REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEURE ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE DE MEDEA

FACULTE DES SCIENCES



Mémoire

Présenté pour obtenir le diplôme de **Master**

En physique

Spécialité :
Physique des matériaux

Par :

GASMI Meriem
BELHADJ Asmaa Rania

Etude de la pulvérisation de l'aluminium induite par un faisceau d'ions

Soutenue publiquement le : 28/09/2020, devant le jury composé de :

Dr. LACHENANI Hanane	Grade : MCB	Université de Médéa	Présidente
Dr. BOUKAOUDAbdelali	Grade : MCB	Université de Médéa	Examinateur
Dr. RADJAI Missoum	Grade : MCB	Université de Médéa	Examinateur
Dr. MEKHTICHE Abdelhalim	Grade : MCB	Université de Médéa	Encadreur
Dr. HAIRECHE Sofiane	Grade : MCB	Université de Médéa	Co-encadreur

Année universitaire : 2019-2020

Dédicace

A l'homme de ma vie, mon exemple éternel, celui qui s'est toujours sacrifie pour me voire réussir à toi mon père « Mahmoud »

A maman « Nassima »pour son amour, et qu'elle m'a toujours accordé en témoignage de ma reconnaissance envers sa confiance ses sacrifices et sa tendresse

A la lumière de mes jour la source de mes efforts, la flamme de mon cœur ma vie et mon bonheur El Batoul que j'adore

A mon soutien moral et source de joie et de bonheur, mon marie « Salah Eddine » pour l'encouragement et l'aide qu'il m'a toujours accordé

A mes sœurs « Fulla et Asmaa »pour l'amour qu'elles me réservent je leurs souhaite une vie pleine du bonheur et de succès

A ma deuxième maman « Ratiba » et mon adorable petite sœur « Amani »qui sait toujours comment parcoure le joie le bonheur pour tout la famille

A ma chère binôme« Rania Asmaa »et à tout sa famille

A tous les cousins, les tentes ,et les amies, Mercie pour votre amour et encouragement

Meriem

Dédicaces

Je dédie ce mémoire :

A mon adorable petite fille Meriem,

A mes parents :

Ma mère, qui a œuvré pour ma réussite, de par son amour, son soutien, tous les sacrifices consentis et ses précieux conseils, pour toute son assistance et sa présence dans ma vie, reçois à travers ce travail, l'expression de mes sentiments et de mon éternelle gratitude.

Mon père, qui peut être fier et trouver ici le résultat de longues années de sacrifices et de privations pour m'aider à avancer dans la vie, qui n'est plus là mais qui m'a toujours poussé à aller au bout des études. Puisse Dieu faire en sorte que ce travail porte son fruit ; Merci pour les valeurs nobles, l'éducation et le soutien permanent venu de toi.

A mon marie « Ayoub » qui m'a rendu les choses moins difficiles, qui m'a apporté joie et bonne humeur, je lui suis reconnaissante du soutien qu'il a su me prodiguer lors des moments difficiles.

A mes frères et ma sœur qui n'ont cessé d'être pour moi des exemples de courage et de générosité.

A toute ma famille qui m'toujours soutenue, encouragée et orientée dans le droit chemin.

A mes chérie Meriem et El Batoul qui m'ont toujours encouragée et aussi pour sa patience, qui ont réussi me supporter pendant ces années.

Rania

Résumé

Le présent travail s'intéresse à l'étude théorique de la pulvérisation cathodique d'une cible d'aluminium induite par un faisceau d'ions d'argon. La modélisation de la pulvérisation des ions a été effectuée en utilisant trois différentes approches : une approche analytique basée sur la théorie de transport de Sigmund, une approche semi-empirique basée sur l'ajustement des résultats expérimentaux par des modèles théoriques et une approche numérique basée sur la méthode de simulation Monté Carlo. Dans l'approche numérique, le code SRIM a été utilisé pour l'étude de l'influence de certains paramètres sur le rendement de pulvérisation. L'ensemble des résultats obtenus par ce code a été interprété et comparé aux résultats expérimentaux et à ceux déduites par des modèles théoriques ou semi-empiriques.

Abstract

This work is concerned with the theoretical study of the sputtering of an aluminum target induced by an argon ion beam. The modeling of ion sputtering was performed using three different approaches an analytical approach based on Sigmund's transport theory, a semi-empirical approach based on fitting the experimental results by theoretical models, and a numerical approach based on the Monte Carlo simulation method. In the numerical approach, the code SRIM was used to study the influence of certain parameters on the sputtering yield. All of the results obtained by this code were interpreted and compared with the experimental results and those deduced by theoretical or semi-empirical models.

الملخص

يهتم هذا العمل بالدراسة النظرية للرش المهبطي "الكاتودي" الناتج عن قذف صفائح الألمنيوم بواسطة حزمة من ايونات الأرغون باستخدام ثلاث طرق مختلفة: :الطريقة التحليلية القائمة على نظرية سيغموند ، طريقة نصف تجريبية تعتمد على توافق النتائج التجريبية مع النماذج النظرية وطريقة النمذجة القائمة على طريقة محاكاة مونت كارلو . في طريقة النمذجة، تم استخدام برنامج سريم لدراسة تأثير بعض العوامل الفيزيائية على معامل الرش . تم تفسير جميع النتائج التي تم الحصول عليها بواسطة هذا البرنامج ومقارنتها مع النتائج التجريبية وكذالك مع نتائج النماذج النظرية أو شبه التجريبية.

Remerciements

Nous remercions Dieu de nous avoir donné l'énergie, la patience et le courage nécessaire à l'aboutissement de ce travail.

En présentant ce travail, il m'est agréable d'exprimer, en premier lieu nos remerciements à Mr. MEKHTICHE Abdelhalim et Mr. HAIRECHE Sofiane, qui ont bien voulu en assurer la direction, pour la confiance qu'ils nous ont témoigné au cours de ces quelques mois, ainsi que pour leurs efficacités et leurs disponibilités dans les moments les plus critiques. Nous lui exprimons nos vives et respectueuses gratitudes.

Nous tenons à exprimer toute gratitude aux membres de jury, professeurs : Dr. LACHENANI Hanane, Dr. BOUKAOUD Abdelali et Dr. RADJAI Missoum, d'avoir accepté d'examiner, juger ce travail et d'honorer, par leur présence, la soutenance de ce mémoire de master.

Un grand merci à toute nos familles, surtout à nos parents pour leur présence dans les moments difficiles et pour leur encouragement tous au long de notre chemin. Nos maris, merci pour votre compréhension et votre patience pendant ces derniers mois de mémoire et pour le soutien quotidien que vous nous avez apporté.

Enfin, nous ne pouvons finir sans remercier tous les enseignants du département de sciences de la matière, mes camarades de promotion et mes amis. Nous remercions plus particulièrement notre amie El Batoul pour leur encouragement et leur soutien pendant cette période, et pour les bons moments qu'on a partagés et nous lui souhaitons une bonne continuation

Table des Matière

Résumé

Table des figures

Table des tableaux

Introduction générale **13**

Généralités sur l'interaction des ions avec la matière

1.1.....I
ntroduction **16**
1.2. Aspects généraux de l'interaction ion-matière **16**
1.3.Mécanismes fondamentaux de l'interaction des particules chargées avec la matière……**17**

1.3.1. Collision **17**

1.3.1.1. Collision élastique..... **17**
1.3.1.2. C
ollision inélastique **24**
1.4. .....R
alentissement des ions dans la matière **25**
1.4.1. Perte d'énergie **25**
1.4.2. Pouvoir d'arrêt nucléaire **26**
1.4.3. Pouvoir d'arrêt électronique **27**
1.4.4. Détermination des pouvoirs électronique et nucléaire **29**
1.5. Effets induits dans le matériau cible **29**
1.5.1Création de défauts par collisions élastiques à basses vitesse……..**29**

1.5.2Création de défauts par collisions inélastiques à hautes vitesses ……**30**

1.6. Simulation numérique **30**
1.6.1. Codes de type dynamique moléculaire MD. **30**
1.6.2. Codes de type collision binaire BC. **30**
1.6.3. Codes de type approximation de collision binaire BCA **31**

1.6.4. Codes de type Monté Carlo. **31**

Pulvérisation cathodique

2.1. Introduction **33**

2.2. Techniques de la croissance cristalline par PVD (Physical vapor deposition) **33**

2.3. Pulvérisation cathodique……...**34**

2.3.1. Définition de la pulvérisation ……..**34**

2.3.2. Description générale de la technique de la pulvérisation cathodique …..……**36**

2.3.3. Réacteur de la pulvérisation cathodique ……..**38**

2.3.3.1. Pulvérisation cathodique diode en courant continu……..**38**

2.3.3.2Pulvérisation cathodique à haute fréquence…….……..**39**

2.3.3.3 Pulvérisation cathodique à un effet magnétron …….…...**40**

2.3.4. Paramètres expérimentaux obtenus de la pulvérisation…….**.....40**

2.3.4.1. Energie seille de pulvérisation ……**.40**

2.3.4.2. Distance entre les électrodes ……..**41**

2.3.4.3. Composition chimique ……**41**

2.3.4.4. Vide utilisé ……**.42**

2.3.4.5. Pression……**42**

2.3.4.6. Temps de dépôt ……...**42**

2.4. Régimes de la pulvérisation **43**

2.4.1. Régimes de collisions simples **43**

2.4.2. Régime de cascades linéaires **44**

2.4.3. Régime de pointe **44**

2.5. Rendement de pulvérisation **45**

2.5.1. Définition **45**

2.5.2. Influence de l'énergie de l'ion (gaz rare ou gaz réactif) **45**

2.5.3. Influence de l'angle d'incident **46**

2.5.4. Influence de la charge de projectile (matériau et l'état de surface) **47**

2.5.5. Influence de la nature de la cible **47**
2.5.6. Pression résiduelle **48**
2.6. Traitement théorique de la pulvérisation **49**
2.6.1. Modéle de Thompson **50**
2.6.2. Modèle de Sigmund **50**
2.7. Traitement semi-empirique de la pulvérisation **52**
2.7.1. Formule semi-empirique de Bohdansky **52**
2.7.2. Formule de Matsunami et Yamamura **53**
2.7.3.Energie seuil de pulvérisation **54**

Simulation et Techniques expérimentales

3.1. Introduction **58**
3.2. Codes de simulation de la pulvérisation cathodique **58**
3.2.1. Méthodes Monte Carlo..... **60**
3.2.2. Logiciels de simulation SRIM..... **62**
3.2.2.1. Description du logiciel SRIM **62**
3.2.2.2. Calcul du rendement de pulvérisation par TRIM..... **67**
3.3. Méthodes expérimentales pour mesurer le rendement de pulvérisation **67**
3.3.1. Méthode de décroissance du poids de l'échantillon **68**
3.3.2. Méthode de collection des particules pulvérisées **68**
3.3.3. Méthode de la mesure directe par spectrométrie **68**
3.3.4. Méthodes de la mesure de l'épaisseur d'un film mince **68**

Résultats et discutions

4.1. Introduction **73**
4.2. Evolution de rendement de pulvérisation en fonction de l'angle d'incidence **73**
4.3. .....E
volution de rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie de surface **75**
4.4. .....E
volution de rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie de l'ion incident **77**

4.5. C
omparaison de rendement de pulvérisation avec l'expérience et avec les différents modèles **78**
a) C
as des ions d'Ar **79**
b) C
as des ions d'Al **80**
c) C
as des ions de Ne **81**
d) C
as des ions de D **82**
e) C
as des ions d'He **83**
Conclusion générale **86**
Références

Table des figures

Fig. I.1 : Les différents types d'interaction ion-matière ……..……**16**

Fig. I.2 : Schéma d'une collision inélastique entre deux particules. La cible de masse M_2 est initialement au repos soit E_2=0……..…...**17**

Fig. I.3 : Schéma représentant une collision binaire entre deux particules dans le système liéau centre de masse ou b et le paramètre d'impact.…….……...**19**

Fig. I.4 : Caractérisation classique de l'interaction entre deux corps en fonction du paramètre d'impact b, de l'angle de diffusion θ et de la section efficace différentielle de collision dσ..**21**

Fig. I.5 : Processus inélastique pendant l'interaction projectile chargé –atome……...**25**

Fig.I.6 : Différentes interactions dans le matériau cible…….…..**26**

Fig.II.1. Méthodes générales de dépôt de couches minces sous vide……..…....**33**

Fig. II.2: les phénomènes mis en jeu durant la pulvérisation ionique……..**35**

Fig. II.3 : schéma de diapositive de pulvérisation cathodique (en DC)…….**36**

Fig. II.4 : Schéma de principe de la pulvérisation cathodique…….**37**

Fig.II.5 : Le système de pulvérisation de type "diode"…….**38**

Fig. II.6 : Schéma d'une cible d'un pulvérisateur à effet magnétron……**40**

Fig. II.7: Variation de rendement de pulvérisation en fonction de nombre atomique pour une énergie de 400 ev…….**42**

Fig. II.8 : Influence de temps de dépôt sur l'épaisseur de la couche CdS……..**43**

Fig. II.9 : Régime de collisions simples……..**43**

Fig. II.10 : Régimes de cascade de collisions……..**44**

Fig. II.11 : Régime de pointe……**46**

Fig. II.12: Schéma de la cascade de collision en fonction de l'angle d'incidence

(a) Incidence normale et (b) incidence oblique. ……**46**

Fig.II.13 : Forme générale de la courbe du taux d'érosion en fonction de l'angle d'incidence……**47**

Fig. II. 14: Variation de rendement de pulvérisation du silicium en fonction de la pression résiduelle d'oxygène……...…..**49**

Fig. III.1 : stratégie numérique .a) SRIM pour simulation l'éjection de matière de la cible sous bombardement ionique (~4h) .b) SIMTRA simule le transporte des atomes de la cible jusqu'au substrat (~1/4). c)simule 3D simule la croissance du dépôt sur le substrat (~5min)…….**59**

Fig. III. 2 : Interface menu du logiciel SRIM …….**63**

Fig.III.3 : Interface du programme TRIM……..**64**

Fig.III.4 : Interface des résultats du programme TRIM……...**66**

Fig.III.5 : Cascade des collisions produit par des ionsd'Ar^{+}de10keV dans une cible de cuivre……..…**66**

Fig.III.6 : Méthodes générales de mesure d'épaisseur de la cible……**69**

Fig. III.7 : Schéma général d'un montage de la technique RBS……..**70**

Fig.III.3 : spectre RBS des dorures du lustre d'Hildesheim……**74**

Fig. IV.1 : la variation de rendement de pulvérisation en fonction de l'angle d'incidence……**75**

Fig.IV.2 : la variation du rapport $Y(\theta)/Y(0)$ en fonction de l'angle d'incidence……...**76**

Fig. IV.3 : la variation de rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie de surface……...**77**

Fig.IV.4 : Variation du rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie des ions……**79**

Fig. IV.5 : Le rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie des ions d'argon sur une cible d'aluminium calculé par SRIM et comparées aux résultats expérimentaux et aux différents modèles théoriques de Sigmund, de Yamamura et de Bohdansky ……..…**79**

Fig. IV.6 : Le rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie des ions d'Ar sur une cible d'aluminium calculé par SRIM et comparées aux résultats expérimentaux et aux différents modèles théoriques de Sigmund , de Yamamura et de Bohdansky……..**80**
Fig. IV.7 : Le rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie des ions de Ne sur une cible d'aluminium calculé par SRIM et comparées aux résultats expérimentaux et aux différents modèles théoriques de Sigmund , de Yamamura et de Bohdansky……..…..**81.**

Fig.IV.8 : Le rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie des ions de D sur une cible d'aluminium calculé par SRIM et comparées aux résultats expérimentaux et aux différents modèles théoriques de Sigmund , de Yamamura et de Bohdansky ……...**82**
Figure IV.9 : Le rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie des ions de hélium sur une cible d'aluminium calculé par SRIM et comparées aux résultats expérimentaux et aux différents modèles théoriques de Sigmund , de Yamamura et de Bohdansky ……....**83**

Table des tableaux

TableauII.1 : les expressions de l'énergie de seuil pour les différents modèles……..……**55**

Tableau II.2 : les expressions de rendement de pulvérisation à basse énergie……..…..**56**

Tableau II.3 : les expressions de α pour les différents modèles……..**56**

Tableau III.1 : codes de simulation de l'éjection de matière de la cible ……**61**

Tableau III.2 : Paramètres d'entrée et de sortie de TRIM……..…….**65**

Introduction

L’étude des effets induits par l’interaction d’ions avec la matière est un objet majeur de nombreux groupes de recherche aussi bien dans le domaine des sciences fondamentales que dans le domaine de la technologie. La technique de bombardement par faisceau d’ions de basse énergie est couramment utilisée pour avoir des modifications sur des surfaces solides. Pour ces énergies, l’ion pénètre faiblement dans le matériau bombardé en produisant des collisions élastiques avec les atomes cible. Ces dernières provoquent des déplacements des atomes qui sont à l'origine d’émission de la matière ou bien la pulvérisation des atomes.

Ce phénomène ayant d’une grande importance dans différentes domaines, tels que la technologie du vide, la physique des surfaces, l’analyse des surfaces, les films minces, la microscopie électronique, les collisions atomiques, implantation ionique et la physique des plasmas.

La pulvérisation a été observée pour la première fois dans un tube à gaz par Grove en 1852. Il a découvert que la surface de la cathode du tube de décharge était pulvérisée par des ions énergétiques dans la décharge de gaz, et des matériaux de cathode ont été déposés sur la paroi intérieure du tube de décharge. À cette époque, la pulvérisation était considérée comme un phénomène indésirable, car la cathode et la grille du tube à gaz étaient détruites. Aujourd’hui, la pulvérisation est largement utilisée pour le nettoyage de surface, la gravure, le dépôt de couches minces et l’analyse de surface.

Sur le plan théorique, un traitement rigoureux pour modéliser ce phénomène n’a pas été établit que durant l’année 1968 par Thomson. Plus tard, Sigmund a annoncé une théorie basée sur la résolution de l’équation de transport afin d’obtenir les distributions énergétiques et spatiales des particules pulvérisées.

Par la suite, de différents modèles semi-empiriques et codes de simulations numériques ont été développés sur la base de la théorie de Sigmund pour établir les valeurs de rendement de pulvérisation pour une variété des systèmes projectile-cible.

L’objectif de ce travail est d’étudier les différents mécanismes intervenants lors de la pulvérisation des atomes sous l’impact des ions énergétiques. Notre étude est basé, d’une part, sur les modèles théoriques de pulvérisation et d’autre part sur le code SRIM. Ce dernier utilise la méthode de simulation Monté Carlo et repose sur l’approximation des collisions binaires.

Nous allons présenter notre travail comme suit :

Dans le premier chapitre, nous allons donner brièvement les différents processus qui interviennent lors de l'interaction ion-matière. Nous nous intéressons aux grandeurs qui gouvernent cette interaction, notamment le potentiel d'interaction, la section efficace de diffusion et les pouvoirs d'arrêt électronique et nucléaire.

Le deuxième chapitre sera consacré à la pulvérisation ionique. En premier temps, nous allons décrire les différentes techniques de la croissance cristalline. Puis, nous nous intéressons au principe de la pulvérisation et ces déférents régimes. Ensuite, nous allons définir le rendement de pulvérisation et son évolution en fonction de différents paramètres expérimentaux.

Ainsi, nous allons présenter les différents modèles théoriques et semi-empiriques qui permettent de calculer le rendement de pulvérisation.

Le troisième chapitre sera dédié à la description du code SRIM qui sera utilisé dans le présent travail. Nous allons citer également les différentes méthodes expérimentales utilisées pour mesurer le rendement de pulvérisation.

Enfin, dans le dernier chapitre, nous allons présenter les résultats obtenus par le code SRIM, à savoir la variation du rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie d'impact, de l'angle d'incidence et l'énergie de surface. Une comparaison de nos résultats avec ceux obtenus théoriquement ou par les modèles semi-empiriques sera également présentée.

Chapitre I

Généralités sur l'interaction des ions avec la matière

1.1. Introduction

Le but de ce chapitre est d'introduire les différents processus intervenant au cours de l'interaction des ions avec la matière. Dans un premier temps, nous décrirons les différents types de collisions. Puis, nous introduisons les effets de l'ion projectile, de la charge, les effets induits dans le matériau cible et les effets résultant de l'interaction. On termine par un rappel sur les différentes méthodes de la simulation numérique.

1.2. Aspects généraux de l'interaction ion-matière

Au cours de l'interaction des ions énergétiques avec un matériau, ils peuvent interagir de plusieurs manières avec les atomes de la cible. On rencontre deux principaux types d'interaction qui sont les chocs nucléaires et les chocs électroniques.

Le choc nucléaire résulte des collisions élastiques entre l'ion incident et le noyau de la cible ce qui induit au déplacement des atomes grâce à la transmission directe de l'énergie au noyau. Par contre, le choc électronique est des collisions inélastiques entre le projectile et le nuage électronique de la cible, ce qui résulte l'excitation ou bien l'ionisation des atomes.

Au cours de ces interactions, on distingue quatre phénomènes concernant les modifications du solide bombardé (figure I.1) :

1. La pulvérisation de particules de la surface (atomes, ions, etc.),
2. L'implantation d'ions primaires,
3. Des modifications dans la structure de la matière,
4. Des effets physico-chimiques, tels que la rupture et la création de défauts,

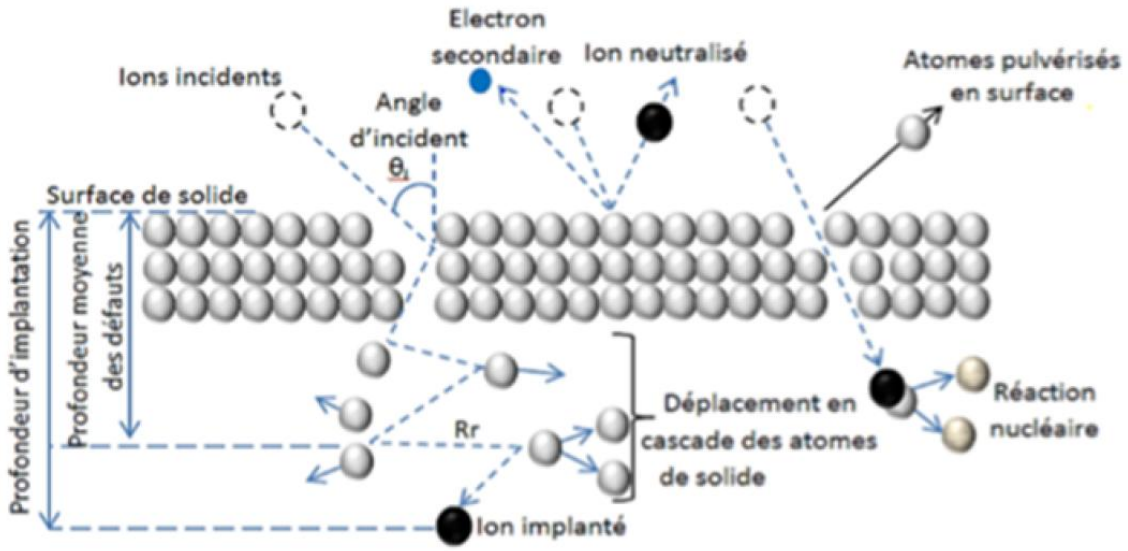


Fig. I.1 : Les différents types d'interactions ion-matière

1.3. Mécanismes fondamentaux de l'interaction des particules chargées avec la matière

1.3.1. Collision

Lors de l'interaction d'une particule chargée avec un milieu, elle interagit par des chocs nucléaires (élastique) avec les noyaux atomiques ou par des chocs électroniques (inélastiques) avec le nuage électronique.

1.3.1.1. Collision élastique

Dans le domaine de faible énergie cinétique (~keV), le processus d'interaction entre un ion et un atome cible est considéré comme une collision élastique binaire entre deux corps (Binary collision).

Ce mécanisme de collision qui se traduit par la conservation de l'énergie cinétique du système s'explique par un transfert d'énergie entre la particule incidente et la cible. Cependant, l'énergie interne individuelle de chaque particule reste inchangé ce qui implique que la configuration électronique des deux partenaires n'est pas modifié lors dans ce type de collision.

Le transfert d'énergie cinétique de l'ion à l'atome est généré par les deux principes de conservation de l'énergie cinétique et de la quantité de mouvement lors de la collision [1].

