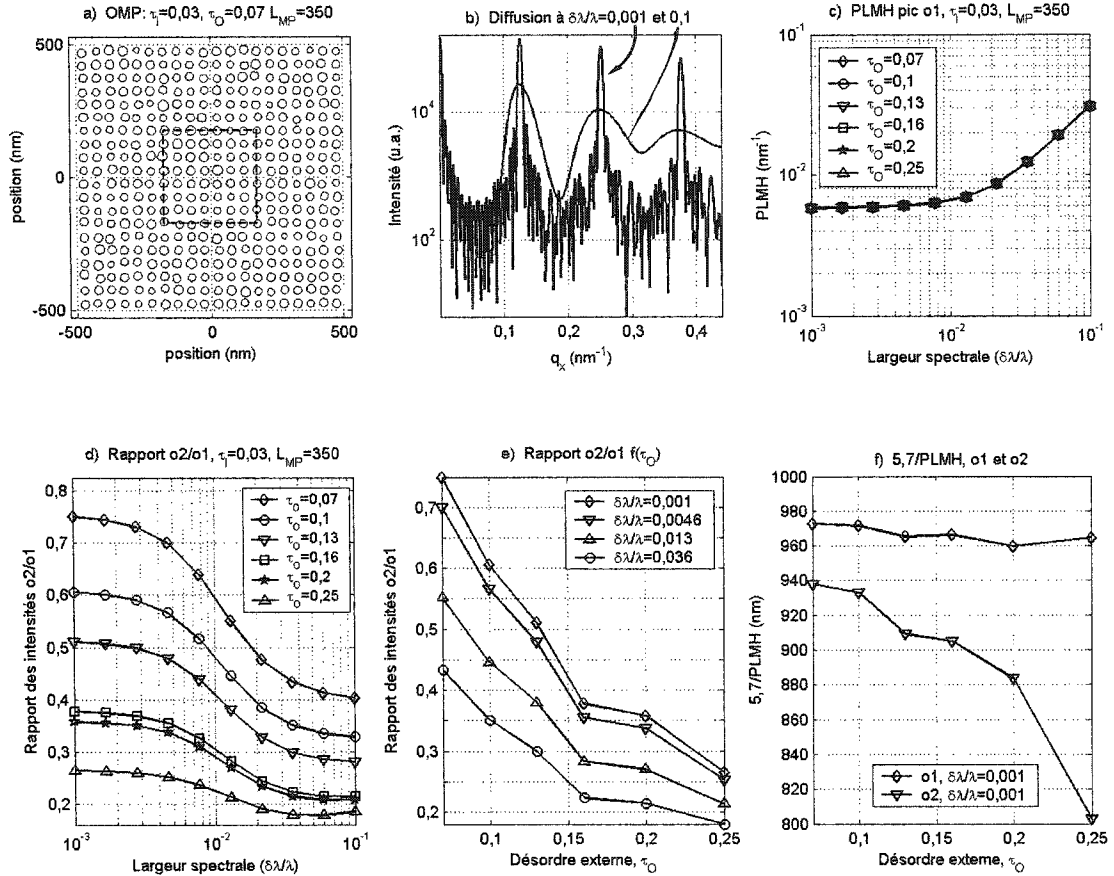
où  $\tau_I$ ,  $\tau_O$  et  $L_{MP}$  sont les paramètres du réseau OMP déjà définis et  $A$  est l'aire totale du réseau OMP.



**Figure 5.12** Rapport des intensités des pics d'ordre 1 et 2 de la diffusion de réseaux avec OMP. a) en fonction de la largeur spectrale, pour six valeurs de  $L_{\text{MP}}$ , comparaison avec deux réseaux OLP; b) en fonction du paramètre de désordre  $\tau_{\text{OLP}}$ , pour cinq simulations numériques homogènes, comparaison avec le  $\tau_{\text{éq}}$ .

La partie b) de la même figure (figure 5.12) montre l'étendue de la validité de cette approximation. Le trait plein de ce graphique correspond au rapport des intensités des deux premiers pics d'interférence pour un réseau OLP en fonction du paramètre de désordre à largeur spectrale nulle de la source (rayonnement monochromatique). Les pictogrammes correspondent aux  $\tau_{\text{éq}}$  des réseaux OMP calculés pour plusieurs simulations numériques ayant les mêmes paramètres statistiques. Ces pictogrammes suivent relativement bien le trait plein, indiquant que l'approximation est vraisemblable, bien qu'elle sous-estime légèrement le  $\tau_{\text{éq}}$  par rapport au  $\tau_{\text{OLP}}$ . En bref, cela permet donc une caractérisation relative d'un réseau OMP, mais pas la distinction avec un réseau OLP. Ceci infirme donc en partie la première hypothèse, dans le sens où la variation de la cohérence temporelle permet d'extraire des informations directes sur la taille de la zone ordonnée seulement si

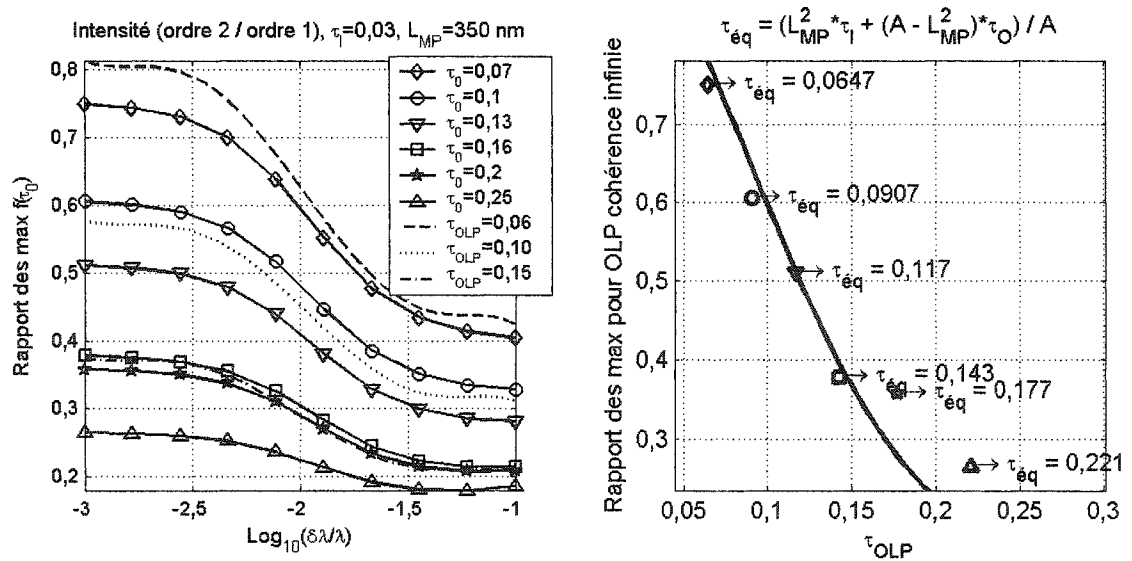
l'on sait que l'on n'a pas d'ordre à longue portée. En pratique, ça ne devrait jamais être le cas.



**Figure 5.13** Analyse de la fonction d'interférence en fonction de la variation de cohérence temporelle pour des réseaux OMP dans le cadre de la deuxième hypothèse. a) exemple d'un réseau typique avec  $\tau_I = 0,03$ ,  $\tau_O = 0,07$  et  $L_{MP} = 350$  nm; b) fonction d'interférence du réseau en a) pour  $\Delta\lambda/\lambda = 0,001$  et  $0,1$ ; c) PLMH du pic de premier ordre de la fonction d'interférence en fonction de la largeur spectrale, pour six valeurs de la taille de la zone ordonnée; d) rapport des intensités des deux premiers pics d'interférence en fonction de la largeur spectrale; e) rapport des intensités des deux premiers pics d'interférence en fonction du paramètre de désordre externe; f) inverse de la PLMH des deux premiers pics d'interférence en fonction du paramètre de désordre externe.

La deuxième hypothèse propose que lorsque le désordre externe  $\tau_O$  est élevé par rapport au désordre interne, les paramètres extraits des simulations numériques seront ceux de la zone ordonnée. La figure 5.13

montre les résultats de calculs faits pour examiner cette deuxième hypothèse. Sur cette figure, les parties a), b) et c) apportent les mêmes informations que les graphiques correspondants de la figure 5.11. Dans la partie d), on constate que la variation de cohérence permet toujours de faire la distinction des réseaux OMP entre eux. Ici encore cependant, on ne peut distinguer un réseau OMP d'un réseau OLP avec un  $\tau_{eq}$  calculé à partir de l'équation 5.5. La partie e) montre la même information que la partie d), mais cette fois-ci, le rapport des intensités est tracé en fonction du désordre. Comme le montre la figure suivante (Figure 5.14), les courbes des réseaux OMP se confondent avec celles des mêmes simulations pour des réseaux OLP avec  $\tau_{OLP} = 0,06, 0,10$  et  $0,15$ . Sur le graphique de droite de la figure 5.14, on voit que le calcul du  $\tau_{eq}$  est très valable pour  $\tau_0 < 0,2$ . Quand cette valeur est dépassée, le calcul de  $\tau_{eq}$  tend à surestimer légèrement le désordre réel du réseau OMP.

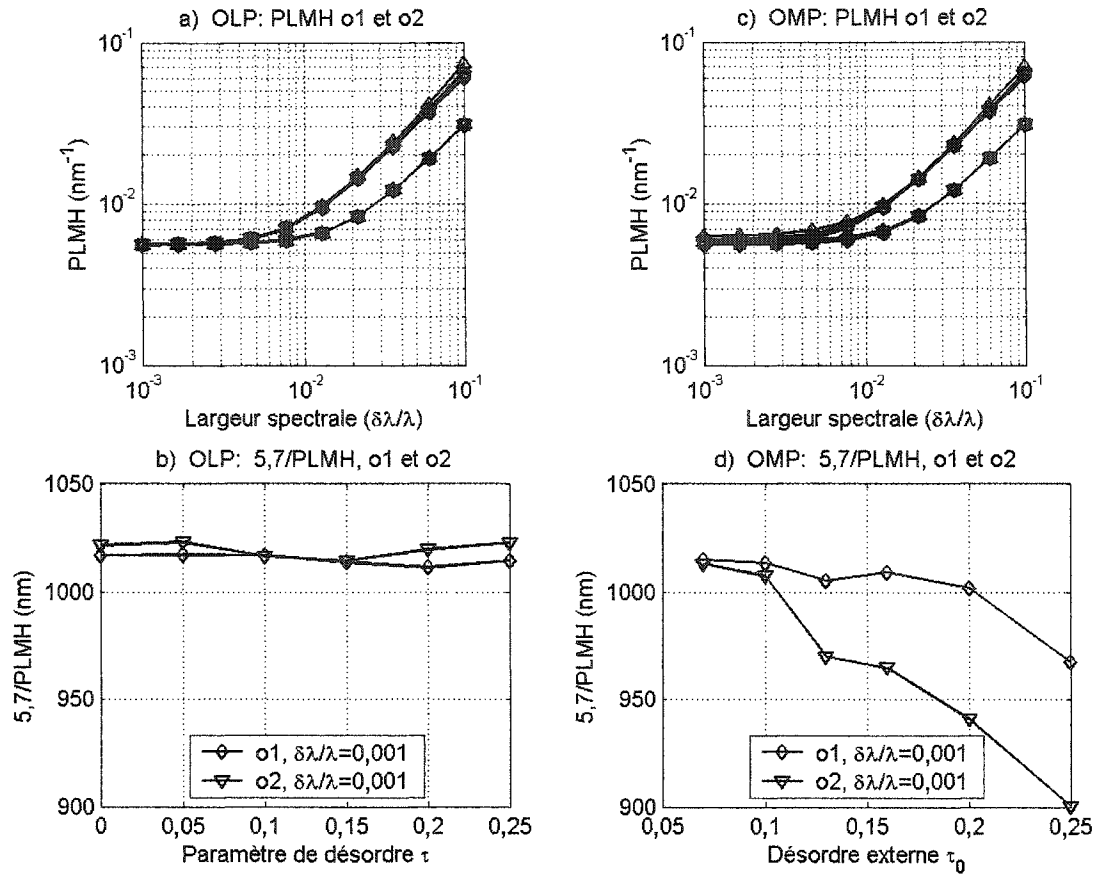


**Figure 5.14** Rapport des intensités des pics d'ordre 1 et 2 de la diffusion de réseaux avec OMP. a) en fonction de la largeur spectrale, pour six valeurs de  $\tau_0$ , comparaison avec trois réseaux OLP; b) en fonction du paramètre de désordre  $\tau_{OLP}$ , comparaison avec le calcul de  $\tau_{eq}$ .

Finalement, la partie f) de la figure 5.13 montre le calcul de la taille finie du réseau en fonction du paramètre de désordre externe. Ce résultat a été calculé en prenant l'inverse de la pleine largeur à mi-hauteur du pic d'ordre 1 à la cohérence temporelle maximale simulée, soit  $\Delta\lambda/\lambda = 0,001$ . Comme il en a été mentionné à la section 5.1.1, la taille finie du réseau s'extrait de  $5,7/\text{PLMH}$ . L'hypothèse voulant que, avec un désordre externe élevé, la taille finie du réseau tende vers la zone ordonnée  $L_{MP}$  est donc infirmée. En effet, la taille calculée à partir du pic d'ordre 1 reste toujours de l'ordre de la taille réelle du réseau ( $\approx 960$  nm dans le cas présenté).

Une observation intéressante est à noter dans la figure 5.13-f). On remarque que la PLMH du pic d'ordre deux pour le réseau OMP varie en fonction du paramètre de désordre externe. La figure 5.15 montre la variation de la PLMH des deux premiers pics d'interférence pour un réseau OLP en comparaison avec la même simulation pour un réseau OMP avec un désordre équivalent. Sur la partie b) de cette figure, on voit que l'inverse de la PLMH du pic d'ordre 2 reste à peu près constante lorsqu'elle est tracée en fonction du paramètre de désordre pour un réseau OLP. Cependant, sur la partie d), on voit que la taille finie, calculée à partir de l'équation  $5,7/\text{PLMH}$  pour le pic d'ordre 2 du réseau OMP, diminue en fonction du paramètre de désordre externe. D'un côté, il pourrait s'agir d'une différence importante entre les deux types de réseaux, mais d'un autre côté, le paramètre de désordre n'est pas une variable qu'on peut ajuster lors de la mesure expérimentale d'un échantillon donné. Ainsi, cette observation ne peut pas être utilisée pour faire la caractérisation d'un réseau OMP.





**Figure 5.15** Pleine largeur à mi-hauteur des deux premiers pics d'interférence de la diffusion d'un réseau OLP et un réseau OMP. a) PLMH des pics d'ordre 1 et 2 pour un réseau OLP en fonction de la largeur spectrale; b) inverse de PLMH en fonction du paramètre de désordre OLP; c) PLMH des pics d'ordre 1 et 2 pour un réseau OMP en fonction de la largeur spectrale; d) inverse de PLMH en fonction du paramètre de désordre externe OMP.

La conclusion de cette section est donc que la variation de la cohérence dans les simulations de la diffusion ne permet pas de différencier les cas des réseaux avec ordre à moyenne portée de ceux avec ordre à longue portée. C'est simplement un paramètre de désordre équivalent qui peut être déduit.

