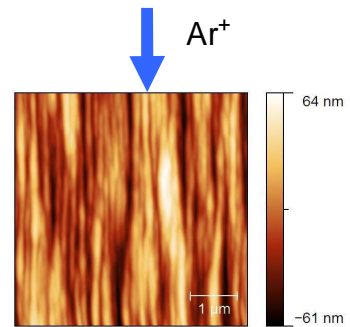
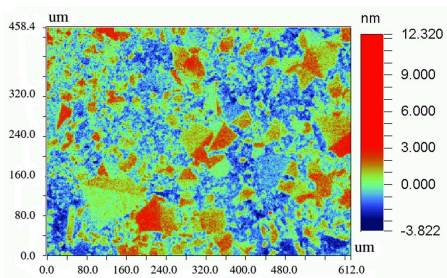


Etude de l'évolution de l'état de surface de matériaux optiques sous bombardement ionique à faible énergie



Thèse présentée par
Patrick Gailly (Université de Liège – Centre Spatial de Liège)
En vue de l'obtention du grade de
Docteur en sciences

Promoteurs : Prof. Rudi Cloots et Prof. Claude Jamar

Mai 2011

Version x.2

Remerciements

Tout d'abord, je remercie l'Université de Liège, le Centre Spatial de Liège (CSL) et sa direction pour m'avoir donné la possibilité de réaliser et surtout terminer cette thèse, alors qu'une partie seulement des travaux était financée dans le cadre de projets. Je remercie la Région Wallonne et l'ESA pour le financement des projets concernés.

Je remercie le Professeur Claude Jamar et le Docteur Yvan Stockman du CSL pour m'avoir encouragé à commencer cette thèse. Je remercie tout particulièrement le Docteur Karl Fleury-Frenette pour l'aide de proximité apportée dans la réalisation de ce travail et les discussions constructives que nous avons eues. Je remercie les autres membres de mon comité, le Professeur Rudi Cloots, le Professeur Jacques Delwiche et le Docteur David Strivay pour leur temps et leurs remarques.

Je remercie l'ingénieur Luc Renson pour m'avoir initié à la technique de l'« usinage ionique » et légué un bel outil au CSL, les ingénieurs et responsables Jean-Philippe Tock et Jean-Paul Collette qui m'ont donné l'opportunité de travailler sur différents projets, l'ingénieur Pierre Médart qui a contribué à l'amélioration d'outils informatiques du procédé d'« usinage ionique ». Je remercie aussi José Docquier et Pierre Delvaux, électroniciens, Pascal Barzin, dessinateur, ainsi que Nata Rosato, mécanicien et Thierry Jacquemart, technicien de laboratoire, pour leur aide technique sur l'installation.

Je remercie Catherine Henrist et Bénédicte Vertruyen, du Laboratoire de Chimie Inorganique Structurale de l'Université de Liège pour les essais de mesures de diffraction de rayons X et d'électrons sur le carbure de silicium.

Je tiens à remercier particulièrement tous les étudiants qui ont travaillé avec moi sur le sujet et dont la contribution m'a été d'une grande aide. En effet, la pulvérisation ionique et les mesures topographiques d'un grand nombre d'échantillons est un travail colossal qui aurait difficilement pu être réalisé sans eux. Ces étudiants étaient Christophe François (Gramme), Philippe Franssen (ULg), Pierre Tihon (ULg) et Claire Petermann (Université de Strasbourg). Je remercie également les autres étudiants et stagiaires qui ont travaillé avec moi sur d'autres sujets liés à l'usinage ionique, notamment Fabrice Wolfs (ULg), Sébastien Richard et Jérôme Abrahamian (Ecole des mines d'Albi).

Je remercie grandement mes parents qui m'ont toujours soutenu et donné la chance de poursuivre des études supérieures. Enfin, le plus grand des remerciements, il va à ma tendre Emilie François et mes enfants Maxime et Cyril, qui ont du supporter que je les délaisse certaines soirées ou jours de congé, pour me permettre de terminer la rédaction de cette thèse.

Résumé

Ce travail porte sur l'étude de l'évolution de l'état de surface de matériaux optiques pulvérisés par faisceau d'ions de faible énergie (≤ 1 keV). Ces matériaux (massifs ou dépôts en couche mince) sont utilisés pour la fabrication des miroirs d'instruments scientifiques (terrestres ou spatiaux) ou pour d'autres applications optiques.

