

Interfaces effectives et pentes d'Urbach de multicouches a-Si:H/a-SiN_x:H¹

M. BEAUDOIN ET M. MEUNIER²

Groupe des couches minces et Département de génie physique, École polytechnique de Montréal, C. P. 6079, succursale A, Montréal (Québec), Canada H3C 3A7

T. MUSCHIK ET R. SCHWARZ

Technische Universität München, Physik-Department E16, W-8046 Garching, Allemagne

ET

C. J. ARSENAULT, M. BEAULIEU ET O. GRIMAL

Groupe des couches minces et Département de génie physique, École polytechnique de Montréal, C. P. 6079, succursale A, Montréal (Québec), Canada H3C 3A7

Reçu le 3 septembre 1992

Dés résultats de mesures optiques et de structure sont présentés pour des multicouches de silicium amorphe hydrogéné (a-Si:H) et de nitrure de silicium amorphe hydrogéné (a-SiN_x:H) fabriquées par décharge lumineuse. Deux séries d'échantillons sont présentées. Pour la série A, l'épaisseur des barrières ainsi que le nombre de double couches sont gardés constants alors que, pour la série B, la composition ainsi que l'épaisseur totale ne changent pas. La réflexion de rayons X à angle rasant (réflectométrie) est analysée en utilisant un modèle théorique basé sur la méthode des matrices de transfert. Cette analyse permet de déduire une épaisseur effective entre 1,5 et 2,0 nm pour les interfaces. L'augmentation des pentes d'Urbach avec la diminution des épaisseurs de puits est mesurée par spectroscopie de déflexion photothermique et par spectroscopie photoacoustique à transformée de Fourier. Cette dépendance est analysée en tenant compte des épaisseurs effectives des interfaces et elle est étudiée à l'aide du modèle d'absorption de Abe et Toyozawa (J. Phys. Soc. Jpn. 50, 2185 (1981)). Les deux séries d'échantillons montrent le même comportement, ce qui nous amène à conclure que l'augmentation des pentes d'Urbach est due à des effets d'interface.

Optical and structural measurements are presented for glow discharge multilayer structures of hydrogenated amorphous silicon (a-Si:H) and hydrogenated amorphous silicon nitride (a-SiN_x:H). Two sets of samples are presented. For set A, the barrier thickness as well as the number of double layers are kept constant whereas, for set B, samples have both constant composition and total thickness. Small-angle X-ray reflectivity measurements (reflectometry) are analyzed using a theoretical model based on the transfer matrix method. This analysis yields an effective width between 1.5 and 2.0 nm for the interfaces. The increase of the Urbach slope parameter with decreasing well layer thickness is measured by photothermal deflection spectroscopy and by Fourier transform photoacoustic spectroscopy. This dependence is analyzed by taking into account the effective interface thickness and it is studied by using the optical absorption model of Abe and Toyozawa (J. Phys. Soc. Jpn. 50, 2185 (1981)). Both sets of samples show the same behavior, which leads to the conclusion that the Urbach slope increase is due to interface effects.

Can. J. Phys. 70, 824 (1992)

1. Introduction

Les propriétés optiques ainsi que les interfaces des structures multicouches (MC) faites de silicium amorphe hydrogéné (a-Si:H) et de matériaux à bande interdite plus grande, tel le nitrure de silicium amorphe hydrogéné (a-SiN_x:H), suscitent un grand intérêt scientifique et technologique à cause de la possibilité d'effets de confinement quantique des porteurs dans les puits de a-Si:H. Par exemple, des transistors à effet de champ (1, 2) utilisant les structures MC comme canal conducteur ont été fabriqués et montrent un accroissement de mobilité effective souvent attribué à des effets quantiques (1). Le transport dans les structures à doubles barrières (3-5) a aussi été expliqué par le confinement des porteurs (3) bien que nos résultats récents (4, 5) apportent une autre explication. On croit généralement (3, 6) que des interfaces très abruptes sont essentielles à l'observation de ces effets de confinement quantique, d'où l'importance de caractériser les interfaces entre les différents matériaux.

Les performances électrique et optique des piles photovoltaïques sont limitées par le transport et l'absorption dans les queues de bandes (7, 8). Vu l'intérêt de la modulation de la bande interdite (*band-gap engineering*) des MC pour la fabrication de ces piles, l'étude des queues de bande, et notamment leur dépendance sur les interfaces, devient donc très importante pour ces structures (9).

L'épaisseur effective des interfaces comprend l'interdiffusion des espèces chimiques, la rugosité d'empilement entre les couches successives, les variations d'épaisseurs (éloignement de la périodicité parfaite) en plus de l'étendue du désordre structural causé par l'arrimage de matériaux dont les paramètres de maille diffèrent. Pour les fins de modélisation, l'épaisseur effective d'interface représente la région entre deux couches successives dont les propriétés mesurables montrent un lien continu entre les puits et les barrières.