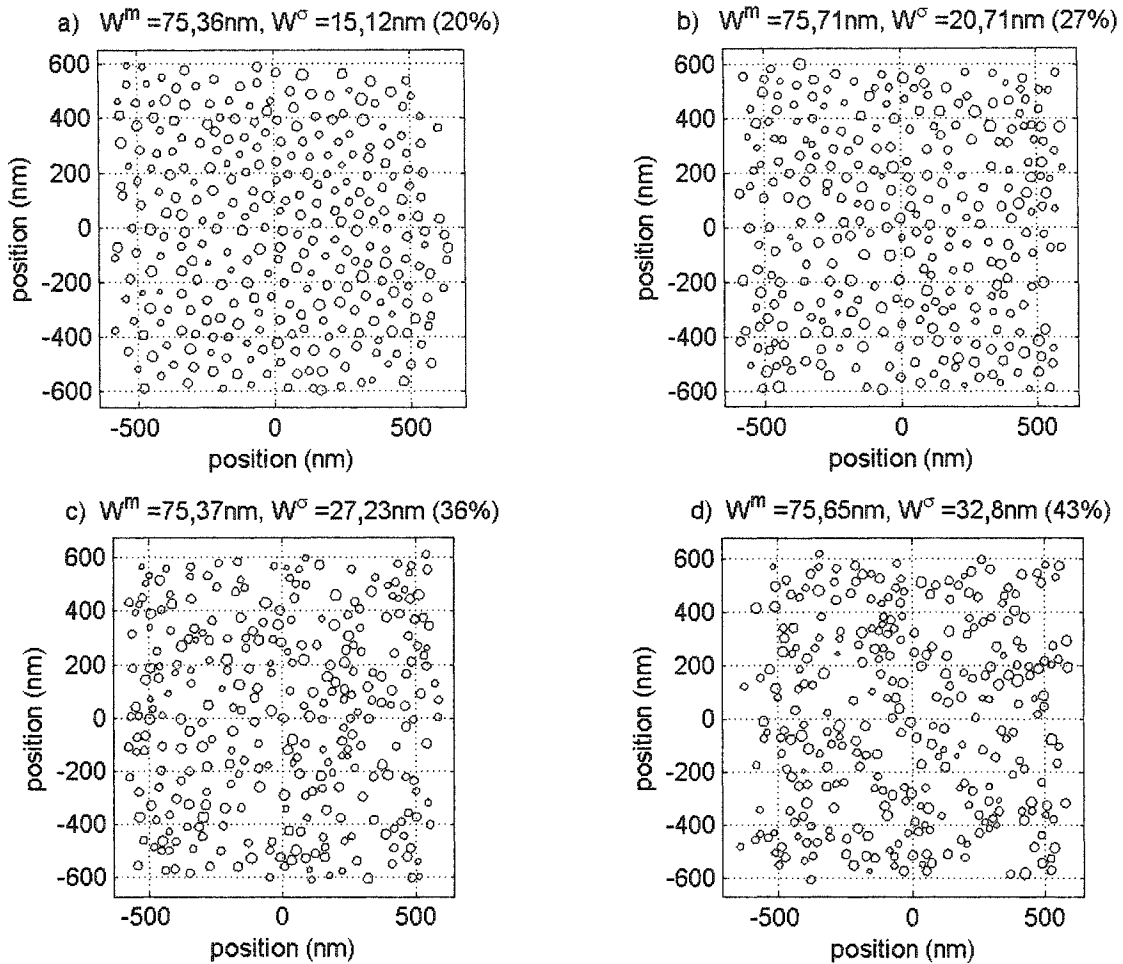
## 5.4 Réseaux avec ordre à courte portée

Une des principales caractéristiques des réseaux avec ordre à longue et moyenne portée est qu'ils sont anisotropes. En effet, les algorithmes de génération de ces réseaux partent d'un squelette bidimensionnel périodique, ce qui fait que les distances caractéristiques ne sont pas les mêmes selon la direction d'observation.

Cette section introduit les réseaux avec ordre à courte portée. Ces réseaux sont décrits de manière totalement différente des types de réseaux précédents. L'algorithme de génération est conçu de façon entièrement isotrope, dans le sens où la définition des paramètres tient seulement compte de la distance entre les plus proches voisins, peu importe leur emplacement et leur orientation. Tout au long de cette section, la discussion porte seulement sur la fonction d'interférence et par conséquent, on a posé pour le facteur de diffusion des îlots  $D(\mathbf{q}) = 1$ .

### 5.4.1 Génération des réseaux

L'algorithme de génération d'un réseau OCP a été présenté à la section 3.6. Un tel réseau est décrit par deux valeurs, soient  $W^m$  la distance moyenne entre les îlots premiers voisins et  $W^\sigma$ , l'écart-type de la distribution de  $W^m$ . La figure 5.16 montre quelques exemples de réseaux de 300 îlots générés par cet algorithme. Dans tous les cas présentés, la valeur  $W^m$  est gardée constante à  $\approx 75$  nm et le rapport  $W^\sigma/W^m$  est échelonné de 20% à 43%. La taille moyenne des îlots est de 15 nm et la distribution de taille est de  $\sigma_P = 15\%$ .



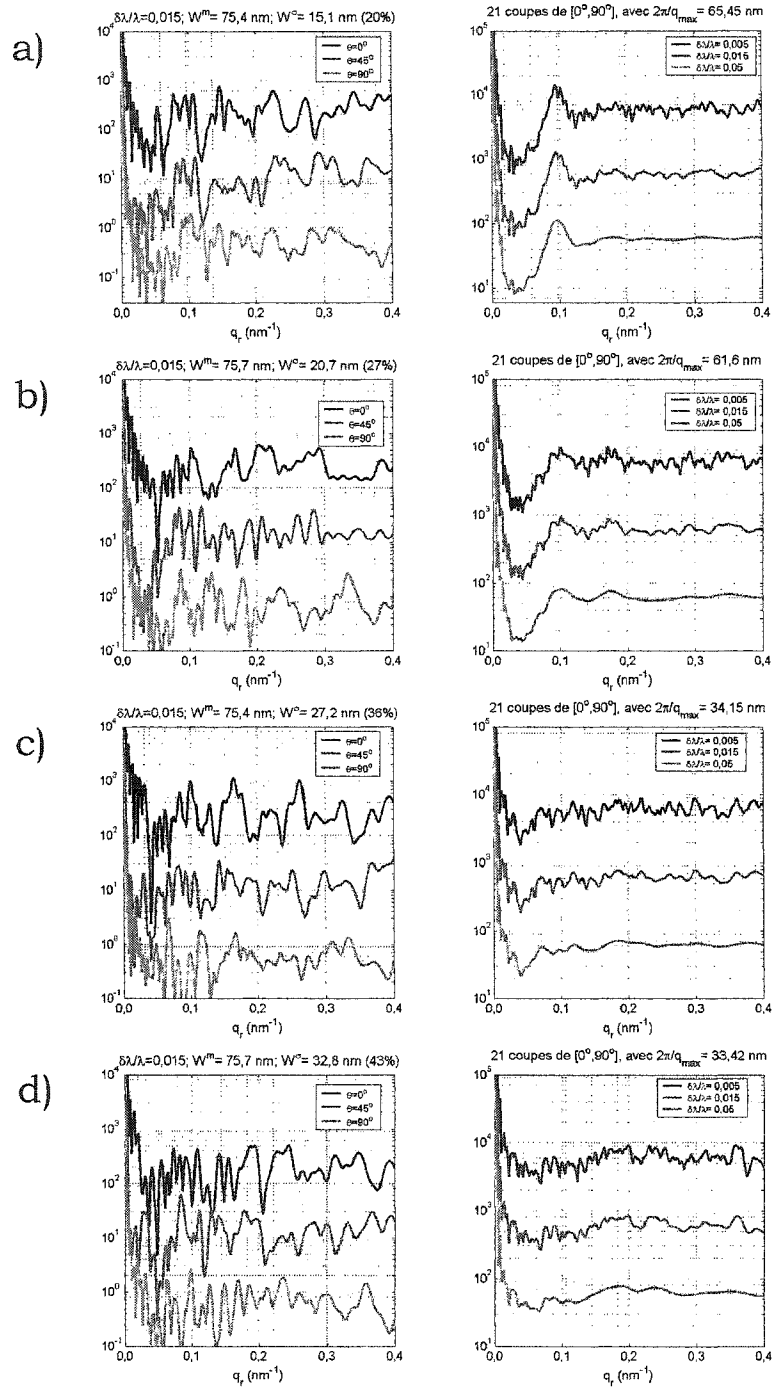
**Figure 5.16** Quatre exemples de réseaux avec ordre à courte portée, avec la taille moyenne de  $P = 15\text{nm}$  et la distribution de taille de  $\sigma_P = 15\%$ . a)  $W^m = 75,4\text{ nm}$  et  $W^\sigma = 15,1\text{ nm}$ ; b)  $W^m = 75,7\text{ nm}$  et  $W^\sigma = 20,7\text{ nm}$ ; c)  $W^m = 75,4\text{ nm}$  et  $W^\sigma = 27,2\text{ nm}$ ; d)  $W^m = 75,7\text{ nm}$  et  $W^\sigma = 32,8\text{ nm}$ .

Le réseau a) de cette figure a une distribution de l'ordre de 20% de la distance moyenne entre les îlots. On y voit un étalement relativement uniforme des îlots dans le plan et il ne comporte pas de direction préférentielle. Lorsque le rapport  $W^\sigma/W^m$  est de l'ordre de 27% (réseau b), quelques zones « éclaircies » apparaissent, ainsi que des regroupements de quelques îlots. Quand ce rapport est de l'ordre de 36% (réseau c), les zones éclaircies sont de plus en plus grandes et on dénombre plusieurs amas de 5-7 îlots. Finalement, le réseau d) avec

$W^{\sigma}/W^m = 43\%$  contient clairement plusieurs « grappes » de 8-12 îlots et de grands trous vides. En bref, l'effet d'un écart-type de plus en plus grand dans la distribution des distances est de favoriser la formation d'amas d'îlots, à densité surfacique constante.

#### **5.4.2 Simulations à cohérence variable**

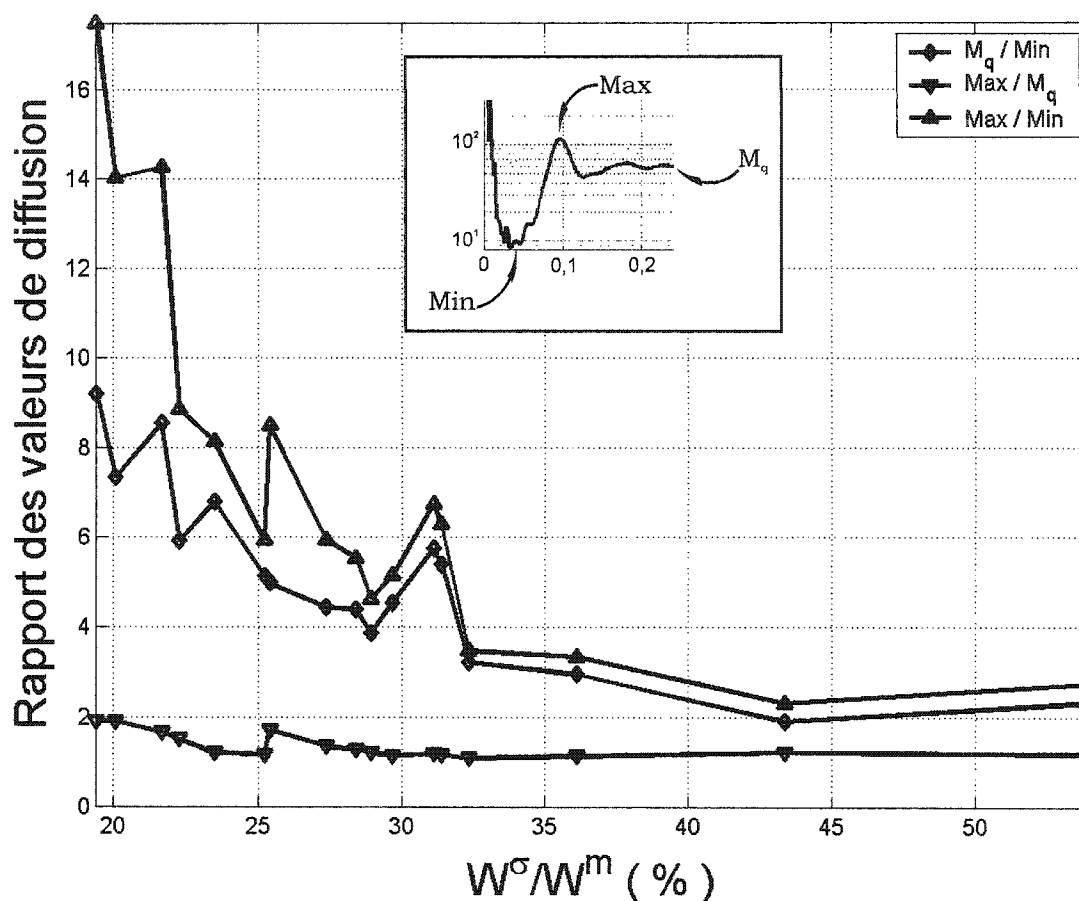
Les simulations numériques de la diffusion des réseaux OCP se doivent de tenir compte de l'isotropie du problème. Dans un premier temps, la cohérence temporelle a été gardée constante (à  $\Delta\lambda/\lambda = 0,015$ ) et les simulations ont été calculées pour plusieurs angles azimutaux. Dans la figure récapitulative (figure 5.17), tous les graphiques de gauche représentent les simulations numériques de la diffusion pour des angles azimutaux de  $0^{\circ}$ ,  $45^{\circ}$  et  $90^{\circ}$  par rapport à l'axe X, pour les quatre réseaux introduits à la figure précédente. On y remarque d'abord l'isotropie, dans ce sens où aucune des directions ne présentent de pic distinct dû aux premiers voisins. Ceci est le cas pour tous les réseaux avec ordre à courte portée (a, b, c et d). En raison de cette isotropie, l'étape suivante est évidemment de faire l'intégration sur l'angle azimutal des courbes de diffusion. Les résultats sont présentés sur les graphiques de droite de la même figure. On y montre la sommation de 21 simulations calculées avec des angles azimutaux différents échelonnés entre  $0^{\circ}$  et  $90^{\circ}$ . Cette sommation a été faite pour 3 longueurs de cohérence différentes. Lorsque le rapport  $W^{\sigma}/W^m$  est inférieur à 25%, on observe un pic de premier voisin dont l'intensité est d'au plus deux fois celle de la « moyenne » pour les grandes valeurs du vecteur de diffusion  $|\mathbf{q}|$  (appelée  $M_q$  par la suite).



**Figure 5.17** Fonction d'interférence de quatre réseaux avec OCP. À gauche, simulations en fonction de  $q_r$  pour trois angles azimutaux de  $0^\circ$ ,  $45^\circ$  et  $90^\circ$ ; à droite, simulation intégrée sur 21 angles azimutaux, pour trois largeurs spectrales de la source de 0,005, 0,015 et 0,05. a)  $W^m = 75,4$  nm et  $W^\sigma = 15,1$  nm; b)  $W^m = 75,7$  nm et  $W^\sigma = 20,7$  nm; c)  $W^m = 75,4$  nm et  $W^\sigma = 27,2$  nm; d)  $W^m = 75,7$  nm et  $W^\sigma = 32,8$  nm.

Cependant, la position de ce pic correspond à une distance ( $= 2\pi/q_{\text{pic}}$ ) qui est seulement de 0,85 à 0,9 fois  $W^m$ , c'est-à-dire la distance calculée par la méthode des cellules de Voronoï (chapitre 3). Ceci est valable tant qu'il y a un pic visible, c'est-à-dire que le maximum est au moins 1,5 fois plus élevé que  $M_q$ . On peut tenter d'expliquer ce phénomène de décalage en disant que le pic provoqué par l'interférence des îlots plus proches voisins est multiplié par un « signal de fond » provenant de la position aléatoire des îlots. Ce signal de fond tend vers 0 pour les petites valeurs de  $|q|$ , pour les valeurs de  $|q| > 2\pi/2P$ , il tend vers une constante. Lorsque le rapport  $W^\sigma/W^m$  est supérieur à 30%, on n'observe plus de maximum qui se démarque de la moyenne  $M_q$ . On note également la présence d'un creux profond dont la distance associée ( $= 2\pi/q_{\text{creux}}$ ) est de 2 à 2,5 fois celle de  $W^m$  et ce, peu importe la valeur de  $W^\sigma/W^m$ . Il ne semble pas y avoir de corrélation entre la position du minimum et celle du rapport  $W^\sigma/W^m$ .

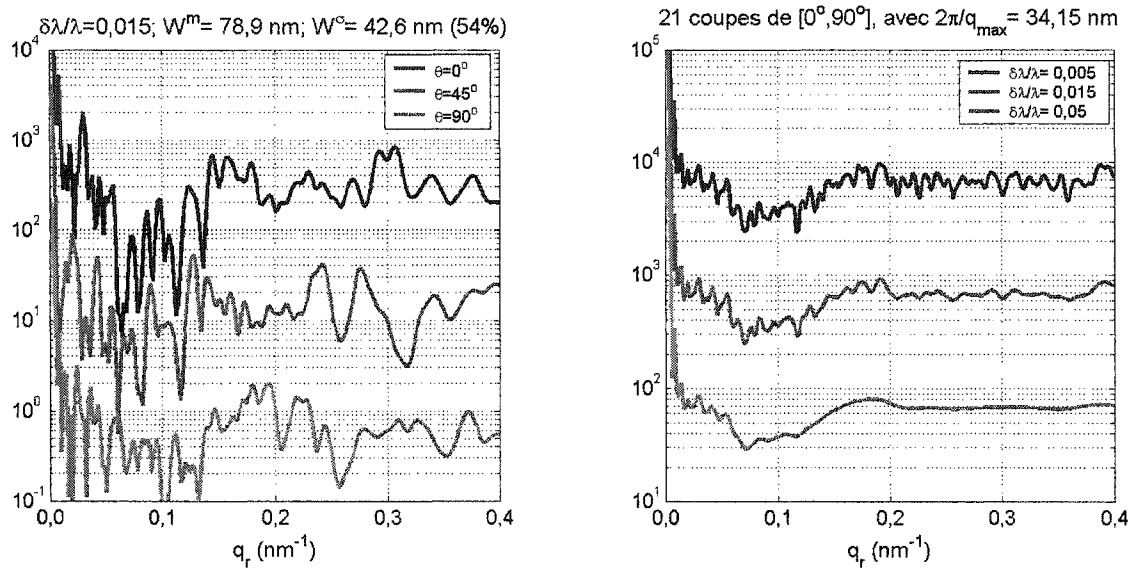
Une observation intéressante est que, plus le rapport  $W^\sigma/W^m$  est grand, plus le creux tend à réduire sa profondeur par rapport à  $M_q$ . La figure 5.18 résume le comportement de la valeur maximale, de la valeur minimale et de  $M_q$  de chacune des courbes de diffusion des réseaux OCP en fonction du rapport  $W^\sigma/W^m$ . Pour cette figure, plusieurs réseaux OCP de 300 îlots ont été générés de la même façon que ceux montrés précédemment. La valeur « Min » est définie comme le minimum de la simulation de l'intensité diffusée; la valeur « Max » est le maximum de cette courbe pour des valeurs de  $|q|$  plus grande que la position  $q_{\text{min}}$  du minimum;  $M_q$  est définie comme étant la valeur moyenne de l'intensité diffusée pour  $|q|$  compris entre 0,2 et 0,4 nm<sup>-1</sup>.