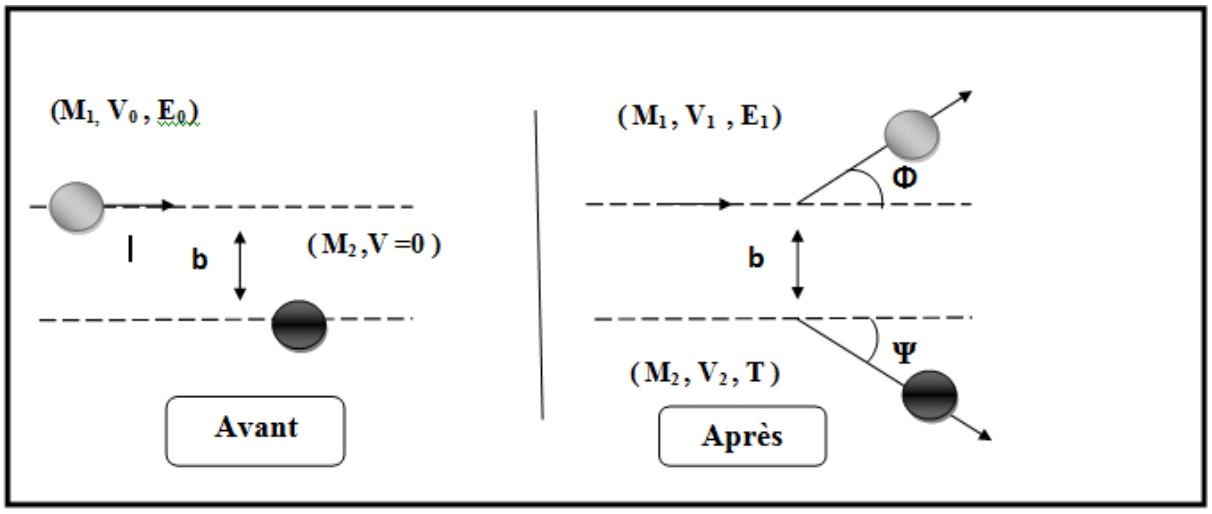


Fig. I.2 : Schéma d'une collision inélastique entre deux particules. La cible de masse M_2 est initialement au repos soit E_2=0.

Tel que :

(M_1, E_0 , V_0) et (M_1, E_1,V_1) representent la masse, l'energie et la vitesse de l'ion avant et après la collision respectivement.

b : c'est le paramétre d'impact qui définit par la distance d'approche entre le noyau de projectile et de la cible.

Le principe de conservation de l'energie permet de déterminer l'énergie transmise à l'atome cible. On obtientalors une distribution de l'énergie transfèrée en fonction de l'angle de recul de la cible [2] :

$$T = \frac{4M_{1\times}M_2}{(M_1+M_2)2} E_0 \cos^2\Psi \qquad \text{(I.1)}$$

Pour un paramètre d'impact b = 0, correspondant à une collision frontale, nous avons Ψ=0. La transmission d'énergie est alors maximale.

Avec $\mu = m_2/m_1$, nous avons :

$$T = E_2^{'} = \frac{4\mu\cos^2\Psi}{(\mu+1)^2} E_1 \qquad \text{(I.2)}$$

Si μ > 1 : le projectile qui est plus léger que la cible peut être diffusé dans la quasi-totalité de l'espace. Une collision frontale b = 0 entraîne une rétrodiffusion (Ψ=180°) du projectile.

Si μ = 1 : le transfert d'énergie est tel que $T = \cos^2 \Psi \cdot E_1$. La particule cible peut alors prendre la totalité de l'énergie cinétique initiale du projectile pour b = 0.

Si μ < 1 : le projectile et la cible seront diffusés vers l'avant : Ψ et Θ < 90°.

Si μ<<1 : l'énergie transmise à la cible devient faible par rapport à l'énergie du projectile. Sa trajectoire n'est donc pas perturbée.

Pour un paramètre d'impact non nul $b \neq 0$, on peut calculer l'angle de déviation de la particule après la collision. Ce calcul est plus facile à effectuer dans le référentiel du centre de masse. Pour cela, on considère la trajectoire de la particule de masse réduiteμ et de vitesse v_1 lors d'une collision avec un centre diffuseur fixe de masse infinie.

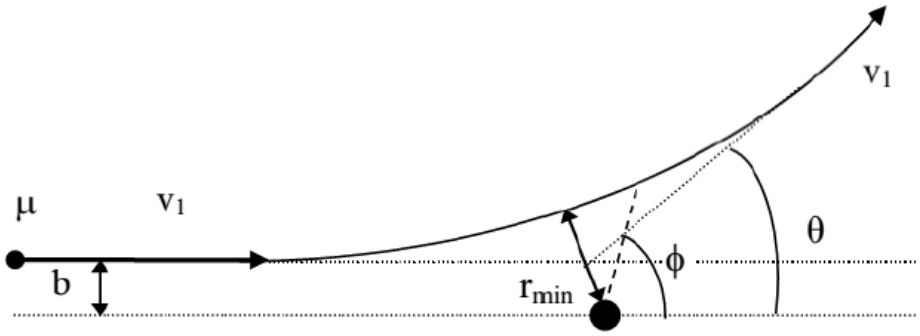


Fig. I.3 : Schéma représentant une collision binaire entre deux particules dans le système lié au centre de masse ou b et le paramètre d'impact.

Les lois de conservation de l'énergie et du moment cinétique permettent de calculer l'angle de diffusion dans le système lié au centre de masse θ_{cdm} [3]:

$$\theta_{cdm} = \pi - 2b\int_{r_{min}}^{\infty} \frac{dr}{r^2\sqrt{1-\frac{v(r)}{E_{cdm}}-\frac{p^2}{r^2}}} \quad \text{(I.3)}$$

Où E_{cdm} est l'énergie cinétique disponible dans le référentiel du centre de masse, elle est donnée par la relation :

$$E_{cdm} = \frac{M_2}{M_1+M_2}E_0 \quad \text{(I.4)}$$

r_{min} : est appelé distance minimale d'approche. Elle est obtenue par la résolution de l'équation suivante :

$$1-\frac{v(r_{min})}{E_{cdm}}-\frac{p^2}{r_{min}^2}=0 \quad \text{(I.5)}$$

L'angle de diffusion θ dans le système du laboratoire peut être exprimé en fonction de l'angle de diffusion dans le système de centre de masse θ_{cdm} comme suit :

$$\tan\theta = \frac{\sin\theta_{cdm}}{\frac{M_1}{M_2}+\cos\theta_{cdm}} \quad \text{(I.6)}$$

Notion de section efficace

Le nombre de particules que l'on détecte est proportionnel au nombre de particules incidentes et au nombre de noyaux cibles. La relation de proportionnalité s'exprime par l'intermédiaire d'un coefficient de proportionnalité σ.

La relation entre le taux d'interaction (T) (nombre de particules « diffusées » par unité du temps) et la section efficace (dσ) est donnée par :

$$T = \sigma \Phi N_{cible} = \sigma \Phi S_{cible} s \quad \text{.....(I.7)}$$

Avec

Φ : le flux, c'est-à-dire le nombre de particules incidentes par unité de surface et par unité du temps.

N_{cible} : Le nombre de particules cible dans le volume de la cible correspondant à la surface (S) couverte par le faisceau.

S_{cible} : Le nombre de particules cible par unité de surface (densité surfacique de particules).

Nous allons considérer le cas d'un potentiel d'interaction central V(r) qui dépend seulement de la distance r par rapport au centre du potentiel.

Le faisceau incident sera dans la direction de l'axe z et donc la section efficace différentielle sera une fonction de θ Un cas particulier est celui de la diffusion de particules α sur un noyau.

En raison de la symétrie, toutes les particules ayant des paramètres d'impact entre b et $b + db$ seront diffusées entre θ et θ+$d\theta$. Elles sont donc associées à une surface $2\pi b db$ perpendiculaire au faisceau.

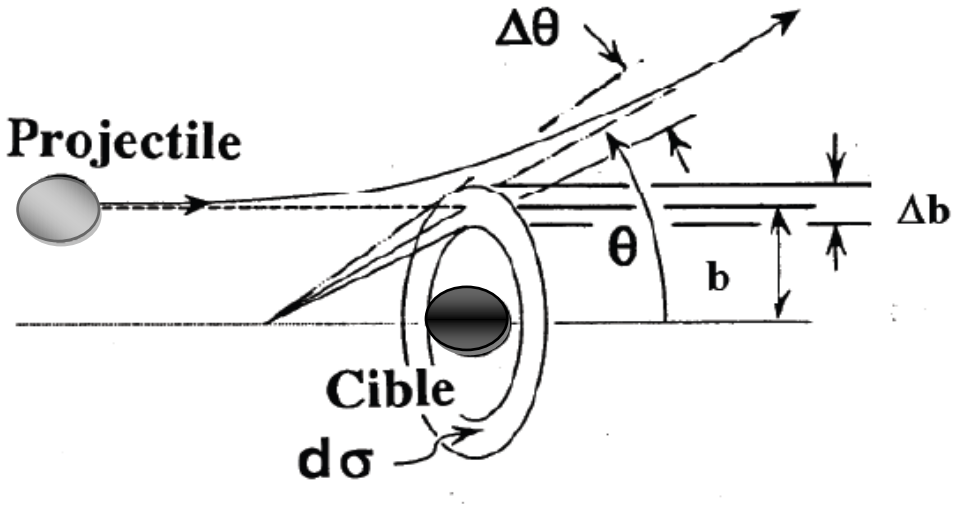


Fig. I.4 : Caractérisation classique de l'interaction entre deux corps en fonction du paramètre d'impact b, de l'angle de diffusion θ et de la section efficace différentielle de collision dσ.

Nous aurons dn particules diffusées entre l'angle θ et θ+dθ:

Avec $d\Omega = 2\pi \sin\theta d\theta$, on obtient :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{2\pi b db}{2\pi \sin\theta d\theta} = \frac{b}{\sin\theta}\left|\frac{db}{d\theta}\right| \quad \text{..... (I.8)}$$

La section efficace est liée en quelque sorte à la probabilité de déviation d'un ion à un angle θ. Pour déterminer ce paramètre le potentiel d'interaction doit être connu.

a) Cas du potentiel coulombien

C'est le potentiel le plus simple car il ne tient pas compte de l'écrantage de la charge du noyau par les électrons. Pour un ion de numéro atomique Z_1 en interaction avec un atome de numéro atomique Z_2, séparés d'une distance r, ce potentiel s'écrit :

$$V(r) = (Z_1 Z_{(2)} e^2)/r \quad \text{..... (I.9)}$$

On définit le diamètre de collision r_m^0 par:

$$r_m^0 = \frac{2Z_1 Z_2 e^2}{\mu v_1^2} \quad \text{..... (I.10)}$$

r_m^0 : C'est la distance minimale d'approche à paramètre d'impact nul (b=0). L'angle de diffusion dans le référentiel du centre de masse s'écrit simplement par [4]:

$$\tan\left(\frac{\theta}{2}\right)=\frac{r_m^0}{2b} \quad \text{(I.11)}$$

L'équation (I.10) devient :

$$y\left(E\right)=3.56\alpha\left(\frac{M_2}{M_1}\right)\left[\frac{Z_1Z_2}{\left(Z_1^{2/3}+Z_2^{2/3}\right)^{1/2}}\right]\left[\frac{M_1}{\left(M_1+M_2\right)}\right]\left[\frac{S_n\left(\varepsilon\right)}{U_s}\right] \quad \text{(I.12)}$$

Cette formule qui est connue sous le nom de 'formule Rutherford' donne la section efficace différentielle en fonction de l'angle de diffusion dans le cmd.

En utilisant l'équation de l'énergie transférée lors de la collision :

$T = T_{max}\sin^2\frac{\theta}{2}$ et $\frac{d\Omega}{dT}=\frac{4\pi}{T_{max}}$, on obtient la section efficace différentielle en terme de l'énergie transférée :

$$\frac{d\sigma}{dT}=\frac{2\pi Z_1^{\,2}Z_2^{\,2}e^4}{M_2V_1^{\,2}}\frac{1}{T^2} \quad \text{(I.13)}$$

La diffusion élastique est plus probable pour les faibles énergies incidentes et les faibles moments transférés.

b) Cas des potentiels réels

En fait, la modélisation de l'interaction ion-atome par un potentiel purement coulombien n'est que approximation. En réalité, les noyaux sont écrantés par le cortège électronique. Ce processus qui est appelé effet d'écran diminue cette interaction. Ceci nous ramène à utiliser un potentiel écranté de type Thomas-Fermi [6]:

$$V(r)=\frac{Z_{ion}Z_{atom}e^2}{r}\varphi_{TF}\left(\frac{r}{a}\right) \quad \text{.....(I.14)}$$

Le potentiel devient le produit d'un potentiel coulombien avec une fonction d'écran de Thomas-Fermi $\varphi_{TF}\left(\frac{r}{a}\right)$.

Où *a* est le rayon d'écran. Il s'exprime d'une façon générale par [6]:

$$a=\frac{1}{2}\left(\frac{3\pi}{4}\right)^{\frac{2}{3}}a_0\left(Z_{ion}^{x}+Z_{atom}^{x}\right)^{\frac{y}{3}} \quad \text{.....(I.15)}$$

Où x, y sont obtenues soit par les modèles théoriques ou par l'ajustement des valeurs empiriques du potentiel.

a_0 est le rayon de Bohr (a_0= 0.529Å).

Pour le rayon d'écrantage le produit xy est égal à l'unité dans le modèle de Thomas-Fermi. Firsov propose pour x la valeur de ½ et Lindhard lui donne la valeur de 2/3, ce qui donne :

$$a=\frac{1}{2}\left(\frac{3\pi}{4}\right)^{\frac{2}{3}}a_0\left(Z_{ion}^{\frac{2}{3}}+Z_{atom}^{\frac{2}{3}}\right)^{\frac{-1}{2}} \quad \text{.....(I.16)}$$ pour le modèle de Lindhard.

Dans le modèle de Ziegler, Biesarck et Littmark (ZBL), xy=0,69, avec x=0,23 :

$$a=\frac{1}{2}\left(\frac{3\pi}{4}\right)^{\frac{2}{3}}a_0\left(Z_{ion}^{0.23}+Z_{atom}^{0.23}\right)^{-1} \quad \text{.....(I.17)}$$

Pour le calcul du potentiel Thomas-Fermi, Brinkman (1954) propose la relation :

$$V(R)=\frac{AZ_{ion}Z_{atom}e^2\exp(-Br)}{1-\exp(-Ar)} \quad \text{.....(I.18)}$$

Avec A et B sont deux paramètres d'ajustement.

En 1956, Nielsen propose une variation en $1/r^2$ pour le potentiel:

$$V(R)=\frac{Z_{ion}Z_{atom}e^2\exp(-1)}{r^2} \quad \text{.....(I.19)}$$

Lindhard (1965) propose une forme algébrique simplifiée :

$$\varphi_{TF}\left(\frac{r}{a_{12}}\right)=\frac{\frac{r}{a}}{\left[\left(\frac{r}{a}\right)^2+c^2\right]^{\frac{1}{2}}} \quad \text{.....(I.20)}$$

Avec C un paramètre d'ajustement, la valeur $C=\sqrt{3}$ étant prise en général.

Suite à l'apparition des calculs numériques à l'aide des ordinateurs puissants, des expressions plus complexes ont été apparues comme le potentiel de Molière:

$$\varphi_{TF}\left(\frac{r}{a_{12}}\right)=0.35\exp\left(-0.3\frac{r}{a_{12}}\right)+5.5\exp\left(-1.2\frac{r}{a_{12}}\right)+0.1\exp\left(-6\frac{r}{a_{12}}\right) \quad \text{.....(I.21)}$$

Ou le potentiel de Ziegler, Biersack et Littmark connu sous le nom de "potentiel universel" :

$$\varphi_{TF}\left(\frac{r}{a_{12}}\right)=0.1818\exp\left(-3.2\frac{r}{a_{12}}\right)+0.5099exp\left(-0.9423\frac{r}{a_{12}}\right)+0.2802\exp\left(-0.4028\frac{r}{a_{12}}\right)+$$

$$0.02817\exp\left(-0.2016\frac{r}{a_{12}}\right) \quad \text{.....(I .22)}$$

Le calcul de la section efficace différentielle de diffusion élastique par un potentiel écranté n'a pas une forme analytique. Lindhard [5].a montré qu'en introduisant des variables réduites pour l'énergie et le transfert d'énergie, la section efficace différentielle en transfert d'énergie peut être représentée par une courbe universelle valable pour toute combinaison ion-atome.

Energie réduite ε et le transfert d'énergie réduit t sont respectivement définis par:

$$\varepsilon = \frac{a}{r_m^0} = \frac{a}{Z_1 Z_2 e^2} \frac{M_2}{M_1 + M_2} E \quad \text{.....(I.23)}$$

$$t = \varepsilon^2 \sin^2 \frac{\theta}{2} = \varepsilon^2 \, T/T_{max} \quad \text{.....(I.24)}$$

1.3.1.2 Collision inélastique

Ce processus domine à haute vitesse et pour des noyaux lourd. Les collisions inélastiques sont des collisions entre l'ion incident et les électrons de la cible. Par conséquence, la conservation de l'énergie cinétique n'est pas valable. Ainsi, l'énergie interne du noyau cible ou bien celle des électrons sont modifiées au cours de l'interaction.

Dans le cas d'une collision ion-atome, chacun des deux partenaires peut avoir une modification dans sa configuration électronique. Comme il est schématisé sur la figure (I.5), ces modifications concernent trois processus fondamentaux qui sont l'excitation, l'ionisation et la capture électronique :

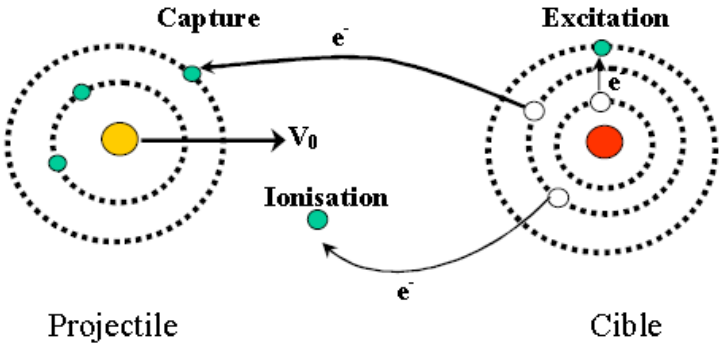


Fig. I.5 : Processus inélastique pendant l'interaction projectile chargé –atome.

- ✓ Dans le cas de l'excitation, un électron de la cible peut être transféré vers un état moins lié. L'atome cible se trouve alors dans un état excité.
- ✓ Dans le cas de l'ionisation, un électron de la cible ou du projectile transite d'un état lié vers un état non lié.
- ✓ La capture électronique se traduit par le transfert d'un ou plusieurs électrons depuis un état lié de la cible vers un état lié du projectile ou l'inverse. Si la capture créé un trou

(électron manquant) dans une couche interne de la cible, alors celle-ci peut à nouveau être ionisée lors de la désexcitation par un processus auto-ionisant tel que l'effet Auger.

Ces trois processus inélastiques existent généralement toujours d'une façon simultanée. Mais la contribution relative dépend à la fois de la nature du projectile, de la cible, de la couche atomique considérée et de la vitesse relative à la quelle la collision aura lieu.

1.4. Ralentissement des ions dans la matière

1.4.1. Perte d'énergie

Une des grandeurs principales qui joue un rôle important au cours du déplacement des ions dans un matériau, est la perte d'énergie par unité de profondeur qui est nommé le pouvoir d'arrêt$\left(\frac{dE}{dx}\right)$. Il traduit la diminution de l'énergie cinétique pendant la pénétration des ions dans le solide.

Deux processus sont l'origine de cette perte d'énergie : Les collisions nucléaires (chocs élastique) des ions avec les noyaux des atomes du matériau. C'est la perte d'énergie nucléaire. Ou bien, les collisions électroniques qui décrivent l'interaction inélastique des ions avec le cortège électronique des atomes cible résultant la perte d'énergie électronique. En fonction du domaine d'énergie utilisé et de la masse atomique de l'ion, l'un des deux processus devient dominant par rapport à l'autre.

Chaque type de perte d'énergie est caractérisé par son pouvoir d'arrêt. Le pouvoir d'arrêt électronique est noté $\left(\frac{dE}{dx}\right)_e$ et le pouvoir d'arrêt nucléaire est noté$\left(\frac{dE}{dx}\right)_n$.

La superposition des deux processus donne la perte d'énergie totale qui est caractérisé par le pouvoir d'arrêt total$\left(\frac{dE}{dx}\right)$, tel que:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)=\left(\frac{dE}{dx}\right)_e+\left(\frac{dE}{dx}\right)_n \quad \text{..... (I.25)}$$

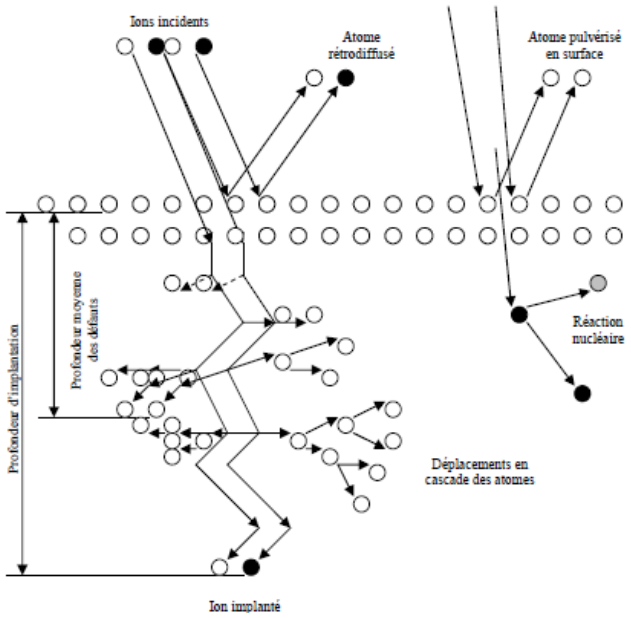


Fig. I.6 : Différentes interactions dans le matériau cible

1.4.2 Pouvoir d'arrêt nucléaire

Les collisions nucléaires ralentissent les particules incidentes par le biais de transfert de leurs moments cinétiques aux atomes cibles. Le processus de ralentissement nucléaire est prédominant pour des ions lourds et dans le domaine de faible vitesse.

Si E est l'énergie cinétique de l'ion incident et N le nombre d'atomes du matériau par unité de volume, le pouvoir d'arrêt nucléaire (section efficace de ralentissement nucléaire) est défini par la relation suivante:

$$\left.\frac{dE}{dx}\right|_n = N\int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T\,\mathrm{d}\sigma dT \quad \text{.....(I.26)}$$

Où

T : l'énergie transférée à l'atome cible par l'ion incident ; dσ: la section efficace différentielle

L'expression du pouvoir d'arrêt nucléaire devient [7]:

$$\left.\frac{dE}{dx}\right|_n = 2\pi N\,\frac{M_1}{M_2}\frac{Z_1^2 Z_2^2}{E_1} e^4 \ln\frac{T_{\max}}{T_{\min}} \quad \text{.....(I.27)}$$

1.4.3 Pouvoir d'arrêt électronique

Pendant la collision électronique, chaque ion incident peut interagir de façon inélastique avec les atomes de la cible en produisant soit les excitations électroniques ou l'ionisation des atomes. Ces interactions sont beaucoup plus complexes que les interactions élastiques.

Ceci est dû au fait que qu'elles ne peuvent pas être décrites par des chocs entre deux corps.

Trois domaines de vitesses sont à distinguer pour évaluer la perte d'énergie électronique [8] :

a- Le régime des grandes vitesses $v_1 >> Z_1^{\frac{2}{3}} v_0$

b- Le régime des vitesses intermédiaires lorsque $v_1 \approx Z_1^{\frac{2}{3}} v_0$ (pic de Bragg)

c- Le régime des basses vitesses lorsque $v_1 << Z_1^{\frac{2}{3}} v_0$

Ils sont définis par rapport à la quantité $Z_1^{\frac{2}{3}} v_0$.