Dans cette publication, nous présentons des mesures de réflexion de rayons X à angle rasant (réflectométrie) analysées par une simulation numérique utilisant la méthode des matrices de transfert. Cette simulation permet de déterminer une épaisseur effective d'interface pour les MC. En tenant compte de résultats précédents (10), nous concluons que cette épaisseur effective est le résultat du désordre structural des MC a-Si:H/a-SiN_x:H. Les pentes d'Urbach, déduites par spectroscopie de

1. Cet article a été présenté à la 6^e conférence canadienne sur la technologie des semiconducteurs, laquelle a eu lieu à Ottawa, Ontario, Canada du 11 au 13 août 1992, et a été soumis au nouveau processus d'évaluation par les pairs.

2. Auteur correspondant.

TABLEAU 1. Indices de réfraction, $n = 1 - \delta - i\beta$, à la longueur d'onde $\lambda = 0,154$ nm

Matériau	δ	β
a-SiN ₃ :H	$9,77 \times 10^{-6}$	$1,18 \times 10^{-7}$
a-Si:H	$8,02 \times 10^{-6}$	$1,70 \times 10^{-7}$
Substrat	$8,48 \times 10^{-6}$	$1,10 \times 10^{-7}$

déflexion photothermique ainsi que par spectroscopie photoacoustique à transformée de Fourier sur deux séries d'échantillons, sont ensuite analysées à l'aide du modèle de Abe et Toyozawa (11, 12) qui fait le lien direct entre les queues de bande et le désordre dans les structures amorphes. Nous utilisons alors l'interface effective déduite des mesures de réflectométrie afin de modéliser le comportement des queues d'Urbach avec les dimensions des MC.

2. Croissance et structure

Tel que présenté dans deux articles précédents (13, 14), deux séries d'échantillons ont été analysées. Pour la première série d'échantillons, série A, l'épaisseur des barrières ainsi que le nombre de double couches sont gardés constants à 10 nm et 30 double couches, respectivement. Pour la deuxième série d'échantillons, la composition ainsi que l'épaisseur totale des structures ne changent pas. Ces échantillons MC ont été produits dans un réacteur plasma à couplage capacitif par la décomposition du silane (SiH₄) et de l'ammoniaque (NH₃). Les films sont déposés sur des substrats de quartz Suprasil (Heraeus Amersil, New York) maintenus à 300°C et préalablement dégraissés par des bains successifs dans le trichloro-éthane, l'acétone et le propanol. Un bain ultrasonique de 5 min à l'eau déionisée termine la préparation des substrats. La croissance se fait à l'aide d'une décharge fréquence radio à 100 kHz avec une pression de gaz de 200 mTorr (1 Torr = 133,322 Pa). Le dépôt de a-Si:H se fait avec du silane pur à la puissance de 0,04 W cm⁻² tandis que le a-SiN₃:H est déposé par un mélange gazeux NH₃:SiH₄ en rapport 10:1 à la puissance de 0,08 W cm⁻². Ce mélange assure des couches a-SiN₃:H quasi stoechiométriques où $1,4 \leq x \leq 1,5$ selon la spectroscopie de photoélectrons émis par rayons X. Le plasma est interrompu entre les sous-couches afin de permettre l'évacuation du mélange gazeux précédent et ainsi minimiser la possibilité de contamination des puits de a-Si:H par l'azote.

La spectroscopie de photoélectrons émis par rayons X en fonction de l'angle de sortie des photoélectrons a été utilisée pour caractériser l'interface entre le a-Si:H et le a-SiN₃:H (10). Puisque les pics associés aux sous-nitrures constituaient moins de 1% des liaisons d'interfaces, nous en avons conclu que l'interface est chimiquement abrupte sur une monocouche atomique.

Les mesures de réflectométrie ont été faites en utilisant le rayonnement CuK α (longueur d'onde de 0,154 nm) sur un diffractomètre à cinq cristaux Philips MPD 1880/HR. Le goniomètre a un rayon de bras de 173 mm, et une fente de 0,5 mm sur 0,5 mm était insérée devant le détecteur. Bien que ce diffractomètre ne soit pas optimisé pour les mesures à angle rasant, jusqu'à huit pics de Bragg ont pu être décelés sur un échantillon dont l'épaisseur des double couches était d'environ 23 nm. Pour la majorité des échantillons, seuls les quatre premiers ordres de Bragg sont résolus au-dessus du bruit.

L'information sur les interfaces entre les couches de a-Si:H et de a-SiN₃:H est contenue dans les patrons de réflexion de rayons X (15). L'analyse théorique de la réflectométrie est basée