**Figure 5.18 Rapports des valeurs de diffusion de réseaux avec OCP en fonction du pourcentage de désordre. En médaillon, schéma montrant comment sont prises les valeurs correspondant à chaque réseau.**

On y voit que les comportements de  $M_q / \text{Min}$  et de  $\text{Max} / \text{Min}$  évoluent sensiblement dans le même sens, c'est-à-dire que ces rapports décroissent tranquillement jusqu'à ce que  $W^\sigma / W^m$  soit de l'ordre de 33%. Ensuite, ces rapports se stabilisent. Le comportement de  $\text{Max} / M_q$  n'est pas vraiment significatif à partir de  $W^\sigma / W^m$  plus grand que 25%. En effet, c'est à partir de cette valeur que le maximum ne se situe plus systématiquement à  $q_r \approx 2\pi / 0,85W^m$ , mais plutôt à une valeur quelconque qui varie énormément selon différents réseaux OCP qui ont les mêmes paramètres statistiques.

Le dernier point intéressant est que lorsque le désordre commence à être très grand ( $W^{\sigma}/W^m > 35\%$ ), le pic d'interférence le plus important n'est plus ce lui donnant la distance moyenne, mais plutôt celui qui se situe à  $2\pi/q_{\max} \approx 34$  nm (figure 5.19 par exemple). Dans le cas de cet exemple, la valeur moyenne du rayon de la base des îlots est de 15 nm. Cela signifie que la distance la plus probable entre deux premiers voisins est de l'ordre de deux fois leur rayon. On peut alors soupçonner la forte présence d'amas d'îlots et, par conséquent, une large dispersion dans la distribution des distances entre premiers voisins.



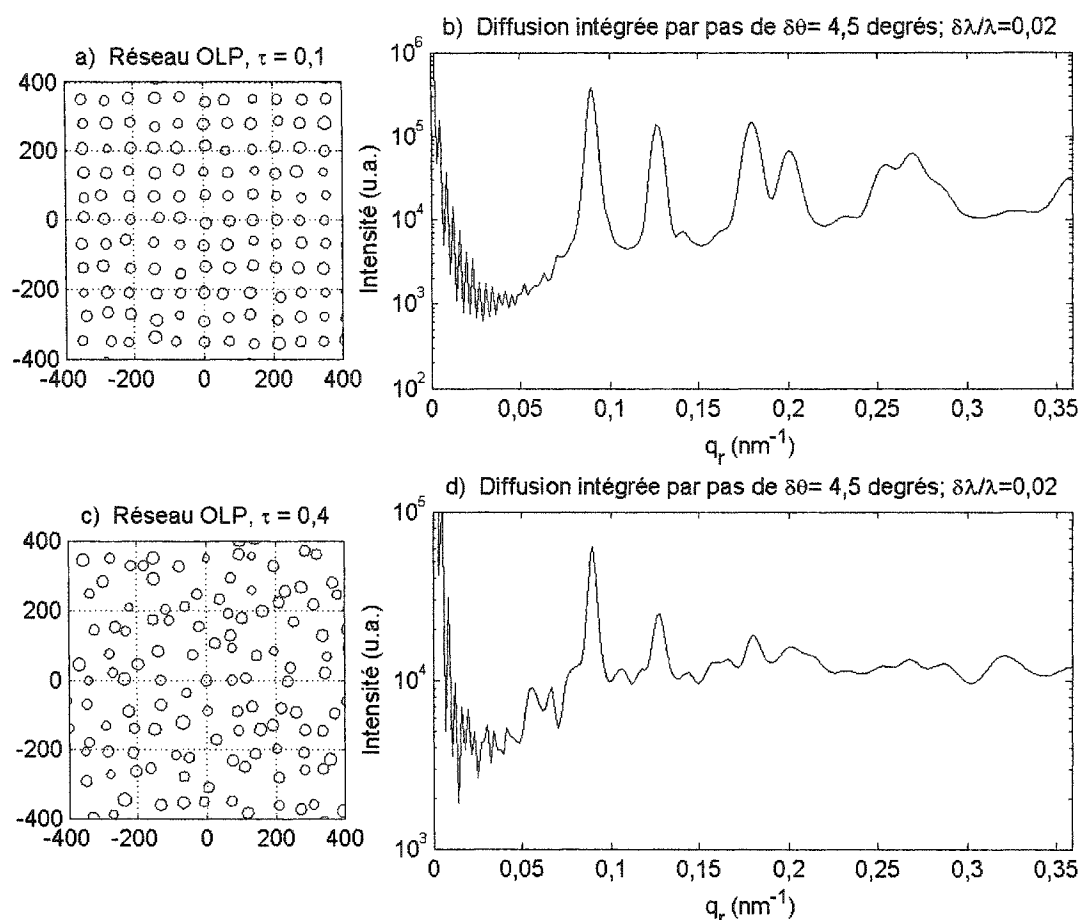
**Figure 5.19** Fonction d'interférence d'un réseau avec OCP. À gauche, simulations en fonction de  $q_r$  pour trois angles azimutaux de  $0^\circ$ ,  $45^\circ$  et  $90^\circ$ ; à droite, simulation intégrée sur 21 angles azimutaux, pour trois largeurs spectrales de la source de 0,005, 0,015 et 0,05;  $W^m = 78,9$  nm et  $W^{\sigma} = 42,6$  nm.

En bref, la caractérisation d'un réseau avec OCP s'effectue en remarquant que les mesures en diffusion sont isotropes et ne présentent pas de directions préférentielles. Ensuite, il faut faire l'intégration sur l'angle azimutal pour que se révèlent un creux suivi d'un pic dans la courbe de l'intensité simulée. À partir de ces caractéristiques, on



connaît relativement bien la valeur de  $W^m$  mais la valeur de  $W^\sigma$  est seulement estimée de façon grossière.

En ce qui concerne la distinction des réseaux avec OCP d'avec les autres types de réseaux, elle peut se faire par deux caractéristiques. D'abord l'isotropie, car il n'y a pas de directions privilégiées. Les réseaux avec OMP et OLP montrent des distances caractéristiques différentes selon la direction d'observation et sont donc anisotropes. Ensuite, on peut le voir par le nombre de pics de premiers voisins. En effet, un réseau OLP présente plus d'un pic d'interférences dans sa courbe d'intensité diffusée après intégration azimutale, et ce même pour des valeurs de désordre élevé. En guise d'exemple, la figure 5.20 montre l'intensité diffusée de deux réseaux OLP intégrée sur l'angle azimutal. Le premier réseau OLP contient 625 îlots et ses paramètres sont  $W = 70$  nm et  $\tau = 0,1$ . Sa courbe de la diffusion intégrée (figure 5.20b) présente clairement plusieurs pics qui sont associés à des distances caractéristiques dans une direction donnée. Le deuxième réseau OLP contient 625 îlots et ses paramètres sont  $W = 70$  nm et  $\tau = 0,4$ . Sa courbe de la diffusion intégrée (figure 5.20d) montre deux pics très fins qui sont très différents des pics évasés de la diffusion des réseaux avec OCP.



**Figure 5.20** Intégration azimuthale de la fonction d'interférence pour deux réseaux avec OLP en fonction du vecteur de diffusion. a) exemple de réseau OLP avec  $W = 70$  nm et  $\tau = 0,1$ ; b) simulation intégrée sur l'angle azimuthal avec un pas de  $4,5^\circ$  d'un réseau de 625 îlots avec  $W = 70$  nm et  $\tau = 0,1$ ; c) exemple de réseau OLP avec  $W = 70$  nm et  $\tau = 0,4$ ; d) simulation intégrée sur l'angle azimuthal avec un pas de  $4,5^\circ$  d'un réseau de 625 îlots avec  $W = 70$  nm et  $\tau = 0,4$ .

En conclusion, la présence d'un réseau avec OCP se déduit par l'isotropie des courbes de diffusion en fonction de l'angle azimuthal et également par la présence d'un seul pic de premiers voisins dans la courbe de diffusion intégrée sur l'angle azimuthal. Un deuxième pic peut apparaître lorsque la formation d'amas d'îlots est prédominante.

## 6 Discussion

Ce chapitre contient la synthèse des principaux résultats obtenus et fait ressortir les justifications des approximations et leurs conséquences dans la validation des résultats.

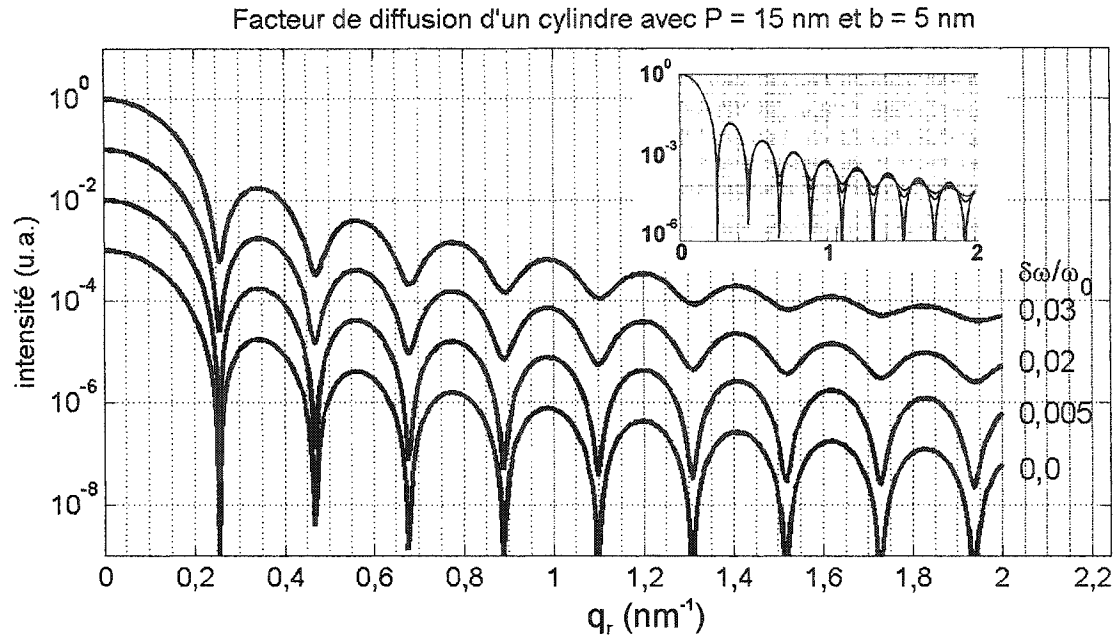
### 6.1 Validité des approximations et des calculs

#### 6.1.1 Hypothèse sur le facteur de diffusion

L'hypothèse la plus importante qui a été posée dans ce travail a été de dire que la variation de la largeur spectrale de la source de rayons X n'avait pas d'influence sur le facteur de diffusion des îlots, tant que  $\Delta\lambda/\lambda \leq 2 \times 10^{-2}$ . Cette valeur-seuil a été fixée le plus élevé possible de façon à réduire la contribution de la fonction d'interférence dans l'intensité diffusée par un réseau d'îlots. Les simulations présentées aux chapitres 4 et 5 montrent très bien que cette fonction est loin d'être enrayée dans le sens où plusieurs pics d'interférence restent visibles pour  $\Delta\lambda/\lambda \geq 2 \times 10^{-2}$ . La question revient donc à poser : jusqu'à quelle valeur de  $|\mathbf{q}|$  et de  $\Delta\omega/\omega_0$  l'égalité :

$$|D(\mathbf{q})|^2 \approx \int D\left(\frac{\omega}{\omega_0}\mathbf{q}\right) D^*\left(\frac{\omega}{\omega_0}\mathbf{q}\right) \Lambda_g(\omega, \omega_0, \Delta\omega) d\omega \quad [6.1]$$

tient-elle toujours? La figure 6.1 montre le calcul de l'intégration de l'intensité du facteur de diffusion avec la distribution spectrale de la source pour quatre valeurs de la largeur spectrale de la source : 0, 0,005, 0,02 et 0,03.



**Figure 6.1** Carré du facteur de diffusion d'un îlot cylindrique ( $P = 15$  nm,  $b = 5$  nm), avec  $q_z = 0$ , pour quatre valeurs de la largeur spectrale de la source ( $\Delta\omega/\omega = 0, 0,005, 0,02$  et  $0,03$ ). Les courbes sont décalées pour plus de clarté. La figure en médaillon montre les mêmes courbes non décalées.

Une valeur de  $\Delta\omega/\omega_0 = 0$  correspond à faire l'intégration sur une fonction de Dirac et ce résultat est considéré comme la référence. Sur la figure, on y voit que pour une largeur spectrale de 0,005, le carré du facteur de diffusion reste inchangé jusqu'à  $q_r \approx 1,5$  nm $^{-1}$  par rapport à la référence. Pour une largeur spectrale de 0,02, le facteur de diffusion commence à s'estomper à partir de  $q_r \approx 0,7$  nm $^{-1}$ . Pour une largeur spectrale de 0,03, la deuxième frange d'épaisseur est affectée, mais pas le maximum principal. Cette constatation ne change en rien les conclusions qui ont été tirées dans les chapitres 4 et 5, dans le sens où presque toutes les simulations numériques avec cohérence variable ont été calculées avec  $q_r \leq 0,7$  nm $^{-1}$  (figure 5.5 par exemple). En ce qui concerne l'étude de la taille des îlots avec une faible cohérence temporelle, les informations sont extraites de l'intensité diffusée pour

des petites valeurs de  $q_r$ , à l'exception de la position du sillon qui nécessite des valeurs de  $q_r > 1 \text{ nm}^{-1}$ . Pour cela, rien n'empêche d'aller « temporairement » à plus grande cohérence afin de déterminer la position du sillon, et ensuite revenir à plus faible cohérence pour extraire les autres informations. De toute façon, la motivation pour travailler à faible cohérence temporelle est de s'affranchir de la fonction d'interférence à petites valeurs de  $q_r$ . Pour les grandes valeurs de  $q_r$ , cette fonction ne contribue pratiquement pas au signal diffusé, particulièrement si le désordre est élevé.

Finalement, la valeur-seuil de  $\Delta\lambda/\lambda \leq 2 \times 10^{-2}$  peut être légèrement dépassée lorsque l'on analyse seulement la fonction d'interférence. Au chapitre 5, il a été vu que la plupart des informations sur les réseaux d'îlots sont extraites à partir des deux premiers pics d'interférence, c'est-à-dire pour des valeurs de  $q_r$  de l'ordre de  $2 \times 2\pi/W \approx 0,16 \text{ nm}^{-1}$  (pour  $W = 80 \text{ nm}$ ). Pour cette raison, la cohérence temporelle peut être encore plus diminuée (largeur spectrale augmentée) sans que cela n'affecte le facteur de diffusion des îlots dans la région sondée.

### **6.1.2 Analyse de la fonction d'interférence**

Dans le chapitre 5, une approximation simplificatrice de calculs était de poser le facteur de diffusion des îlots  $D(\mathbf{q}) = 1$  et de ne traiter par la suite que la fonction d'interférence. L'intégration du facteur de diffusion dans les calculs ne change pas la PLMH des pics d'interférence, mais peut affecter leur intensité relative (voir section 5.2.2). Cependant, le facteur de correction dû à la diffusion des îlots se calcule très aisément une fois que la taille moyenne des îlots est

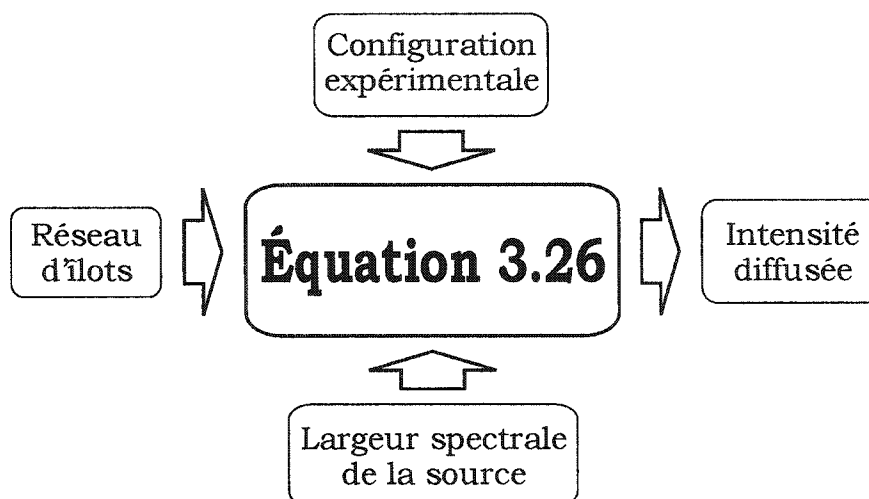
connue. Ceci fait partie de la première étape de la démarche de caractérisation, au chapitre 4.