Où

v_1 : C'est la vitesse de l'ion incident, v_0 : c'est la vitesse orbitale de l'électron 1s de l'atome d'hydrogène ($v_0 = 2.2\times10^6$ *m/s).*

- **Régime des grandes vitesses ($v_1 >> Z_1^{\frac{2}{3}} v_0$)**

Dans ce cas, l'ion incident est complètement épluché de ses électrons et il peut être considéré comme un ion de charge ponctuelle Z_1e.

L'expression utilisée couramment dans ce cas est la formule de Bethe [9] :

$$\left.\frac{dE}{dx}\right|_e = \frac{4\pi e^4 Z_1^2 Z_2 N}{m_e V_1^2} \ln\left(\frac{T_{max}}{T_{min}}\right) \quad \text{.....(I.28)}$$

Où : *N* est la densité atomique de la cible, Z_2est le numéro atomique de la cible, m_e est la masse de l'électron et I est le potentiel moyen d'ionisation.

T_{min} est l'énergie minimale de transfert et $T_{max} = \frac{4 m_e M_1 E}{(M_1 + m_e)^2} \approx 2 m_e v_1^2$.

Cette formule est valable pour les ions de très grande vitesse non relativiste.

- **Régime des vitesses intermédiaires lorsque $v_1 \approx Z_1^{\frac{2}{3}} v_0$**

Quand la vitesse du projectile diminue, le processus de capture entre en concurrence avec celui d'ionisation. Le projectile n'est alors plus totalement épluché. Il capte des électrons de la cible et son état de charge diminue. Sa charge électrique moyenne devient inférieure à $Z_1 e$, et

le pouvoir d'arrêt électronique devient plus faible que celui prévu par la formule de Bethe. Ainsi, aux vitesses intermédiaires, le dépôt d'énergie passe par un maximum, appelé pic de Bragg.

- **Régime des basses vitesses** $(v_1 << Z_1^{\frac{2}{3}} v_0)$

A faible vitesse, l'ion possède la plus grande partie de ses électrons. Au cours de la collision, les nuages électroniques des deux partenaires se recouvrent. Un réarrangement des niveaux électroniques aura lieu au en engendrant la formation d'une quasi-molécule possédant ses propres états électroniques qui évoluent en fonction de la distance interatomique. Seuls les électrons faiblement liés de la cible contribuent à la perte d'énergie de l'ion.
Lindhard, Scharff et Schi (théorie LSS) [10] et indépendamment Firsov [11] ont montré que le pouvoir d'arrêt électronique est proportionnel à la vitesse de l'ion dans ce domaine de vitesse.

$$\left.\frac{dE}{dx}\right|_e^{Firsov} = N5.15\left(Z_1 + Z_2\right)*10^{-15} * \frac{v_1}{v_2} \quad \text{.....(I.30)} \qquad \text{(exprimé en eV.cm}^{-1}\text{)}$$

$$\left.\frac{dE}{dx}\right|_e^{LSS} = \xi_\varepsilon 8\pi e^2 a_0 \frac{Z_1 Z_2}{\left(Z_1^{\frac{2}{3}} + Z_2^{\frac{2}{3}}\right)^{3/2}} \frac{v_1}{v_2} \quad \text{..... (I.31)}$$

Où

a_0= 0.529.10^{-8}cm. ξ_ε Varie entre 1 et 2 et il est approximé par $\xi_\varepsilon = NZ_1^{\frac{1}{6}}$

1.4.4. Détermination des pouvoirs électronique et nucléaire :

Dans le domaine des vitesses $v_1 >> v_0$ et si nous négligeons la variation logarithmique des relations (I.26) et (I.28), le rapport entre la perte d'énergie nucléaire et la perte d'énergie électronique peut s'écrire :

$$-\left(dE/dx\right)_n \Big/ -\left(dE/dx\right)_e = \frac{Z_2 m_e}{M_2} \text{ Voisin de } m_e/2m_p \approx \frac{1}{3500} \quad \text{.....(I.32)}$$

Les valeurs du pouvoir d'arrêt sont disponibles soit, sous forme de tableaux soit, sous forme des codes numériques. Ces valeurs sont déterminées à partir de l'extrapolation des résultats de l'ajustement des modèles présentés précédemment, avec les données expérimentales existantes. Ainsi, une partie du programme Stopping and Range of Ions in Matter (SRIM) [12] est dédiée à la tabulation des pouvoirs d'arrêt. Ce programme contient également la quasi-totalité des pouvoirs d'arrêt mesurés expérimentalement [9].

1.5. Effets induits dans le matériau cible

1.5.1Création de défauts par collisions élastiques à basses vitesses

Au cours de l'interaction ion –atome cible, une quantité d'énergie va être transféré pendant le ralentissement nucléaire au matériau cible. On peut citer les changements suivants au niveau de la cible :

- Si l'énergie cinétique transmise à des atomes cible est suffisamment grande, elle va provoquer des déplacements au niveau des atomes du matériau.
- Si l'énergie cinétique transmise est supérieure à l'énergie minimale nécessaire pour déplacer un atome cible (énergie seuille), ces atomes seront éjectés loin de leurs sites en donnant lieu à la création de défaut de Fränkel.
- Si l'énergie de l'atome primaire qui a initié la cascade (soit l'ion projectile lui-même ou un atome de la cible) est suffisamment grande par rapport à l'énergie seuille (E_d), il peut alors déplacer d'autres atomes en induisant ainsi une cascade de collisions et qui peut conduire à l'éjection des atomes de la surface

1.5.2. Création de défauts par collisions inélastiques à hautes vitesses

On trouve que les défauts créent par des collisions électroniques pour des faibles énergies sont obtenues par des processus directes. Par contre, quand l'énergie augmente, les défauts créés par des collisions nucléaires sont induites par des processus plus compliqués et indirectes.

Durant la collision, le projectile perd la majorité de son énergie le long de son trajectoire dans la cible. Cette énergie transférée aux électrons de la matière (collision électronique) qui va créer par la suite une forte densité de charge le long de son parcours. Cette forte densité d'ionisation permet de conduire à la création d'une zone fortement endommagée (trace

latente). Cette trace est constituée de matière désordonnée, on parle donc d'amorphisation. Dans certains matériaux, on observe un changement de la phase cristalline.

1.6. Simulation numérique

Il existe aujourd'hui plusieurs codes de calcul dédiés à la simulation du phénomène de transport des ions dans la matière.

Différentes méthodes de simulation (Monte-Carlo, Dynamique Moléculaire, Equation de transport) ont été développées pour modéliser les divers effets intervenant lors de l'interaction ion-matière. D'une part, la simulation nous permet de mieux comprendre les différents processus d'interaction et d'autre part, elle offre une bonne interprétation des résultats expérimentaux. Selon les différentes techniques de simulation, on peut distinguer les quatre grandes familles de codes suivantes :

1.6.1 Codes de type dynamique moléculaire MD.

C'est une technique de simulation numérique permettant de modéliser l'évolution d'un système de particule au cours de temps. En pratique, la dynamique moléculaire consiste à simuler le mouvement d'un ensemble de quelque dizaine à quelque milliaire de particules dans certaines conditions.

1.6.2 Codes de type collision binaire BC.

Concernent cette type de calcul, la structure cristalline est absolument prise en compte mais que des collisions a deux corps sont considérées. Ces codes permettent de décrire l'évolution de la structure et de la composition locale du réseau, mais ne reproduisent pas les mouvements collectifs des atomes, le code le plus utilisé dans ces codes de type BC est MARLOWE [13].

1.6.3 Codes de type approximation de collision binaire BCA.

L'approximation des collisions binaires est utilisée depuis longtemps dans les simulations numérique. L'hypothèse principale de cette approximation et que les interactions énergétiques peuvent être séparés en série de collisions binaires, ceci pour déterminer les positions des atomes cibles, aussi pour sélectionner des paramètres d'impact ou des angles de diffusion

1.6.4 Codes de type Monté Carlo.

Ce code est utilisé pour la simulation des trajectoires des particules individuelles à travers leurs collisions successives avec les atomes de la cible. Cet approche numérique consiste à discrétiser la cible en tranches élémentaires et à effectuer ensuite la sommation le long de chemin parcouru.

Chapitre II

Pulvérisation cathodique

2.1. Introduction

Dans ce chapitre, nous allons définir les différentes techniques de croissance cristalline par voie physique. Nous allons introduire, par la suite, le phénomène de la pulvérisation et ces différents régimes. Nous allons définir, en particulier, le rendement de pulvérisation, les différents paramètres influençant sur lui et les modèles théoriques ou empiriques permettant de lui calculer.

2.2. Technique de la croissance cristalline par PVD (Physical vapor deposition)

Les techniques de la croissance cristalline se divisent en deux groupes soit la croissance cristalline des matériaux massifs soit des couches minces qui dépendent principalement au l'épaisseur. Par convention, une couche mince définit par la déposition d'un matériau sur un substrat pour une épaisseur fortement réduite de l'ordre de quelques nm à quelques µm. Tandis que l'épaisseur d'un matériau massif est environ quelques centaines de µm. Comme il est illustré dans la figure (II.1), il existe deux grandes méthodes d'élaboration de couches minces : dépôt des couches minces par voie physique PVD et dépôt par voie chimique CVD.

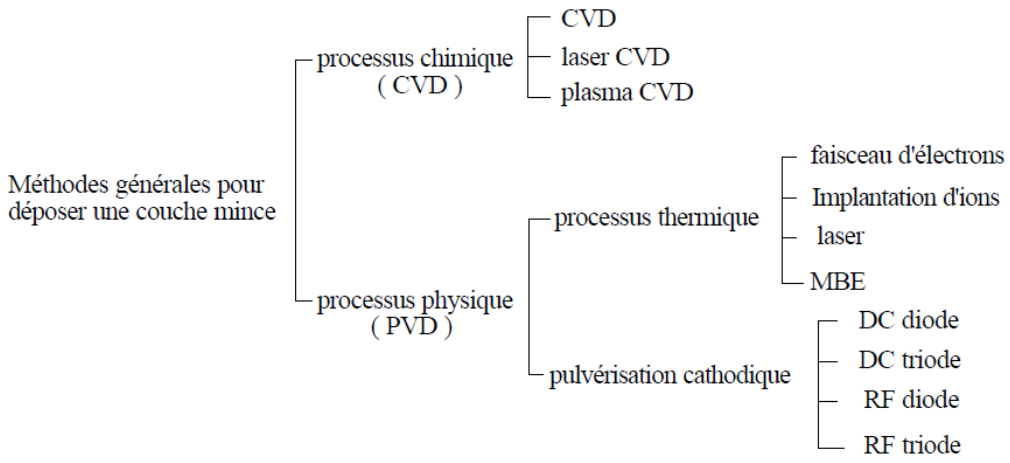


Fig.II.1. Méthodes générales de dépôt de couches minces sous vide

Dans la première catégorie (PVD), l'évaporation thermique consiste à évaporer sous vide un matériau à déposer, en le chauffant à haute température. La pression de vapeur doit être supérieure à la pression restante dans la cuve à vide. Par la suite, la condensation des molécules de vapeur conduit à la formation d'une couche mince sur un substrat.

Il existe plusieurs méthodes pour chauffer le matériau : à l'aide d'un filament réfractaire par effet Joule, à l'aide d'un faisceau d'électrons intense et énergétique (typiquement de 5 à 10 KeV) ou à l'aide d'un laser.

Cette technique est surtout utilisée dans le domaine de micro-usinage ou dans l'épitaxie par jet moléculaire pour la formation de semi-conducteurs en couches minces à 2D ou 3D.

Les couches obtenues sont de haute pureté en raison de l'ultravide exigé par la technique pendant la croissance.

L'ablation laser est utilisé pour obtenir des couches minces de haute qualité et de bonne cristallinité dans la stœchiométrie et souvent celle de la cible. Elle est basée sur l'interaction d'un faisceau laser d'énergie approprié avec la surface de la matière. Au cours de l'interaction, les atomes surfaciques ainsi que ceux des couches profondes de la cible absorbant l'énergie électromagnétique fournis par le faisceau laser. Cette énergie est transformée sous forme de chaleur.

Concernant la pulvérisation cathodique, qui est l'objectif de cette étude, elle permet de réaliser le dépôt de n'importe quel matériau solide, aussi bien diélectriques que métalliques. De ce fait, les couches minces obtenues sont en général denses et homogènes. Les particules sont arrachées à la surface, sous une pression de 10^{-3} à 10^{-1} Torr. Le plasma est ensuite créé par l'application sur la cible d'une tension électrique continue (DC) ou haute fréquence (RF). Les ions du plasma commencent à bombarder la cible en éjectant des atomes qui se précipitent sur la surface du substrat placé face à la cible.

2.3. Pulvérisation cathodique

2.3.1. Définition de la pulvérisation

Durant l'interaction de l'ion incident avec un matériau solide, elle provoque deux types de collisions (voir figure II.2) :

a) Les collisions élastiques des ions incidents avec les noyaux de la cible qui introduit le déplacement des atomes du milieu en provoquant l'éjection des atomes de solide.
b) Les collisions inélastiques des ions incidents avec le nuage électronique de matériau en conduisant à l'ionisation ou à l'excitation du milieu. Ceci conduit à l'émission des électrons secondaires ou bien des photons.

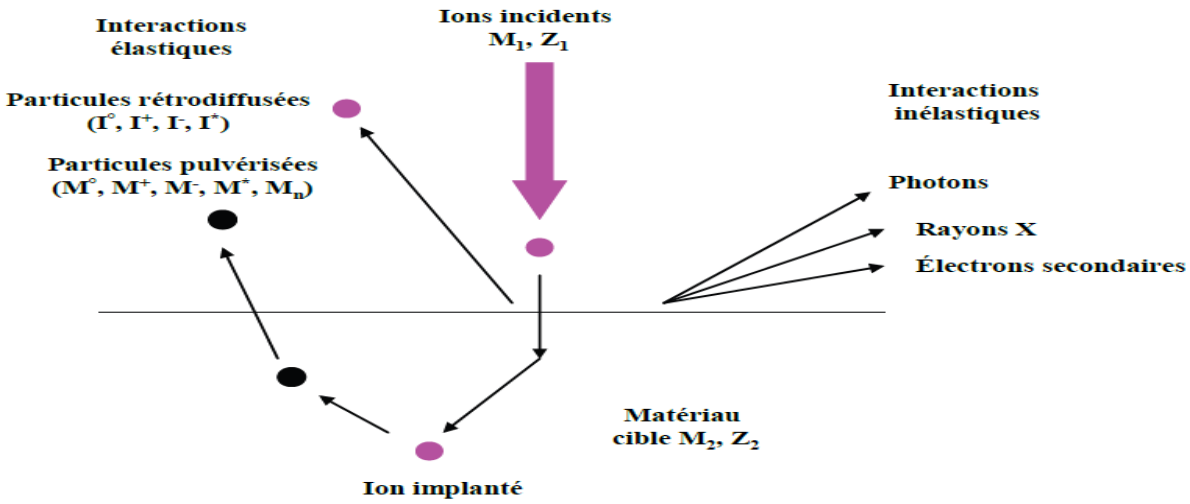


Fig. II.2: Les phénomènes mis en jeu durant la pulvérisation ionique.

La pulvérisation est un ensemble des phénomènes par lesquelles les atomes quittent la surface d'un solide, suite au bombardement par un faisceau des particules énergétiques. Ainsi, ces atomes peuvent à leur tour engendrer une série de chocs avec d'autres atomes de matériau et déplacer un certain nombre d'atomes. Les particules éjectées peuvent être des atomes neutres, des ions positifs ou négatifs, des électrons, voire même des photons. La cascade de collisions se développe jusqu'à ce que les atomes mis en mouvement atteignent une faible énergie après quelques collisions.

A proximité de la surface, il y a certains atomes mis en mouvement qui possèdent une énergie suffisante pour s'extraire de la cible qu'on l'appelle les particules pulvérisées.

Dans le cas de faisceaux intenses ou d'ions lourds, le phénomène de pulvérisation entraine l'érosion du matériau.

Dans un alliage, la pulvérisation n'est pas identique pour tous les atomes, on parle alors de la pulvérisation préférentielle.

Selon la gamme d'énergie de l'ion incident, nous distinguons deux types de pulvérisation : la pulvérisation induite par le pouvoir d'arrêt nucléaire dite la pulvérisation nucléaire et la pulvérisation induite par le pouvoir d'arrêt électronique qu'on l'appelle la pulvérisation électronique.

Le matériau pulvérisé est caractérisé par de grandeurs physiques :

- L'énergie de déplacement qui représente la force de liaison des atomes au sein d'un matériau.
- L'énergie de surface qui représente la force de liaison des atomes à la surface d'un matériau.

En effet, pour qu'un atome soit pulvérisé, on doit lui donner assez d'énergie pour vaincre toutes ces forces des liaisons.

2.3.2 Description générale de la technique de la pulvérisation cathodique :

Le matériau à déposer appelé matériau cible est introduit dans une enceinte à vide, sous forme d'une plaque de quelques millimètres d'épaisseur et de dimensions comparables à celle de la pièce à recouvrir.

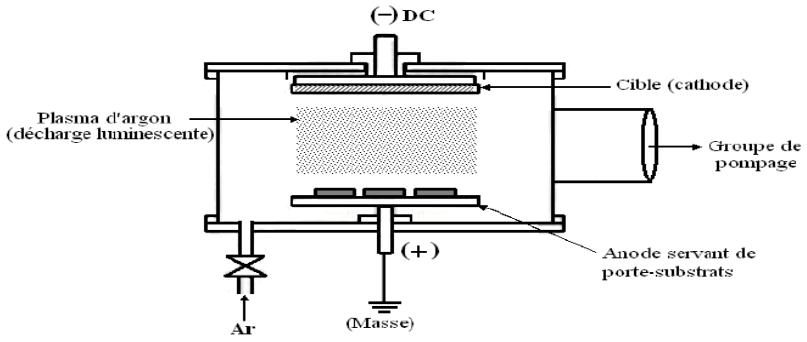


Fig. II.3 : Schéma de diapositive de pulvérisation cathodique (en DC)

Cette cible est fixée sur une électrode refroidie (la cathode) qu'on porte à une tension négative de 3 à 5 kV. Une deuxième électrode (l'anode) est disposée parallèlement à la cible, à une distance de quelques millimètres. Dans de nombreux cas, l'anode sert de porter le substrat, elle est généralement maintenue à la masse.

Si la pression résiduelle dans l'enceinte est comprise entre 1 Pa et 10^2 Pa, le champ électrique créé entre les deux électrodes provoque l'ionisation du gaz résiduel. Cette ionisation apparaît sous forme d'un nuage luminescent, localisé entre les deux électrodes. C'est ce phénomène que l'on observe dans les tubes fluorescents. Au même moment, un courant électrique s'établit entre les deux électrodes. Le gaz résiduel devient conducteur, il contient alors :

- des électrons, qui sont attirés par l'anode,
- des ions positifs qui sont attirés par la cible (cathode).

Si on place une pièce devant la cible, on observe que cette pièce se recouvre progressivement d'une couche du même matériau que celui de la plaque constituant la cible, si le gaz résiduel est celui d'argon, un plasma est créé entre les électrodes.

Le schéma de principe de la pulvérisation cathodique est présenté dans la figure (II.4) :

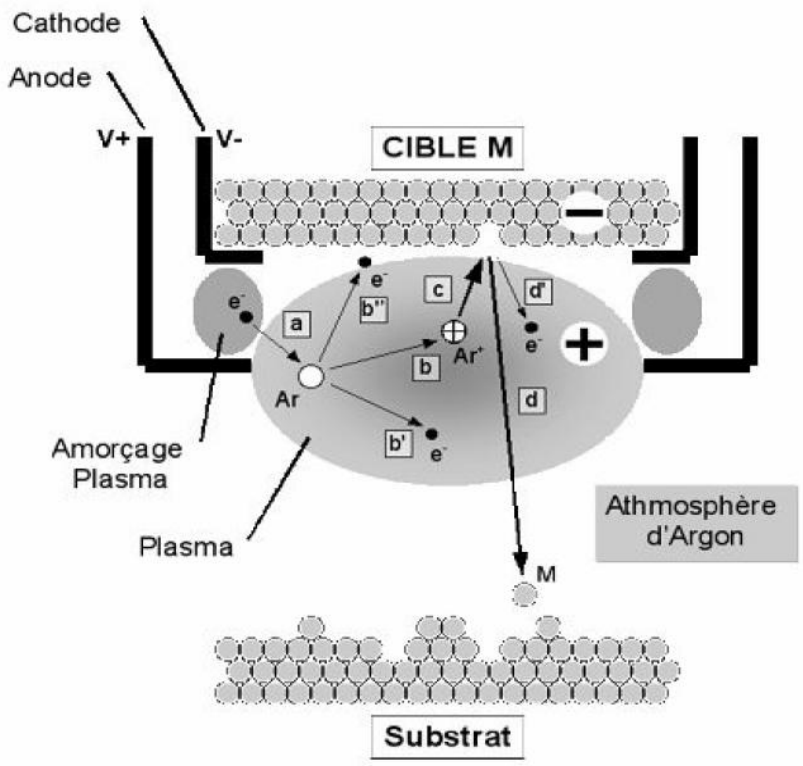


Fig. II.4 : Schéma de principe de la pulvérisation cathodique.

- processus (a) : les atomes d'Ar sont frappés par des électrons libres qui sont accélérés à haute tension
- processus (b) : ionisation du gaz pour avoir d'ions Ar+
- processus (c) : la migration des ions Ar^+ (accéléré) vers la cathode.
- processus (d): Sous l'effet de bombardement ionique par des ions Ar+, des atomes de la cible sont arrachés par collisions et traversent ensuite le plasma (espace ionisé) pour se condenser sur le substrat.
- processus (b') et (b'') : due à l'ionisation de l'argon, il produit des électrons secondaires. Ces électrons sont eux- mêmes accélérés (la cible chargée négativement conduit la répulsion entre eux) [1].

Grace à la nature de gaz injecté, nous pouvons distinguer deux types de pulvérisation : simple et réactive.

Dans la pulvérisation simple, l'atmosphère de la décharge est chimiquement neutre, c'est-à-dire que l'on produit un vide de 10^{-6}torrs. On injecte ensuite le gaz d'argon pur pour créer le plasma.

Dans le cas de la pulvérisation cathodique réactive, l'atmosphère du plasma est réactive, c'est-à-dire que l'on introduit un certain pourcentage de gaz actif dans l'argon, par exemple de l'oxygène O_2ou de l'azote N_2. Dans chacun de ces cas, la cible peut être constituée d'un élément simple ou bien d'un composé.

Il existe différents types de systèmes de pulvérisation cathodique, suivant le mode de création du plasma ou la nature de la cible (conductrice ou isolante) : diode à courant continu, triode à courant continu, ou par la haute fréquence. Nous décrirons ces méthodes de pulvérisation cathodique par la suite.

2.3.3. Réacteur de la pulvérisation cathodique :

Les décharges diodes sont les premières décharges à avoir été utilisées pour le dépôt de films minces. Elles sont produites par l'application d'une différence de potentiel entre deux électrodes immergées dans un gaz à basse pression, conduisant à la création d'un plasma. Le matériau à pulvériser constitue généralement la cathode du dispositif (électrode polarisée négativement). Cette électrode peut être alimentée en continu (DC), pour le dépôt de matériaux conducteurs, ou en radiofréquence (RF), pour le dépôt de matériaux conducteurs et isolants. Les problèmes rencontrés par ce procédé sont liés à la faible densité du plasma et à la faible vitesse de dépôt lors d'une pulvérisation DC ou RF. Un dispositif supplémentaire basé sur l'effet magnétron peut augmenter le rendement de la pulvérisation DC et RF.