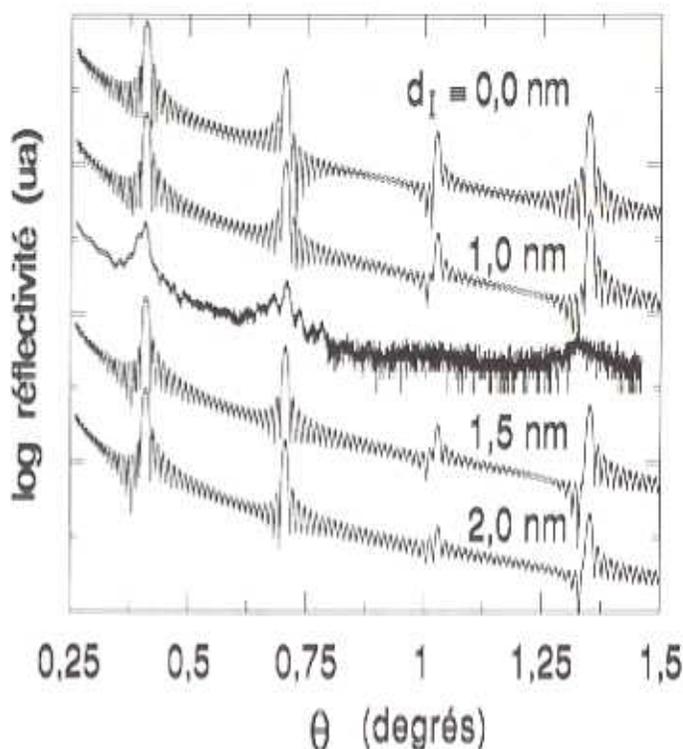


FIG. 1. Réflexion de rayons X d'un échantillon multicouche typique comparée avec les résultats de simulations numériques pour différentes épaisseurs effectives d'interface. Ces simulations montrent que l'épaisseur effective est entre 1,5 et 2,0 nm. (ua, unités arbitraires).

sur un modèle optique qui lie l'onde électromagnétique réfléchie à l'onde incidente via la méthode des matrices de transfert (16, 17). La structure MC est décrite par une variation périodique de la densité électronique et du coefficient d'absorption linéaire. Le modèle assigne alors une matrice 2 par 2 à chaque couche de la structure qui peut être représentée par son indice de réfraction complexe, $n = 1 - \delta - i\beta$, et son épaisseur, d . Les éléments de la matrice seront, de plus, dépendants de l'angle que fait l'onde par rapport à la normale dans chaque milieu. Afin de simplifier le calcul, cet angle est trouvé à partir de la loi de Snell-Descartes habituelle sans tenir compte de la partie imaginaire de l'indice de réfraction. Cette approximation reste valable car les valeurs de δ et de β sont de l'ordre de 10^{-6} et 10^{-7} , respectivement. Ces valeurs sont calculées à partir des densités électroniques (déduites par la stoechiométrie et la densité massique) et des valeurs tabulées des coefficients d'absorption linéaire (18, 19) et sont résumées au tableau 1 pour les deux matériaux en volume et le substrat.

Pour modéliser les interfaces, il faut introduire une région de transition où les densités électronique et massique doivent varier de façon continue entre leurs valeurs dans le a-Si:H et le a-SiN₃:H. Ici, nous posons comme hypothèse une variation linéaire des indices de réfraction entre les deux milieux (15, 20) et subdivisons la région d'interface en petits sous-intervalles. Ce profil d'interface simplifié est amplement justifié ici à cause de l'erreur expérimentale associée aux mesures et discutée plus loin. Meyerheim et Göbel (20) ont montré, en effet, que pour une épaisseur de transition donnée, l'utilisation de profils plus complexes (cosinus, gaussien ou fonction d'erreur) ne donne pas de différences de calcul plus grandes que l'erreur expérimentale pour des échantillons MC analysés avec un modèle presque identique mais mesurés sur un diffractomètre plus per-

formant aux angles rasants. Ceci traduit bien les limites à l'information qu'on peut tirer des mesures de réflectométrie.

La figure 1 montre une courbe de réflectométrie typique où les ordres 1, 2 et 4 de Bragg sont bien résolus. L'intensité mesurée du premier pic est de 465 photons/s. Les rapports signal sur bruit sont donc de 83 et 19 pour les deux premiers pics et de seulement 3 pour les pics 3 et 4. Ce faible rapport rend assez difficile l'évaluation exacte de l'intensité des derniers pics. En se basant sur l'analyse présentée par Santos *et al.* (21), et en utilisant d_S et d_N comme l'épaisseur des sous-couches de a-Si:H et de a-SiN₃:H, respectivement, l'atténuation quasi complète du troisième ordre de diffraction indique que le rapport d_S/d_N ($d_S + d_N$) est près de 1/3. En utilisant la valeur mesurée de l'indice de réfraction dans le visible ainsi que l'expression du milieu effectif, nous avons pu déduire un rapport d_S/d_N d'environ 1,7 (13). Le pas, $d_S + d_N$, de la structure est déterminé à l'aide de la loi de Bragg corrigée en tenant compte de la partie réelle de l'indice de réfraction du milieu à l'énergie des rayons X (22) :

$$[1] \quad d_S + d_N = \frac{m\lambda}{2} \left(\frac{\sin \theta}{\sin^2 \theta - (1 - n)} \right)$$

où m est l'ordre de diffraction, $\lambda = 0,154$ nm est la longueur d'onde des rayons X, n est l'indice de réfraction du milieu et θ est l'angle de l'onde réfléchi par rapport à la surface de l'échantillon.