L'approximation  $D(\mathbf{q}) = 1$  suppose que le facteur de diffusion n'a que des effets mineurs sur la fonction d'interférence. Le seul cas où cela est discutable est lorsqu'il y a une grande distribution dans la taille des îlots. Les simulations numériques du chapitre 5 ont montré que les pics d'interférence s'estompent rapidement lorsqu'ils sont situés proches des minima du facteur de diffusion. Cependant, la caractérisation des réseaux présentés dans ce travail ne nécessite que les deux premiers pics d'interférence et ceux-ci sont généralement situés sur le pic principal du facteur de diffusion, à des valeurs de  $q_r$  inférieures à la position du premier minimum. Une grande distribution de taille des îlots n'affecte donc pas l'intensité relative de ces pics, ni leur PLHM, si l'on compare avec la diffusion pour un ensemble d'îlots identiques. Par conséquent, cette approximation ne change pas les conclusions que l'on aurait tirées si on avait effectué les calculs complets.

### **6.1.3 Validité des calculs de simulations numériques**

Il est difficile de faire une validation rigoureuse des résultats de simulation sans faire de comparaisons avec l'expérience. Le schéma général des simulations est présenté à la figure 6.2. La configuration expérimentale comprend la longueur d'onde ainsi que les angles d'incidence et de détection. Le réseau d'îlots est un tableau comprenant  $N$  îlots, chacun ayant 6 paramètres, soient la position ( $xyz$ ), le rayon, la hauteur et la forme. En injectant en plus la largeur

spectrale de la source dans l'équation 3.26, on obtient la majorité des simulations numériques de ce mémoire.



**Figure 6.2 Schéma du calcul des simulations numériques**

En terme de validité, on peut souligner que la plupart des résultats analytiques ou « attendus » ont été obtenus. Par exemple, c'est le cas du facteur de diffusion du cylindre (section 4.1). C'est aussi le cas du réseau parfait (carré et hexagonal) qui montraient un comportement attendu dans l'espace réciproque (section 5.1), dans le sens où la diffusion par ce type de structure se rapproche de la diffraction par un matériau avec une structure périodique infinie. De plus, le comportement prévisible des franges d'épaisseur des facteurs de diffusion a été observé, c'est-à-dire que leur espacement est inversement proportionnel à la taille de l'îlot.

## 6.2 Comparaison avec les résultats de la littérature

Dans la littérature, la caractérisation des NIAO se fait de deux manières relativement distinctes. D'une part, des mesures en diffusion sont faites pour connaître la taille et l'arrangement spatial des îlots.

D'autre part, des mesures en diffraction sondent la structure cristalline des îlots. Les résultats de simulation présentés dans ce mémoire couvrent seulement les mesures en diffusion. Cette littérature n'est pas abondante et les résultats obtenus ici sont comparés avec des articles qui exposaient au moins une partie des méthodes d'analyse des données.

En ce qui concerne la caractérisation de la taille, nos conclusions sont *grosso modo* les mêmes que celles de la littérature. La plupart des études que l'on y retrouve se divisent en deux catégories. D'un côté, les auteurs tentent de résoudre à la fois le problème de la taille et de l'arrangement spatial pour des îlots relativement bien ordonnés. Il est à noter que la terminologie n'est pas la même que celle de ce mémoire. En effet, Stangl *et al.* (2000) appellent leur modèle « ordre à courte portée » même si plusieurs pics de premiers voisins sont visibles sur leurs mesures expérimentales. Cela découle directement du modèle de Pukite *et al.* (1985). L'expression « ordre à longue portée » n'est jamais utilisée dans le contexte de nanostructures auto-organisées. Dans ce travail, les termes OLP, OMP et OCP ont été choisis en raison du mode de génération des réseaux. Dans le cas où les îlots sont peu ordonnés, l'analyse ne va souvent pas plus loin que de dire que les îlots ne sont pas bien ordonnés et que la distance moyenne est donnée par  $W = 2\pi/q_{\max}$  (Okuda, 2002).

De l'autre côté, on s'occupe seulement du problème de la taille et de la forme pour des échantillons dont la densité surfacique d'îlots est très faible ou dont l'organisation des îlots n'est pas très ordonnée; la fonction d'interférence est tout simplement ignorée (Rauscher, 1999). Notre proposition de réduire la cohérence temporelle fait en sorte que



l'on peut s'occuper seulement du problème de la taille des îlots, et ce peu importe le type d'échantillon. À notre connaissance, nous sommes les seuls à adopter cette approche, qui reste cependant à valider expérimentalement. Étant donné que très peu de groupes ne mentionnent les valeurs de cohérence de leur source RX, il est difficile de dire ce que notre modèle aurait donné pour leurs échantillons.

L'utilisation de modèles Monte-Carlo ou Monte-Carlo inverse (MCI) dans l'étude de mesures en diffusion/diffracton des rayons X est presque exclusivement limitée aux matériaux amorphes (McGreevy, 1988; Pusztai, 1995). Dans l'étude des nano-îlots, le principal argument de leur non-utilisation est de dire que le volume de cohérence est trop petit pour contenir un nombre statistiquement représentatif d'îlots. Cet argument est à peu près justifié dans le cas de réseaux d'îlots OLP. En effet, les échantillons qui ont des îlots hautement ordonnés entre eux sont déjà bien analysés dans la littérature, généralement par des modèles avec l'approximation de taille et position découplées (Stangl, 2000). La caractérisation du degré d'ordre est limitée par le volume de cohérence et c'est pourquoi on cherche à avoir la plus grande cohérence temporelle possible. Ainsi, les résultats obtenus pour nos réseaux OLP sont compatibles avec ceux de la littérature (appelés parfois OCP, comme mentionné précédemment). Concernant la distribution de taille, nous avons fait l'intégration sur une distribution gaussienne. Dans la littérature, les fonctions distributions prennent plusieurs formes (gaussienne, log-normale, etc.), mais ne changent pas significativement les résultats des analyses. Le choix repose principalement sur la convenance mathématique (Kegel, 1999b), afin de résoudre les intégrales plus facilement.

En ce qui concerne la caractérisation et la génération de réseaux OMP et OCP, il n'existe pas, à notre connaissance, de modèles pour les NIAO. La littérature présente seulement la fonction d'interférence de tels arrangements OCP (Lazzari, 2002). Pour cette raison, notre description de ces réseaux et leur génération constituent en soi un nouveau pas. Dans la littérature, le comportement OMP est à peine mentionné (Stangl, 2000). Les réseaux OCP ne sont le plus souvent décrits que par une distance moyenne entre îlots PPV. Un modèle unidimensionnel est utilisé sur des mesures de diffusion qui ont les mêmes caractéristiques peu importe l'angle azimutal (Stangl, 1999; Okuda, 2002). La variation de la cohérence semble être une voie prometteuse et inusitée. La génération de réseaux plus complexes et plus larges devrait permettre une exploitation complète de cette approche, particulièrement dans le cas des réseaux OMP.

## **6.3 Retour sur les résultats des simulations**

### **6.3.1 Forme, taille et distribution de taille**

Comme il a été discuté précédemment, l'hypothèse optimiste de départ, voulant que la diminution drastique de la cohérence temporelle fasse en sorte que l'intensité diffusée par un réseau d'îlots soit la même que l'on considère ou non la fonction d'interférence, n'était pas tout à fait réaliste. En effet, même pour des très grandes largeurs spectrales de la source, il subsistait toujours des pics d'interférence. Évidemment, plus le réseau est ordonné, plus les pics d'interférence sont intenses. Pour le réseau parfait, on peut voir quelques dizaines de pics sur la courbe d'intensité simulée en fonction de  $q_r$  avec  $q_z = 0$ , même pour une très petite cohérence temporelle. Par contre, un réseau

avec OLP avec un grand paramètre de désordre  $\tau$  montre au plus 2 à 3 pics. De même que pour un réseau avec OCP, il faut faire une intégration sur l'angle azimutal afin de voir apparaître un pic caractéristique.

L'étude des propriétés des facteurs de diffusion sans tenir compte de la fonction d'interférence, ce qui révèle les propriétés des îlots individuels, est donc tout à fait justifiée. Ceci est parce que peu d'information sur la forme et la taille se retrouve aux petites valeurs de  $|\mathbf{q}|$ . C'est précisément dans cette zone que se retrouvent les pics d'interférence qui n'ont pas pu être « enlevés » par la diminution de la cohérence temporelle.

En bref, ce qui facilite l'extraction des paramètres des îlots individuellement, c'est l'affaissement de la fonction d'interférence. Ceci peut être causé par l'expérimentateur (faible cohérence temporelle) ou de façon « naturelle » par un réseau peu ordonné (ou avec une très faible densité surfacique). On se rend aisément compte qu'à la limite où les îlots sont complètement désordonnés (répartition aléatoire), la fonction d'interférence se moyenne à 1 et n'intervient plus dans le calcul. Par exemple, c'est cette hypothèse qui est posée dans les analyses de granulométrie par diffraction d'un laser (visible) sur une poudre. La figure de diffraction obtenue est supposée donner directement la taille moyenne et la distribution de taille des particules de la poudre. Ceci pourrait être envisagé pour des îlots auto-organisés, à condition que leur densité surfacique soit très faible. À partir du moment où la densité devient élevée, les phénomènes d'arrangement apparaissent et ne peuvent plus être ignorés.

### 6.3.2 Calcul de la fonction d'interférence

Il faut toujours garder à l'esprit que la détermination de l'arrangement spatial se fait à partir d'une méthode Monte-Carlo, c'est-à-dire que les réseaux d'îlots sont obtenus par le biais de fonctions aléatoires. Les « solutions » obtenues ne représentent jamais une détermination absolue, mais offrent plutôt une vue sur un ensemble de cas possibles, qu'on espère le plus proche possible du cas réel. En fait, ce ne sont que des valeurs statistiques qui sont déterminées. Ceci est vrai particulièrement pour les réseaux OCP qui sont générés par un processus entièrement aléatoire.

Au niveau du calcul, il est important de noter que l'approche présentée au chapitre 3 implique que la sommation de la diffusion des  $N$  îlots du réseau se fait en intensité. Le temps de calcul est ainsi proportionnel à  $N(N-1)/2$ . C'est le « prix » à payer pour éviter l'intégration numérique sur la longueur d'onde du faisceau incident. Advenant ce dernier cas, il aurait fallu procéder à  $N$  sommations de la diffusion de l'ensemble des îlots. Ensuite, on pose  $M$  le nombre de classes de la longueur d'onde, c'est-à-dire le nombre de pas de l'intégration numérique. Ce nombre doit être grand pour être physiquement réaliste. En revanche,  $M$  est indépendant de  $N$  et reste raisonnablement constant même quand  $N$  est grand. Ainsi, lorsque le nombre d'îlots est grand, il pourrait être judicieux d'envisager simplement l'intégration numérique pour les simulations de cohérence variable. Dans ce cas, le temps de calcul est proportionnel à  $N \times M$ .

### 6.3.3 Réseaux avec ordre à longue portée

Le réseau avec ordre à longue portée ne dépend que de deux paramètres, soient  $W$  la distance moyenne entre les îlots et  $\tau$  le paramètre de désordre. On pourrait également considérer un troisième paramètre qui est la nature du réseau périodique : carré, rectangulaire, hexagonal, etc. Dans le chapitre 5, seul le cas du réseau carré a été utilisé lors de simulations numériques de l'intensité diffusée. Afin de caractériser d'autres types de structure périodique bidimensionnelle, des simulations à d'autres angles azimutaux sont nécessaires, ceci afin de déterminer l'angle formé par les deux vecteurs directeurs coplanaires du réseau. Une fois ce paramètre connu, tout le reste de la procédure de caractérisation demeure le même.

La valeur de  $W$  est probablement la plus simple à obtenir. Dans toutes les simulations effectuées, la position du premier pic d'interférence se situe à  $q_{\max} = 2\pi/W$ , et ce peu importe la valeur du paramètre de désordre. En ce qui concerne la détermination du désordre, celle-ci s'obtient facilement par le rapport des intensités des deux premiers pics, à condition de pondérer ce rapport par le facteur de diffusion. Le seul cas où la détermination du désordre peut être difficile est celui où l'on est en présence de gros îlots très rapprochés. En effet, les simulations du chapitre 5 montrent que, pour les valeurs nominales choisies, il y a de 3 à 4 pics d'interférence qui apparaissent à des valeurs de  $q_r$  plus petites que celle de la position du premier minimum du facteur de diffusion des îlots. Le fait d'avoir des gros îlots a comme conséquence que la position du premier minimum du facteur de diffusion va se déplacer vers de plus petites valeurs de  $q_r$  alors que des îlots rapprochés vont déplacer les pics d'interférence vers de

valeurs plus grandes de  $q_r$ . Ainsi, le pic d'interférence d'ordre 2 pourrait s'engouffrer dans le premier minimum du facteur de diffusion. À titre d'exemple, si des îlots en dôme de 15 nm de rayon se retrouvent périodiquement placés à 40 nm de distance, on a  $q_{\min} = 0,344 \text{ nm}^{-1}$  et les pics d'interférence se situent à  $q_{\text{ordre1}} = 0,157 \text{ nm}^{-1}$  et  $q_{\text{ordre2}} = 0,314 \text{ nm}^{-1}$ .

### 6.3.4 Réseaux avec ordre à moyenne portée

La caractérisation des réseaux avec OMP s'est révélée à moitié fructueuse, dans le sens où il n'a pas été possible d'extraire leurs trois paramètres caractéristiques, soient la  $L_{MP}$  la taille de la zone ordonnée,  $\tau_I$  le désordre interne et  $\tau_O$  le désordre externe. Au final, seule  $W$  la distance entre les PPV a pu être déterminée sans ambiguïté.

Pour l'ensemble des simulations présentées, il n'a pas été possible de distinguer les réseaux OMP des réseaux OLP avec un paramètre de désordre équivalent. Cependant, le calcul du  $\tau_{\text{équivalent}}$  pose un problème conceptuel. Il fait intervenir l'aire du réseau d'îlots. Or la taille finie du réseau n'est qu'un artéfact de calcul, car dans la réalité, on a plutôt à faire avec des surfaces immenses par rapport à la taille d'un îlot. Il faudrait alors considérer un calcul du désordre équivalent du style de

$$\tau_{eq} = p_I \tau_I + p_O \tau_O \quad [6.2]$$

où  $p_I$  est densité surfacique moyenne des zones ordonnées et  $p_O$  est la densité surfacique moyenne des zones moins ordonnées. Mais de toute façon, cette dernière équation ne permet aucunement de connaître la taille des zones mieux ordonnées.

Il est important de noter ici que le modèle utilisé pour les réseaux OMP est le plus simple possible, soit deux réseaux OLP imbriqués l'un dans l'autre. D'autres hypothèses de construction auraient pu être utilisées, qui sont tout aussi proches de cas observés dans la réalité. Quelques exemples de ces hypothèses sont présentées dans la section « 7.2 Perspectives » au chapitre suivant.

### **6.3.5 Réseaux avec ordre à courte portée**

L'étude des réseaux OCP a été effectuée de façon totalement différente des deux autres types de réseaux, dans le sens où nous avons dû faire l'intégration sur l'angle azimutal afin de voir des structures caractéristiques apparaître. Ceci était prévisible dans le sens où l'algorithme de génération de ce réseau est isotrope.

Les maxima des courbes de diffusion présentées sont situées soit à  $q_r \approx 2\pi/0,9W^m$  (faible dispersion des distances), soit à  $q_r \approx 2\pi/2P_0$  (grande dispersion des distances), c'est-à-dire que dans les deux cas la position du maximum d'interférence ne correspond pas à la distance moyenne entre plus proches voisins. Une tentative d'explication a été proposée au chapitre 5, mais une autre cause pourrait expliquer ce phénomène. En effet, le calcul de la distance moyenne dans les réseaux OCP dépend en grande partie du choix des plus proches voisins (PPV), car c'est la distance à ceux-ci qui entre dans le calcul. La méthode choisie dans ce mémoire pour la sélection des PPV est celle des cellules de Voronoi. Il se pourrait alors simplement que ce soit cette méthode qui ne soit pas appropriée, dans le sens où certains voisins plus éloignés faisant partie de la cellule de Voronoi ne participeraient que très faiblement à la diffusion du réseau. Comme

ceux-ci entrent dans le calcul des distances, cela a pour conséquence d'augmenter la distance moyenne  $W^m$ .