2.3.3.1Pulvérisation cathodique diode en courant continu :

Ce dispositif est composé d'une enceinte à vide où règne une pression résiduelle inférieure à 10^{-3}torr, dans laquelle ont été disposées deux électrodes planes, cathode et anode, distantes de quelques centimètres. La cathode froide, sur laquelle le matériau à pulvériser est fixé, est reliée au pôle négatif d'un générateur de tension de quelques kV. L'anode, sur laquelle se trouve le substrat, est reliée à la masse [2].Ce dispositif est schématisé sur la figure (II.5):

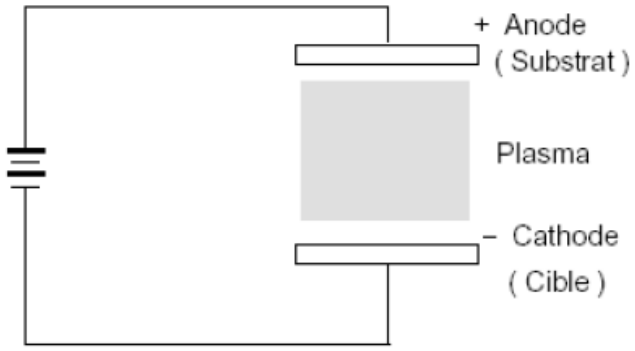


Fig.II.5 : Le système de pulvérisation de type "diode"

2.3.3.2 Pulvérisation cathodique à haute fréquence

Le dispositif à haute fréquence présente la même structure que la pulvérisation diode DC, maison remplace le champ électrique continu par un champ électrique alternatif à haute fréquence de l'ordre du MHz (1 kV crête à crête). On peut ainsi maintenir la décharge jusqu'à une pression inférieure à 10^{-3}torr. Si l'on ajoute un champ magnétique continu au champ électrique à haute fréquence, on peut maintenir une décharge stable jusqu'à quelques 10^{-4}torr. Ceci est un avantage considérable car le libre parcours moyen des molécules gazeuses est d'environ 50 cm. La plupart des atomes éjectés de la cible ne rencontreront pas les molécules du gaz résiduel.

L'avantage essentiel de ce procédé est de permettre la pulvérisation de n'importe quel matériau, qu'il soit conducteur ou isolant [2], car dans des systèmes à courant continu les charges électriques des ions bombardant la cible s'accumulent à sa surface. Elles y créent un champ électrique qui repousse les ions du plasma, ce qui a pour effet de réduire considérablement l'efficacité de la pulvérisation. Pour éviter cela, on choisit d'utiliser un plasma de haute fréquence. Dans le cas du système triode, on applique une tension de haute fréquence à la cible. On élimine de cette manière, d'une alternance à l'autre, les charges qui ont tendance à s'y accumuler.

Considérons par exemple une plaquette de saphir(Al_2O_3) placée sur un conducteur porté à un potentiel de haute fréquence. Lorsque ce conducteur est porté à un potentiel négatif par rapport au plasma, il attire les ions qui pulvérisent le saphir jusqu'à ce que les charges positives ainsi apportées créent un potentiel égal et opposé au potentiel du conducteur. La pulvérisation s'arrête puisque l'attraction des ions est compensée par le potentiel des charges à la surface du saphir. Si nous inversons la polarité du conducteur, celui-ci va attirer les

électrons présents dans le plasma. Ces électrons en s'accumulant sur la cible vont neutraliser la charge positive, autorisant ainsi de nouveau l'attraction des ions au cours de l'alternance suivante. Ainsi, une différence de potentiel continue se crée entre le plasma et la cible, la cible étant portée au potentiel négatif.

Une des applications les plus fréquentes de cette méthode est la réalisation de films multicouches isolant-conducteur avec des machines équipées de plusieurs cibles haute fréquence. Ces machines sont utilisées pour la réalisation de condensateurs en couches minces.

2.3.3.3. Pulvérisation cathodique à un effet magnétron

Quand on place derrière la cible des aimants de la manière présentée dans la figure (II.6.) On obtient devant la cible une zone ou le champ magnétique est pratiquement parallèle à la cible c'est-à-dire perpendiculaire au champ électrique. Dans cet espace, les électrons ont des trajectoires cycloïdales qui s'enroulent autour des lignes de champ magnétique. Les électrons sont donc retenus au voisinage de la cible ce qui augmente leur probabilité d'interaction avec les atomes de la phase gazeuse et favorise l'ionisation. L'augmentation de la concentration ionique se concrétise par une augmentation de la vitesse de pulvérisation donc du dépôt. De plus, il est possible de maintenir la décharge à plus faible pression ce qui permet d'obtenir des dépôts de plus grandes puretés. Le seul inconvénient de la pulvérisation à effet magnétron est l'apparition d'une érosion non-uniforme sur la cible.

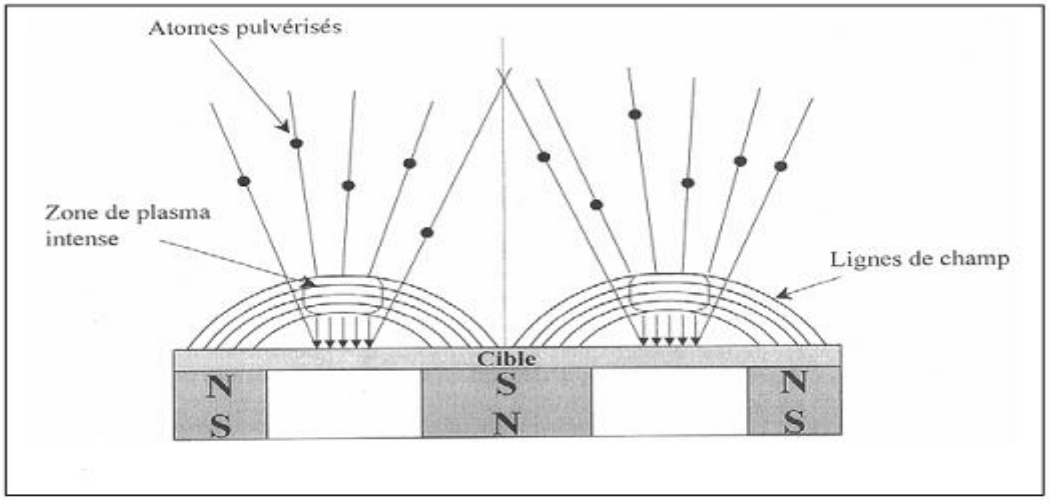


Fig. II.6 : Schéma d'une cible d'un pulvérisateur à effet magnétron.

2.3.4. Paramètres expérimentaux obtenus de la pulvérisation

Il existe différents paramètres expérimentaux qui influencent sur la pulvérisation. Parmi ces paramètres on peut citer : l'énergie de pulvérisation, la surface active, l'épaisseur de la couche mince, la technique du vide utilisée, la géométrie de l'ensemble de système de dépôt, le temps de dépôts, la distance entre les électrodes, la composition chimique de gaz employé……

2.3.4.1. Energie seille de pulvérisation

L'énergie de seuil de pulvérisation représente un paramètre important. Pour émettre un atome hors de la cible, il est nécessaire de lui transmettre une énergie suffisante pour l'extraire de la cible. L'énergie seuille E_{th} correspond donc à l'énergie minimale que doit avoir la particule incidente pour pouvoir provoquer cette émission.

Bradley [3] suggère une énergie de seuil de forme

$$E_{th} = \frac{4U_{liaison}\mu}{(\mu+1)^2} \quad \text{.....(II.1)}$$

Avec

- μ : le rapport entre la masse de l'atome-cible et celle de projectile incident
- $U_{Liaison}$: l'énergie de liaison de l'atome au sein du matériau.

Selon cette formule, l'énergie minimale pour mettre en mouvement un atome est de l'ordre de dizaine d'eV. Cette valeur reste en dessous de la valeur réelle car elle ne considère pas de potentiel à la surface. Dans la plupart des cas, l'énergie de liaison de surface est considérée comme équivalente à l'énergie de sublimation du matériau. Elle est généralement de l'ordre de quelques eV [4]. Cette énergie dépend de la nature de la cible.

2.3.4.2. Distance entre les électrodes

La distance entre les électrodes doit être optimisée. En effet, si la distance est trop grande, la décharge est concentrée au centre de ces deux électrodes. Cela provoque le bombardement exclusif du centre de la cathode. Si la distance est trop petite, la décharge est dispersée, ce qui provoque un bombardement sélectif du bord de la cathode. Dans ces deux cas, l'homogénéité du film est mauvaise.

En général, cette distance doit être comprise entre quelques centimètres et quelques dizaines de centimètres.

Dans tous les cas, il faut prévoir le refroidissement de la cathode car la dissipation d'énergie résultant de l'impact des ions peut provoquer la fusion de celle-ci [5]. On peut placer

l'enceinte dans un champ magnétique. Ce champ tend alors à localiser le plasma par suite de l'action de la force de Lorentz sur les particules chargées. On peut ainsi augmenter la densité du plasma au voisinage de la cible, ce qui permet d'accroître l'efficacité du dispositif. C'est ainsi que la pulvérisation cathodique est utilisée pour la fabrication de films minces.

2.3.4.3. Composition chimique

La composition chimique de couche mince dépend principalement de la cible. Chaque atome pris dans une phase donnée possède un rendement de pulvérisation différent. Celui-ci dépend de l'énergie des particules incidentes, de leurs angles d'incidence ainsi que de la force de liaisons chimiques des atomes de surface. Il dépend également du numéro atomique de la cible, comme il est bien illustré sur la figure(II.7).

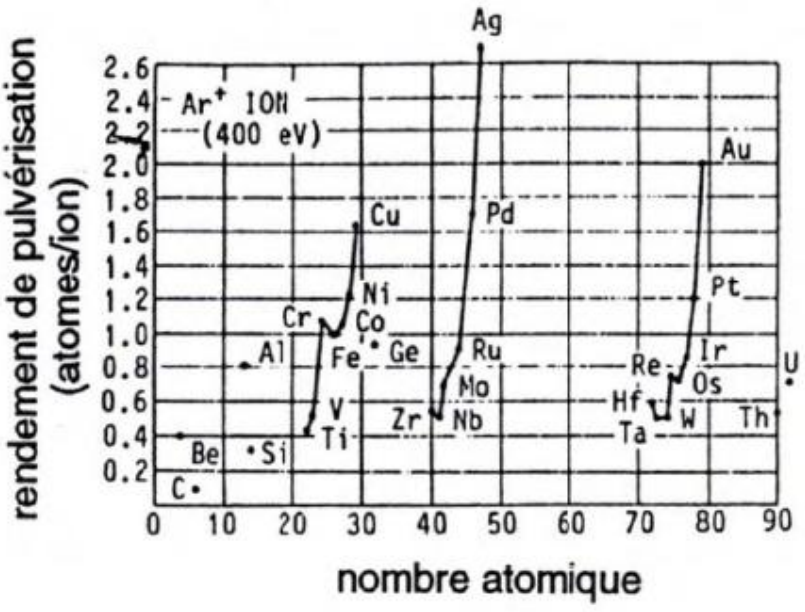


Fig.II.7: Variation de rendement de pulvérisation en fonction de nombre atomique dans le cas des ions d'argon d'énergie de 400 eV [6].

2.3.4.4. Vide utilisé

Le paramètre de vide joue un rôle très important pour éviter la pollution de la couche élaborée. L'enceinte de la pulvérisation constitue d'un groupe de pompage primaire et secondaire, lui permettant d'atteindre des vides résiduels de l'ordre de 10^{-5} torr. Ce pompage permet de conserver la pression et une atmosphère riche en gaz neutre et constamment renouvelés.

2.3.4.5. Pression

La pression influence sur l'énergie et les angles entre la normale du substrat et la trajectoire des particules incidentes. A forte pression, le libre parcours moyen des particules pulvérisées diminue ce qui correspond à un nombre plus important de collisions. Il se produit alors d'une part, une perte d'énergie des espèces incidentes et d'autre part, une augmentation des angles d'incidence par rapport à la normale au substrat [7,8].

2.3.4.6. Temps de dépôt

D'après la figure (II.8), la variation de l'épaisseur de couche mince élaborée liée directement au temps de dépôt. Par conséquence, si le temps augmente, la concentration des atomes arrachés augmente. Alors, l'épaisseur de film aussi augmente [9].

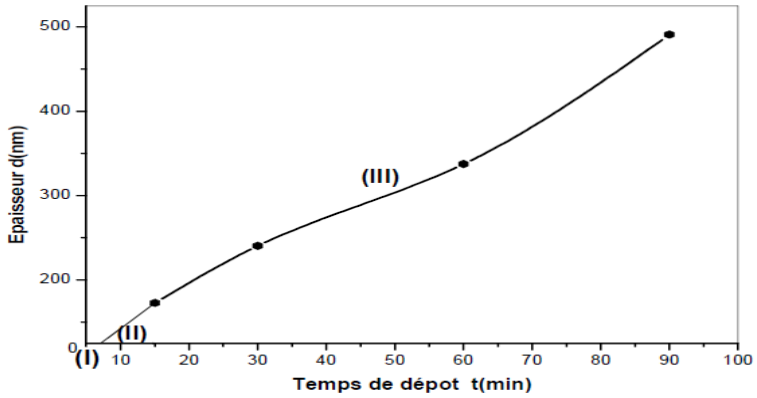


Fig. II.8 : Influence de temps de dépôt sur l'épaisseur de la couche CdS

2.4. Régimes de la pulvérisation

Nous citons trois régimes de pulvérisation nucléaire : régime des collisions simples, régime de cascades linéaires et de cascades non linéaires ou de pointe, qui se différencient par la quantité de matière mise en mouvement et son comportement.

2.4.1. Régimes de collisions simples

Dans ce cas, l'ion ne met que peu de particules en mouvement puisque leur énergie d'impact est faible. Ce régime est typique pour des ions légers à basse énergie (de 50 eV à 1 keV). Le mouvement des atomes s'arrêté après certains évènements de collisions. Donc la cascade ne se développe pas vraiment. Et par conséquence, la pulvérisation ne résulte alors que des séquences spécifiques qui ne feront intervenir qu'un nombre restreint d'atomes.

La figure (II.9) montre les mécanismes de base qu'on rencontre dans ce régime.

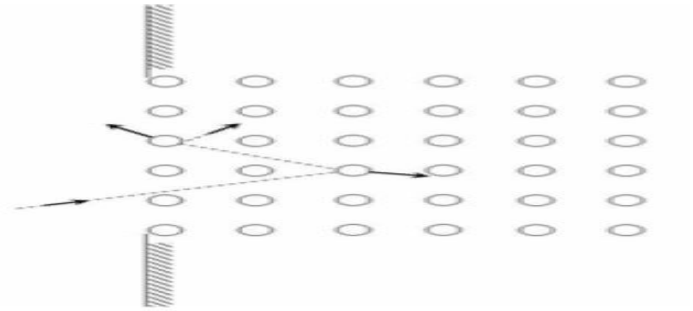


Fig. II.9 : Régime de collisions simples [2].

2.4.2. Régime de cascades linéaires

Dans ce régime, les collisions entre les atomes cibles et le projectile donnent naissance à des atomes de recul assez énergétiques pour qu'ils puissent créer des atomes de recul d'ordre supérieur (voir figure II.10).Ce régime apparait lorsque l'énergie de projectile est de l'ordre de 1 keV jusqu'à quelques keV et aussi pour des ions lourds. La théorie de cascade de collision linéaire a été développée pour des cibles amorphes par la résolution des équations de transport de Boltzmann, en utilisant les sections efficaces appropriées pour les collisions nucléaires.

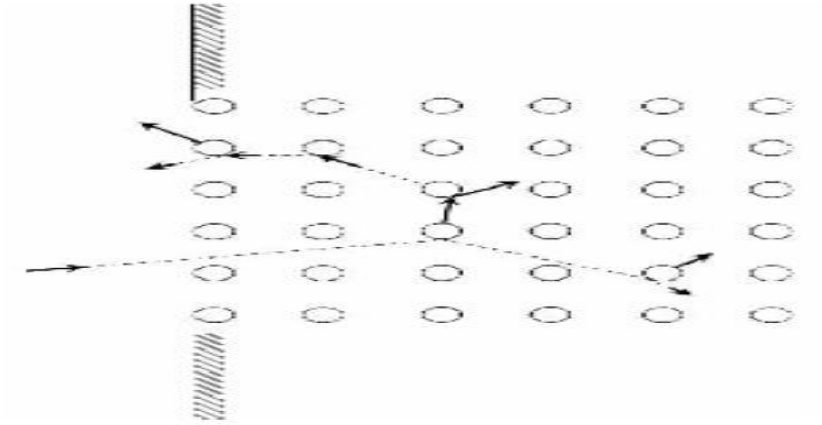


Fig. II.10 : Régimes de cascade de collisions [2].

2.4.3. Régime de pointe

C'est la situation où la majorité d'atomes dans un certain volume pointe sont mis en mouvement par des collisions avec d'autre d'atomes de la cible (figure II.1).Ce processus conduit à des effets non linéaires. Les particules sont en équilibre thermique local. Le phénomène de la pulvérisation ne peut pas être décrit par le modèle de collisions binaires mais par une superposition des cascades de collisions. Ce régime s'applique dans le cas où l'énergie de l'ion primaire est très élevée (de l'ordre de 100 keV ou plus) [4].

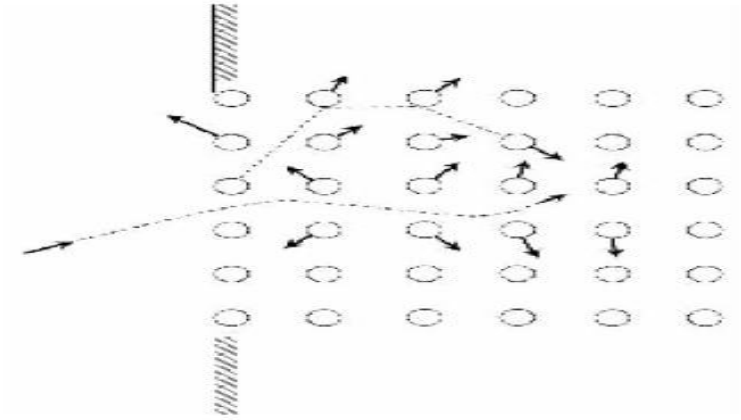


Fig. II.11 : Régime de pointe [2].

2.5. Rendement de pulvérisation

2.5.1. Définition

Le rendement de pulvérisation peut aussi appeler le taux de pulvérisation, il correspond au nombre moyen d'atomes enlevés de la surface par le nombre d'ion incident. Il est défini comme suit. [2] :

$$y = \frac{\text{nombre d'atomes émis}}{\text{nombre d'ions incidents}} \quad \text{.....(II.2)}$$

Cette grandeur est exprimée en (atomes/ion). Le rendement dépend de l'énergie d'impact, de l'angle d'incidence et de la nature de projectile et de la cible.

2.5.2. Influence de l'énergie de l'ion (gaz rare ou gaz réactif)

L'énergie de l'ion projectile détermine la quantité d'atomes mis en mouvement au voisinage de la surface. En effet, plus l'ion incident est énergétique plus il aura plus d'énergie à transmettre aux atomes de la cible. Par conséquence, la cascade sera plus vaste et il est raisonnable de penser que lorsque l'énergie de la particule incidente augmente, le nombre de particules pulvérisées augmente [1].

2.5.3. Influence de l'angle d'incident

Par convention, l'angle d'incidence représente l'angle entre la direction de l'ion et la normale à la cible. Cet angle joue un rôle très important dans l'évolution de rendement de pulvérisation. D'une maniéré générale, ce dernier augmente jusqu'à un maximum repéré par Θ_m par rapport à la normale de la surface de l'échantillon En effet, quand l'incidence s'écarte de la normale, la cascade de collisions est rapprochée à la surface de la cible. Par conséquence, la probabilité d'extraire des atomes de la cible augmente. Et de cout, le rendement de pulvérisation augmente. Et inversement, lorsque l'angle devient trop rasant, certains d'ions sont rétrodiffusées et ne transmettre qu'une partie de leurs énergies. Ceci implique que le rendement va diminuer par la suite [11, 12].

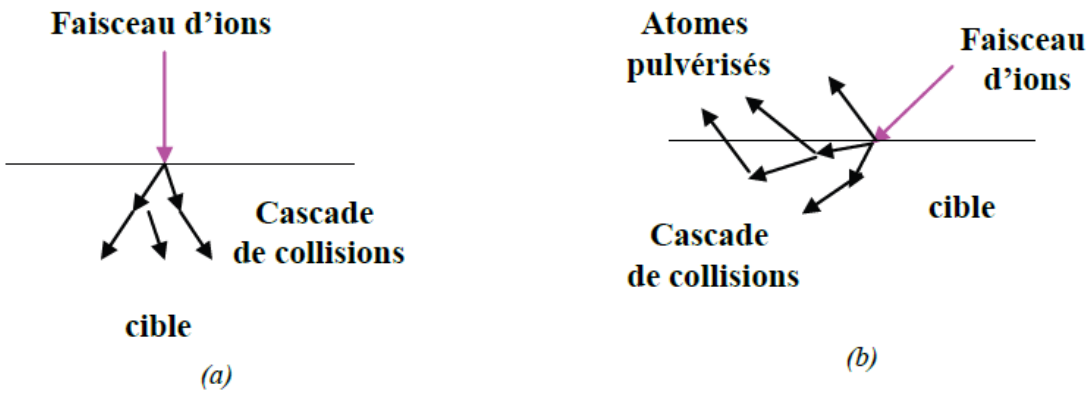


Fig. II.12: Schéma de la cascade de collision en fonction de l'angle d'incidence (a) Incidence normale et (b) incidence oblique [17].

La forme générale de l'allure d'évolution de taux de pulvérisation en fonction de l'angle incidente est représentée dans la figure (II.13).

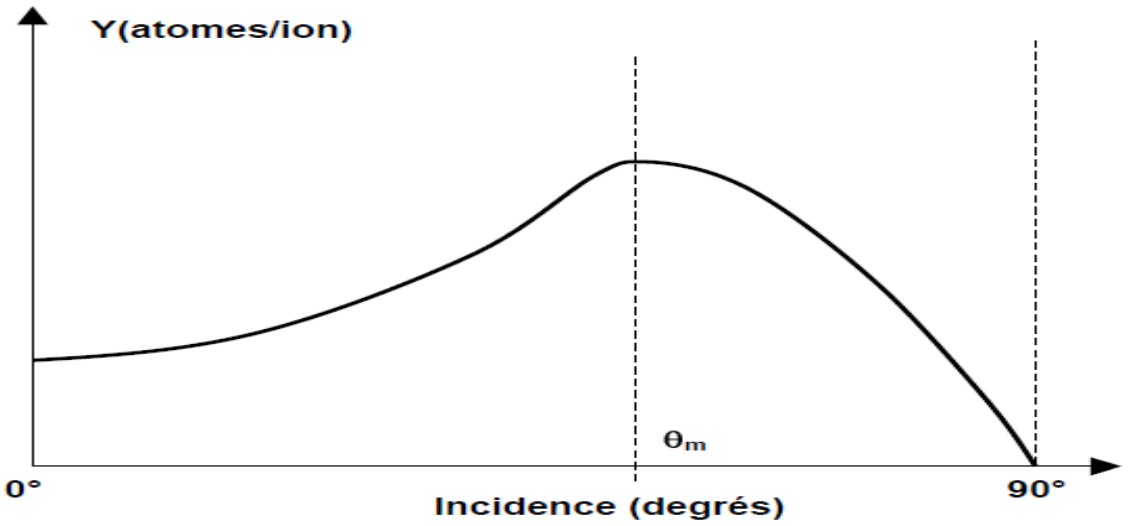


Fig.II.13 : Forme générale de la courbe du taux d'érosion en fonction de l'angle d'incidence [14].

2.5.4. Influence de la charge du projectile

Concernant la nature de projectile, il existe deux catégories : les ions monochargés et les ions multichargés.

Dans le cas des ions monochargés, la nature chimique de l'élément modifie le rendement de la pulvérisation d'une manière un peu observable. Par contre dans le cas des ions multichargés, la neutralisation de la charge modifie la surface de la cible et par conséquence le taux de pulvérisation [1,13].

2.5.5. Influence de la nature de la cible

Parmi les paramètres de la cible qui influencent sur le taux de pulvérisation, on cite [1] :

2.5.5.1. Masse de l'atome cible

Nous avons déjà vu que la masse est une grandeur importante qui participe dans le phénomène de collisions et par conséquence sur le taux de pulvérisation.

2.5.5.2. Energie de liaison :

Ce paramètre joue un rôle important au niveau de la surface par ce qu'il influence sur la probabilité d'extraire des atomes hors du matériau. Il contribue également au niveau de volume par ce qu'il contrôle le développement de cascade.

2.5.5.3. Densité du matériau

Il y a aussi la densité qui joue un rôle très important dans la répartition de l'énergie durant la collision.

2.5.5.4. Rugosité

La rugosité de la surface peut également changer le taux de pulvérisation partiellement.

2.5.5.5. Cristallinité

Le réseau cristallin influence sur le rendement de pulvérisation d'un matériau. Dans ce cas-là, il existe un effet appelé effet de canalisation (Channeling effect). Cet effet diminue l'interaction de l'ion à l'intérieur du matériau ce qui entraine une diminution du taux de pulvérisation.