L'analyse de la réflectométrie se fait en comparant la réflexion simulée avec la réflexion expérimentale. Les critères retenus pour l'ajustement sont les hauteurs relatives des pics de Bragg ainsi que les angles où ces derniers apparaissent. Pour l'échantillon de la figure 1, le meilleur ajustement est obtenu avec $d_S = 8,4$ nm et $d_N = 4,9$ nm. Le rapport ainsi obtenu, $d_S/d_N = 1,71$, est en accord avec celui retiré des mesures optiques (13). L'incertitude maximale, déduite des valeurs extrêmes de d_S et d_N des ajustements, est évaluée à environ $\pm 0,4$ nm pour les épaisseurs des sous-couches bien que l'erreur sur le pas soit inférieure à 0,1 nm.

La forme générale de la réflexion expérimentale est bien reproduite par la simulation. Par contre, le modèle théorique ne reproduit pas la structure fine, notamment autour du deuxième pic de Bragg. Ceci indique les limites du modèle qui ne tient pas compte, entre autres, de la diffusion par la rugosité de surface ni des variations latérales d'épaisseur qui causent une réduction d'intensité des pics de Bragg (15). Des variations d'épaisseur de chaque couche peuvent être la cause de la structure additionnelle observée sur le pic de deuxième ordre tel que rapporté par Zhang *et al.* (23) pour des structures similaires. Les franges dues à l'interférence constructive des faisceaux réfléchis aux interfaces air-film et film-substrat ne sont pas visibles. Ceci peut aussi s'expliquer par la rugosité de surface et les déviations à la périodicité parfaite. De plus, le fait que l'intensité des franges est du même ordre que l'intensité du bruit rend celles-ci très difficilement détectables sur notre diffractomètre. Néanmoins, la comparaison entre les simulations et la mesure, notamment l'extinction du pic de troisième ordre, permet de déduire une épaisseur effective qui se situe entre 1,5 et 2,0 nm pour les interfaces. En effet, pour des simulations avec interfaces effectives de plus de 2,0 nm, le troisième pic de Bragg disparaît complètement. Or, on peut quand même le voir sur la courbe expérimentale. Ainsi, 2,0 nm représente une épaisseur effective maximale pour l'interface. Si on compare les intensités relatives des pics en faisant un lissage du bruit, on trouve que 1,5 nm représente l'épaisseur minimale d'interface. À la lumière des résultats précédents selon la spectros-

copie de photoélectrons émis par rayons X (10), lesquels indiquent une interface chimiquement abrupte, on peut déduire que cette épaisseur effective est surtout causée par un désordre structural en accord avec les travaux de Roxlo *et al.* (24).

En analysant la réflexion de rayons X et les lignes Raman de phonons acoustiques, Santos *et al.* (21) ont déduit des interfaces effectives de 1,8 et 1,2 nm pour les MC de a-Si:H/a-SiN₃:H et de a-Si:H/a-Ge:H, respectivement. Dans les MC a-Si:H/a-SiN₃:H, l'ordre à courte portée est très différent entre les deux matériaux. Le changement abrupt de la composition chimique aux interfaces est probablement accompagné de fortes distorsions du réseau afin d'accommoder cette différence structurale. Des analyses basées sur la méthode itérative de Parratt (20, 25) pour les courbes de réflectométrie de MC a-Si:H/a-SiC₂:H ont montré que les interfaces effectives ont entre 0,5 et 0,8 nm (15). Ces résultats ainsi que ceux de Santos *et al.* (21) sur les MC a-Si:H/a-Ge:H sont indicatifs d'interfaces de moins bonne qualité pour les structures a-Si:H/a-SiN₃:H. Ceci pourrait avoir comme conséquence d'empêcher l'apparition d'effets de confinement quantique dans ces structures (1, 3, 4, 13, 26). Ces derniers en effet, ne sont, rapportés que pour des dimensions de puits inférieures à 5,0 nm. Or, les interfaces déduites ici représentent entre 30 et 40% de cette largeur. Pour les largeurs de puits plus faibles, les interfaces représentent alors 100% de la région! Il faut alors absolument invoquer des phénomènes autres que le confinement quantique des porteurs afin d'expliquer le comportement des MC.

3. La pente d'Urbach

Dans le formalisme de Tauc (11, 27, 28), l'absorption optique des semiconducteurs amorphes repose sur un modèle de densité d'états hypothétique. La figure 2 montre un spectre en spectroscopie de déflexion photothermique pour un échantillon de 30 double couches dont les épaisseurs des sous-couches sont de 2 et 10 nm pour le a-Si:H et le a-SiN₃:H, respectivement. Ce spectre est typique pour les MC. Trois régimes y sont observés : le seuil fondamental ($\alpha \geq 10^4$ cm⁻¹), la partie exponentielle, aussi appelée pente d'Urbach, et l'épaule de faible absorption ($\alpha \leq 10^2$ cm⁻¹) due à la densité de défauts électroniques dans la pseudo-bande interdite.