#### 6.4 Comparaison avec le programme de Lazzari

Il serait peu convenable de passer sous silence la grande similitude entre l'approche théorique de ce mémoire et une autre publiée récemment (Lazzari, 2002). Cet auteur présente un programme FORTRAN qui permet de simuler des mesures de diffusion à petit angle et incidence rasante (DPAIR). Les équations utilisées sont celles de la théorie cinématique dans l'approximation de Born par onde modifiée (ABOM). L'expression du facteur de diffusion des îlots est la même que celle utilisée dans ce mémoire. Quant à la fonction d'interférence, le programme peut simuler plusieurs fonctions statistiques de réseaux périodiques et « paracristallins » dans l'approximation de taille et position découplées (ATPD) et aussi dans l'approximation de monodispersité locale (AML). Une option de ce programme permet également de charger un réseau d'îlots générés par l'utilisateur, ce qui peut être effectué à partir d'une image de MFA par exemple, et de simuler la diffusion RX par ce réseau. Bien que ce programme soit *a priori* conçu pour les îlots en surface, il est possible de simuler des mesures pour des structures enfouies. Finalement, il est possible de faire l'intégration numérique sur certains paramètres tels que la taille des îlots, la résolution, les angles de diffusion, etc.

Après un regard en détails de cet article, on se rend compte que presque toutes les simulations présentées dans ce mémoire auraient pu être calculées à partir de ce programme. Cependant, quelques détails font que cela aurait été difficile. Premièrement, la seule façon de



s'affranchir des fonctions d'interférence afin d'utiliser nos propres expressions est de se tourner vers l'option de chargement de réseau de points. Dans cette option, il semble que la question de la taille finie du réseau de points utilisé soit traitée un peu à la façon d'une boîte noire. En effet, la fonction d'interférence dans ce dernier cas est filtrée à l'aide d'une fonction de Hann. Ce genre de fonction est surtout utilisé pour réduire l'aliassage dans les transformées de Fourier. La question de la cohérence temporelle est donc simplement contournée.

Il serait également possible de faire une intégration numérique sur la longueur d'onde. Cela pose alors un problème de temps de calcul. En effet, comme mentionné dans le chapitre 5, l'influence des îlots et de leur position sur l'intensité diffusée s'observe sur deux échelles de  $q$  différentes. Si l'on veut avoir une bonne résolution dans les simulations, on devra donc choisir un grand nombre de points de calcul. Dans ce contexte, l'intégration numérique dans le calcul du facteur de forme requiert alors énormément de temps de calcul. C'est pourquoi le programme de simulation présenté dans ce mémoire permet de séparer les échelles de grandeur. Le calcul des facteurs de forme est interpolé sur les endroits où sa variation est « lente », on peut ainsi gagner un facteur  $> 10$  sur le temps de calcul. Celui-ci est alors limité par le nombre d'îlots du réseau.

En bref, le programme de Lazzari aurait pu être utilisé pour faire l'ensemble des simulations de ce travail. Mais vu les temps de calcul astronomiques requis, une adaptation du code-source aurait été nécessaire. De plus, le programme ne tient aucunement compte de la structure cristalline des îlots. Par conséquent, il aurait fallu de toute façon écrire un nouveau programme pour traiter des deux étapes

suivantes de la démarche de caractérisation, soient la diffraction à angle rasant et la diffraction à grand angle, une fois que celles-ci seront complétées.

Il est important de souligner ici que le principal mérite du travail de Lazzari est d'avoir recensé dans la littérature une vaste gamme de modèles théoriques pour la description de réseaux de nano-îlots et de les avoir intégrés dans un logiciel unique pour faire des simulations numériques. Il ne s'agit pas en soi de science nouvelle. Le seul exemple pratique qui est donné dans cet article est l'étude de la formation de particules d'or sur un substrat de  $\text{TiO}_2$  obtenues par évaporation. À partir de simulations, il détermine la taille moyenne et la distribution de taille des particules. La distance moyenne entre elles est déduite par une fonction d'interférence unidimensionnelle.

## **6.5 Vue générale de l'intégration à la démarche**

Au niveau de la vue d'ensemble de l'intégration à la démarche de détermination complète des NIAO par les techniques RX, l'apport de la cohérence variable est bénéfique, mais dans une certaine limite. En effet, l'idée principale était de déterminer la forme et la distribution de taille à très faible longueur de cohérence de la source incidente à l'échantillon. Il a été montré que la détermination de la forme est très ambiguë lorsque les îlots ne sont pas de taille uniforme, et encore là, c'est dans l'hypothèse où ils ont tous la même forme. Par contre, la taille moyenne s'extraît assez facilement une fois que la forme est supposée. L'extraction est encore plus aisée que le réseau est moins ordonné.

Il faut aussi se rappeler que la variation de la largeur spectrale de la source affecte le produit  $\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_m$ . Ainsi, des îlots éloignés seront quand même visibles, mais pour de petites valeurs de  $|\mathbf{q}|$ , c'est-à-dire à de plus petits angles d'incidence. Il y aura quand même un pic d'interférence visible sur la figure de diffusion en dépit de l'éloignement des îlots. Les îlots plus rapprochés ont essentiellement le même nombre de pics de PPV, mais ceux-ci seront situés à de plus grandes valeurs de  $|\mathbf{q}|$ . Malgré tout, il reste nécessaire de connaître à la fois le vecteur de diffusion et la position des îlots pour envisager l'impact réel de la variation de la cohérence temporelle.

Au bout du compte, l'objectif principal a quand même été atteint. Les caractéristiques structurales peuvent être extraites et utilisés comme données de base (*input*) dans la modélisation des mesures en diffraction de DIR et de DRXHR. Le seul paramètre encore ambigu reste la forme des îlots pour ceux ayant une certaine distribution de taille. Il serait intéressant à ce stade de comparer les paramètres de forme et de taille obtenus par la méthode de zones d'iso-contraintes (Kegel, 2000), qui utilise la répartition de la contrainte interne des îlots pour en déterminer la forme, sans la poser *a priori*. Mais comme cette méthode s'applique seulement aux îlots en surface, une comparaison avec des mesures de MFA est également souhaitable.

## 6.6 Faisabilité des mesures expérimentales

Au niveau de la réalisation de mesures associées aux simulations proposées, le montage requis est relativement simple. Le faisceau incident sur l'échantillon est gardé fixe et la détection se fait par un détecteur plan matriciel. Ainsi, il n'y a aucun composant du

montage qui se déplace pendant la mesure, une structure goniométrique motorisée n'est donc pas nécessaire. Par contre, l'alignement des composants se doit d'être précis.

Au niveau de la cohérence temporelle, il existe déjà sur le marché plusieurs types de monochromateurs qui ont des caractéristiques spectrales différentes ( $\Delta\lambda/\lambda$  allant typiquement de  $10^{-2}$  à  $10^{-5}$ ). La détermination des réseaux d'îlots proposée dans ce mémoire implique des mesures à deux ou trois valeurs différentes de la cohérence, ce qui peut se faire en changeant le monochromateur qui est devant la source de rayons X. En bref, la validation expérimentale des simulations numériques ne comporte pas d'obstacles techniques majeurs.

Cependant, le processus d'ajustement et d'alignement d'un monochromateur est long et fastidieux. Ainsi, la mise au point d'un dispositif de changement automatique continu de la cohérence temporelle serait donc plus à propos. Il est hors du cadre de ce travail de proposer des mécanismes de fonctionnement de tels dispositifs, mais plutôt simplement d'en déterminer l'intérêt. Au stade actuel des simulations numériques, la variation « continue » de la largeur spectrale n'est pas justifiée.

La dernière question à se poser concerne l'intensité incidente requise afin d'avoir un signal en diffusion détectable. À partir des équations 3.2, 3.5 et 3.6, on peut estimer que l'intensité diffusée par un ensemble d'îlots d'InAs est donnée par :

$$I_{\text{îlot}}(\mathbf{p}) \approx I_0 \frac{16}{|\mathbf{p}|^2} (Z_{\text{In}} + Z_{\text{As}})^2 r_e^2 \left( \frac{V_{\text{îlot}}}{V_{\text{el}}} \right)^2 \left( \sum_{j=1}^N e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}_j} \right)^2 \quad [6.3]$$

où  $\mathbf{p}$  est la position de l'observateur,  $r_e$  est le rayon classique de l'électron,  $V_{\text{îlot}}$  est le volume moyen des îlots,  $V_{\text{el}}$  est le volume de la maille cristalline élémentaire,  $N$  est le nombre total d'îlots,  $Z_{\text{In}}$  et  $Z_{\text{As}}$  sont respectivement le numéro atomique de l'indium et de l'arsenic. Le dernier terme de l'équation est la fonction d'interférence et sa valeur est comprise entre  $N$  et  $N^2$ , selon le degré d'ordre spatial des îlots. L'approximation 6.3 est valable seulement pour la région de l'espace réciproque très proche de l'origine ( $|\mathbf{q}| < 0,2 \text{ nm}^{-1}$ ). Pour des îlots identiques en forme de dôme avec  $P = 15 \text{ nm}$  et  $b = 5 \text{ nm}$ , l'intensité diffusée par cet ensemble est de l'ordre de  $5,2 \times 10^{-17} NI_0 / |\mathbf{p}|^2$  où  $\mathbf{p}$  a la dimension de  $[\text{m}]$ . Pour estimer l'intensité du signal diffusé, il faut également tenir compte de la surface effective recouverte par les îlots. Ainsi on a simplement que la fraction de surface couverte par des îlots est

$$\eta_{\text{eff}} = A \times N / S = A \times \rho \quad [6.4]$$

où  $A$  est l'aire recouverte par un îlot,  $N$  est le nombre total d'îlots,  $S$  est la surface de l'échantillon et  $\rho$  est la densité surfacique des îlots. En posant  $\rho = 10^8 \text{ mm}^{-2}$ , on a que  $\eta_{\text{eff}} = 0,07$ . Le nombre d'îlots est simplement donné par  $N = \rho \times S$ , où l'on pose que  $S = 20 \text{ mm}^2$ . Le dernier facteur à considérer est que le faisceau incident arrive sur l'échantillon avec un angle  $\alpha_i$  très faible (pour avoir une petite valeur de  $|\mathbf{q}|$ ), et l'intensité effective est ainsi  $I_{\text{eff}} = I_0 \sin(\alpha_i)$ . Pour une valeur typique, on prend  $\alpha_i \approx 0,1^\circ \Rightarrow \sin(\alpha_i) \approx 0,002$ . Finalement, l'intensité diffusée par l'ensemble des îlots de l'échantillon est de l'ordre de

$$I_{\text{éch}}(\mathbf{p}) \approx 5,2 \times 10^{-17} NI_0 \eta_{\text{eff}} \sin(\alpha_i) / |\mathbf{p}|^2, \quad [6.5]$$

ce qui donne  $I_{\text{éch}} \approx 1,3 \times 10^{-11} I_0 / |\mathbf{p}|^2$  avec les valeurs mentionnées précédemment. Il est donc tout à fait impensable de faire ce genre de mesures avec une source conventionnelle de rayons X où l'intensité émise est de l'ordre de  $10^5$  photons/seconde. L'usage d'un rayonnement synchrotron semble indispensable. Ce type de rayonnement permet d'atteindre facilement une intensité incidente de  $10^{12}$  photons/seconde (après monochromatisation). En ce qui concerne la collecte des données, le niveau minimal requis dépend du type de détecteur utilisé.

## 7 Conclusion et perspectives

### 7.1 Conclusion générale

Une démarche complète de caractérisation de nano-îlots auto-organisés par rayons X a été présentée. Chacune des quatre étapes de cette démarche permet d'extraire un paramètre structural des îlots à la fois. La taille et la forme des îlots sont obtenues par des mesures de diffusion à grande largeur spectrale de la source (faible cohérence temporelle). L'arrangement spatial de ces îlots est déduit par les mêmes mesures, mais en augmentant graduellement la longueur de cohérence. Les champs de contraintes sont extraits par des mesures de diffraction en incidence rasante. Finalement, l'épaisseur de la couche de mouillage est déterminée par des mesures de diffraction à grand angle et à haute résolution.

Les modèles théoriques pour les trois premières étapes ont été présentés dans le chapitre portant sur le formalisme. Le seul détail qui n'a pas été explicité est la forme du champ de contrainte interne des îlots  $\mathbf{u}(\mathbf{r}')$ . Concernant la première étape de la démarche, la très faible cohérence temporelle s'est révélée une méthode efficace pour isoler le signal de diffusion provenant presque exclusivement des îlots. La variation de la cohérence temporelle permet de caractériser efficacement les réseaux avec ordre à longue portée, mais la caractérisation de réseaux avec ordre à moyenne portée s'est révélée beaucoup moins évidente. Pour les réseaux avec ordre à courte portée, leur détection et leur caractérisation ne sont que peu aidées par la

variation de cohérence, étant donné que les résultats obtenus sont les mêmes, peu importe la cohérence temporelle choisie.

Ce travail se veut avant tout exploratoire. Il a permis de mettre en évidence que certaines mesures expérimentales peuvent tirer profit d'être faites à plusieurs largeurs spectrales différentes, sans pour cela exiger de variation continue de la cohérence temporelle.

## 7.2 Perspectives

Les suites immédiates à donner à ce travail, ainsi que celles à plus long terme, sont présentées ici.

Le point qui offre le plus de possibilités à court terme est le réseau avec ordre à moyenne portée. En effet, c'est le seul type de réseau qui n'a pu être pleinement caractérisé, alors que c'est lui qui semblait *a priori* être le mieux adapté à l'application de la cohérence variable. Le cas le plus simple de ce réseau a été abordé, c'est-à-dire deux réseaux OLP imbriqués l'un dans l'autre, qui ont la même distance nominale  $W$ , mais des paramètres de désordre distincts. Cependant, d'autres cas peuvent être envisagés pour décrire des cas observés par des mesures de microscope à force atomique. Par exemple, il semble que les îlots sont plus rapprochés les uns des autres dans les zones ordonnées. On pourrait alors simplement poser deux distances nominales distinctes  $W_I$  et  $W_O$ . De plus, au lieu de poser des paramètres de désordre distincts, on peut poser des distributions de taille des îlots différentes pour les zones ordonnées, en imposant que  $\sigma_{PI} < \sigma_{PO}$ . Cette dernière hypothèse se rapproche de l'approximation de monodispersité locale présentée au chapitre 2. Une autre méthode de génération serait d'utiliser un algorithme de réseau



OLP pour la zone ordonnée et un algorithme de réseau OCP pour les régions environnantes.

En ce qui concerne plus particulièrement l'analyse du réseau OCP, il serait intéressant d'étudier plus en détails le pic situé à  $q = 2\pi/2P_0$  (section 5.4.2) qui peut être associé à un processus de formation d'amas d'îlots, donc un genre d'ordre à moyenne portée. Finalement, il serait intéressant d'étudier plus à fond le phénomène selon lequel une grande dispersion de taille des îlots a tendance à détruire les pics d'interférence situés au-delà du premier minimum du facteur de diffusion. Ceci n'a jamais été relevé dans la littérature, principalement à cause du fait qu'il est impossible à observer dans un calcul basé sur l'approximation de taille et position découplées.

En ce qui concerne les suites à plus long terme, le premier ajout direct à la modélisation serait d'intégrer la variation de la largeur de cohérence, qui a été considérée infinie dans ce travail, afin de vérifier si cela apporterait des précisions au niveau de la caractérisation des réseaux avec ordre à courte et moyenne portée. De plus, l'intégration d'une multicouche d'îlots pourrait être faite afin de connaître l'influence de la cohérence variable sur la détermination de l'alignement vertical des îlots.

Au niveau de la contrainte cristalline, la façon d'intégrer la contrainte a été présentée, mais aucune forme n'a été suggérée. La forme que prendra la contrainte sera fort importante pour la suite des interprétations des mesures de diffraction à incidence rasante, mais aussi pour la caractérisation de la couche de mouillage.

Ultimement, la réalisation d'un programme informatique complet de simulations de mesures aux rayons X sur des nano-îlots auto-organisés serait bénéfique. Le programme de Lazzari (2002) pourrait être adapté spécifiquement à la démarche de caractérisation proposée dans ce mémoire, et augmenté pour faire des simulations de mesures en diffraction.

Au niveau expérimental, les mesures suggérées dans la première étape de la démarche impliquant la diffusion à largeur spectrale de la source peuvent être aisément faites sur un montage synchrotron muni d'un détecteur approprié. En effet, la largeur spectrale intrinsèque de la source (après monochromatisation) est de l'ordre de  $\Delta\lambda/\lambda \approx 1 \times 10^{-2}$ , pour la radiation d'aimants défecteurs (*bending magnets*). Cependant, pour les mesures à cohérence variable (deuxième étape de la démarche), deux options sont possibles. La première est d'utiliser différents monochromateurs avec leurs caractéristiques spectrales propres et de le changer à chaque valeur de  $\Delta\lambda/\lambda$  voulue. Étant donné que l'installation et l'alignement d'un monochromateur ne sont pas triviales, ce genre d'approche deviendrait rapidement pénible. L'autre option est de concevoir un monochromateur à cohérence variable ou la largeur spectrale pourrait être fixée dans un intervalle continu de valeurs. Mais avant de s'attaquer à la conception d'un tel appareil, beaucoup d'autres simulations seront nécessaires avant d'en motiver l'utilité.