Dans la première partie de ce travail, nous avons investigué l'évolution de la rugosité de surfaces optiques soumises à la pulvérisation ionique dans le cadre du procédé industriel d'« usinage ionique » (*Ion Beam Figuring* en anglais). Ce procédé consiste à corriger la forme de surfaces optiques à l'aide d'un faisceau d'ions (≤ 1 keV). Un désavantage de la technique est l'augmentation potentielle de l'état de surface de certains matériaux lors du bombardement ionique. L'évolution de la rugosité de plusieurs matériaux utilisés dans l'industrie optique a été caractérisée avec précision en fonction de la profondeur érodée, jusqu'à $5 \mu\text{m}$ au maximum. Les pulvérisations ont été réalisées en incidence normale, généralement avec des ions argon (mais aussi parfois avec des ions krypton ou xénon), des densités de courant de l'ordre de 1 mA/cm^2 et des énergies comprises entre 200 et 1000 eV. Bon nombre des matériaux ayant une structure amorphe (verre, dépôt chimique de nickel), monocristalline (silicium) ou même polycristalline (carbure de silicium CVD, dépôt PVD d'or et nickel) préservent leur rugosité (du moins pour des profondeurs modérées), alors que d'autres matériaux métalliques (placage de nickel, aluminium) exhibent une forte augmentation de leur rugosité avec la pulvérisation ionique.

Un résultat important pour les applications industrielles d'usinage ionique qui a été mis en évidence dans ce travail est l'évolution différente de la rugosité du carbure de silicium CVD en fonction de l'énergie des ions. Une augmentation plus rapide à basse énergie (< 500 eV) qu'à plus haute énergie (650-1000 eV) a ainsi été observée. La plus faible révélation de la structure en grains du matériau avec des ions de plus grande énergie est supposée être due à une plus grande amorphisation de la couche pulvérisée dans ce cas. L'influence de la masse des ions utilisés a également été illustrée sur le carbure de silicium (CVD) et sur des couches minces d'or sur substrat nickel.

Nous avons également comparé nos mesures de rugosité aux lois d'invariance d'échelle. Des coefficients de croissance β et de rugosité α divers ont été trouvés en fonction des matériaux et des conditions de pulvérisation, parfois assez éloignés de ceux prédits par l'équation KPZ.

Dans la deuxième partie, nous nous sommes intéressés à l'étude des ondulations submicroniques qui se forment spontanément sur la surface d'un grand nombre de matériaux lors de leur pulvérisation ionique en incidence oblique. Les premières ondulations observées dans ce travail l'ont été sur des couches minces d'or sur substrat en nickel électroformé (matériaux typiquement utilisés comme surface réfléchissante pour les rayons X) pulvérisées avec un angle d'incidence de 80° . Nous avons ensuite étudié principalement sur des couches minces ($\sim 0.2 \mu\text{m}$) métalliques d'or et d'argent l'influence des paramètres de pulvérisation (angle d'incidence, énergie et flux) sur les dimensions de ces structures spontanées. Nous avons également observé la formation de ces ondulations sur le CdS, un cristal semiconducteur intéressant pour ses applications optiques.

L'orientation et les dimensions des ondulations mesurées (0.13 à $0.29 \mu\text{m}$ de longueur d'onde spatiale) ont été comparées au modèle théorique de Bradley-Harper. Nous avons utilisé le logiciel SRIM pour estimer la distribution d'énergie déposée et les valeurs des coefficients de tension de surface. Les résultats observés peuvent s'expliquer en bonne partie

par les théories actuelles (Bradley-Harper, Makeev) sur l'évolution des surfaces soumises à la pulvérisation ionique. Ils peuvent se résumer ainsi pour nos conditions de pulvérisations:

- Apparition nette d'ondulations à partir de 60° sur les couches minces d'or et 70° sur celles d'argent.
- Le vecteur d'onde des ondulations était toujours perpendiculaire à la direction du faisceau d'ions, pour tous les angles d'incidence, bien que la rotation des ondulations au-delà d'un angle critique soit généralement rapportée dans la littérature.
- L'observation de changements de régime en fonction de l'angle d'incidence pour l'évolution des structures et de la rugosité. Trois zones semblent se distinguer, comme prédit par le modèle non-linéaire de Makeev.
- La diminution de la période des ondulations avec l'augmentation de l'énergie montre que de la diffusion thermique est le principal mécanisme de relaxation.

Summary

In this work the roughness and topography evolution of optical materials sputtered with low energy ion beam (≤ 1 keV) has been investigated. These materials (bulk or thin layer) are used in the manufacturing of mirrors for scientific (ground or space) instruments or for other optical applications.

In the first part of the work, the roughness evolution of optical surfaces under sputtering has been investigated in the frame of the industrial process known as *Ion Beam Figuring*. This technique consists in removing shape errors on optical surfaces with a low energy ion beam (≤ 1 keV). One disadvantage of this process is a potential increase of roughness for surfaces under treatment. The roughness evolution of some materials relevant to the optical industry has been accurately characterized as function of etching depth down to 5 μm . These sputtering experiments have been carried out at normal incidence, mainly with argon ions (but also in a lesser extent with krypton and xenon ions), ion current density of ~ 1 mA/cm² and ion beam energy ranging from 200 eV to 1000 eV. The roughness evolution under sputtering is low for materials with amorphous (glass, electroless nickel), monocrystalline (silicon) or even polycrystalline structure (CVD silicon carbide, PVD gold or nickel film), whereas it is considerably more important for some other metallic materials such as electroplated nickel and aluminium.