Une relation de dispersion, $\epsilon(k)$, n'est pas possible pour les semiconducteurs amorphes puisque le théorème de Bloch ne peut s'y appliquer. Seule la densité d'états électroniques peut alors être retenue pour décrire ces matériaux. L'approche de Tauc (11, 27, 28) est de considérer un cristal virtuel ayant une bande interdite et auquel un désordre structural aléatoire est ajouté. À la densité d'états paraboliques des semiconducteurs cristallins, on ajoute alors des queues de bande exponentielles. Celles-ci sont aussi appelées queues d'Urbach par analogie avec des queues de bandes semblables observées dans les semiconducteurs cristallins et dues à des états excitoniques. Pour le a-Si:H, la queue de bande de valence est plus large que la queue de bande de conduction et domine donc l'absorption optique.

Le modèle autocohérent de Abe et Toyozawa (11, 12) permet d'associer les pentes d'Urbach d'un semiconducteur amorphe au désordre structural du matériau. Leur modèle associe la partie exponentielle du coefficient d'absorption à la réciprocity entre l'énergie de transfert et une distribution gaussienne des énergies de site. Ils en déduisent la loi d'absorption suivante :

$$[2] \quad \alpha = \alpha_0 \exp \left(\frac{hv}{E_0} \right)$$

où hv est l'énergie des photons incidents et E_0 représente l'énergie caractéristique de la pente d'Urbach.

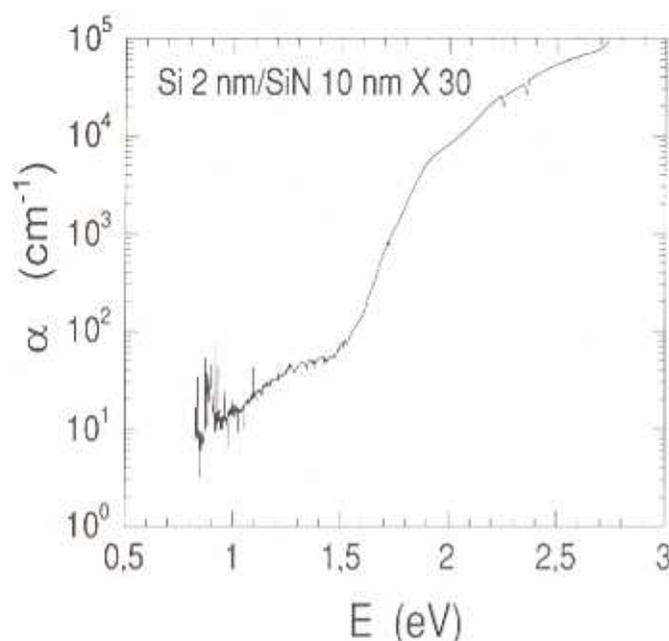


FIG. 2. Seuil d'absorption typique des MC a-Si:H/a-SiN₃:H obtenu par mesures en spectroscopie de déflexion photothermique. On y voit clairement le seuil fondamental ($\alpha \approx 10^4 \text{ cm}^{-1}$), la région exponentielle d'Urbach ($10^2 \text{ cm}^{-1} \approx \alpha \approx 10^4 \text{ cm}^{-1}$) ainsi que l'épaule de faible absorption ($\alpha \approx 10^2 \text{ cm}^{-1}$).

L'absorption dans les MC est due aux différentes régions des structures. Puisque la bande interdite du a-SiN₃:H est beaucoup plus grande que celle du a-Si:H (5,15 eV contre 1,75) (13), la contribution des barrières peut être négligée. La contamination des puits due à la diffusion du silicium et de l'azote peut aussi être négligée à la lumière de nos résultats en spectroscopie de photoélectrons émis par rayons X (10). On doit quand même séparer le puits en deux régions : une région médiane où le comportement optique devrait être celui du a-Si:H en volume et une région effective d'interface affectée par un désordre structural additionnel. Une étude précédente a montré (13, 14) que la bande interdite de Tauc n'était pas la même pour les deux séries d'échantillons. Pour la série A, une augmentation de la bande interdite, E_g , de Tauc, définie par $(\alpha h\nu)^{1/2} \sim (h\nu - E_g)$, était observée avec la décroissance de l'épaisseur des puits. Pour la série B, cet accroissement n'était pas observé. Pour les deux séries, la bande interdite de Cody, définie par $(\alpha/h\nu) \sim (h\nu - E_g)$, était indépendante de l'épaisseur des puits. Puisque la bande interdite optique des MC reste la même quel que soit d_s et que cette épaisseur intervient dans les expressions qui permettent de déduire le coefficient d'absorption, la bande interdite optique reste donc essentiellement la même sur toute la région du puits. L'absorption due aux queues d'Urbach sera donc la somme des absorptions des régions de volume et d'interface des puits. Ces absorptions peuvent être décrites par [2] mais avec des E_0 probablement différents. Cependant, une somme de deux exponentielles ne peut être observée sur une gamme d'énergie si restreinte. En continuant d'utiliser [2], on définit alors un E_0 effectif représentant une moyenne sur toute l'épaisseur du puits de a-Si:H.