## Références

ARAKAWA, Y., SAKAKI, H. (1982). Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current. *Applied Physics Letters*, **40**:11, 939-41.

BORN, M., WOLF, E. (1980). *Principles of optics electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light*. Oxford, Pergamon Press, 808 pages.

CHASON, E., MAYER, T.M. (1997). Thin film and surface characterization by specular X-ray reflectivity. *Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences*, **22**:1, 1-67.

COWLEY, J.M. (1981). *Diffraction Physics*. New York, North-Holland Publishing Company, 430 pages.

DARHUBER, A.A., SCHITTENHELM, P., HOLÝ, V., STANGL, J., BAUER, G., ABSTREITER, G. (1997). High resolution X-ray diffraction from multilayered self-assembled Ge dots. *Physical Review B (Condensed Matter)*, **55**:23, 1562-63.

EAGLESHAM, D.J., CERULLO, M. (1990). Dislocation-free Stranski-Krastanow growth of Ge on Si(100). *Physical Review Letters*, **64**:16, 1943-6.

GRUNDMANN, M., KROST, A. (2000). Atomic structure based simulation of X-ray scattering from strained superlattices. *Physica Status Solidi B*, **218**:2, 417-23.

GUINIER, A. (1963). *X-Ray Diffraction in Crystals, Imperfect Crystals and Amorphous Bodies*. San Francisco, Freeman, 378 pages.

GUINIER, A., FOURNET, G. (1955). *Small-angle scattering of X-rays*. New York, Wiley & Sons, 268 pages.

HOLÝ, V., BAUMBACH, T. (1994). Nonspecular X-ray reflection from rough multilayers, *Physical Review B (Condensed Matter)*, **49**:15, 10668-76.

HOLÝ, V., DARHUBER, A.A., STANGL, J., ZERLAUTH, S., SCHAFFLER, F., BAUER, G., DAROWSKI, N., LUBBERT, D., PIETSCH, U., VAVRA, I. (1998). Coplanar and grazing incidence X-ray-diffraction investigation of self-organized SiGe quantum dot multilayers. *Physical Review B (Condensed Matter)*, **58**:12, 7934-43.

HOLÝ, V., PIETSCH, U., BAUMBACH, T. (1999). *High-resolution X-ray scattering from thin films and multilayers*. Berlin, Springer, 256 pages.

IBERS, J.A., HAMILTON, W.C. (1973). *International tables for X-ray crystallography*. Birmingham, Kynoch Press for International Union of Crystallography.

KEGEL, I., METZGER, T.H., FRATZL, P., PEISL, J., LORKE, A., GARCIA, J.M., PETROFF, P.M. (1999). Interdependence of strain and shape in self-assembled coherent InAs islands on GaAs. *Europhysics Letters*, **45**:2, 222-7.

KEGEL, I., METZGER, T.H., PEISL, J., SCHITTENHELM, P., ABSTREITER, G. (1999b). Lateral ordering of coherent Ge islands on Si(001) studied by triple-crystal grazing incidence diffraction. *Applied Physics Letters*, **74**:20, 2978-80.

KEGEL, I., METZGER, T.H., LORKE, A., PEISL, J., STANGL, J., BAUER, G., GARCIA, J.M., PETROFF, P.M. (2000). Nanometer-scale resolution of strain and interdiffusion in self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review Letters*, **85**:8, 1694-7.

KROST, A., HEINRICHSBORFF, F., BIMBERG, D., BLASING, J., DARHUBER, A., BAUER, G. (1999). X-ray analysis of self-organized InAs/InGaAs quantum dot structure. *Crystal Research and Technology*, **34**:1, 89-102.

LAVAL, J.Y., KRET, S., DELAMARRE, C., BASSOUL, P., BENABBAS, T., ANDROUSSI, Y.R. (2002). Nanometric scale investigation of local strain in GaInAs islands by high resolution and analytical TEM. *Microscopy and Microanalysis*, **8**, 312-18.

LAZZARI, R. (2002). IsGISAXS: a program for grazing-incidence small angle X-ray scattering analysis of supported islands. *Journal of Applied Crystallography*, **35**:4, 406-21.

MARZIN, J.-Y., GÉRARD, J.-M., IZRAEL, A., BARRIER, D., BASTARD, G. (1994). Photoluminescence of single InAs quantum dots obtained by self-organized growth on GaAs. *Physical Review Letters*, **73**:5, 716-19.

MCGREEVY, R.L., PUSZTAI, L. (1988). Reverse Monte Carlo simulation: a new technique for the determination of disordered structures. *Molecular Simulation*, **1**, 359-67.

MEDUÑA, M., HOLÝ, V., ROCH, T., STANGL, J., BAUER, G., ZHU, J., BRUNNER, K., ABSTREITER, G. (2001). X-ray reflectivity of self-assembled structures in SiGe multilayers and comparison with atomic force microscopy. *Journal of Applied Physics*, **89**:9, 4836-42.

NÉVOT, L., CROCE, P. (1980). Characterisation of surfaces by grazing X-ray reflection. Application to the study of polishing some silicate glasses. *Revue de physique appliquée*, **15**:3, 761-79.

OHRING, M. (1992). *The materials science of thin films*. Boston, Academic Press, 704 pages.

OKUDA, H., OCHIAI, S, ITO, K., AMEMIYA, Y. (2002). Grazing-incidence small-angle scattering measurement of Ge Islands capped with a Si layer. *Applied Physics Letters*, **81**:13, 2358-60.

PAL, D., PAN, D., TOWE, E., CHEN, S.J. (2001). Characterization of (In,Ga,Al)As/GaAs quantum-dot superlattice structures by high-resolution X-ray diffraction. *Journal of Crystal Growth*, **233**:1-2, 34-9.

PARRATT, L.G. (1954). Surface studies of solids by total reflection of X-rays. *Physical Review*, **95**:2, 359-369.

PÉREZ, J.-P. (1991). *Optique géométrique, ondulatoire et polarisation : avec exercices et problèmes résolus*. Paris, Masson, 483 pages.

PUKITE, P.R., LENT, C.S., COHEN, P.I. (1985). Diffraction from stepped surfaces. II. Arbitrary terrace distributions. *Surface Science*, **161**:1, 39-68.

PUSZTAI, L., GEREBEN, O. (1995). Reverse Monte Carlo approach to the structure of amorphous semiconductors. *Journal of Non-Crystalline Solids*, **192-193**, 640-3.

RAUSCHER, M., SALDITT, T., SPOHN, H. (1995). Small-angle X-ray scattering under grazing incidence: the cross section in the distorted-wave Born approximation. *Physical Review B (Condensed Matter)*, **52**:23, 16855-63.

RAUSCHER, M., PANIAGO, R., METZGER, H., KOVATS, Z., DOMKE, J., PEISL, J., PFANNES, H.-D., SCHULZE, J., EISELE, I. (1999). Grazing incidence small angle X-ray scattering from free-standing nanostructures. *Journal of Applied Physics*, **86**:12, 6763-9.

ROBINSON, I.K., VARTANYANTS, I.A., WILLIAMS, G.J., PFEIFER, M.A., PITNEY, J.A. (2001). Reconstruction of the shapes of gold nanocrystals using coherent X-ray diffraction. *Physical Review Letters*, **87**:19, 195505-1-4.

SALEH, B.E.A., TEICH, M.C. (1991). *Fundamentals of Photonics*. New York, John Wiley & Sons, 966 pages.

SCHMIDBAUER, M., WIEBACH, Th., RAIDT, H., HANKE, M., KÖHLER, R., WAWRA, H. (1998). Ordering of self-assembled  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  islands studied by grazing incidence small-angle X-ray scattering and atomic force microscopy. *Physical Review B (Condensed Matter)*, **58**:16, 10523-31.

SINHA, S.K., SIROTA, E.B., GAROFF, S., STANLEY, H.B. (1988). X-ray and neutron scattering from rough surfaces. *Physical Review B (Condensed Matter)*, **38**:4, 2297-311.

STANGL, J., HOLÝ, V., MIKULIK, P., BAUER, G., KEGEL, I., METZGER, T.H., SCHMIDT, O.G., LANGE, C., EBERL, K. (1999). Self-assembled carbon-induced germanium quantum dots studied by grazing-incidence small-angle X-ray scattering. *Applied Physics Letters*, **74**:25, 3785-7.

STANGL, J., HOLÝ, V., ROCH, T., DANIEL, A., BAUER, G., ZHU, J., BRUNNER, K., ABSTREITER, G. (2000). Grazing incidence small-angle X-ray scattering study of buried and free-standing SiGe islands in a SiGe/Si superlattice. *Physical Review B (Condensed Matter)*, **62**:11, 7229-36.

TREACY, M.M.J., GIBSON, J.M. (1996). Variable coherence microscopy: a rich source of structural information from disordered materials. *Acta Crystallographica, Section A (Foundations of Crystallography)*, **A52**:2, 212-20.



WILLIAMS, A.A., THORNTON, J.M.C., MACDONALD, J.E., VAN SILFHOUT, R.G., VAN DER VEEN, J.F., FINNEY, M.S., JOHNSON, A.D., NORRIS, C. (1991). Strain relaxation during the initial stages of growth in Ge/Si(001). *Physical Review B (Condensed Matter)*, **43**:6, 5001-11.

YAMAGUCHI, K., YUJOBO, K., KAIZU, T. (2000). Stranski-Krastanov growth of InAs quantum dots with narrow size distribution. *Japanese Journal of Applied Physics, Part 2 (Letters)*, **39**:12A, L1245-8.

ZHANG, K., HEYN, Ch., HANSEN, W., SCHMIDT, Th., FALTA, J. (2000). Ordering and shape of self-assembled InAs quantum dots on GaAs(001). *Applied Physics Letters*, **76**:16, 2229-31.

ZUNGER, A. (1998). Semiconductor quantum dots. *MRS Bulletin*, **23**:2, 15-17.

## Annexe 1

Développement de l'équation 3.26.

$$\begin{aligned}
 I(\mathbf{q}) &\propto \int \left| \sum_{m=1}^N D_m \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) e^{i \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \mathbf{R}_m} \right|^2 \Lambda_g(\omega, \omega_0, \Delta\omega) d\omega \\
 &= \int \left( \sum_{m=1}^N D_m \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) e^{i \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \mathbf{R}_m} \right) \left( \sum_{m=1}^N D_m \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) e^{i \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \mathbf{R}_m} \right)^* \Lambda_g(\omega, \omega_0, \Delta\omega) d\omega \\
 &= \frac{1}{2} \int \sum_{k=1}^N \sum_{j=1}^N \left( D_k \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) D_j^* \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) e^{i \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} (\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_j)} + D_j \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) D_k^* \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) e^{i \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} (\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_k)} \right) \Lambda_g(\omega, \omega_0, \Delta\omega) d\omega \\
 &= \sum_{1 \leq j < k \leq N} \int \left( D_k \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) D_j^* \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) e^{i \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} (\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_j)} + D_j \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) D_k^* \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) e^{i \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} (\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_k)} \right) \Lambda_g(\omega, \omega_0, \Delta\omega) d\omega \\
 &= \sum_{1 \leq j < k \leq N} \int \left( D_k \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) D_j^* \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) e^{i \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} (\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_j)} + D_j \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) D_k^* \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) e^{i \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} (\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_k)} \right) \Lambda_g(\omega, \omega_0, \Delta\omega) d\omega \\
 &\quad + \sum_{m=1}^N \int D_m \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) D_m^* \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) \Lambda_g(\omega, \omega_0, \Delta\omega) d\omega
 \end{aligned}$$

La fonction de distribution spectrale est donnée par l'équation 3.24. Le développement tient compte de l'hypothèse 3.27 et aussi de :

$$\int D_k \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) D_j^* \left( \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} \right) e^{i \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} (\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_j)} \Lambda_g(\omega, \omega_0, \Delta\omega) d\omega \approx D_k(\mathbf{q}) D_j^*(\mathbf{q}) \int e^{i \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} (\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_j)} \Lambda_g(\omega, \omega_0, \Delta\omega) d\omega$$

étant donné que la variation du facteur de diffusion est lente par rapport au terme de phase et que l'intégrale se fait sur une fonction très piquée. Le résultat de la dernière intégrale est

$$\int e^{i \frac{\omega}{\omega_0} \mathbf{q} (\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_j)} \Lambda_g(\omega, \omega_0, \Delta\omega) d\omega = e^{i \mathbf{q} (\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_j)} e^{\left( \frac{-1}{2} \left( \frac{\Delta\omega}{\omega_0} \mathbf{q} (\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_j) \right)^2 \right)}$$

Ce qui donne l'équation 3.26 :

$$\sum_{1 \leq j < k \leq N} \sum \left( D_k(\mathbf{q}) D_j^*(\mathbf{q}) e^{i \mathbf{q} (\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_j)} + D_j(\mathbf{q}) D_k^*(\mathbf{q}) e^{i \mathbf{q} (\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_k)} \right) \times e^{\left( \frac{-(\mathbf{q} (\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_j))^2}{2} \left( \frac{\Delta\omega}{\omega_0} \right)^2 \right)} + \sum_{m=1}^N |D_m(\mathbf{q})|^2$$

## Annexe 2

Cette annexe contient le code des équations utilisées pour les simulations numériques de ce mémoire. Ces équations sont codées en langage Matlab et ont été compilées sur la version 6.5.

### Notes

- le caractère « % » représente une ligne de commentaires (ligne de code non compilée);
- les mots soulignés représentent des fonctions fournies avec le logiciel Matlab version 6.5;
- les mots doublement soulignés représentent des fonctions générées par l'auteur.

### Entêtes des fonctions

#### **Facteur de diffusion d'un îlot**

```
function y = factform_dot2
% Calcule la transformée de Fourier du facteur de forme d'un îlot
% de base circulaire en coordonnées cylindriques, en faisant l'intégration
% numérique.
% Basée sur l'équation 3.13.
% -> Retourne un vecteur complexe contenant l'amplitude de la transformée
% de Fourier.
```

---

```
function y = intff_dot_cy;
% Intégrant pour le calcul du facteur de forme d'un cylindre.
% Basée sur les équations 3.12 et 3.13.
```

---

```
function y = intff_dot_co;
% Intégrant pour le calcul du facteur de forme d'un cône.
% Basée sur les équations 3.12 et 3.13.
```

---

```
function y = intff_dot_ls;
% Intégrant pour le calcul du facteur de forme d'un dôme.
% Basée sur les équations 3.12 et 3.13.
```

---

```
function y = intff_dot_clo;
% Intégrant pour le calcul du facteur de forme d'une cloche.
% Basée sur les équations 3.12 et 3.13.
```

---

## Réseaux bidimensionnels

```
function y = array_dot_sqr;
% Calcule la taille et la position d'îlots dans un réseau carré de
% structure carrée avec ordre à longue portée (OLP).
% Basée sur l'équation 3.27.
% -> Retourne un tableau contenant 6 paramètres pour les N îlots,
% soit la position (x,y,z), la hauteur, le rayon et la forme.
```

---

```
function y = array_dot_hex;
% Calcule la taille et la position d'îlots dans un réseau carré de
% structure hexagonale avec ordre à longue portée (OLP).
% Basée sur l'équation 3.27.
% -> Retourne un tableau contenant 6 paramètres pour les N îlots,
% soit la position (x,y,z), la hauteur, le rayon et la forme.
```

---

```
function y = array_dot_medrange;
% Calcule la taille et la position d'îlots dans un réseau carré de
% structure carrée avec ordre à moyenne portée (OMP).
% Basée sur l'équation 3.27 et la section 3.6.2.
% -> Retourne un tableau contenant 6 paramètres pour les N îlots,
% soit la position (x,y,z), la hauteur, le rayon et la forme.
```

---

```
function y = array_dot_smc_v2;
% Calcule la taille et la position d'îlots dans un réseau carré de
% l'algorithme d'ordre à courte portée (OCP).
% Basée sur la section 3.6.3 (et la figure 3.6).
% -> Retourne un tableau contenant 6 paramètres pour les N îlots,
% soit la position (x,y,z), la hauteur, le rayon et la forme.
```

---

```
function y = stat_rezoshort;
% Calcule la distance moyenne des îlots premiers voisins ainsi que
% l'écart-type de la distribution de ces distances.
% Basée sur la section 3.6.3 (et la figure 3.7).
% -> Retourne 3 valeurs : la moyenne, l'écart-type et le nombre total de PPV.
```

---

## Approximation de Born par onde modifiée (ABOM)

```
function y = angles_vers_vq;
% Convertit les valeurs angulaires de l'appareillage XRS
% en coordonnées de l'espace réciproque.
% Basée sur l'équation 3.1.
% -> Retourne un vecteur à 4 composantes : (qx, qr, qz, qr).
```

---

```
function y = func_calcul_map_DWBA_surf;
% Calcule le facteur de diffusion d'un îlot en surface dans
% l'approximation de Born par onde modifiée (ABOM).
% Permet de visualiser l'influence des quatre processus de diffusion
% pour une taille et une forme données. On peut se
% servir de cette fonction pour des cartographies sur la distribution
% de taille. Les angles incidents sont gardés fixes alors que les angles
% émergents sont balayés (par un détecteur plan ou linéaire).
% Basée sur les équations 3.17 et 3.18.
% -> Renvoie une matrice contenant de l'amplitude complexe du facteur
% de diffusion de l'îlot en surface.
```