This work has shown small differences in the roughness evolution of CVD silicon carbide as function of the ion beam energy. The roughness increase is faster at low ion energy (< 500 eV) than at higher ion energy (650-1000 eV). The grain structure of this material is less revealed at higher energy, which is supposed to be due to a larger amorphization of the sputtered layer in this case. The influence of the ion mass on CVD silicon carbide and gold films on nickel substrates has been also illustrated.

Our measurements have been also compared to scaling laws. Various growth (β) and roughness (α) exponents have been found, sometimes rather different from those foreseen by the KPZ equation.

In the second part, we focus on periodically modulated structures (ripples) which developed on many solids when sputtered by an off-normal ion bombardment. In this work, we first observed these ripples on gold films deposited on electroplated nickel (materials used as reflective surfaces for X-ray space telescope) sputtered at grazing incidence. We studied the influence of sputtering parameters (ion beam incidence angle, energy and flux) on the characteristics of ripples induced on gold and silver thin film (~ 0.2 μm). Ion-induced ripples have also been observed on CdS, an interesting semiconductor crystal for optical applications.

The ripples orientation and dimensions (spatial wavelengths from 0.13 μm to 0.29 μm) have been confronted to the Bradley-Harper (B-H) linear model. We used the SRIM software to evaluate the deposited energy and the surface tension coefficient distributions. Our results can be in great part explained by the current theories (Bradley-Harper, Makeev) on morphology of ion-sputtered surfaces. These results can be summarized hereunder:

- Clear development of ripples for angle of incidence equal or higher than 60° on gold film and 70° on silver film.
- In this work the ripples wave vector is always perpendicular to the ion beam direction for all angles, whereas the change in ripple orientation beyond a critical angle is usually reported in literature. This is due to the different shape of the energy distribution function for our sputtering conditions.

- Different regimes for roughness and topography evolution (grains, ripples) have been observed in function of the angle of incidence. 3 different areas can be distinguished, as predicted by Makeev non-linear model.
- The diminution of ripple wavelength with ion energy shows that thermal diffusion is the main relaxation mechanism.

Sommaire

Chapitre 1. Introduction

Chapitre 2. La pulvérisation ionique : principes, applications et technologies

Chapitre 3. Rugosité et diffusion de la lumière

Chapitre 4. L'effet du bombardement ionique à faible énergie sur la topographie des surfaces

Chapitre 5. Equipements, procédure expérimentale et conditions de pulvérisation

Chapitre 6. Mesures d'évolution de rugosité de différents matériaux optiques

Chapitre 7. Mesures d'évolution de rugosité de surfaces or/nickel pour miroirs à rayons X

Chapitre 8. Réalisation de structures spontanées nanométriques

Chapitre 9. Conclusions et perspectives

Chapitre 1

Introduction

Le travail s'insère dans le cadre des activités de R&D sur l' « usinage ionique » (mieux connu sous son acronyme anglais IBF pour « Ion Beam Figuring ») qui sont en cours depuis le milieu des années 90 au CSL. Ce procédé consiste à corriger la forme de surfaces optiques à l'aide d'un faisceau d'ions de faible énergie (< 1 keV). C'est une étape finale qui suit celles de mise en forme et de polissage mécanique. Les défauts de grande longueur d'onde spatiale (> 1 mm) et de faible amplitude (quelques μm maximum) peuvent être éliminés par ce procédé. Un désavantage de la technique est la détérioration potentielle de l'état de surface (augmentation de la rugosité) de certains matériaux lors du bombardement ionique. C'est cet aspect critique qui fera l'objet de toute notre attention dans ce travail. L'augmentation de la rugosité de la surface optique provoque en effet la diffusion de la lumière, ce qui peut rendre le procédé inutilisable sur certains matériaux en fonction de son importance et des spécifications optiques (longueur d'onde, réflectivité ...).

Fin des années 90, les principaux résultats publiés sur l'évolution de la rugosité de différents matériaux optiques, directement en rapport avec le procédé d'usinage ionique, ont été réalisés par quelques auteurs, dont Egert (voir chapitre 4). Ceux-ci quantifient principalement l'évolution de la rugosité rms^1 de différents matériaux optiques en fonction de la profondeur érodée, mais sont plutôt avares en images et en explications. Des divergences sont parfois à noter quant aux résultats entre différents auteurs. L'influence éventuelle des conditions de pulvérisations ioniques (énergie, densité de courant ...) restent une question très peu abordée.