En principe donc, la variation de E_0 avec les épaisseurs des sous-couches devrait permettre d'étudier l'évolution du désordre dans les MC a-Si:H/a-SiN₃:H. La figure 3 montre cette variation de E_0 avec l'épaisseur des puits pour les deux séries d'échantillons. Les cercles blancs représentent les mesures en

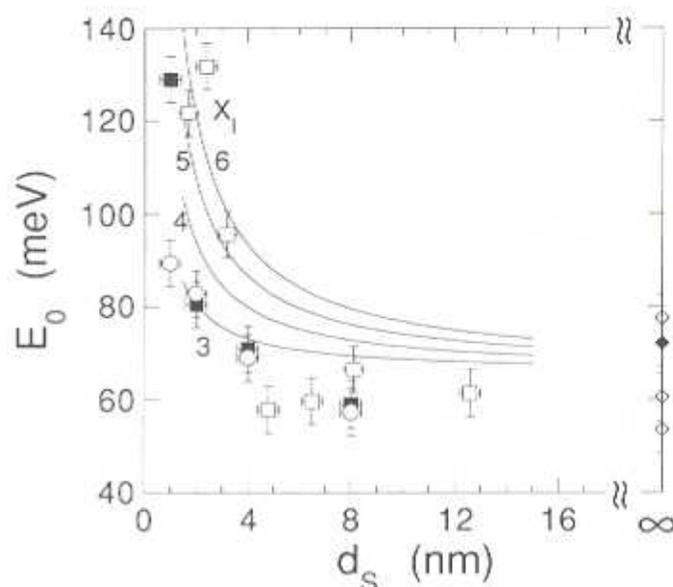


FIG. 3. Pentas d'Urbach, E_0 , obtenues par spectroscopies de déflexion photothermique et photoacoustique à transformée de Fourier des multicouches en fonction de l'épaisseur des puits. Les cercles blancs et le losange noir sont obtenus par mesures de déflexion photothermique sur la série A et un échantillon de a-Si:H en volume, respectivement. Les carrés noirs et blancs sont obtenus par mesures selon la seconde technique sur les séries A et B, respectivement, et les losanges blancs, sur des échantillons de a-Si:H en volume. Les lignes continues sont générées à l'aide [3] et [4] pour $X_s = 1, 9$ et $X_s = 3, 4, 5$ et 6.

spectroscopie de déflexion photothermique faites sur la série A. Les carrés noirs et blancs correspondent aux mesures en spectroscopie photoacoustique à transformée de Fourier faites sur les séries A et B, respectivement; les valeurs de E_0 obtenues pour le a-Si:H en volume sont montrées pour trois échantillons. Un de ces échantillons a aussi été mesuré par spectroscopie de déflexion photothermique. Tel que généralement rapporté (29, 30), on observe une augmentation de E_0 avec une diminution de la dimension des puits de a-Si:H. On ne voit pas de différence marquée de E_0 entre les deux séries d'échantillons ce qui indique que le même mécanisme est responsable des variations de E_0 . Dans le a-Si:H en volume, la diminution de la bande interdite produite par des recuits isochrones était accompagnée d'une augmentation de E_0 (7, 11). Cody *et al.* (7) ont ainsi conclu que le contenu en H d'un film de a-Si:H n'influait sur la bande interdite qu'indirectement en diminuant les contraintes du réseau. Pour les MC, à l'opposé du a-Si:H en volume, puisque E_g est indépendant de d_s (13, 14), E_0 n'est pas directement relié à la bande interdite optique. Puisque la bande interdite des MC ainsi que leur concentration en H restent constants mais que les contraintes dues au désordre accru des interfaces augmentent, nous concluons que E_0 est plus dépendant de la concentration en H que des contraintes du matériau. Nous proposons par contre que E_0 dépend de la moyenne du désordre dans le puits, lequel augmente lorsque d_s diminue.

Cody *et al.* (7, 11) ont étudié la dépendance en température des bandes interdites et des pentes d'Urbach du a-Si:H en volume. En modélisant le désordre thermique par un oscillateur d'Einstein, ils ont déduit la relation suivante pour E_0 :

$$[3] \quad E_0 = \left(\frac{k_B \Theta_E}{\sigma} \right) \left[\frac{1}{\exp(\Theta_E/T) - 1} + \frac{1 + X}{2} \right]$$

où $\sigma = 1$, T est la température, Θ_E est la température caractéristique de l'oscillateur d'Einstein et k_B est la constante de Boltzmann. La quantité $X = \langle q^2 \rangle_i / \langle q^2 \rangle_0$ est un paramètre associé au désordre structural, $\langle q^2 \rangle_i$ normalisé par le désordre au point zéro de l'oscillateur, $\langle q^2 \rangle_0$, où q est une coordonnée généralisée. $[\langle q^2 \rangle]^{1/2}$ représente l'écart quadratique moyen des atomes par rapport à leur position d'équilibre dans un cristal parfait. Pour le a-Si:H, les valeurs que Cody retire pour ces paramètres sont : $[\langle q^2 \rangle_0]^{1/2} = 0,008$ nm, $\Theta_E = 400$ K et $\sigma = 0,95$ (11). Le modèle de Cody est utilisé à la température ambiante (300 K) pour nos échantillons de a-Si:H en volume; la valeur de $X_S = 1,9 \pm 0,6$ en est déduite, ce qui donne un déplacement des atomes $[\langle q^2 \rangle]^{1/2} = 0,011$ nm de leur position d'équilibre. Ceci correspond à des fluctuations des angles des liaisons chimiques, $\Delta\theta$, d'environ $2,3^\circ$ (7, 11) lorsque la valeur de 0,27 nm, retirée de la densité du a-Si:H, est prise comme longueur de lien.