---

```
function y = angles_vers_vq_cap;
% Convertit les valeurs angulaires de l'appareillage XRS
% en coordonnées de l'espace réciproque pour un îlot enfoui, c'est-à-dire que
% l'on tient compte de la modification de la composante kz due à la réfraction.
% Basée sur les équations 3.1 et 3.19.
% -> Retourne un vecteur à 4 composantes : (qx, qr, qz, qr) qui peut
% avoir des valeurs complexes.
```

---

```
function y = func_calcul_map_DWBA_cap;
% Calcule le facteur de diffusion d'un îlot enfoui dans
% l'approximation de Born par onde modifiée (ABOM) pour un
% îlot de forme et de taille données. On peut se servir de
% cette fonction pour des cartographies sur la distribution
% de taille. Les angles incidents sont gardés fixes alors
% que les angles émergents sont balayés (par un détecteur
% plan ou linéaire).
% Basée sur l'équation 3.21.
% -> Renvoie une matrice contenant de l'amplitude complexe du facteur
% de diffusion de l'îlot enfoui.
```

---

```
% Procédure mapping_DWBA_rezo_surf_cap
%
% Procédure complète intégrant le réseau d'îlots, les facteurs de
% diffusion, la largeur spectrale de la source et la configuration
% expérimentale.
% Basée sur l'équation 3.26.
% -> Trace le graphique tridimensionnel de l'intensité diffusée
% en fonction des angles émergents.
```

---

## **Code complet**

### **Facteur de diffusion d'un îlot**

```
function y = factform_dot2(qz,qr,P,khi,b,shape);
% qz,qr : coordonnées dans l'espace réciproque (cylindrique, nm-1)
% 2*P : diamètre de la base (nm);
% khi : polarisabilité du matériau;
% b : hauteur de l'îlot (nm);
% shape : forme de l'îlot (1:cône, 2:cylindre, 3:dôme, 4:cloche)

e_int = ones(size(qz));
fin = length(e_int);

% Calcul numérique de l'intégrale selon z (bornes de 0 à h)
if (shape == 1) % cône
    for ui = 1:fin
        e_int(ui)=quad(@intff_dot_co,0,h,1e-5,[],qz(ui),qr(ui),P,b);
    end
end
if (shape == 2) % cylindre
    for ui = 1:fin
        e_int(ui)=quad(@intff_dot_cy,0,h,1e-8,[],qz(ui),qr(ui),P,b);
    end
end
if (shape == 3) % dôme
    for ui = 1:fin
        e_int(ui)=quad(@intff_dot_ls,0,h,1e-5,[],qz(ui),qr(ui),P,b);
    end
end
if (shape == 4) % cloche
    for ui = 1:fin
```

```

        e_int(ui)=quad(@intff_dot_clo,0,h,1e-5,[],qz(ui),qr(ui),P,b);
    end
end

y = khi*2*pi.*e_int;

function y = intff_dot_cy(z,qz,qr,P,b);
%      z      : variable d'intégration;
%      qz,qr   : coordonnées dans l'espace réciproque (cylindrique, nm^-1)
%      2*P     : diamètre de la base (nm);
%      b       : hauteur de l'îlot (nm)

% Fonction de contour
a1 = P;
y = exp(j*z*qz).*a1.*besselj(1,a1*qr)./qr;

function y = intff_dot_co(z,qz,qr,P,b);
%      Les paramètres de cette fonction sont les mêmes que intff_dot_cy.

% Fonction de contour
a1 = P*(1-z./b);
y = exp(j*z*qz).*a1.*besselj(1,a1*qr)./qr;

function y = intff_dot_ls(z,qz,qr,P,b);
%      Les paramètres de cette fonction sont les mêmes que intff_dot_cy.

% Fonction de contour
a1 = P.*sqrt(1-z./b);
y = exp(j*z*qz).*a1.*besselj(1,a1*qr)./qr;

function y = intff_dot_clo(z,qz,qr,P,b);
%      Les paramètres de cette fonction sont les mêmes que intff_dot_cy.

% Fonction de contour
a1 = 2*P/pi*acos((z./b).^4);
y = exp(j*z*qz).*a1.*besselj(1,a1*qr)./qr;

```

## Réseaux bidimensionnels

```

function y = array_dot_sqr(nbdots,dist,tau,P,sP,ratio,shape,prof);
%      nbdots : nombre de points, qui sera arrondi au carré parfait le plus près
%      dist   : longueur d'un côté d'une maille élémentaire (nm)
%      tau    : fraction devant la distribution normale de position aléatoire
%      P      : rayon moyen de la base (nm)
%      sP     : écart-type du rayon moyen de la base (en pct)
%      ratio  : rapport d'aspect (P/b = ratio)
%      shape  : forme des îlots (1:cône, 2:cylindre, 3:dôme, 4:cloche)
%      prof   : profondeur de la couche (=0 pour la surface)

temp = round(sqrt(nbdots));
nbdots = temp^2;
rezo = ones(nbdots,6); %variable contenant les positions et tailles des îlots

for qw = 1:temp
    for as = 1:temp
        ind = temp*(qw-1) + as;
        th = 2*pi*rand;
        rxy = randn;
        rezo(ind,1) = dist * ( as-(temp+1)/2 + tau*rxy*cos(th));
        rezo(ind,2) = dist * ( qw-(temp+1)/2 + tau*rxy*sin(th));
        rezo(ind,3) = prof;
        rezo(ind,5) = P*(1 + sP*randn);
        rezo(ind,4) = rezo(ind,5)/ratio;
    end
end

```

```

        rezo(ind,6)          = shape;
    end
end
y = rezo;

```

---

```

function y = array_dot_hex(nbdots,dist,tau,P,sP,ratio,shape,prof);
%     Les paramètres sont les mêmes que la fonction array_dot_sqr

temp    = round(sqrt(nbdots));
nbdots  = temp^2;
rezo = ones(nbdots,6); %variable contenant les positions et tailles des ilots

for qw = 1:temp
    for as = 1:temp
        ind          = temp*(qw-1) + as;
        th           = 2*pi*rand;
        rxy          = randn;
        rezo(ind,1)  = dist*( as-(temp+1)/2 + mod(qw,2)*0.5 + tau*rxy*cos(th));
        rezo(ind,2)  = dist*( (qw-(temp+1)/2)*.86603 + tau*rxy*sin(th));
        rezo(ind,3)  = prof;
        rezo(ind,5)  = P*(1 + sP*randn);
        rezo(ind,4)  = rezo(ind,5)/ratio;
        rezo(ind,6)  = shape;
    end
end
y = rezo;

```

---

```

function y = array_dot_medrange(nbdots,dist,taul,tau2,lmp,P,sP,ratio,shape,prof);
%     Les paramètres nbdots, dist, P, sP, ratio, shape et prof sont les
%     mêmes que la fonction array_dot_sqr.
%     taul    : paramètre de désordre de la zone LMP
%     tau2    : paramètre de désordre à l'extérieur de la zone LMP
%     lmp     : taille de la zone avec ordre à moyenne portée (nm)

temp    = round(sqrt(nbdots));
nbdots  = temp^2;

rezo = ones(nbdots,6); %variable contenant les positions et tailles des îlots

for qw = 1:temp
    for as = 1:temp
        ind          = temp*(qw-1) + as;
        th           = 2*pi*rand;
        rxy          = randn;
        xtemp        = dist * (as-(temp+1)/2);
        ytemp        = dist * (qw-(temp+1)/2);
        if (abs(xtemp) < lmp/2) & (abs(ytemp) < lmp/2)
            frac_haz  = taul;
        else
            frac_haz  = tau2;
        end
        rezo(ind,1)  = xtemp + dist * frac_haz*rxy*cos(th);
        rezo(ind,2)  = ytemp + dist * frac_haz*rxy*sin(th);
        rezo(ind,3)  = prof;
        rezo(ind,5)  = P*(1 + sP*randn);
        rezo(ind,4)  = rezo(ind,5)/ratio;
        rezo(ind,6)  = shape;
    end
end
y = rezo;

```

---

```

function y =
array_dot_smc_v2(nbdots,dmoy_vise,dect_vise,nbmax,P,sP,ratio,shape,prof,p_m,p_s,p_r);
%     nbdots      : nombre d'îlots du réseau;
%     dmoy_vise   : distance moyenne visée (nm);

```

```

%      dect_vise      : écart-type visé pour les distances (nm);
%      nbmax         : nombre d'itération du processus Monte-Carlo;
%      P             : rayon moyen de la base (nm)
%      sP            : écart-type du rayon moyen de la base (en pct)
%      ratio         : rapport d'aspect (P/b = ratio)
%      shape         : forme des flots (1:cône, 2:cylindre, 3:dôme, 4:cloche)
%      prof          : profondeur de la couche (=0 pour la surface)
%      p_m           : probabilité d'acceptation de la distance moyenne;
%      p_s           : probabilité d'acceptation de l'écart-type;
%      p_r           : probabilité d'acceptation d'un mauvais déplacement;
%      NB: on doit avoir que (p_m + p_s + p_r) = 1;

% ---- création du réseau initial ----
rand('state',sum(100*clock));
dimxy      = dmoy_vise*sqrt(nbdots)*1.1;
rezo       = ones(nbdots,6);

% positionnement du premier flot
zx         = 1;
rezo(zx,1) = (rand-.5)*dimxy;
rezo(zx,2) = (rand-.5)*dimxy;
rezo(zx,3) = prof;
rezo(zx,5) = P*(1 + sP*randn);
rezo(zx,4) = rezo(zx,5)/ratio;
rezo(zx,6) = shape;
taille     = 1;

% ---- boucle de positionnement aléatoire des flots restants ----
% (le positionnement est refusé s'il y a chevauchement d'flots)
for zx = 2:nbdots
    while (taille ~= zx)
        rezot      = rezo;
        rezo(zx,1) = (rand-.5)*dimxy;
        rezo(zx,2) = (rand-.5)*dimxy;
        rezo(zx,3) = prof;
        rezo(zx,5) = P*(1 + sP*randn);
        rezo(zx,4) = rezo(zx,5)/ratio;
        rezo(zx,6) = shape;
        bidon      = annihiletouche_6p_1dot(rezo(1:zx,:),zx);
        taille     = length(bidon(:,1));
    end
end

% --- calcul des statistiques du réseau initial ----
rezodep    = rezo;
vstat      = stat_rezoshort(rezo,dmoy_vise);
vstat_d    = vstat;
nbmoveok   = 0;

% ---- boucle du déplacement aléatoire des flots ----
for qw = 1:nbmax;
    rezot    = rezo;
    % sélection de l'ilot à déplacer
    bid      = round(rand*nbdots);
    vol      = max(1,bid);
    vol      = min(vol,nbdots);
    % déplacement aléatoire
    bet      = rand*2*pi;
    depl     = dist/4 + 3*randn;
    rezot(vol,1) = rezot(vol,1) + depl*cos(bet);
    rezot(vol,2) = rezot(vol,2) + depl*sin(bet);
    rezott   = annihiletouche_6p_1dot(rezot,vol);

    % vérification de chevauchement
    if length(rezot(:,1)) == length(rezott(:,1))

```



```

% calcul des statistiques du nouveau réseau
vstat_t = stat_rezoshort(rezot,dmoy_vise);
% calcul de la probabilité d'acceptation
prob = p_r;
% vérification du rapprochement de la moyenne visée
if (abs(dmoy_vise - vstat_t(1)) < abs(dmoy_vise - vstat(1)))
    prob = prob + p_m;
end
% vérification du rapprochement de l'écart-type visé
if (abs(dect_vise - vstat_t(2)) < abs(dect_vise - vstat(2)))
    prob = prob + p_s;
end

% tirage au sort pour l'acceptation du déplacement
if rand < prob
    % le nouveau réseau est accepté
    rezo = rezot;
    nbdots = length(rezo(:,1));
    vstat = vstat_t;
    nbmoveok = nbmoveok + 1;
end
end
end

y = rezo;

```

---

```

function y = stat_rezoshort(rezo, distc);
% rezo : tableau à 6 colonnes contenant le réseau d'îlots;
% distc : distance caractéristique entre les îlots;

% création du réseau de Voronoi
nbdots = length(rezo(:,1));
[vv,cc] = voronoin([rezo(:,1) rezo(:,2)]);

% initialisation des variables de sommation
ddx = 0;
dds = 0;
ntppv = 0;

for nj = 1:nbdots
    % initialisation des noeuds de l'îlot #nj
    vtemp = cc{nj};
    lv = length(vtemp);
    % vérification de la fermeture de la cellule de Voronoi
    % le noeud #1 correspond à une cellule non-fermée
    if (length(find(vtemp==1)) == 0)
        % calcul des distances entre l'îlot #nj et ses voisins
        dd = zeros(1,lv);
        PPy = rezo(nj,2);
        PPx = rezo(nj,1);
        BB = zeros(lv,2);
        BB(1:lv-1,:) = vv(vtemp(2:lv),:);
        BB(lv,:) = vv(vtemp(1),:);
        AA = vv(vtemp,:);
        aix = PPx-AA(:,1);
        aiy = PPy-AA(:,2);
        uix = BB(:,1)-AA(:,1);
        uiy = BB(:,2)-AA(:,2);
        lui = sqrt(uix.^2+uiy.^2);
        perim = sum(lui);

        % mise à l'écart des pseudo-cellules fermées
        if perim < 10*distc
            % sommation des statistiques de l'îlot #nj
            ddx = 2*(abs(aix.*uiy-aiy.*uix))./lui;

```

```

        ddx      = ddx + sum(dd);
        dds      = dds + sum(dd.^2);
        ntppv    = ntppv + lv;
    end
end

% calcul de la moyenne et de l'écart-type
dmoy      = ddx/ntppv;
dect      = sqrt(dds/ntppv - dmoy^2);

sortie    = ones(3,1);
sortie(1) = dmoy;
sortie(2) = dect;
sortie(3) = ntppv;

y = sortie;

```

---

## Approximation de Born par onde modifiée (ABOM)

```

function y = angles_vers_vq(nbpts,lambda,thetai,thetaf,alphai,alphaf)
%     nbpts : nombre de points;
%     lambda : longueur d'onde (nm);
%     thetai : angle azimutal incident (deg);
%     thetaf : angle azimutal émergent (deg);
%     alphai : angle zénithal incident (deg);
%     alphaf : angle zénithal émergent (deg);
%
% Note I : thetaf et alphaf sont les angles du faisceau diffracté
% émergent, et non les angles finaux d'un balayage. Autrement dit, thetai
% et thetaf ne sont aucunement reliés, de même que pour alphai et alphaf.
% Note II : les valeurs angulaires peuvent être soit scalaires (angle fixe),
% soit vectoriels avec nbpts éléments. Si ce n'est pas le cas,
% les variables fautives sont redimensionnées.

cte      = pi/180; % pour la conversion en radians
% ici, tous les vecteurs d'angles sont systématiquement redimensionnés
nbtemp   = length(thetai);
thetai   = linspace(thetai(1)*cte, thetai(nbtemp)*cte, nbpts)';
nbtemp   = length(thetaf);
thetaf   = linspace(thetaf(1)*cte, thetaf(nbtemp)*cte, nbpts)';
nbtemp   = length(alphai);
alphai   = linspace(alphai(1)*cte, alphai(nbtemp)*cte, nbpts)';
nbtemp   = length(alphaf);
alphaf   = linspace(alphaf(1)*cte, alphaf(nbtemp)*cte, nbpts)';

vect_q   = ones(nbpts,4);

% calcul du vecteur du réseau réciproque à partir des angles expérimentaux
vect_q(:,1) = 2*pi/lambda*(cos(alphaf).*cos(thetaf) - cos(alphai).*cos(thetai));
vect_q(:,2) = 2*pi/lambda*(cos(alphaf).*sin(thetaf) + cos(alphai).*sin(thetai));
vect_q(:,3) = 2*pi/lambda*(sin(alphaf) + sin(alphai));
vect_q(:,4) = sqrt(vect_q(:,1).^2 + vect_q(:,2).^2);

y = vect_q;

```

---

```

function y =
func_calcul_map_DWBA_surf(lambda,n1,n2,thetai,alphai,thetafa,thetafb,nb_tf,alphafa,
alphafb,nb_af,P,b,shape,khi,interpo,quatpr);
%     lambda : longueur d'onde en (nm)
%     n1      : indice de réfraction de l'atmosphère ambiant
%     n2      : indice de réfraction du substrat
%     thetai  : angle azimutal incident (deg)
%     alphai  : angle zénithal incident (deg)