On peut signaler ici que dans le cas des ions lourds ou d'une dose importante, le réseau tend à être détruit ou déformé par le bombardement. Si la forme du réseau est trop déformée, on parle alors d'amorphisation. Lorsque la cible est endommagée alors le parcours moyen des ions tend vers celui d'un matériau amorphe et le rendement augmente.

2.5.5.6. Température

La température à son tour modifie les énergies de liaison entre les atomes de la cible et donc peut influencer sur le taux de pulvérisation. En effet, à basse température les dommages crées par le bombardement sont plus importants, le rendement diminuera. Par contre, à haute température les dommages sont réparés par les mécanismes de transport, le taux de pulvérisation augmentera.

2.5.6. Pression résiduelle

Quand la pression de gaz résiduel change, le rendement de pulvérisation aussi varie. Cet effet joue un rôle très important dans le cas où l'introduction de composés chimiquement actifs comme l'oxygène. La figure (II.14) représente les résultats de la variation de rendement de pulvérisation du silicium par des ions d'argon d'énergie 5.5 keV en fonction de la pression résiduelle d'oxygène [13].

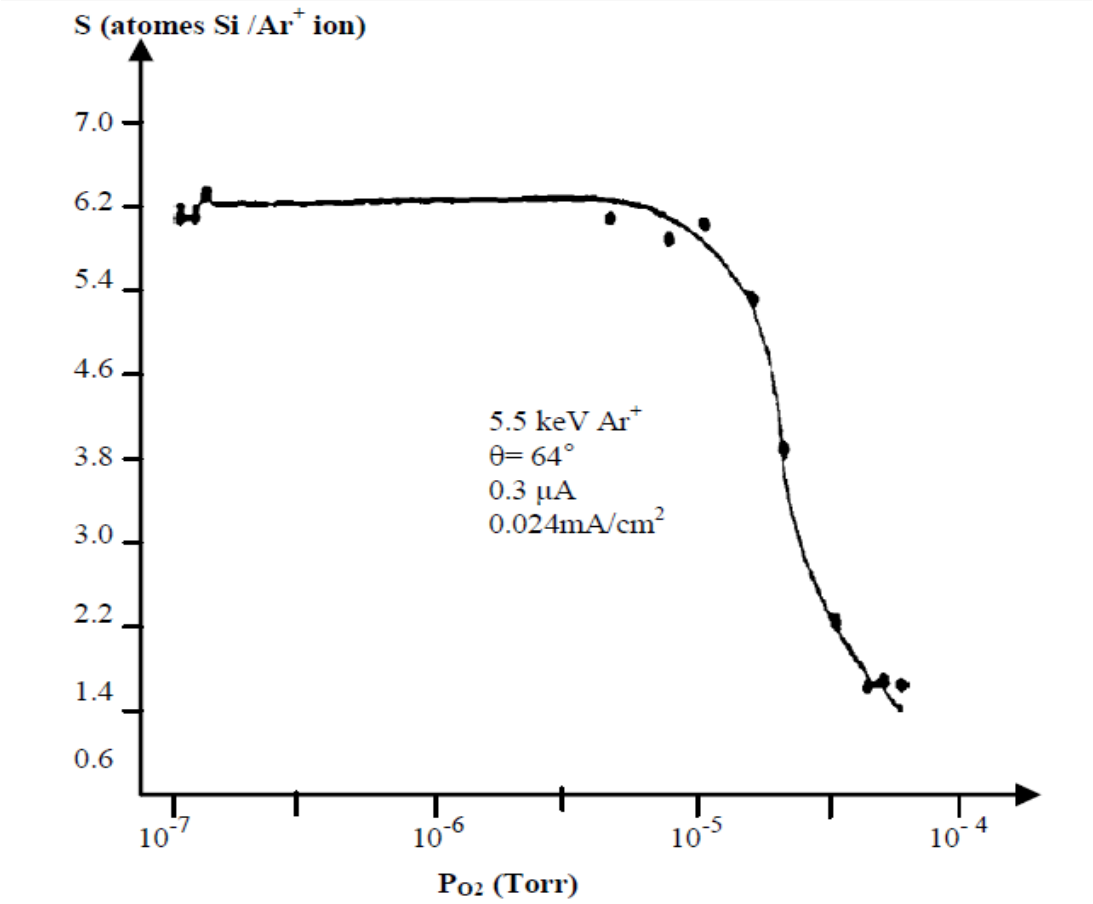


Fig. II. 14: Variation de rendement de pulvérisation du silicium en fonction de la pression résiduelle d'oxygène

On observe que le rendement de pulvérisation ne conserve sa valeur que pour une pression inférieure à 10^{-5}torr. Par contre, il se décroit rapidement pour des pressions supérieures.

2.6. Traitement théorique de la pulvérisation

Depuis plus de 150 ans, le phénomène de pulvérisation est connu. En effet, nous avions constaté que les ampoules se métallisaient. Cette métallisation était due au bombardement de la cathode par des ions produits par la décharge.

Aujourd'hui, nous savions que la pulvérisation est causée par de cascades de collisions provoquées par l'ion lorsqu'il pénètre dans la cible. En fait, Thompson et Sigmund sont parvenus à évaluer théoriquement le rendement de pulvérisation et la distribution en énergie des atomes pulvérisés de la surface d'une cible amorphe sous l'effet d'ions énergétiques. Ces deux modèles sont basés sur l'approximation de transport linéaire en supposant que les vitesses de particules subissent à la statistique de distribution de Boltzmann.

2.6.1Modéle de Thompson

En 1968, Thompson proposa une formule analytique pour calculer le coefficient de pulvérisation sous l'impact d'ions rapides. Elle est basée sur l'analyse de spectre de distribution en énergie des atomes pulvérisés subissant des cascades de collisions aléatoires induites par des ions lourds d'énergie dans l'ordre de quelques dizaines de KeV. La formule de rendement proposée par Thompson dans le cas d'incidence normale de l'ion est comme suit [15, 16] :

$$y = \frac{\pi^2 a_0^2 N^{2/3}}{8e} \cdot \frac{E_R}{U_s} \cdot \frac{M_1 (Z_1 Z_2)^{5/6}}{M_1 + M_2} \quad \text{.....(II.3)}$$

Avec :

N : est la densité atomique de la cible

a_0 : est le rayon de Bohr

E_R : est l'énergie de Redberg

e : est la charge élémentaire

U_s : est l'énergie de liaison de surface

M_1, M_2 : sont les masses d'ion incident et d'atome cible respectivement

Z_1, Z_2 : sont les numéros atomiques de l'ion incident et d'atome cible respectivement

Cette formule qui est indépendante de l'énergie de l'ion incidente est valable pour des énergies de quelque dizaines de keV.

2.6.2. Modèle de Sigmund

La théorie de Sigmund [16] considère qu'il faut avoir quatre quantités à fin de pouvoir estimer la pulvérisation de la cible sous le bombardement ionique :

1. La proportion d'énergie déposée par l'ion ou répartie par les atomes en mouvement dans la région proche de la surface
2. La quantité d'atomes proche de la surface qui sont mis en mouvement à faible énergie
3. La quantité d'atomes qui se dirigent vers la surface
4. La probabilité pour que des atomes échappent de la surface

Le calcul de rendement de pulvérisation par Sigmund est basé sur la résolution de l'équation de Boltzmann en utilisant les hypothèses suivantes:

- La cible est considérée amorphe et infinie.
- Les collisions ions/atomes et atomes/atomes sont supposées binaires.
- Le pouvoir d'arrêt électronique et les forces de liaisons en volume sont négligeables.

- Le rendement de pulvérisation est proportionnel à l'énergie déposée dans une couche mince près de la surface, le coefficient est déterminé par le pouvoir d'arrêt nucléaire [15,17].

Sigmund a réussi pour une incidence normale à obtenir la formule suivante :

Pour E< 1 keV:

$$y(E)=\left(\frac{3}{4\pi^2}\right)\lambda\alpha\left(\frac{M_2}{M_1}\right)\frac{E}{U_s} \quad \text{.....(II.4)}$$

Tel que :

λ : est une fraction d'énergie transférée

U_s : c'est l'énergie de liaison ou de sublimation

α : est une fonction tabulée par Sigmund du rapport de masse, il s'écrit comme suit :

$$\alpha = 0.15 + 0.13\frac{M_2}{M_1} \quad \text{.....(II.5)}$$

Pour E> 1 keV :

$$y(E)=0.042\alpha\left(\frac{M_2}{M_1}\right)\left(\frac{S_n}{U_s}\right) \quad \text{.....(II.6)}$$

S_n est le pouvoir d'arrêt nucléaire qui s'écrit de la forme suivante :

$$S_n(E)=84.375.\frac{Z_1Z_2}{\left(Z_1^{2/3}+Z_2^{2/3}\right)^{1/2}}.\frac{M_1}{M_1+M_2}S_n(\varepsilon) \quad \text{.....(II.7)}$$

$S_n(\varepsilon)$ est le pouvoir nucléaire réduit en fonction de l'énergie réduite, il s'écrit comme suit :

$$S_n(\varepsilon)=\frac{3.441\sqrt{\varepsilon}\ln(\varepsilon+2.718)}{1+6.355\sqrt{\varepsilon}+\varepsilon\left(6.882\sqrt{3}-1.708\right)} \quad \text{.....(II.8)}$$

L'expression finale du rendement de pulvérisation après l'injection de l'expression de pouvoir d'arrêt nucléaire devient :

$$y(E)=3.56\alpha\left(\frac{M_2}{M_1}\right)\left[\frac{Z_1Z_2}{\left(Z_1^{2/3}+Z_2^{2/3}\right)^{1/2}}\right]\left[\frac{M_1}{(M_1+M_2)}\right]\left[\frac{S_n(\varepsilon)}{U_s}\right] \quad \text{.....(II.9)}$$

Malheureusement, cette expression du coefficient de pulvérisation n'est pas vraiment valable pour des ions légers ou des particules incidentes ayant des énergies proches de seuil de la pulvérisation [14].

Actuellement, il sert comme un modèle d'ajustement pour les différents modèles semi-empiriques et pour les codes de simulation numérique élaborés dans le cadre du régime de cascades de collisions.

2.7. Traitement semi-empirique de la pulvérisation

La prévision de taux de pulvérisation est un objectif de plusieurs travaux expérimentaux. Cependant, pour des raisons de temps et de couts, les valeurs expérimentales du rendement sont remplacées par des évaluations théoriques ou semi-empiriques.

En effet, le modèle développé par Sigmund devient insuffisant lorsque l'énergie d'ions incidents est relativement faible. C'est pourquoi, les chercheurs ont ajouté quelques paramètres empiriques pour améliorer l'ajustement de ce modèle aux données expérimentales.

Les modèles semi-empiriques se distinguent par les trois corrections principales [13, 16] :

- ✓ Une correction due à la contribution de la perte d'énergie électronique
- ✓ Une correction due à l'effet de seuil de pulvérisation
- ✓ Un facteur correctif spécifique à la cible

2.7.1. Formule semi-empirique de Bohdansky

La formule de Bohdansky [5] est utilisée pour déterminer le rendement au-dessus de seuil de pulvérisation E_{th}. Cette formule qui est basée sur le modèle de Sigmund, utilise la compilation de données expérimentales pour obtenir les constantes d'ajustement.

La formule de Bohdansky s'écrit sous la forme suivante :

$$y(E) = 0.042\alpha \frac{S_n^{TF}}{U_s} \frac{R_p}{R} \left(1 - \left(\frac{E_{th}}{E}\right)^{2/3}\right)\left(1 - \frac{E_{th}}{E}\right)^2 \quad \text{.....(II.10)}$$

Tel que :

a : est un paramètre correctif

$\frac{R_p}{R}$: est un facteur correctif pour la perte d'énergie électronique. Il dépend du rapport de masse M_2 / M_1.

E_{th} : est l'énergie de seuil de pulvérisation

Récemment, cette formule été révisée par Eskstein et Preuss [14] en se basant sur les données expérimentales et sur la simulation numérique. Selon ces auteurs, la nouvelle forme est donnée par la relation suivante:

$$y(E) = qS_n^{krC}(\varepsilon_L)\frac{\left(\frac{E}{E_{th}}-1\right)^{\mu}}{\lambda/w(\varepsilon_L)+\left(\frac{E}{E_{th}}-1\right)^{\mu}} \quad \text{.....(II.11)}$$

Avec :

E est l'énergie réduite

q,b λ,b, E_{th} et μ sont des parametres d'ajustement aux données expérimentales de rendement de pulvérisation.

S_n^{KrC} est le pouvoir d'arrêt nucléaire réduit relative au potentiel Kr-C . Il est donné par la l'expression suivante [6] :

$$S_n^{KrC}(E) = \frac{0.5\ln(1.2288\varepsilon+1)}{\varepsilon+0.1728\sqrt{\varepsilon}+0.008\varepsilon^{0.1504}} \quad \text{.....(II.12)}$$

2.7.2.Formule de Matsunami et Yamamura

A l'aide de la combinaison de la théorie de Lindhard de pouvoir d'arrêt nucléaire et électronique avec la compilation des données expérimentales de rendement de pulvérisation, Matsunami et Yamamura ont pu développer deux formules semi-empiriques identiques dont la forme génerale est comme suit [16]:

$$y(E) = 0.042\frac{\alpha Q}{u_s}\frac{S_n^{TF}(E)}{1+AS_e(\varepsilon)}\left(1-\sqrt{\frac{E_{th}}{E}}\right)^{s} \quad \text{.....(II.13)}$$

Tel que :

$S_e(\varepsilon)$ est le pouvoir d'arrêt électronique réduit

$S_n^{TF}(E)$ est le pouvoir d'arrêt nucléaire pour le potentiel TF évalué par la relation suivante [16]:

$$S_n^{TF}(E) = \frac{3.441\sqrt{\varepsilon}\ln(\varepsilon + 2.718)}{1 + 6.355\sqrt{\varepsilon} + \varepsilon(6.882\sqrt{\varepsilon} - 1.708} \quad \text{.....(II .14)}$$

s,Qet A : sont des parametres d'ajustement des données exprimentales

Dans ce cas-la, ils ont concédéré que la pulvérisation résulte de la cascade des collisions et pardes collisions simples simultanément. En fait, lorsque les ions incidents sont lourds, l'éjection de la matiére de la surface provient des cascades de collisions. Par contre, pour des ions légers, le régime de collision simple devient plus dominant.

En 1984, Matsunami [18]a montréque dans la formule de rendement de pulvérisation, la valeur de« s » est 2.8 pour tous les élements de tableau périodique et que le paramétre A s'écrit sous la forme suivante :

$$A_M = 0.35U_s \quad \text{.....(II .15)}$$

Tandis que dans la formule de Yamamura, le facteur « s » est fixé à 2.5 (sauf que pour certains élements il prend 2.8) et le paramétre A est donné par la relation suivante :

$$A_Y = \frac{w\,\varepsilon^{-0.2}}{1 + (M_1/7)^3} \quad \text{.....(II .16)}$$

2.7.3. Energie seuil de pulvérisation

La notion d'énergie seuille est une notion ambigue. Par conséquence, cette notion a été introduire exprémentalement. Elle est minorée par l'énergie de surface. Toutefois, Bohdansky, Matsunami et Yamamura [1,18,19] avaient proposé une loi pour calculer E_{th} en utilisant l'énergie de surface U_s et le facteur d'énergie transférée par collision élastique $\gamma = 4M_1M_2 / (M_1 + M_2)^2$ [13].

Le tableau suivant résume l'expression de l'énergie de seuil pour chacun des modéles introduits[14].

Nom	Expression de E_{th}
Bohdansky [1]	$E_{th=8U_s(\frac{M_2}{M_1})^{-1/s}}$ pour $\frac{M_2}{M_1} \leq 3$ $E_{th} = \frac{U_s}{\gamma(1-\gamma)}$ pour $\frac{M_2}{M_1} > 3$
Yamamura 1 [20]	$E_{th} = \frac{1.5\ U_s}{\gamma}\left[1 + 1.38(\frac{M_2}{M_1})^h\right]^2$ Tel que h= 0.834 pour $\frac{M_2}{M_1} > 1$ Et h= 0.18 pour $\frac{M_2}{M_1} < 1$
Matsunami [18]	$E_{th} = U_s\left[1.9 + 3.8\,(\frac{M_2}{M_1})^{-1} + 0.134\,(\frac{M_2}{M_1})^{1.24}\right]$
Yamamura 2 [21]	$E_{th} = u_s\left[0.214 + 4.77(\frac{M_1}{M_2})^{0.567} + 0.256(\frac{M_2}{M_1})\right]$

Tableau II.1 : les expressions de l'énergie de seuil pour les différents modèles

Ces formules semi-empiriques sont développées pour corriger l'erreur de rendement de pulvérisation à basse énergie. C'est pour cela, ils ont introduit une fonction supplémentaire au modèle de Sigmund ayant la forme suivante [18, 19] :

$$f\left(E_{th}/E_0\right) = \left[1 - (\frac{E_{th}}{E_0})^{1/2}\right]^n \quad \text{.....(II .17)}$$

Alors, l'expression de rendement devient:

$$y = \frac{0.042}{u_s}\alpha\left(\frac{M_2}{M_1}\right)S_n\left(E_0\right)\left[1 - \left(\frac{E_{th}}{E_0}\right)^{1/2}\right]^s \quad \text{.....(II .18)}$$

Dans le tableau II.2 nous donnons les expressions de rendement de pulvérisation proposés par les différents auteurs [14].

Auteur	Expression de rendement de pulvérisation
Sigmund [16]	$y = \frac{0.042}{u_s}\alpha(\frac{M_2}{M_1})S_n(E_0)$
Matsunami 1 [17]	$y = \frac{0.042}{u_s}\alpha(\frac{M_2}{M_1})S_n(E_0)\left[1-(\frac{E_{th}}{E_0})^{1/2}\right]^1$
Bohdansky [1]	$y = \frac{0.042}{u_s}\alpha\left(\frac{M_2}{M_1}\right)S_n(E_0)\left[1-(\frac{E_{th}}{E_0})^{2/3}\right]\left(1-\frac{E_{th}}{E_0}\right)^2$
Yamamura [19]	$y = \frac{0.042}{u_s}\alpha(\frac{M_2}{M_1})S_n(E_0)\left[1-(\frac{E_{th}}{E_0})^{1/2}\right]^2$
Matsunami 2 [18]	$y = \frac{0.042}{u_s}\alpha(\frac{M_2}{M_1})S_n(E_0)\left[1-(\frac{E_{th}}{E_0})^{1/2}\right]^{2.8}$

Tableau II.2 : les expressions de rendement de pulvérisation obtenue par les déférents modèles

Les expressions du paramètre α pour chaque modèle sont présentées dans le tableau II.3 [18].

Auteur	Expression de α
Bohdansky [26]	$\alpha \approx 0.2\ pour\ \frac{M_2}{M_1} \leq 0.5$ $\alpha \approx 0.3\left(\frac{M_2}{M_1}\right)^{2/3}\ pour\ 0.5 < \frac{M_2}{M_1} < 10$
Yamamura [24]	$\alpha = 0.1 + 0.155(\frac{M_2}{M_1})^{0.73}$
Matsunami [22]	$\alpha = 0.08 + 0.164\left(\frac{M_2}{M_1}\right)^{0.4} + 0.0145(\frac{M_2}{M_1})^{1.29}$

Tableau II.3 : les expressions de α pour les différents modèles

Chapitre III

Simulation et Techniques expérimentales

3.1. Introduction

Certains processus d'évolution de la microstructure peuvent être directement étudiés expérimentalement, tandis que d'autres restent inaccessibles par les techniques disponibles. Les simulations informatiques peuvent souvent compléter les informations obtenues à partir de l'expérience [1]. Les phénomènes induits par pulvérisation cathodique sont provoqués par un grand nombre de particules et sont donc difficiles à déduire par un simple calcul. De ce fait, les simulations sont particulièrement bien adaptées pour les étudier. Avec le développement des outils informatiques, il devient possible de simuler le procédé de dépôt complet (éjection de matière de la cible, transport jusqu'au substrat et croissance des couches minces). Ces trois étapes de la pulvérisation, qui ont été définies précédemment, peuvent être simulées avec différents codes de simulation.

3.2. Codes de simulation de la pulvérisation cathodique

La simulation numérique du procédé de pulvérisation cathodique s'est appuyée sur les trois grandes étapes suivantes :

1- La création de vapeur métallique lors du bombardement ionique par un gaz non réactif (par exemple l'argon).

2- Le transport des espèces pulvérisées depuis la cible jusqu'à la surface du substrat dans une atmosphère résiduelle ou réactive.

3- La croissance du dépôt sur le substrat.

Pour chaque étape, nous pouvons utiliser l'un des codes suivants :

1- SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter) est un logiciel libre simulant l'éjection de matière de la cible suite à l'impact avec un ion.

2- SIMTRA (Simulation of Metal Transport) est un logiciel libre simulant le transport des atomes de la cible jusqu'au substrat.

3- Simul3D est un logiciel de laboratoire payant qui permet de simuler en trois dimensions la croissance des dépôts.

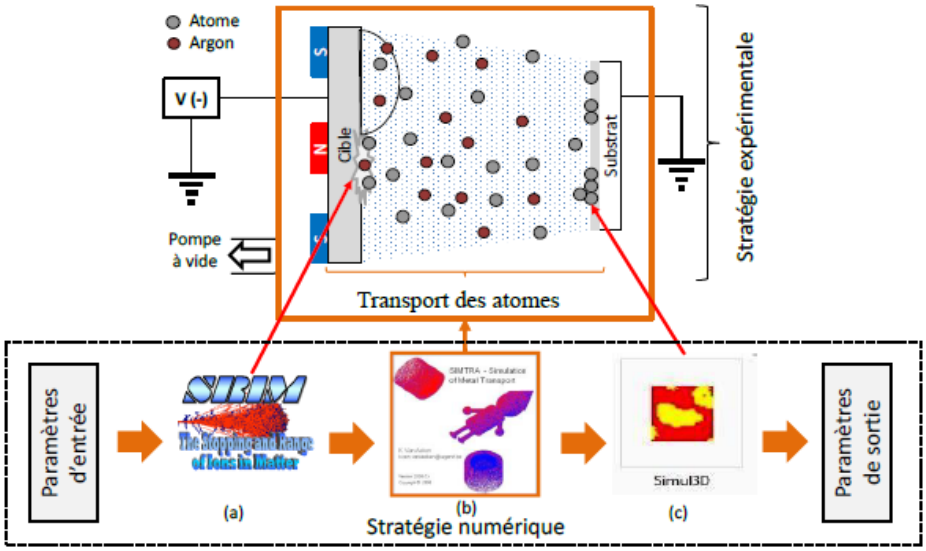


Fig. III.1 : stratégie numérique .a) SRIM pour simulation l'éjection de matière de la cible sous bombardement ionique (~4h) .b) SIMTRA simule le transporte des atomes de la cible jusqu'au substrat (~1/4h). c) MARLOW simule la croissance du dépôt sur le substrat (~5min) [1].

Bien que SRIM simule la pulvérisation des atomes sous l'impact des ions, il existe d'autres codes similaires. Ils se déférent principalement par la nature du milieu cible, la gamme d'énergie considérées et les grandeurs calculées. Le tableau III.1 donne une comparaison entre les codes SRIM [3.4], TRIDYN [5] et MARLOWE [6]. Ces trois codes sont souvent utilisés pour modéliser la pulvérisation cathodique.

Code	Matériau de la cible	Gamme d'énergie	Grandeurs calculées
SRIM (TRIM)	Amorphe	10 eV-2 GeV	Pulvérisation, profondeur de pénétration moyenne, déplacements
TRIDYN	Amorphe	0.1 keV-1 MeV	Pulvérisation, changement de composition
MARLOWE	Amorphe, cristallin	> 1 keV	Pulvérisation, diffusion ionique

Tableau. III.1 : Codes de simulation de l'éjection de matière de la cible [3-6].

3.2.1. Méthode de simulation Monte Carlo

Les simulations de type Monte-Carlo sont très rapides et rendent ainsi possible une analyse statistique sur un grand nombre d'événements. Cette méthode repose sur l'utilisation d'un générateur de nombres aléatoires qui doit fournir des nombres issus d'une distribution uniforme [7]. Pour que ces nombres soient vraiment aléatoires, il est nécessaire de satisfaire un certain nombre de critères à la fois la moyenne, la variance, mais aussi tous les moments de la distribution doivent être ceux d'une distribution uniforme [8].