Nous modifions le modèle de Cody précédent afin d'inclure la contribution des interfaces aux pentes d'Urbach des MC. Si l'on continue d'exclure la barrière, le puits est considéré comme une région effective dont le désordre est donné par la moyenne du a-Si:H en volume et des interfaces. En accord avec nos mesures en spectroscopie de photoélectrons émis par rayons X (10), qui montrent que la composition chimique des puits est celle du a-Si:H, les valeurs de σ et Θ_E peuvent être fixées aux valeurs trouvées par Cody (7, 11) pour le a-Si:H en volume. Pour inclure la contribution des interfaces, on suppose, suivant Cody (7, 11), que le désordre est additif. Une valeur effective de X sera alors donnée par

$$[4] \quad X = \left(\frac{d_s - d_i}{d_s} \right) X_S + \frac{d_i}{d_s} X_I$$

où d_i est l'épaisseur effective de l'interface, d_s est l'épaisseur des puits de a-Si:H et X_S et X_I sont les valeurs du paramètre X pour le a-Si:H et l'interface, respectivement. Utilisant la valeur minimale de d_i obtenue des mesures de réflectométrie, soit $d_i = 1,5$ nm, l'ajustement de [4] est montré à la figure 3 pour $X_S = 1,9$ et des valeurs de $X_I = 3, 4, 5$ et 6 correspondant à des augmentations de $\Delta\theta$ de 2,9 à 4,2° (soit des augmentations de 26 à 78%), respectivement. Les courbes (surtout pour $X_I = 5$) reproduisent assez bien l'augmentation observée de E_0 , montrant ainsi que l'élargissement des queues de bande est cohérent avec une augmentation du désordre des multicouches et avec une interface d'environ 1,5 nm en accord avec nos mesures de réflectométrie.

Roxlo *et al.* (24) ont aussi étudié les interfaces de MC a-Si:H/a-SiN_x:H. Leurs mesures infrarouges ont montré que les interfaces contiennent 10^{15} cm⁻² atomes d'hydrogène supplémentaires distribués sur le premier 2 nm des interfaces. En utilisant le modèle de Beeman *et al.* (31) pour analyser leurs mesures Raman, ils ont déduit des valeurs de $\Delta\theta = 8^\circ$ pour le a-Si:H en volume et de $\Delta\theta = 13^\circ$ (c.-à-d. 60% d'augmentation) s'étendant sur le premier 1 nm des interfaces a-Si:H/a-SiN_x:H. Ces valeurs de $\Delta\theta$ sont beaucoup plus grandes que celles déduites du modèle de Cody (7, 11) et présentées au paragraphe précédent. Ceci indique les limites des deux modèles et doit être pris en considération lorsque des valeurs numériques sont attribuées aux différents paramètres du désordre (p. ex., X), nos résultats montrent une augmentation de $\Delta\theta$ d'environ 63% ($X_I = 5$). Ces résultats sont cohérents avec ceux de Roxlo *et al.* si l'on fait exception des valeurs absolues de $\Delta\theta$.

4. Conclusion

Nous avons montré, par analyse de mesures de réflexion de rayons X, que les interfaces effectives des MC a-Si:H/a-SiN_x:H ont entre 1,5 et 2,0 nm. Contrairement au a-Si:H en volume, la pente d'Urbach est indépendante de la bande interdite optique des MC. Nous avons montré que l'augmentation de E_0 avec la diminution de l'épaisseur des puits de a-Si:H était cohérente avec une augmentation d'environ 60% du désordre structural étendue sur le premier 1,5 nm des interfaces. Ces mesures sont en accord avec les valeurs de la littérature. Finalement, nous avons constaté que les interfaces des multicouches a-Si:H/a-SiN_x:H sont moins bien définies que celles des structures a-Si:H/a-SiC_x:H et a-Si:H/a-Ge:H. Ceci peut avoir comme conséquence d'inhiber les effets de confinement quantique dans ces structures.

Remerciements

Les auteurs remercient sincèrement Messieurs L. Bertrand, A. Domingue et A. Cournoyer (École polytechnique) qui nous ont permis d'effectuer les mesures en spectrophotométrie photoacoustique dans leurs laboratoires et qui nous ont fourni une aide précieuse dans l'analyse des résultats, de même que Messieurs R. Masut et C. Tran (École polytechnique) pour leur assistance à l'utilisation du diffractomètre à rayons X. Les auteurs remercient également la Fondation des diplômés de l'École polytechnique et le Conseil de recherches en sciences naturelles et en génie du Canada pour leur aide financière, ainsi que Monsieur R. Neubauer et le gouvernement du Québec pour l'aide financière sous le projet de collaboration Québec-Bavière.