```

```

%      thetafa : angle azimutal émergent initial (deg)
%      thetafb : angle azimutal émergent final (deg)
%      nb_tf   : nombre de pas de thetaf
%      alphafa : angle zénithal émergent initial (deg)
%      alphafb : angle zénithal émergent final (deg)
%      nb_af   : nombre de pas de alphaf
%      P       : rayon de la base d'un flot (nm)
%      b       : hauteur d'un flot (nm)
%      shape   : forme de l'îlot (voir la fonction factform_dot2)
%      khi     : polarisabilité du matériau
%      interpo : =0 (pas d'interpolation), = n (interpolation Matlab);
%      quatpr  : ='o' (ABOM), ='n' (ABorn);
% Note : Quand on s'attend à une variation lente du facteur de forme,
% interpo peut prendre n'importe quelle valeur numérique positive
% et cela divise le nombre de points de calcul par cette valeur.
% Il est conseillé de garder la valeur de interpo inférieure à 10.

vect_tf   = linspace(thetafa,thetafb,nb_tf);
vect_af   = linspace(alphafa,alphafb,nb_af);

if (interpo ~= 0)
    nb_af_int = abs(max(8,fix(nb_af/interpo)));
end

% ----- Processus 1 -----
alpha1    = alpha;
vect_af1   = linspace(alphafa,alphafb,nb_af);
result1    = ones(nb_tf,nb_af);

if (interpo == 0)
    % calcul sans interpolation
    for qw = 1: nb_tf
        vq = angles_vers_vq(nb_af,lambda,thetai,vect_tf(qw),alpha1,vect_af1);
        result1(qw,:) = factform_dot2(vq(:,3),vq(:,4),P,khi,b,shape);
    end
else
    % calcul avec interpolation
    vect_afint = linspace(alphafa,alphafb,nb_af_int);
    for qw = 1: nb_tf
        vq = angles_vers_vq(nb_af_int,lambda,thetai,vect_tf(qw),alpha1,vect_afint);
        tempor = factform_dot2(vq(:,3),vq(:,4),P,khi,b,shape);
        result1(qw,:) = interp1(vect_afint,tempor,vect_af,'spline');
    end
end

% calcul dans l'ABOM si désiré
if (quatpr=='o')

% ----- Processus 2 -----
alpha12    = -alpha;
vect_af2    = linspace(alphafa,alphafb,nb_af);
result2     = ones(nb_tf,nb_af);
if (interpo == 0)
    % calcul sans interpolation
    for qw = 1: nb_tf
        vq = angles_vers_vq(nb_af,lambda,thetai,vect_tf(qw),alpha12,vect_af2);
        result2(qw,:) = factform_dot2(vq(:,3),vq(:,4),P,khi,b,shape);
    end
else
    % calcul avec interpolation
    vect_afint2 = linspace(alphafa,alphafb,nb_af_int);
    for qw = 1: nb_tf
        vq =
            angles_vers_vq(nb_af_int,lambda,thetai,vect_tf(qw),alpha12,vect_afint2);
        tempor = factform_dot2(vq(:,3),vq(:,4),P,khi,b,shape);
        result2(qw,:) = interp1(vect_afint2,tempor,vect_af,'spline');
    end
end

```

```

end
end

% ----- Processus 3 -----
alpha3 = alpha1;
vect_af3 = linspace(-alphafa,-alphafb,nb_af);
result3 = ones(nb_tf,nb_af);
if (interpo == 0)
    % calcul sans interpolation
    for qw = 1:nb_tf
        vq = angles_vers_vq(nb_af,lambda,thetai,vect_tf(qw),alpha3,vect_af3);
        result3(qw,:) = factform_dot2(vq(:,3),vq(:,4),P,khi,b,shape);
    end
else
    % calcul avec interpolation
    vect_afint3 = linspace(-alphafa,-alphafb,nb_af_int);
    for qw = 1:nb_tf
        vq =
            angles_vers_vq(nb_af_int,lambda,thetai,vect_tf(qw),alpha3,vect_afint3);
        tempor = factform_dot2(vq(:,3),vq(:,4),P,khi,b,shape);
        result3(qw,:) = interp1(vect_afint',tempor,vect_af','spline');
    end
end

% ----- Processus 4 -----
alpha4 = -alpha1;
vect_af4 = linspace(-alphafa,-alphafb,nb_af);
result4 = ones(nb_tf,nb_af);
if (interpo == 0)
    % calcul sans interpolation
    for qw = 1:nb_tf
        vq = angles_vers_vq(nb_af,lambda,thetai,vect_tf(qw),alpha4,vect_af4);
        result4(qw,:) = factform_dot2(vq(:,3),vq(:,4),P,khi,b,shape);
    end
else
    % calcul avec interpolation
    vect_afint4 = linspace(-alphafa,-alphafb,nb_af_int);
    for qw = 1:nb_tf
        vq =
            angles_vers_vq(nb_af_int,lambda,thetai,vect_tf(qw),alpha4,vect_afint4);
        tempor = factform_dot2(vq(:,3),vq(:,4),P,khi,b,shape);
        result4(qw,:) = interp1(vect_afint',tempor,vect_af','spline');
    end
end

% ----- Coefficients de réflexion -----
% calcul des coefficients de Fresnel
ri = coeff_fresnel(n1,n2,alpha1,vect_af,1);
rf = coeff_fresnel(n1,n2,alpha1,vect_af,3);

result2r = ones(nb_tf,nb_af);
result3r = ones(nb_tf,nb_af);
result4r = ones(nb_tf,nb_af);

for zx = 1:nb_tf
    result2r(zx,:) = result2(zx,:).*ri;
    result3r(zx,:) = result3(zx,:).*rf;
    result4r(zx,:) = result4(zx,:).*ri.*rf;
end
% sommation en amplitude des 4 processus de diffusion
y = result1 + result2r + result3r + result4r;
else
    y = result1;
end
end

```

---

```

function y = angles_vers_vq_cap(nbpts,lambda,n1,n2,thetai,thetaf,alphai,alphaf);
% nbpts : nombre de points;
% lambda : longueur d'onde (nm);
% n1 : indice de réfraction du milieu ambiant;
% n2 : indice de réfraction de la couche;
% thetai : angle azimutal incident (deg);
% thetaf : angle azimutal émergent (deg);
% alphai : angle zénithal incident (deg);
% alphaf : angle zénithal émergent (deg);
% Note I : thetaf et alphaf sont les angles du faisceau diffracté
% émergent, et non les angles finaux d'un balayage. Autrement dit, thetai
% et thetaf ne sont aucunement reliés, de même que pour alphai et alphaf.
% Note II : les valeurs angulaires peuvent être soit scalaires (angle fixe),
% soit vectoriels avec nbpts éléments. Si ce n'est pas le cas,
% les variables fautives sont redimensionnées.

cte = pi/180; % pour la conversion en radians
% ici, tous les vecteurs d'angles sont systématiquement redimensionnés
nbtemp = length(thetai);
thetai = linspace(thetai(1)*cte, thetai(nbtemp)*cte, nbpts)';
nbtemp = length(thetaf);
thetaf = linspace(thetaf(1)*cte, thetaf(nbtemp)*cte, nbpts)';
nbtemp = length(alphai);
alphai = linspace(alphai(1)*cte, alphai(nbtemp)*cte, nbpts)';
nbtemp = length(alphaf);
alphaf = linspace(alphaf(1)*cte, alphaf(nbtemp)*cte, nbpts)';

vect_q = ones(nbpts,4);

% calcul des vecteurs d'onde à partir des angles expérimentaux
kox = 2*pi/lambda*cos(alphai).*cos(thetai);
koy = 2*pi/lambda*cos(alphai).*sin(thetai);
kfx = 2*pi/lambda*(cos(alphaf).*cos(thetaf));
kfy = 2*pi/lambda*(cos(alphaf).*sin(thetaf));
% correction pour la réfraction
kozp = sqrt((n2*2*pi/lambda)^2 - (kox.^2 + koy.^2));
kfzp = sqrt((n2*2*pi/lambda)^2 - (kfx.^2 + kfy.^2));

% calcul du vecteur du réseau réciproque à partir des vecteurs d'onde
vect_q(:,1) = kfx - kox;
vect_q(:,2) = kfy + koy;
vect_q(:,3) = kfzp + kozp;
vect_q(:,4) = sqrt(vect_q(:,1).^2 + vect_q(:,2).^2);

y = vect_q;

```

---

```

function y =
func_calcul_map_DWBA_cap(lambda,n1,n2,thetai,alphai,thetafa,thetafb,nb_tf,alphafa,
alphafb,nb_af,P,b,prof,shape,khi,interpo);
% Les paramètres sont les mêmes que la fonction func_calcul_map_DWBA_surf.
% Note : Quand on s'attend à une variation lente du facteur de forme,
% interpo peut prendre n'importe quelle valeur numérique positive
% et cela divise le nombre de points de calcul par cette valeur.
% Il est conseillé de garder la valeur de interpo inférieure à 10.

result1 = ones(nb_tf,nb_af);
vect_tf = linspace(thetafa,thetafb,nb_tf);
vect_af = linspace(alphafa,alphafb,nb_af);

if (interpo == 0)
% calcul sans interpolation
for qw = 1:nb_tf
vq = angles_vers_vq_cap(nb_af,lambda,n1,n2,thetai,vect_tf(qw),alphai,vect_af);
result1(qw,:) = factform_dot2(vq(:,3),vq(:,4),P,khi,b,shape)';
% terme exponentiel d'absorption

```

```

        te = exp(-i*prof*vq(:,3));
        result1(qw,:) = result1(qw,:).*te;
    end
else
    % calcul avec interpolation
    nb_af_int = abs(max(8,fix(nb_af/interpo)));
    vect_afint = linspace(alphafa,alphafb,nb_af_int);
    for qw = 1:nb_tf
        vq =
    angles_vers_vq_cap(nb_af_int,lambda,n1,n2,thetai,vect_tf(qw),alpha,vect_afint);
        tempor = factform_dot2(vq(:,3),vq(:,4),P,1,b,shape);
        result1(qw,:) = interp1(vect_afint,tempor,vect_af,'spline');
        % terme exponentiel d'absorption
        te = exp(-i*prof*vq(:,3));
        result1(qw,:) = result1(qw,:).*te;
    end
end

% Attention ici à l'utilisation des coefficients de Fresnel
% tf est ici selon la convention "time-inverted" pour kf
ti = coeff_fresnel(n1,n2,alphai,vect_af,2);
tf = coeff_fresnel(n1,n2,vect_af,alphai,2);
% multiplication par les coefficients en transmission
for zx = 1:nb_tf
    result1(zx,:) = result1(zx,:).*ti.*tf;
end

y = result1;

```

---

```

% Procédure mapping_DWBA_rezo_surf_cap
%
% Le chargement du réseau d'îlots peut se faire de deux façons :
% a) Le réseau est directement généré par une fonction externe contenant
%    un algorithme OLP, OMP ou OCP.
% b) Le réseau est chargé à partir d'un fichier avec 6 paramètres par îlot
%    (x,y,z,base,hauteur,forme).

% ---- Paramètres de la mesure ----
lambda0 = 0.15406; % longueur d'onde (nm)
dlam = 0.01*lambda0; % écart-type de la dispersion spectrale (nm)
thetai = 0; % angle azimuthal incident (deg)
alpha_i = 0.15; % angle zénithal incident (deg)
thetafa = 0; % angle azimuthal émergent initial (deg)
thetafb = 3; % angle azimuthal émergent final (deg)
nbpts_tf = 100; % nombre de pas de thetaf
alphafa = 0.001; % angle zénithal émergent initial (deg)
alphafb = 4; % angle zénithal émergent final (deg)
nbpts_af = 150; % nombre de pas de alphaf
vect_tf = linspace(thetafa,thetafb,nbpts_tf);
vect_af = linspace(alphafa,alphafb,nbpts_af);
calcpos = 'o'; % switch qui fait qu'on calcule, ou non, le terme lié à la
position
dwba = 's'; % 's' pour des îlots à la surface
% 'c' pour des îlots enfouis

% ---- Paramètres de l'échantillon ----
charg = 'a'; % type de chargement du réseau
n1 = 1; % air
n2 = indice_refrac(lambda0, 'InP');

if charg == 'a' % réseau généré aléatoirement
    nbdots = 100; % nombre d'îlots
    dist = 80; % distance moyenne entre les îlots premiers voisins
    tau = .15; % paramètre de désordre moyenne
    P0 = 15; % rayon moyen de la base des îlots

```

```

    sP0      = 0.15;      % écart-type de la distribution de P0
    ratio    = 3;        % ratio P0/b, rayon de la base sur la hauteur de l'îlot
    shape    = 3;        % forme des îlots (1:cône, 2:cylindre, 3:dôme, 4: cloche)
    z0       = 30;       % profondeur de la couche d'îlots enfouis
    if (dwba == 's')
        z0 = 0;
    end

    % génération du réseau
    rezoilot_a = array_dot_sqr(nbdots,dist,tau,P0,sP0,ratio,shape,z0);
    rezoilot   = annihiletouche_6param(rezoilot_a);
    nbdots     = length(rezoilot(:,1));
    % sauvegarde du réseau dans un fichier ascii
    fp_a = fopen('respointstemp.rdo','w+');
    fprintf(fp_a,'%10.5f \t %10.5f \t %10.5f \t %10.5f \t %10.5f \t %10.5f\n',rezoilot);
    fclose(fp_a);
end

if charg == 'b'      % réseau chargé à partir d'un fichier à 6 paramètres
    nomficdots       = 'respoints.rdo';
    fp2              = fopen(nomficdots,'r');
    arlect           = fscanf(fp2,'%f %f %f %f %f %f',[6,inf]);
    rezoilot         = arlect';
    fclose(fp2);
    nbdots           = length(rezoilot(:,1));
end

% ---- Calculs des facteurs de diffusion des îlots pris individuellement ----

signal_tousilots    = ones(nbpts_tf,nbpts_af,nbdots);
result              = ones(nbpts_tf,nbpts_af);

if dwba == 's'
    quatpr = 'o'; % calcul des 4 processus de diffusion à la surface
    for rty = 1:nbdots % for #1
        signal_tousilots(:, :, rty) =
            func_calcul_map_DWBA_surf(lambda0,n1,n2,thetai,alphai,thetafa,thetafb,nbpts_tf,alphafa,
            alphafb,nbpts_af,rezoilot(rty,5),rezoilot(rty,4),rezoilot(rty,6),1,0,quatpr);
    end
else
    for rty = 1:nbdots % for #1b
        signal_tousilots(:, :, rty) =
            func_calcul_map_DWBA_cap(lambda0,n1,n2,thetai,alphai,thetafa,thetafb,nbpts_tf,alphafa,
            lphafb,nbpts_af,rezoilot(rty,5),rezoilot(rty,4),rezoilot(rty,3),rezoilot(rty,6),1,0);
    end
end

% ---- Calculs des sommations (intensités et interférence) ----

% calcul négligeant la position des îlots
if (calcpos == 'n')
    tousilots_int = ones(nbpts_tf,nbpts_af,nbdots);
    % calcul de l'intensité
    for qw = 1:nbdots
        tousilots_int(:, :, qw) =
            signal_tousilots(:, :, qw) .* conj(signal_tousilots(:, :, qw));
    end
    % sommation des intensités
    for qt = 1:nbpts_tf
        for qa = 1:nbpts_af
            result(qt,qa) = sum(tousilots_int(qt,qa,:));
        end
    end
end
else

```

```

% calcul tenant compte de la position des îlots
for ntf = 1:nbpts_tf % boucle sur les valeurs de theta_f
    % création d'un vecteur du réseau réciproque
    vq = angles_vers_vq(nbpts_af,lambda0,thetai,vect_tf(ntf),alpha_i,vect_af);
    for qq = 1:nbpts_af % boucle sur les valeurs du vecteur q
        ind = 1;
        tem = ones(1,(nbdots^2+nbdots)/2);

        % calcul de l'intensité diffusée pour chaque îlot
        for njk = 1:nbdots
            tem(ind) =
signal_tousilots(ntf,qq,njk).*conj(signal_tousilots(ntf,qq,njk));
            ind = ind+1;
        end
        % calcul des produits croisés
        for nj = 1:nbdots-1 % première boucle sur la position des îlots
            for nk = nj+1:nbdots % deuxième boucle sur la position des îlots
                % produit scalaire qRm
                prodscal = vq(qq,1)*(rezoilot(nj,1)-rezoilot(nk,1)) +
vq(qq,2)*(rezoilot(nj,2)-rezoilot(nk,2));
                t1 =
signal_tousilots(ntf,qq,nj).*conj(signal_tousilots(ntf,qq,nk))*exp(i*prodscal);
                t2 =
signal_tousilots(ntf,qq,nk).*conj(signal_tousilots(ntf,qq,nj))*exp(-i*prodscal);
                tdecr = exp(-prodscal^2*(dlam/lambda0)^2/2);
                tem(ind) = tdecr*(t1+t2);
                ind = ind+1;
            end
        end
        result(ntf,qq) = sum(tem);
    end
end
end

% ---- Graphique 3D ----
resultlog = log10(result);
[X Y] = meshgrid(vect_af,vect_tf);
surf(X,Y,resultlog);
xlabel('\'alpha_f (deg)')
ylabel('\'theta_f (deg)')
zlabel('\'Log_1_0(intensité) (u.a.)')

```

---