Dans les premiers temps, on peut le génère des nombres aléatoires pour appliquer la méthode Monte Carlo, par des différentes manières :

– tables de nombres aléatoires établies à partir de certains phénomènes physiques.

– Générateurs de nombre aléatoires : cette méthode fait appel aux ordinateurs. Les nombres obtenus doivent constituer une série non reproductible, mais le test de non reproductibilité est difficile à réaliser. De plus, le stockage des résultats au cours du calcul, encombre la mémoire de l'ordinateur.

Pour contourner ces difficultés, on utilise actuellement des nombres pseudo aléatoires. Les nombres pseudo aléatoires différents des nombres aléatoires par le fait que lorsque le premier est arbitrairement choisi, toute la suite est complètement déterminée et reproductible.

Par cet effet, on peut appliquer des tests de qualité et vérifier le programme dans lequel ils sont utilisés. Une des formules les plus utilisées pour engendrer des nombres pseudo aléatoires à distribution uniforme, est :

$$x_{n+1} = (ax_n + b) \bmod (m) \quad \text{.....(III.1)}$$

Les nombres pseudo-aléatoires sont assimilés à une suite {Ri} de nombres qui sont uniformément distribués dans l'intervalle [0,1].

L'utilisation de cette suite permet de sélectionner un évènement à partir d'une loi de probabilité p(x), continue ou discrète, reliée au phénomène physique que l'on cherche à simuler. Il faut ainsi, dans le cas où cette loi de probabilité est continue, effectuer une transformation de la distribution uniforme sur l'intervalle [0 ,1] en un distribution quelconque sur un intervalle [a, b] [7].

Si p(x) est normalisée sur l'intervalle [a , b], c'est-à-dire si :

$$\int_a^b p(x)dx = 1 \quad \text{.....(III.2)}$$

Il est alors possible de déterminer le nombre réel x_n tel que:

$$\int_{a}^{x_n} p(x)dx = \int_{a}^{R_i} u(x)dx = R_i \quad \text{.....(III..3)}$$

Où u(x) est la distribution uniforme et égale à 1(dans le cas où l'intervalle est [0,1]) sur laquelle sont tirés les nombres Ri. Parce que la densité de probabilité p(x) est positive, à chaque nombre Ri correspond un nombre Xn unique.

3.2.2. Logiciel de simulation SRIM

SRIM [3, 4] repose sur plusieurs hypothèses simplificatrices. Tout d'abord, le matériau est considéré comme amorphe. SRIM est donc incapable modaliser le transport des ions dans une structure cristalline. De ce fait, il ne peut pas prendre en compte l'effet de canalisation des ions à travers des cristaux. De plus, les atomes sont considérés comme immobiles (le matériau est à 0° K) ce qui met de côté les phénomènes de recombinaison entre un atome déplacé et une lacune. Le taux de pulvérisation calculé par SRIM se modifie par rapport à celui de l'expérience. Cependant, des études basées sur des simulations par ce code ont montré des bonnes corrélations entre les rendements de pulvérisation calculés et ceux mesurés expérimentalement.

3.2.2.1. Description du logiciel SRIM

Le programme SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter) développé par Ziegler et Biersack est base sur le code TRIM (Transport of Ions in Matter). Il fonctionne sous Windows et il est considéré comme étant une évolution du TRIM qui s'exécute sous DOS. Il utilise le potentiel interatomique de ZBL qui est définit au chapitre I. Il permet de simuler l'arrêt et le parcours des ions dans la matière pour une énergie allant de 10 eV jusqu'à 10^{-2}GeV. Il a une interface simple permettant de choisir entre deux programmes principaux qui sont le calcul du pouvoir d'arrêt des ions (Stopping/Range Tables) et le calcul détaillé des trajectoires d'ions (TRIM Calculation) [2].



Fig. III. 2 : Interface menu du logiciel SRIM 2013

En choisissant le code TRIM, le manipulateur sera directement orienté vers l'interface de la figure (III.3) où il sera invité à entrer les données suivantes: type de l'ion et de l'atome cible, gamme d'énergie, l'angle d'incidence, le type de calcul.

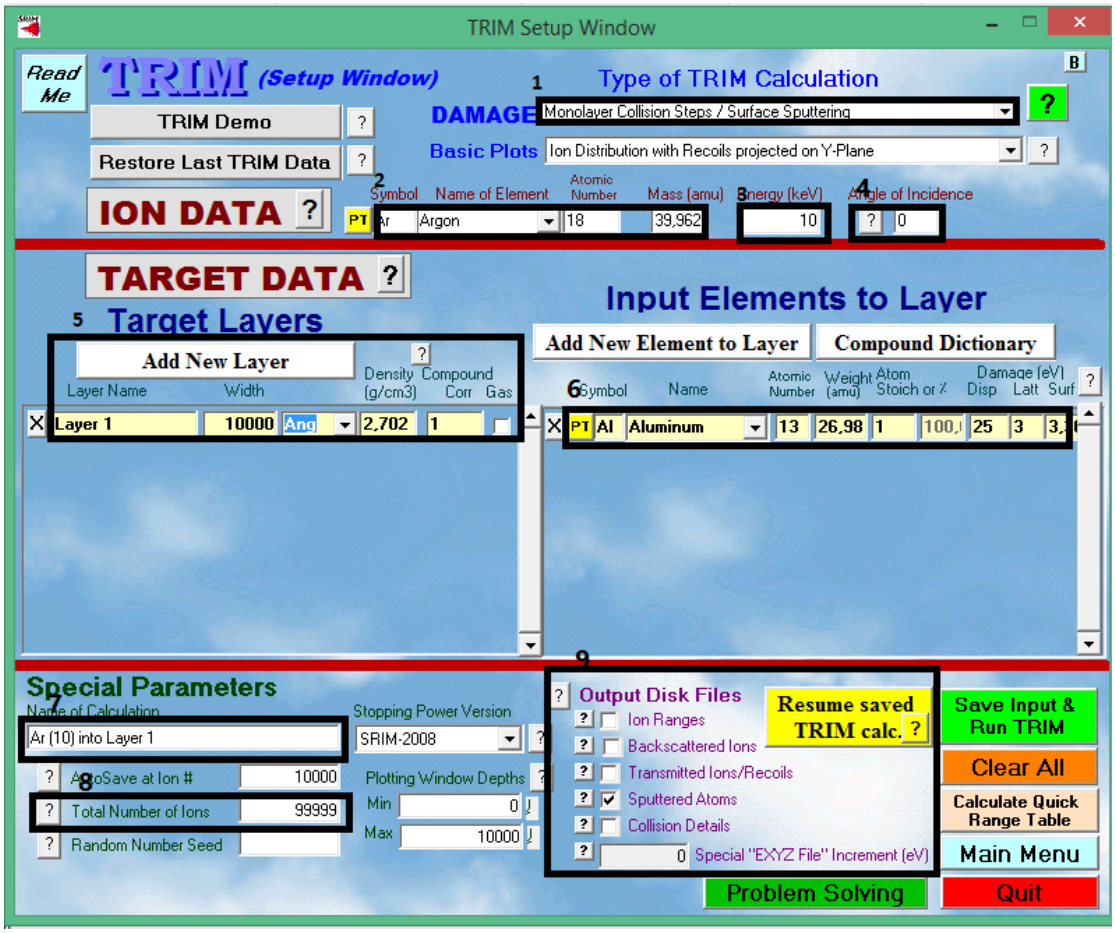


Fig.III.3 : Interface du programme TRIM

L'interface du programme TRIM possède plusieurs options. Les options de 1 à 9 qui permettent de choisir les paramètres d'entrée et de sortie sont regroupées dans le tableau (III.2).

Option		Paramètre
1	Entrée	Elle permet de choisir les phénomènes à simuler, qui sont : - Calcul rapide de l'endommagement de la cible et la distribution des ions. - Implantation ionique. - La pulvérisation - Energie spécifique, angle, parcours des ions.
2		Les données d'ions incidents: symbole, nombre atomique, masse atomique.
3		Energie des ions incidents en keV.
4		L'angle d'incidence des ions entre 0° et 90° (0° correspond à l'incidence normale).

5		La nature du matériau cible.
6		Le nom, le nombre atomique de la cible et l'énergie des liaisons des atomes.
7		Nom de la simulation : projectile _ couche de la cible
8		Le nombre total d'ions
9	Sortie	Range.txt : tableau de répartition finale des ions et des atomes cible de recul. Backscat.txt: Energie, direction et trajectoire des ions rétrodiffusés. Transmit.txt : Energie, direction et trajectoire des ions transmis. Sputter.txt : Energie, direction et trajectoire la cible. Collision.txt: tableau de toutes les collisions atomiques ions/cibles qui conduisent à l'endommagement de la cible.

Tableau III.2 : Paramètres d'entrée et de sortie de TRIM.

Ce programme permet de calculer les différentes grandeurs liées au transport d'ions dans la cible. On peut les citer comme suit [9]:

- ✓ La distribution spatiale des ions implantés, transmis ou bien rétrodiffusés.
- ✓ Les distributions des pertes d'énergies électronique et nucléaire en fonction de profondeur.
- ✓ La distribution des lacunes formées à partir du déplacement des atomes.
- ✓ La distribution spatiale et énergétique des atomes pulvérisés.
- ✓ le rendement de pulvérisation.

Le logiciel contient une interface qui permet de visualiser en temps réel le profil de pénétration des ions incidents dans la cible. Elle permet également d'évaluer d'une manière instantanée les différentes grandeurs intervenant lors de la simulation (voir Fig.III.4).

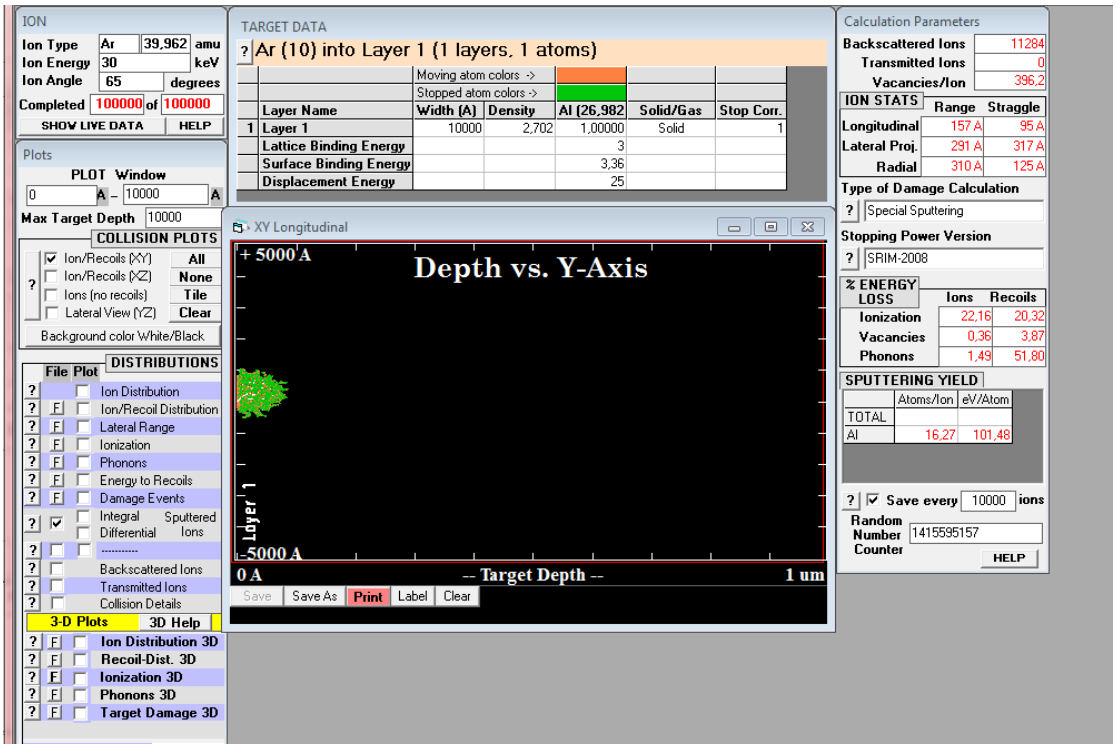


Fig.III.4 : Interface des résultats du programme TRIM.

La figure (III.5) montre les cascades de collision provoquées par le passage des ions d'argon de 10 keV dans la cible. Les points blancs représentent la position des ions. Les points verts et orange correspondent aux sites vacants créés par l'ion incident et par les cascades de collision (atomes de recul) respectivement.

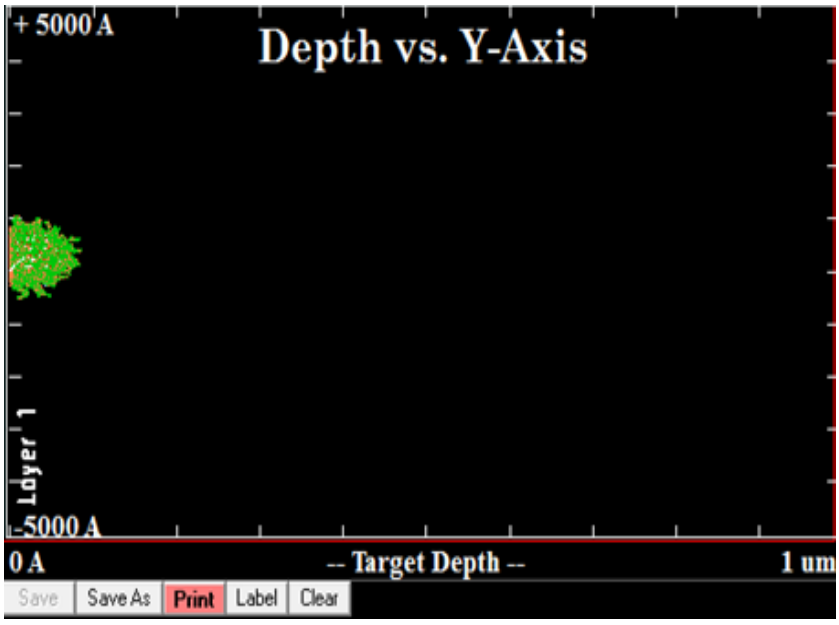


Fig.III.5 : Cascade des collisions produit par des ions d'Ar^+ de 10keV dans une cible de cuivre

3.2.2.2. Calcul du rendement de pulvérisation par TRIM

TRIM utilise la méthode des cascades de collisions pour suivre la trajectoire des atomes individuels reculés jusqu'à que leur énergie devienne inférieure à E_d. L'énergie E_d est définie comme étant l'énergie minimale qu'il faut transférer à un atome cible pour le déplacer de son site en créant une lacune.

Sachant que E_1 est l'énergie du projectile après la collision et E_2 l'énergie transférée à un atome cible, TRIM peut rencontrer quatre différentes situations:

- ✓ $E_1 > E_d$ et $E_2 > E_d$: l'ion incident peut déplacer un atome cible de son site qui devient à son tour un projectile en provoquant également d'autres chocs.
- ✓ $E_1 > E_d$ et $E_2 < E_d$: l'énergie de l'atome cible est insuffisante. Il reste alors dans son site et son énergie E_2 sera dissipée dans le réseau par le mécanisme de création des phonons (vibration de réseau).
- ✓ $E_1 < E_d$ et $E_2 > E_d$: l'atome cible est éjecté de son site et devient une particule incidente pour subir d'autres chocs. La particule incidente occupe des sites vides (substitutionnels) et son énergie est dissipée dans le réseau sous forme de vibrations (création des phonons).
- ✓ $E_1 < E_d$ et $E_2 < E_d$ L'atome cible continue à vibrer dans sa position d'équilibre sans quitter son site. L'ion incident peut occuper seulement des sites interstitiels et son énergie est dissipée dans le réseau en créant des phonons.

3.3. Méthodes expérimentales de la mesure du rendement de pulvérisation

Pour déterminer le rendement de pulvérisation expérimentalement, il existe quatre techniques fondamentales basées sur les phénomènes suivants :

- Variation de l'épaisseur de la cible
- Variation de poids de l'échantillon
- Condensation de particules pulvérisées sur un collecteur
- Détection des particules pulvérisées par un spectromètre de masse

3.3.1. Méthode de décroissance du poids de l'échantillon

C'est une méthode classique qui consiste de mesurer la variation de poids de l'échantillon de la cible (perte de masse) avant et après l'irradiation par le faisceau d'ions. Les mesures de rendement sont effectuées à l'air libre. Tandis que la précision et la sensibilité de cette technique sont moyennes, l'avantage de cette technique réside dans sa simplicité.
Récemment, l'utilisation sous vide des microbalances à quartz en cristal a permis d'améliorer la précision de cette technique.

3.3.2. Méthode de collection des particules pulvérisées

Cette méthode consiste à placées un collecteur sous forme semi-sphérique devant la cible à irradier pour accumuler les particules pulvérisées. Ces dernières sont détectées par les différentes techniques d'analyse (RBS, PIXE, NRA……..).
Cette méthode permet non seulement de mesurer le rendement de pulvérisation mais aussi à la détermination de la distribution angulaire des particules pulvérisées [10].

3.3.3. Méthode de la mesure directe par spectrométrie

Cette méthode consiste à détecter directement le flux des particules pulvérisées par un spectromètre de masse. Elle permet d'avoir des mesures relatives de rendement de pulvérisation qui doivent être calibrées par des valeurs mesurées (absolues) en utilisant d'autres techniques expérimentales. La spectroscopie de rétrodiffusion de Rutherford (Rutherford Back Scattering-RBS) ou bien RBS est couramment utilisée dans ce cas [11].

3.3.4. Méthodes de la mesure de l'épaisseur d'un film mince

Généralement les méthodes utilisées pour mesurer l'épaisseur de la cible avant et après l'irradiation sont classées en trois catégories. Soit on mesure directement l'épaisseur de la cible par des méthodes mécaniques ou optiques, soit on mesure la valeur d'une propriété physique qui varie avec l'épaisseur du film ou bien on mesure la perte de masse ou de nombre d'atomes de l'échantillon [12]. Un récapitulatif de l'ensemble de ces méthodes est schématisé dans la figure III.6.

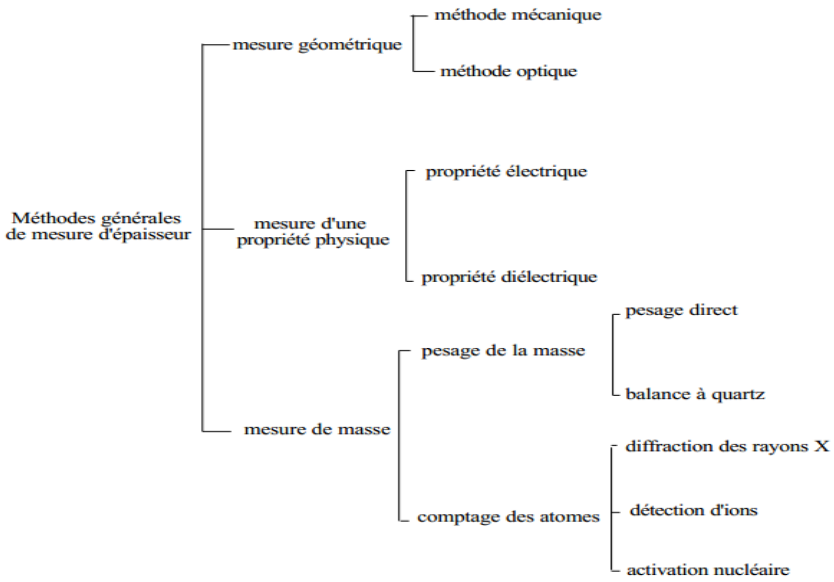


Fig.III.6 : Méthodes générales de mesure d'épaisseur de la cible.

Comme il a été mentionné précédemment, la technique RBS permet de mesurer directement le rendement de pulvérisation. Elle est également utilisée indirectement pour la détermination de cette grandeur via la mesure de l'épaisseur. De ce fait, la prochaine section est consacrée à une brève description de cette technique.

Technique de la spectroscopie de Rétrodiffusion Rutherford (RBS)

3.1. Introduction

La technique de Spectrométrie de rétrodiffusion Rutherford (RBS) est une méthode d'analyse par faisceau d'ions très utilisée en sciences des matériaux.

Dans cette technique, un faisceau d'ions (généralement des particules alpha) de quelques MeV est dirigé sur l'échantillon à analyser. Un ensemble de lentilles électromagnétiques focalise le faisceau sur l'échantillon tout en minimisant son diamètre (de l'ordre de quelques microns). En raison de cette concentration du faisceau, on parle de microsonde nucléaire.

Comme toute technique expérimentale, la RBS présente aussi bien des avantages que des inconvénients (ou bien des limitations) [13].

Les principaux avantages de la RBS sont :

- ❖ c'est une méthode non destructive
- ❖ elle fournit des informations sur l'état cristallin de l'échantillon

- ❖ elle permet de mesurer la dose du dopant et d'obtenir le profil des impuretés en profondeur de la cible
- ❖ elle permet l'analyse de la composition de la surface du film mince et de l'interface entre les couches adjacentes
- ❖ elle permet de déterminer l'épaisseur des différentes couches constituant la cible
- ❖ elle possède une bonne résolution en profondeur (~ 10 nm).

Les principaux inconvénients de la RBS sont :

- ❖ l'installation de la technique est très coûteuse.
- ❖ l'analyse des échantillons massifs est limitée.
- ❖ la détection des éléments légers est limitée.

3.2. Dispositif expérimental :

La méthode RBS consiste à compter le nombre d'ions projectiles qui rebondissent vers l'arrière lorsqu'ils sont repoussés par le champ électrique des noyaux cibles de l'échantillon. Des détecteurs capables de compter les projectiles rétrodiffusés et de mesurer leur énergie de recul sont disposés à un angle de diffusion choisi généralement dans la gamme 150-170° par rapport à la direction du faisceau. La figure III.7 illustre le dispositif expérimental de la technique RBS.

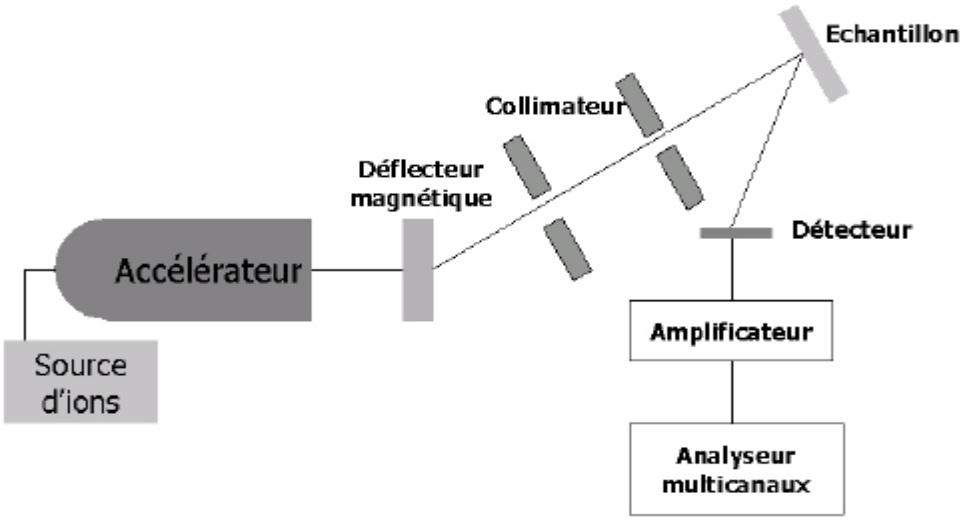


Fig. III.7 : Schéma général d'un montage de la technique RBS.

Pour un angle donné, l'énergie des ions diffusés est caractéristique de la masse du noyau cible. Lorsque le noyau cible est un élément lourd, la probabilité pour l'observer sera plus importante car elle est proportionnelle au carré de la charge électrique Z du noyau. La

technique RBS est donc appropriée à l'analyse des éléments intermédiaires ou lourds dans un matériau léger.

Chapitre IV
Résultats et discussions

4.1. Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats de pulvérisation d'une cible d'aluminium irradiée par des ions d'argon en utilisant le code SRIM 2013 (Stopping Range Ion in Matter). Nous nous intéressons à l'étude de l'évolution de taux de pulvérisation en fonction de différents paramètres physiques décrivant ce phénomène.