1. M. Tsukude, Y. Uchida et M. Matsumura. *Jpn. J. Appl. Phys.* Pt. 2, **36**, L111 (1987).
2. C. Reita, L. Mariucci et G. Fortunato. *Jpn. J. Appl. Phys.* Pt. 1, **29**, 1634 (1990).
3. S. Miyazaki, Y. Ihara et M. Hirose. *Phys. Rev. Lett.* **59**, 125 (1987).
4. C. J. Arsenault, M. Meunier, M. Beaudoin et B. Movaghar. *J. Non-Cryst. Solids*, **137 & 138**, 1111 (1991).
5. C. J. Arsenault, M. Meunier, M. Beaudoin et B. Movaghar. *Phys. Rev.* **B44**, 11 521 (1991).
6. K. Hattori, T. Mori, H. Okamoto et Y. Hamakawa. *Phys. Rev. Lett.* **60**, 825 (1988).
7. G. D. Cody, T. Tiedje, B. Abeles, B. Brooks et Y. Goldstein. *Phys. Rev. Lett.* **47**, 1480 (1981).
8. F. Wang, T. Muschik, T. Fischer, M. Bollu, J. Kolodzey et R. Schwarz. *J. Non-Cryst. Solids*, **137 & 138**, 1143 (1991).
9. F. Wang, R. Schwarz, M. Beaudoin et M. Meunier. *Superlattices Microstruct.* (1992).
10. M. Beaudoin, C. J. Arsenault, R. Izquierdo et M. Meunier. *Appl. Phys. Lett.* **55**, 2640 (1989).
11. G. D. Cody. *Dans Semiconductors and semimetals*, Vol. 21B. Éditeur : J. I. Pankove. Academic Press, Montréal, 1984, pp. 11-82.
12. S. Abe et Y. Toyozawa. *J. Phys. Soc. Jpn.* **50**, 2185 (1981).
13. M. Beaudoin, M. Meunier et C. J. Arsenault. *Phys. Rev.* **B** (1993). Sous presse.
14. M. Beaudoin, C. J. Arsenault et M. Meunier. *J. Non-Cryst. Solids*, **137 & 138**, 1099 (1991).
15. R. Schwarz, T. Fischer, P. Hanesch, T. Muschik, J. Kolodzey, H. Cerva, H. L. Meyerheim et B. M. U. Scherzer. *Appl. Surf. Sci.* **50**, 456 (1991).
16. G. R. Fowles. *Introduction to modern optics*. Holt, Rinehart & Winston, New York, 1968, pp. 95-99.
17. F. Potter. *Dans Handbook of optical constants of solids*. Éditeur : Edward D. Palik. Academic Press, Montréal, 1985, pp. 11-34.

18. S. Miyazaki, Y. Kohda, Y. Hazawa et M. Hirose. *J. Non-Cryst. Solids*, **114**, 774 (1989).
19. C. H. MacGillivray et G. D. Rieck. (*Éditeurs*.) *International tables for X-ray crystallography*. Vol. III. The Kynoch Press, Birmingham, Royaume-Uni. 1962, p. 157.
20. H. L. Meyerheim et H. E. Göbel. *Thin Solid Films*, **199**, 343 (1991).
21. P. V. Santos, M. Hundhausen, L. Ley et C. Viczian. *J. Appl. Phys.* **69**, 778 (1991).
22. J. Morgan. *Introduction to geometrical and physical optics*. McGraw-Hill, New York, 1953, p. 282.
23. P. X. Zhang, D. J. Lockwood et J. M. Baribeau. *Can. J. Phys.* **70**, 843 (1992).
24. C. B. Roxlo, B. Abeles et P. D. Persans. *J. Vac. Sci. Technol.* **B4**, 1430 (1986).
25. L. G. Parratt. *Phys. Rev.* **95**, 359 (1954).
26. K. Hattori, T. Mori, H. Okamoto et Y. Hamakawa. *Dans Amorphous silicon and related materials*. Vol. B. *Éditeur* : H. Fritzsche. World Scientific, Singapore. 1988. pp. 957-976.
27. J. Tauc, R. Grigorovici et A. Vancu. *Phys. Status Solidi*, **15**, 627 (1966).
28. L. Ley. *Dans The physics of hydrogenated amorphous silicon*. II. *Éditeurs* : J. D. Joannopoulos et G. Lucovsky. Springer-Verlag, Berlin. 1984. pp. 61-168.
29. B. Abeles et T. Tiedje. *Phys. Rev. Lett.* **51**, 2003 (1983).
30. N. Bernhard, H. Dittrich et G. H. Bauer. *J. Non-Cryst. Solids*, **137 & 138**, 1103 (1991).
31. D. Beeman, R. Tsu et M. F. Thorpe. *Phys. Rev.* **B32**, 874 (1985).