Une comparaison des valeurs obtenues de taux de pulvérisation d'aluminium irradié par différents ions incidents et sur une gamme d'énergie allant de 1 eV jusqu'au 1 MeV à celles obtenues par les modèles théorique et aux valeurs obtenues expérimentalement sera également présentées.

4.2. Evolution de rendement de pulvérisation en fonction de l'angle d'incidence

On présente sur la figure (IV.1) la variation du coefficient de pulvérisation en fonction de l'angle d'incidence pour des valeurs d'énergie d'impact allant de 5 keV jusqu'à 30 keV. Cette figure montre que la dépendance angulaire du rendement de pulvérisation dépend de l'énergie de l'ion. En fait, Molchanov [1] lors de mesure du rendement expérimental a observé qu'il se diffère de celui obtenu en incidence normale ($\theta = 0$). Il a montré que cette dépendance angulaire s'écrit :

$$Y(\theta) = Y(0)(\cos\theta)^n \quad \text{..... (IV.1)}$$

Où : $Y(0)$ est le rendement en incidence normale et n est un facteur qui dépend légèrement du rapport des masses $\left(\frac{M_2}{M_1}\right)$. Sa valeur est approximativement de l'ordre de 5/3.

Par le fit de nos résultats avec l'expression de l'équation (IV.1), nous avons remarqué que le rendement obéit à la même loi lorsque les angles d'incidence sont inférieure à 60°. Les valeurs de n obtenu dans le cadre de notre travail dépendent légèrement de l'énergie. Elles varient entre 2,3 et 2,6. Un exemple de ce fit est présenté dans la figure (IV.2).

Nous pouvons voir également de la figure (IV.1) une évolution exponentielle du rendement de pulvérisation avec l'angle d'incidence. Lorsque l'angle d'impact s'écarte de la normale à la surface, le rendement augmente jusqu'à une valeur maximale, puis il diminue dans le cas où les incidences deviennent rasantes. Le maximum des distributions qui dépond légèrement de l'énergie est compris entre 75° à 80°.

Ceci peut être expliqué par le fait que le dépôt de l'énergie est d'autant plus grand que l'angle par rapport à la surface augmente. L'énergie ainsi transmise va induire une série de collisions successives (cascade de collisions) qui se développe de plus en plus au voisinage de la surface lorsque l'angle d'incidence s'écarte de la normale. Ceci va faciliter l'éjection de la matière. Cependant, la décroissance du rendement de pulvérisation observée pour des angles proches de 90° par rapport à la normale peut s'expliquer par la faible pénétration des ions incidents. En effet, certains ions dans cette situation n'interagissent que par des collisions simples avec la cible et ils vont rebondir en arrière 'rétrodiffuser'. Le transfert d'énergie au milieu est faible, ce qui entraine une diminution de la quantité d'atomes pulvérisés.

La figure (IV .1) montre également que le rendement de pulvérisation augmente avec l'énergie dans la gamme d'énergie considérée.

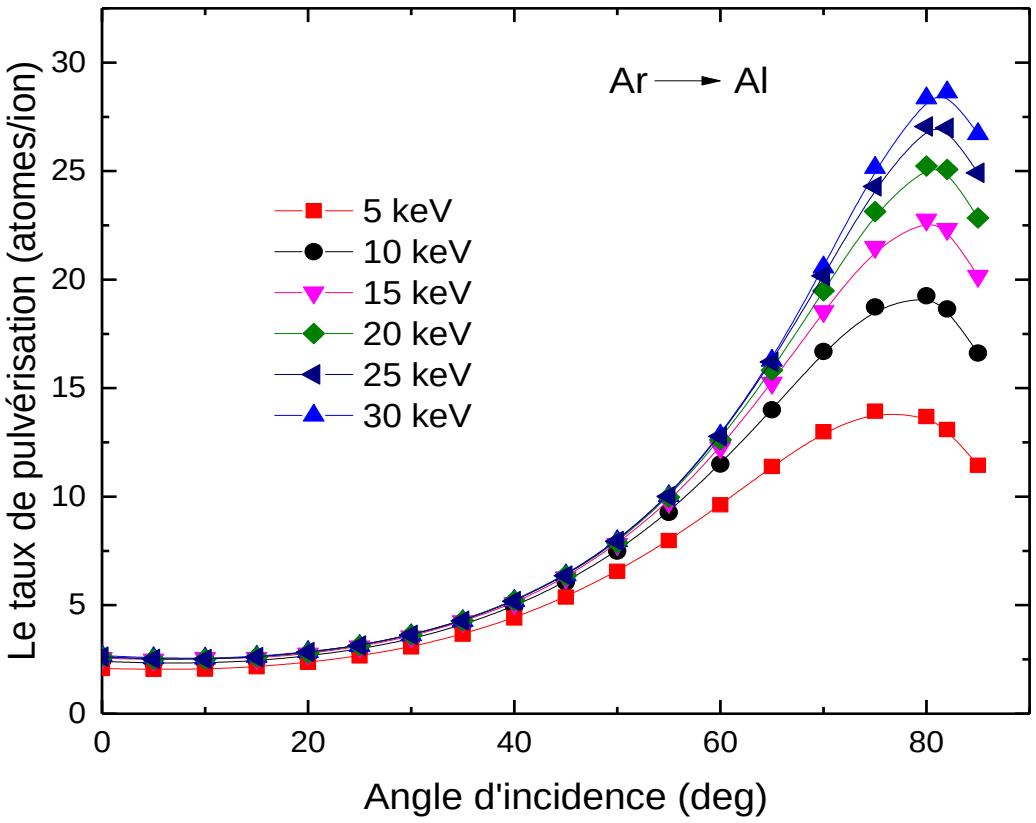


Fig. IV.1 : Variation de rendement de pulvérisation en fonction de l'angle d'incidence

4.3. Evolution de rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie de surface

Comme il a été défini précédemment, l'énergie de surface est l'énergie minimale que doit avoir un atome cible pour qu'il puisse quitter la surface.

Bien que la valeur de cette énergie soit très importante lors de la simulation du phénomène de pulvérisation, elle reste un paramètre ambigu, car sa détermination précise est impossible. Une des approches couramment utilisée pour la détermination de la valeur de ce paramètre est de l'assimiler à l'énergie de sublimation.

La figure(IV.3) représente l'influence de l'énergie de surface sur le rendement de pulvérisation dans le cas d'une cible d'aluminium irradiée par des ions d'argon de 30KeV en incidence normale. Nous constatons qu'il y a une influence importante. Le rendement est inversement proportionnel avec l'énergie de surface. Ceci s'explique par le fait que si l'énergie de surface augmente, les atomes trouvent plus des difficultés pour quitter le solide et par conséquence leur nombre diminue. Ce comportement a été également observé dans certaines expériences où ils observent une augmentation dans le taux de pulvérisation lorsque la température de solide augmente [2-4]. En se basant sur nos résultats, on peut dire que si la température augmente, l'énergie de surface diminue. Et par conséquence, elle va entrainer une augmentation dans le rendement.

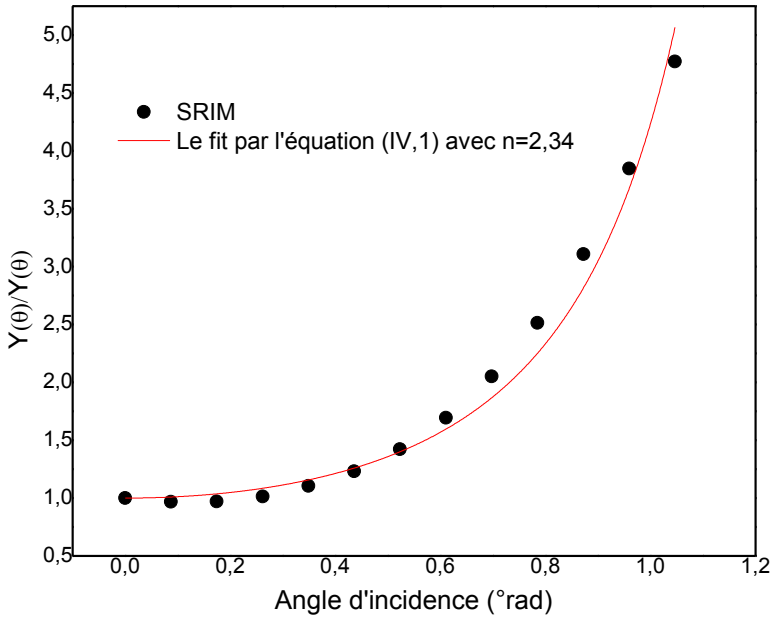


Fig.IV.2 : Variation du rapport $Y(\theta)/Y(0)$ en fonction de l'angle d'incidence

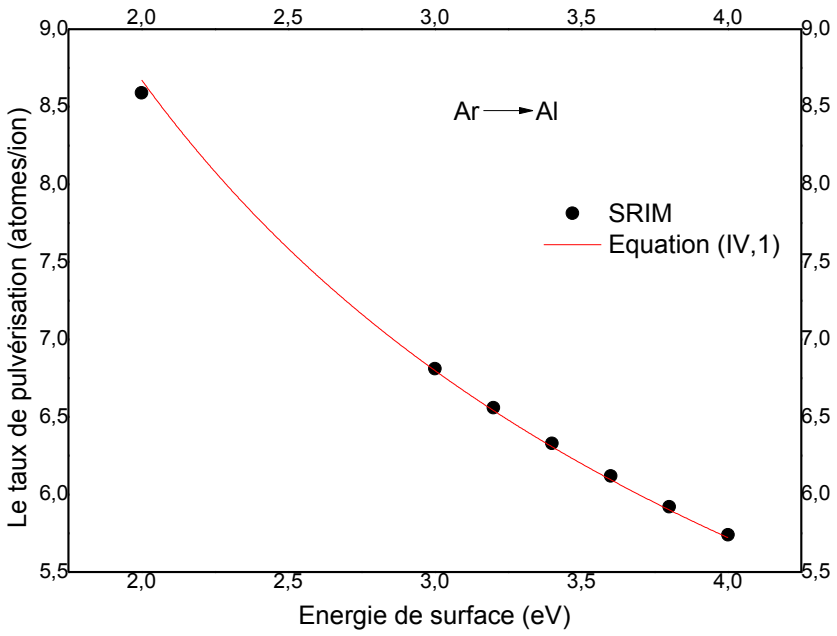


Fig. IV.3 : Variation de rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie de surface

Le fit des résultats obtenus (en trait continu sur la figure(IV.1**)**) a nous permet de déduire une expression analytique de taux de pulvérisation en fonction de l'énergie. Cette expression est :

$$Y = \frac{13.144}{E_s^{0.6}} \quad \text{..... (IV.2)}$$

Avec E_s en eV.

Dans la littérature, il existe plusieurs méthodes pour l'estimation de l'énergie de surface. Dans le cas des atomes d'Al pulvérisés sous l'impact des ions d'Ar, on peut citer les valeurs suivantes: 3.42 [5], 3.26 [6], 3.36 [7] et 3.19 [8]

Notons ici que dans plusieurs études, la valeur de l'énergie de surface est déterminée par l'ajustement des valeurs expérimentales du rendement avec les valeurs théoriques.

4.3. L'évolution de rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie de l'ion incident :

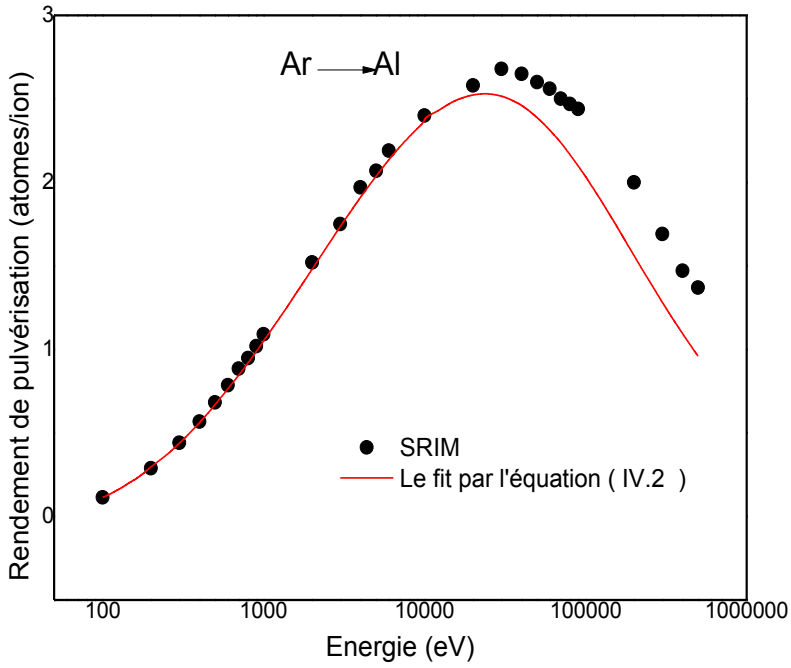


Fig.IV.4 : Variation du rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie des ions incidents

Sur la figure (IV.4) on présente la variation du rendement de pulvérisation pour une cible d'aluminium irradié par des ions d'argon en incidence normale et sur une gamme d'énergie allant de 100 eV jusqu'au 100 keV. On peut voir que le rendement augmente avec l'énergie jusqu'à une valeur maximale puis il tend à diminuer. Ce comportement a été observé expérimentalement [9-15] pour plusieurs combinaisons ion-atome cible.

Dans le but d'avoir une expression analytique du rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie, nous avons proposé la formule suivante :

$$y(E) = \frac{\alpha}{E_s} \frac{S_n}{1 + A.E^n} \left(1 - \sqrt{\frac{E_{th}}{E}}\right)^s \quad \text{.....(IV.2)}$$

La forme de cette formule a été déduite à partir des formules semi-empiriques de Matsunami et Yamamura [20](équation II.13 du chapitre II). Nous avons apporté une légère modification à cette formule en remplaçant le pouvoir d'arrêt électronique $S_e(\varepsilon)$ par E^n.

Cette modification est justifiée par le fait que le comportement observé expérimentalement du pouvoir d'arrêt électronique obéit à la relation : $S_e(E) \sim E^n$. D'un autre côté, la théorie LSS [21] (équation I.30 du chapitre I) prévoit une dépendance linéaire du pouvoir d'arrêt électronique avec la vitesse du projectile v_1. Ce qui donne une relation de forme $S_e(E) \sim E^{1/2}$ entre $S_e(E)$ et E.

Avec :

Dans l'équation IV.2, $\alpha, A \; et \; n$ sont des paramètres d'ajustement obtenus par le fit des valeurs obtenus du rendement et s=2.5.

$S_n(E)$ sont les valeurs du pouvoir d'arrêt nucléaire. Nous avons utilisé celles de SRIM 2013.

E_{th} est l'énergie seuille de pulvérisation. Nous avons choisi pour le calcul ce paramètre la formule proposée par Yamamura :

$$E_{th} = 6.7\frac{E_s}{\gamma} \qquad \text{Où : } \gamma = \frac{4M_1M_2}{(M_1+M_1)^2}$$

Nous avons obtenus les valeurs suivantes :

$\alpha = 0.16$,$A = 2.210^{-2}$ $et \; n = 0.2$

La variation de rendement obtenu par l'équation (IV.2) et en utilisant ces paramètres est représentée dans la figure (IV.4).

4.4. Comparaison de rendement de pulvérisation avec l'expérience et avec les différents modèles

Afin d'effectuer une comparaison de nos résultats de rendement de pulvérisation à ceux obtenus expérimentalement ou par les différents modèles, nous avons lancé le code SRIM pour les plusieurs combinaisons ion-atome cible (Ar-Al, Al-Al, Ne-Al, D-Al et He-Al).

Pour chaque système, les ions sont en incidence normale et leur énergie variée de 100 eV jusqu'à 100 keV.

Cette comparaison est représentée par les figures (IV.5), (IV.6), (IV.7), (IV.8) et (IV.9).

a) Cas des ions d'argon

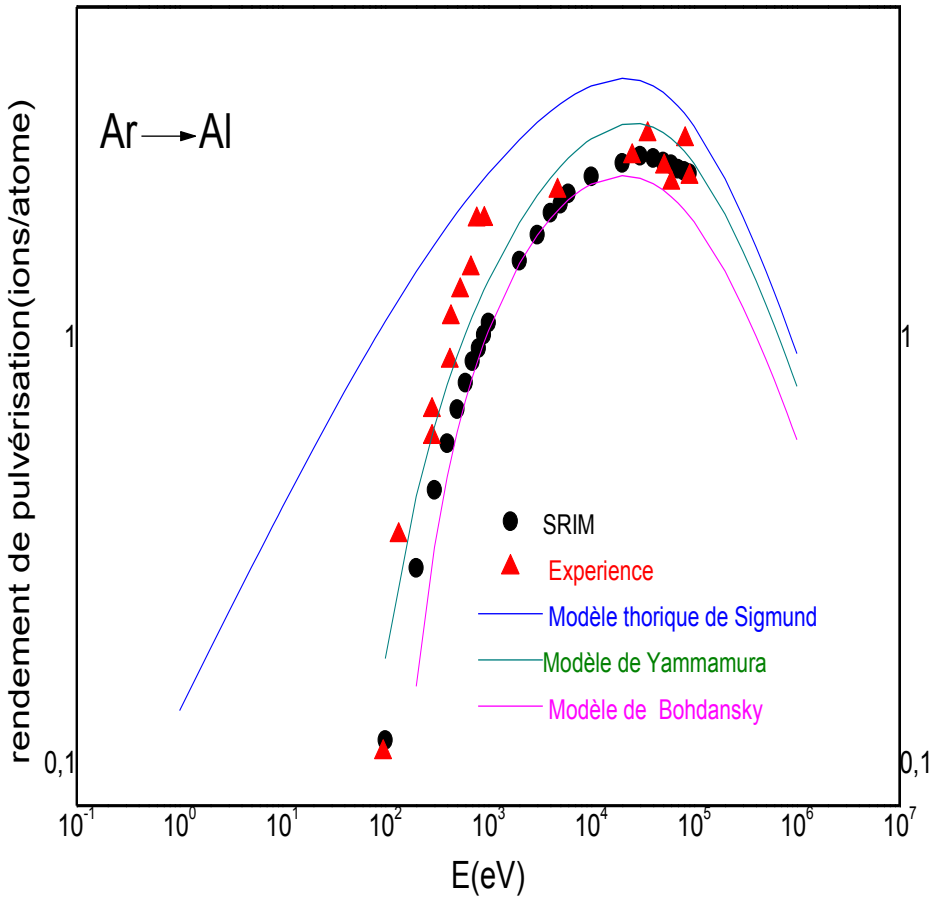


Fig. IV.5 : Rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie des ions d'argon sur une cible d'aluminium calculé par SRIM et comparées aux résultats expérimentaux [9-15] et aux différents modèles: Sigmund [18], Yamamura[17] et Bohdansky[19].

b) Cas des ions d'Al

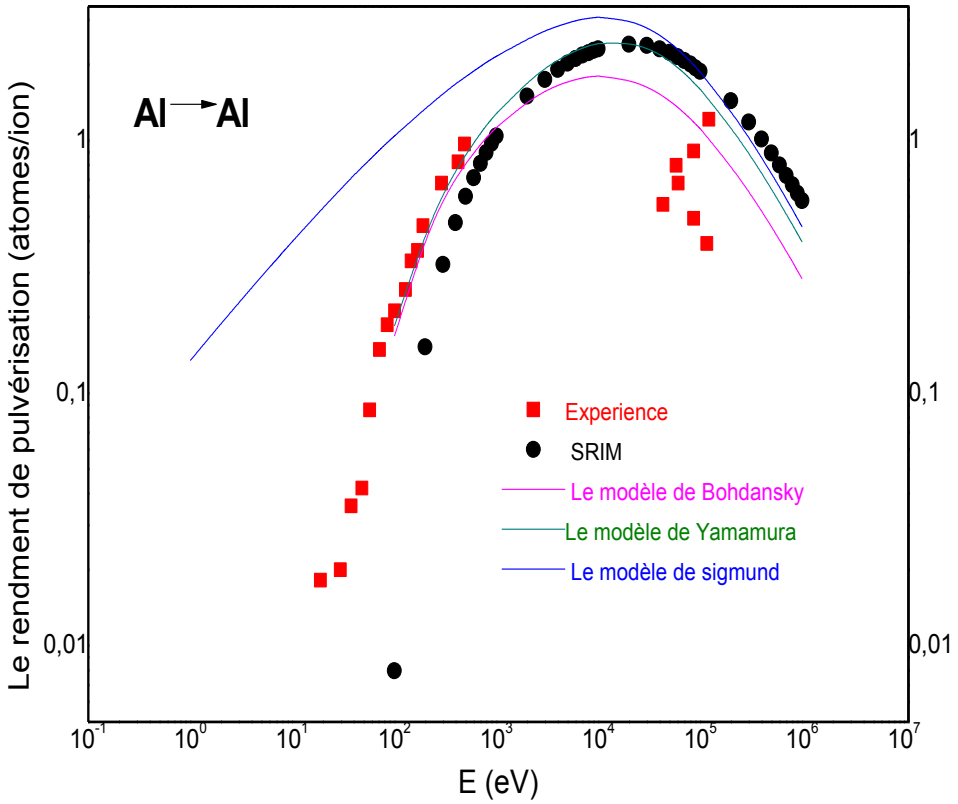


Fig. IV.6 : Le rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie des ions d'Aluminium sur une cible d'aluminium calculé par SRIM et comparées aux résultats expérimentaux [27-29] et aux différents modèles : Sigmund [18], Yamamura [17] et Bohdansky [19].

c) Cas des ions de Ne

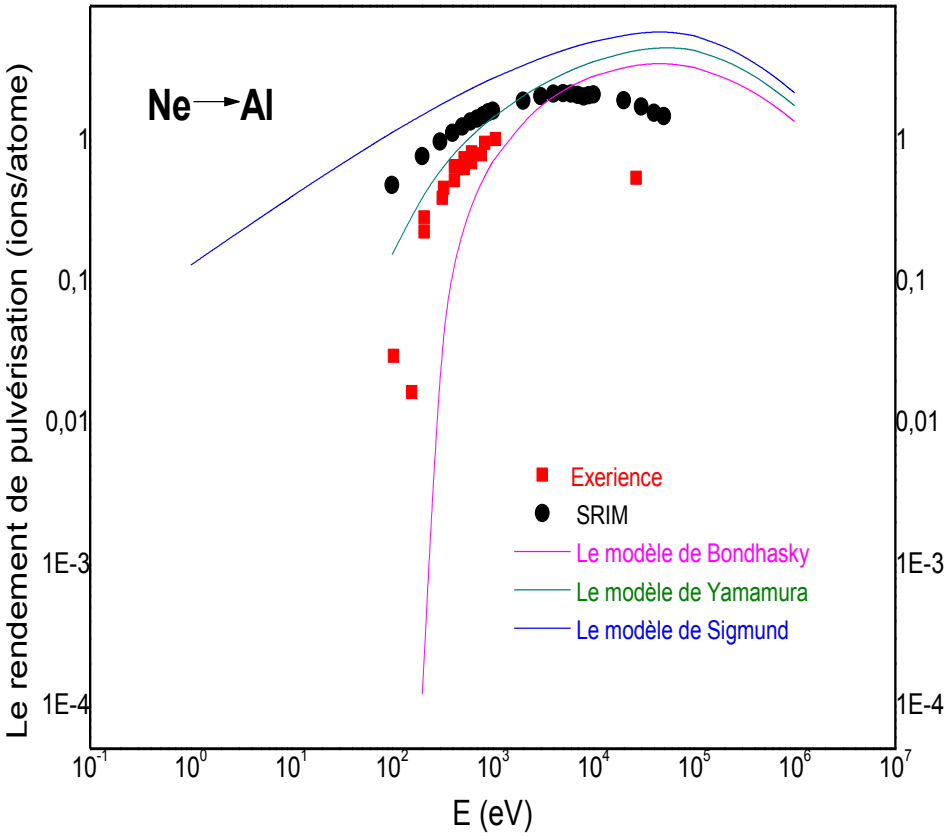


Fig. IV.7 : Rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie des ions de Ne sur une cible d'aluminium calculé par SRIM et comparées aux résultats expérimentaux [30-32] et aux différents modèles: Sigmund [18], Yamamura [17] et Bohdansky [19].

d) Cas des ions de D :

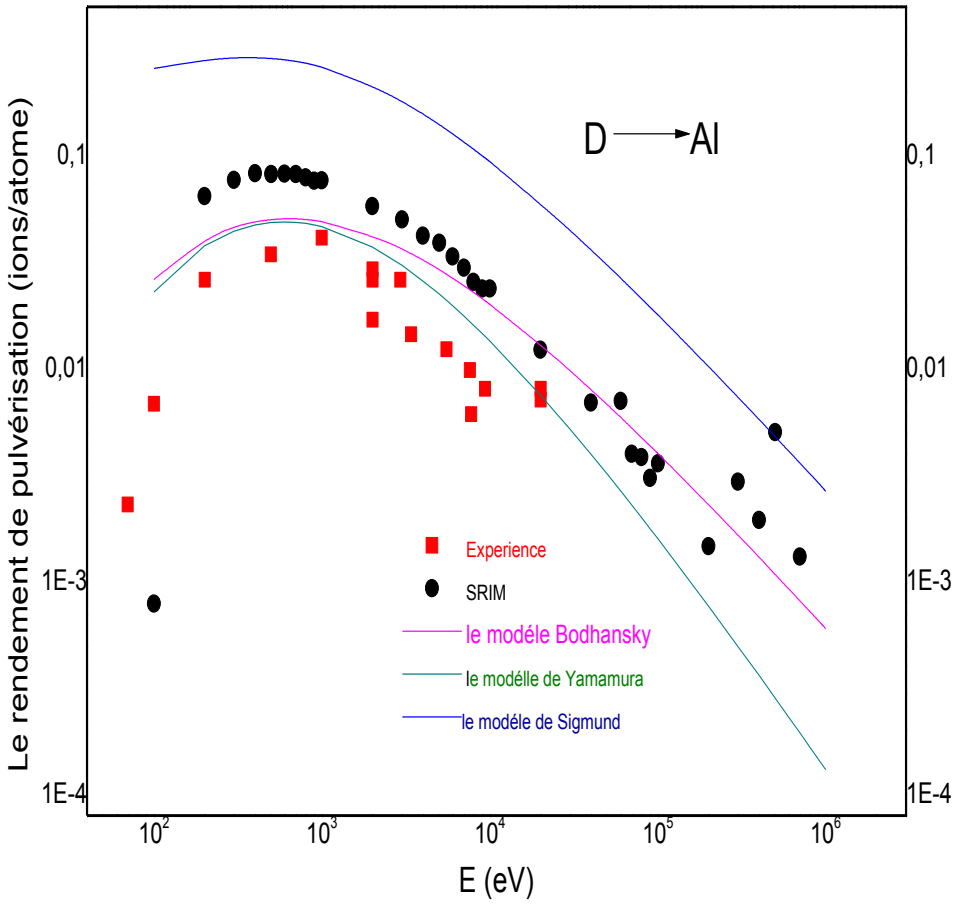


Fig.IV.8 : Rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie des ions de D sur une cible d'aluminium calculé par SRIM et comparées aux résultats expérimentaux [33-36] et aux différents modèles: Sigmund [18], Yamamura [17]et Bohdansky [19].

e) Cas des ions d'He :

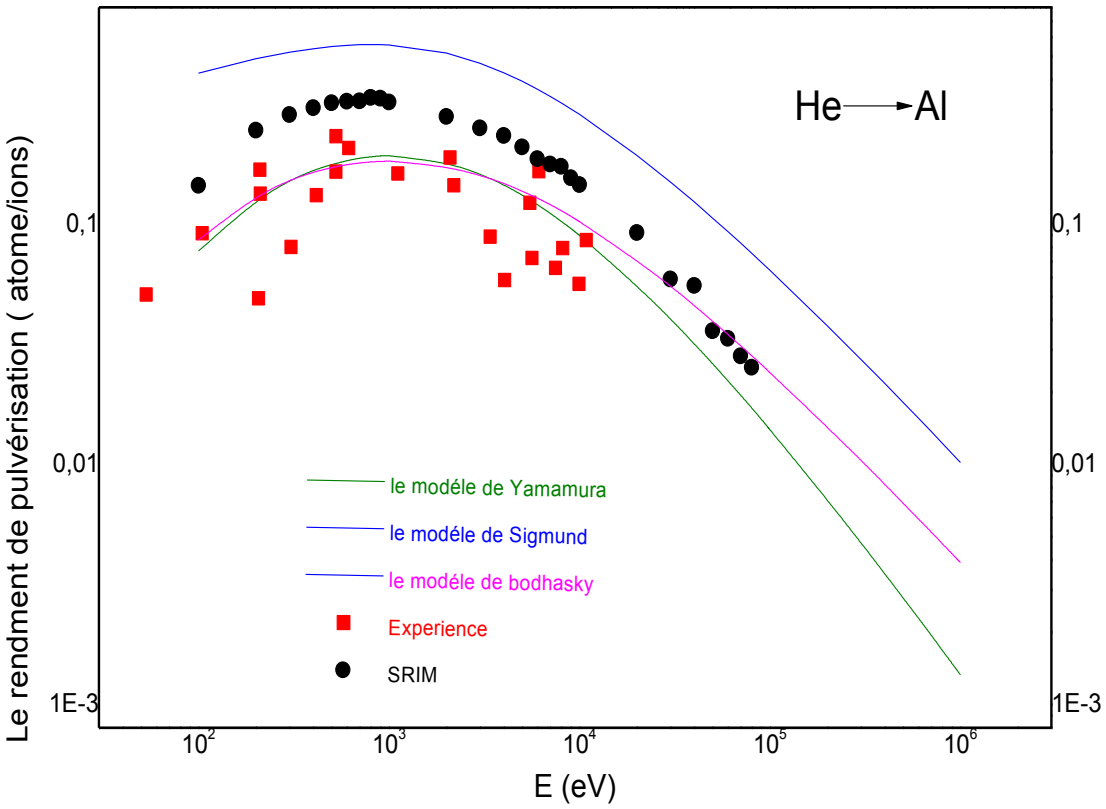


Figure IV.9 : Rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie des ions de hélium sur une cible d'aluminium calculé par SRIM et comparées aux résultats expérimentaux [34-40] et aux différents modèles: Sigmund [18], Yamamura [17]et Bohdansky [19].

Les figures (IV.5), (IV.6), (IV.7), (IV.8) et (IV.9) indiquent que les distributions en énergie du rendement obtenues par SRIM ont la même forme que les distributions expérimentales et théoriques. Dans la figure (IV.5), la comparaison de nos résultats avec l'expérience montre un bon accord dans le cas des ions d'argon pour des énergies supérieures à 1 keV. Le désaccord observé pour des énergies inférieures à 1 keV est dû à l'approximation des collisions binaires utilisée par SRIM qui n'est pas valable à basse énergie. Aux figures (IV.6), (IV.7), (IV.8) et (IV.9), la comparaison avec des résultats expérimentaux montre un désaccord qui peut être attribué à l'erreur expérimentale au cours de la détermination de rendement de pulvérisation. Ceci est dû aux différents facteurs qui peuvent influencer sur ce paramètre. En effet, comme il

a été mentionné au chapitre (III), la rugosité de la surface de l'échantillon, la pression résiduelle et la température durant l'expérience influencent largement sur les valeurs expérimentales de rendement de pulvérisation [21-26] L'incorporation dans le futur de ces effets dans le code SRIM permet d'avoir une comparaison plus rigoureuse.

La comparaison du nos résultats avec ceux obtenus par le modèle théorique de Sigmund montre un grand écart entre les deux distributions. Cet écart qui a été observé dans plusieurs études a été corrigé par la multiplication de rendement théorique par un facteur correctif.

Cependant, dans le cas des ions légers (D et He) un excellent accord est obtenu avec les résultats de SRIM lorsque le rendement de pulvérisation de Sigmund est multiplié par un facteur de 0.6.

La comparaison de nos résultats avec les modèles semi-empirique de Yamamura et Bohdansky montre globalement une correspondance. Un très bon accord est obtenu avec le ces deux dans le cas des ions d'argon.

Conclusion :

Dans cette partie, nous avons fait une optimisation générale de différents paramètres qui influent sur le rendement de pulvérisation. Dans un premier temps, nous avons observé l'augmentation de rendement de pulvérisation de l'aluminium par les ions d'argon avec l'angle d'incidence jusqu'à un maximum puis il est suivi par une décroissance rapide, cette variation dépend essentiellement à l'énergie de seuil de la cible.

L'influence de l'énergie des ions incidents sur le rendement de pulvérisation a été étudiée par simulation numérique. Une comparaison avec les résultats expérimentaux et les différents modèles a été présentée. Nous avons obtenu globalement une correspondance. L'écart observé entre les différents résultats est dû d'une part aux approximations utilisées lors de la simulation de la pulvérisation des ions et d'autre part, aux nombreux facteurs influençant au cours de la détermination du rendement expérimental (état de surface, pression, température, intensité du faisceau……).

Conclusion générale

Le travail présenté dans le cadre de ce mémoire porte sur l'étude de l'interaction d'un faisceau énergétique d'ions Ar^+ avec une cible solide. Notre objectif consiste à simuler de certains paramètres physiques décrivant le phénomène de pulvérisation. La modélisation a été effectuée en utilisant le code SRIM 2013 (Stopping and Range of Ions In Matter).Ce code est basé sur la méthode de simulation Monté Carlo et il utilise l'approximation des collisions binaires. Son principe consiste à simuler les collisions successives des ions dans le matériau, afin de pouvoir estimer le déplacement des atomes pulvérisés de la cible.

Au cours de notre simulation, nous avons utilisé les ions Ar^+ comme projectile sur une cible d'aluminium. La gamme d'énergie des ions varient de quelques keV jusqu'à des centaines keV. Le calcul du coefficient de pulvérisation a été effectué pour différents angles d'incidence. Nous avons observé une augmentation de rendement de pulvérisation lorsque l'angle d'incidence s'écarte de la normale car la plus grande quantité d'énergie est déposée près de la surface. Lorsque l'angle devient trop rasant, une partie des ions est rétrodiffusée et ne transmettra qu'une faible fraction de son énergie. Ceci a conduit à la diminution du rendement de pulvérisation.

Un fit basé sur la théorie linéaire des cascades a été proposé dans cette étude pour prévoir le rendement de pulvérisation en fonction de l'angle d'incidence.

Nous avons par ailleurs évalué le rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie des ions. Nous avons constaté que le seuil de pulvérisation est environ de quelques dizaines d'eV.

Une formule analytique qui permet de calculer le rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie a été proposé dans cette étude. Cette formule qu'est valable pour des ions d'Ar et une cible d'aluminium pourra être utilisé pour évaluer le rendement. Ceci nous permet d'avoir un gain important dans le temps de calcul par rapport à celui de code SRIM.

Par la suite, nous avons déterminé en utilisant le code SRIM le rendement de pulvérisation en incidence normale pour plusieurs combinaisons ion-atome cible (Ar-Al, Al-Al, Ne-Al, D-Al et He-Al) et dans la gamme d'énergie de 100 eV à 1 keV. Nous avons comparé nos résultats à ceux obtenus expérimentalement et à ceux calculés par les modèles théoriques.

Nous avons constaté globalement un accord raisonnable. Le désaccord observé est lié d'une part à l'approximation des collisions binaires utilisée dans le code SRIM et d'autre part, à l'erreur expérimentale au cours de la détermination des rendements de pulvérisation.

Références

Références de chapitre I :

[1] .R. Weller. In Handbook of Modern Ion-Beam Materials Analysis, eds J. R. Tesmer and M. Nastasi (Materials research Society, Pittsburgh, Pa).(1995).

[2]. M. Nastasi, J. W. Meyer, Y. Wang, Ion Beam Analysis, CRC Press, Boca Raton, Florida, 2015

[3]. H. Goldstein, C. Pole, and J. Sakfo. Classical Mechanics Addison-Wesley, San fransisco, 3rd edition, 2002

[4]. M. Nastasi, J. W. Mayer, and J. K. Hirvonen, Ion-Solid Interactions: Fundamentals and applications (Cambridge University Press, Cambridge, 1996)

[5]. J. Lindhard, M. Scharff and H.E. Schiott, Dan. Vid. Selsk. Mat. Fys. Medd vol 33 n°14 (1963) 1. [6].E. Rutherford, E. Phil. Mag. 21, 669 (1911).

[6] I.M. Torrens, Interatomic Potentials, Academic, New York, 1972

[7]**.** V. Eckstein, Computer Modeling of Particle–Surface Interaction, Mir, Moscow, 1995.

[8]. W. Eckstein, Computer Simulations of Ion-Solid Interactions, Springer, Heidelberg, 1991.

[9].H. Bethe, Handbuch de physik**14**, 491 (1933)

[10].J. Lindhard, J. Exp. Theor. Phys. Rev. **124**, 128 (1961).

[11].O. B. Firsov,"A qualitative Interpretation of the Mean Electron Excitation Energy in Atomic Collission", soviet physics, 1959, Vol.36, n°5, pp.1076-1080.

[12].J.F. Ziegler, J.P .Biersack, U. Littmark, in “The stopping and ranges of ions in solids “, vol. 1, Pergamon press, New York (1985).

[13]. M.T. Robinson, I.M. Torrens, Computer simulation of atomic-displacement cascades in solids in the binary-collision approximation, Phys. Rev. B 9 5008-5024. (1974).

Références Chapitre II :

[1]. J. Bohdansky, J. Roth ET H. L. Bay. An analytical formula and important parameters for low-energy ion sputtering.Journal of Applied Physics, 51(5), pp. 2861–2865. (1980).

[2]. R.Bchrisch. Sputtering by Particle Bombardment I, Physical Sputtering of Single-Element Solids.Springer-Verlag. New York.(1981).

[3].R. C. Bradley. Sputtering of alkali atoms by inert gas ions of low energy. Physical Review, 93(4), pp. 719–728 (1954).

[4]. R. V. Stuart ET G. K. Wehner,. Sputtering Yields at Very Low Bombarding Ion Energies. Journal of Applied Physics, 33(7), pp. 2345–2352 (1962).

[5]. Chen Bao-qing La technologie de pulvérisation cathodique (en chinois) (Editions Scientifiques du Ministère de l'Industrie de Chine.(1990).

[6]. N.Yamazoe and all. Oxide semiconductor gas sensors.Catal.Surv. Asia, 7, 63-75.(2003).

[7]. Z. Jiao, F. Chen, R. Su, X. Huang, W. Liu, J. Liu, Study on the Characteristics of Ag Doped CuOBaTiO$_3$ CO_2 sensors, Sensors 2 366-373. (2002).

[8]. Y.F. Gu, H.M. Ji, B. Zhang, T.X. Xu, Preparation and CO2 gas sensitive properties of $CuO^{-}SrTiO^{3-}$ based semiconductor thin films, Key Eng. Mater. 280-283 311-314. (2007).

[9]. S.Hariech. Élaboration et caractérisation des couches minces de sulfure de caduim CdS préparé par bain chimique CBD. Thèse de doctorat. Université Mentouri Constantine (2009).

[10].Hideaki Adachi and KiyotakaWasa. Handbook of Modern Ion-Beam Materials Analysis.(1995).

[11].Thomas Tondu .Etude de pulvérisation ionique Application aux effets de jet de la propulsion plasmique. Ecole doctorale : matériaux- structures- mécanique. (2005)

[12].Leila Si Mohamed .Simulation d'interaction du faisceau d'ions énergétiques avec le fer massif par le logiciel SRIM. UNIVERSITE MOULOUD MAMMERI DE TIZI OUZOU.(2018).

[13]. Karima Hammoum. Emissions optiques des produits de pulvérisation de métaux et leurs oxydes . Thèse de doctorat. UNIVERSITE MOULOUD MAMMERI, TIZI-OUZOU.

[14]. Ster Mammeri. Etude de la pulvérisation induite par des ions de gaz rares (Ar^+, Kr^+) de basses énergie (E<200 keV) dans des cibles d'aluminium, d'or et de bismuth. USTHB.(2010).

[15]. M. W. Thompson. The energy spectrum of ejected atoms during the high energy sputtering of gold, Philosophical Magazine 18, 377-414. (1968).

[16].Peter. Sigmund. Theory of Sputtering. I. Sputtering Yield of Amorphous and Polycrystalline Targets, Physical. Review 184, 383.(1969).

[17]. Matsunami and all. A semi-empirical formula for the energy dependence of the sputtering yield, Radiation Effects.57, 15-21. (1981).

[18]N. Matsunami et al., Atomic Data and Nuclear Data Tables, 31, p.1, 1984.

[19]. Yasonori Yamamura and HiroTawara. Energy dependence of ion-induced sputtering yields from monoatomic solids at normal incidence. Atomic Data and Nuclear Data Tables(2), 149-253.62.(1996).

[20] Y. Yamamura, N. Matsunami, Radiation Effects, 71, p.65, 1983.

[21] Y. Yamamura, Y. Mizuno, J. Nuc. Mat., 128-129, p.559, 1984.

[22] J. Bohdansky, Nuc. Inst. Meth., B2, p.587, 1984.

[23].Rainer Behrisch and Wolfgang Eckstein .Sputtering by particle bombardment experiments and computer calculations from threshold to MeV energies. Topics in applied physics 110.(2006).

[24].Rainer Behrisch and Wolfgang Eckstein .Sputtering by particle bombardment experiments and computer calculations from threshold to Mevenergies. Topics in applied physics 110.(2006).

Références de chapitre III:

[1].H. Huang, G.H. Gilmer, Multi-lattice Monte Carlo model of thin films, Journal of Computer-Aided Materials Design 6(2) 117-127.(1999).

[2].J.F. Ziegler, The Stopping of Energetic Light Ions in Elemental Matter, J. Appl. Phys. 85 1249-1272.(1999).

[3].www.srim.org

[4] J.F. Ziegler, SRIM-2003, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 219-220(1-4) 1027-1036. (2004).

[5]. W.Möller, M.Posselt, TRIDYN FZR User Manual, Forschungszentrum Rossendorf, Report FZR-317. (2001).

[6]. M.T. Robinson, I.M. Torrens, Computer simulation of atomic-displacement cascades in solids in the binary-collision approximation, Phys. Rev. B 9 5008-5024. (1974).

[7].A .Alem, Mémoire de Magister, USTHB, Faculté de physique, Alger.(2009).

[8]. V. Pascal, .Simulation numérique en physique statistique. Paris. (2009)

[9].H. Faik-Etienne, Étude de l'implantation ionique dans les miroirs multicouches Mo/Si : application aux optiques diffractives, Thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, (2005).

[10]. J.D. Mac Brayer, R.M. Swanson and T.W. Sigmon, J. Electrochem, Soc.: Solid StateScience and Technology, 133, (6), p. 1243.(1986).

[11].R.Bchrisch. Sputtering by Particle Bombardment I, Physical Sputtering of Single-Element Solids.Springer-Verlag. New York.(1981).

[12].S. Bhattacharjee and all. Nucl. Instr. and Meth. In Phys.Res.B129-123. (1997)

[13]. W. K. Chu, J. W. Mayer and M. A. Nicolet, Backscattering spectroscopy, Academic Press, New York, (1978).

Références de chapitre IV :

[1] A .Molchanov, V. G. Tel'kovsky. The dependance of sputtering yield on ion incidence onto the target.Dokl.Akad.Nauk.SSSR.**136**801.(1961).

[2] H. M. Windawi,Surface Science,55, 573 (1976)

[3] R. Behrisch and W. Eckstein, Nucl. Instrum.Meth.Phys. Res. B 82, 255 (1993).

[4]A. Cortona, W. Husinsky, and G. Betz, Phys. Rev. B59,15 495 (1999).

[5] : D.R. Lide (Ed.), CRC Handbook of Chemistry and Physics,77th ed., CRC Press, Boca Raton, (1997).

[6] :V.V. Yudin, ElektronnaiaTekhnika, ElectonicTechnique,Series: Semiconductor Devices, Polyprovodnikovyepriboru,Seriya, pp. 3–15 (in Russian).(1982).

[7] : J.F. Ziegler, J.P. Biersack, SRIM-2003 Tables, srim.com,Annapolis, MD, USA, (2003).

[8] : Y. Kudriavtsev, A. Villegas, A. Godines, R. Asomoza, Appl. Surf. Sci. 239 -273.(2005).

[9] P. Sigmund: Fundamental Processes in Sputtering of Atoms and Molecules (SPUT92), K. Dan. Vidensk.Selsk. Mat. Fys.Medd.**43** (1993)

[10] P. Sigmund: Appl. Phys. Lett. **27**, 768 (1975)

[11] W. Eckstein: Nucl. Instrum.Methods B **33**, 489 (1988)

[12] W. O. Hofer: in R. Behrisch (Ed.): *Sputtering by Particle Bombardment II*, Top. Appl. Phys. **52** (Springer, Berlin, Heidelberg 1983) p. 15, russ. translation: (MIR, Moscow).(1986)

[13] M. L. Yu: in R. Behrisch, K. Wittmaack (Eds.): Sputtering by Particle Bombardment III, Top. Appl. Phys. (Springer, Berlin, Heidelberg 1983) p. 91, russ. translation: (MIR, Moscow 1998)

[14] W. Eckstein, W. M¨oller: Nucl. Instrum.Methods B **7/8**, 727 (1985).

[15] F. Frost, B. Rauschenbach: Appl. Phys. A **77**, 1 (2003)

[16] Matsunami and all.A semi-empirical formula for the energy dependence of the sputtering yield, Radiation Effects.57, 15-21 .(1981).

[17] Yasonori Yamamura and HiroTawara. Energy dependence of ion-induced sputtering yields from monoatomic solids at normal incidence. Atomic Data and Nuclear Data Tables(2), 149-253.62.(1996).

[18] Peter Sigmund.Theory of Sputtering. I. Sputtering Yield of Amorphous and Polycrystalline Targets, Physical. Review 184, 383.(1969).

[19] J. Bohdansky, J. Roth et H. L. Bay.An analytical formula and important parameters for low-energy ion sputtering.Journal of AppliedPhysics, 51(5), pp. 2861–2865 (1980).

[20] : R. Behrisch, W. Eckstein, Nucl. Instr. and Meth. B 82(1993) 255

[21] J.Lindhard.J.EXP.Theor.Phys.Rev.124.128.(1961).

[22] K. W. Pierson, C. D. Hawes, and T. D. Krueger, Nucl. Instrum.MethodsPhys. Res. B134,13. (1998).

[23] PriestlandC R DandHerseeS D 1972Vacuum, 22(3) 103-6

[24] A. Hu, A. Hassanein, How surface roughness affects the angular dependance of the Sputtering yield, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 281 (2012) 15–20

[25] K. Wittmaack, Effect of surface roughening on secondary ion yields and erosionrates of silicon subject to oblique oxygen bombardment, J. Vac. Sci. Technol. A8 (1990) 2246–2250.

[26] M.A. Makeev, A.-L.Barabási, Nucl. Instrum.Methods Phys.Res. B 222 (2004) 335–354.

[27] O. Alm´en, G. Bruce: Nucl. Instrum. Methods 11, 279 (1961)

[28] R. G. Allas, A. R. Knudson, J. M. Lambert, P. A. Treado, G. W. Reynolds:Nucl. Instrum. Methods 194, 615 (1982) 48, 62, 64

[29] W. H. Hayward, A. R. Wolter: J. Appl. Phys. **40**, 2911 (1969)

[30] C. H. Weijsenfeld: *Philips Research Reports Supplements No.2* (1967) see also thesis (1966)

[31] M. Nunogaki, M. Uchida, Y. Kuratomi, K. Miyazaki: Nucl. Instrum. Methods B **37/38**, 325 (1989)

[33] N. Laegreid, G. K. Wehner: J. Appl. Phys. **32**, 365 (1961)

[34] W. Eckstein, C. Garc´ıa-Rosales, J. Roth, W. Ottenberger: Sputtering Data, Report IPP 9/82 (MPG, Garching 1993)

[35] J. Roth, J. Bohdansky, W. Ottenberger: *Report IPP 9/26* (MPG, Garching 1979)

[36] S. K. Lam, M. Kaminsky: J. Nucl. Mater.**89**, 205 (1980)

[37] O. C. Yonts, D. E. Robinson: ORNL **2802** (1959)

[38] J. Roth, J. Bohdansky, R. S. Blewer, W. Ottenberger: J. Nucl. Mater.**85 & 86**, 1077 (1979)

[39] D. Rosenberg, G. K. Wehner: J. Appl. Phys. **33**, 1842 (1962)

[40] O. C. Yonts: in *BNS Nucl. Fusion Reactor Conf.* (Culham 1969) p. 424