Le travail a ainsi débuté expérimentalement dans un premier temps par des mesures de l'évolution de la rugosité de différents matériaux utilisés en optique (verre, nickel, carbure de silicium ...) en fonction des besoins des projets d'usinage ionique au CSL, afin de compléter nos connaissances du comportement des matériaux par rapport aux informations existantes dans la littérature. Au fil de nos travaux, nous nous sommes intéressés aux aspects théoriques plus fondamentaux décrivant ou permettant d'expliquer l'évolution de la topographie sous bombardement ionique.

Les principaux objectifs initiaux du travail sont les suivants :

- Constituer une banque de données d'observations plus complètes d'évolution de la rugosité des principaux matériaux optiques avec nos paramètres expérimentaux
- Evaluer sur certains matériaux l'éventuelle influence des paramètres expérimentaux de pulvérisation que sont la nature des ions, l'énergie du faisceau, la densité de courant, l'angle d'incidence.
- Approfondir nos connaissances des théories fondamentales et modèles liés à la pulvérisation ionique et l'évolution de la topographie.
- Faire le lien entre nos observations directement liées à l'usinage ionique (application industrielle) et les théories/modèles existants (sujet académique).
- Mieux prévoir à l'avenir l'évolution de la rugosité des matériaux vis-à-vis de la pulvérisation ionique

Nous nous sommes de plus intéressés à d'autres applications que l'usinage ionique, notamment aux nanostructures spontanées générées par la pulvérisation ionique (souvent en incidence oblique) qui peuvent être intéressantes pour des applications optiques telle que la texturation de diffuseurs.

Le travail est structuré en 9 chapitres qui sont brièvement décrits ci-dessous.

¹ Root-Mean-Square

Le chapitre 2 rappelle des notions fondamentales sur la pulvérisation ionique, dont notamment le modèle de Sigmund. Les modèles de simulation numérique y sont brièvement décrits. Les principales applications de la pulvérisation ionique et la technologie des sources ioniques sont également abordées.

Le chapitre 3 décrit les notions utiles dans l'étude de la rugosité d'une surface (paramètres de rugosité, transformée de Fourier). Le lien entre la rugosité d'une surface et la diffusion de la lumière par celle-ci est également abordé.

Le chapitre 4 résume les principaux résultats expérimentaux sur l'évolution de la rugosité, en général et pour l'usinage ionique en particulier. Les modèles théoriques décrivant l'évolution de la rugosité (lois d'invariance d'échelle), expliquant la formation de structures particulières que sont les ondulations (Bradley-Harper) ou tentant de présenter un modèle global (Makeev, Cuerno et Barabasi) seront présentés.

Le chapitre 5 présente les équipements utilisés pour nos mesures, les procédures expérimentales et les conditions de pulvérisation utilisées. Si les conditions standards de pulvérisation utilisent typiquement un faisceau d'ions argon de 650 eV avec des densités de courant de 1 à 2 mA/cm², d'autres gaz (krypton, xénon) et énergies (entre 200 et 1200 eV) ont également été testés.

Le chapitre 6 résume les mesures d'évolution de rugosité (pulvérisation en incidence normale) réalisées sur différents matériaux optiques en fonction des besoins des projets d'usinage ionique au CSL : principalement pour le carbure de silicium (CVD SiC), mais aussi les verres (BK7, silice fondue, Zerodur), le nickel (dépôt chimique et par pulvérisation cathodique), le silicium et l'aluminium.

L'évolution de la rugosité de l'or (déposé en couche mince) et du nickel électroformé feront l'objet d'un chapitre spécifique (chapitre 7), car ils sont les constituants d'un type particulier de miroirs à rayons X utilisés en astronomie spatiale.

Les structures spontanées (ou auto-arrangées) observées au chapitre 7 dans l'or (sillons parallèles à la direction du faisceau en incidence rasante) nous pousseront à approfondir le sujet au chapitre 8 sur deux types de couches minces métalliques (or et argent), ainsi qu'à réaliser ce type de structures sur un cristal semiconducteur (CdS). L'influence des conditions expérimentales (angle, énergie, flux) sur l'orientation et les dimensions de ces structures sera évaluée et comparée aux modèles théoriques.

Enfin, le chapitre 9 synthétisera le comportement des matériaux étudiés sous pulvérisation ionique et les principales informations apportées par ce travail.

Chapitre 2

La pulvérisation ionique : principes,
applications et technologies

Table des matières

2	La pulvérisation ionique : principes, applications et technologies	2-5
2.1	Généralités sur l'interaction ion-matière	2-5
2.2	La pulvérisation ionique	2-8
2.2.1	Le mécanisme de pulvérisation	2-8
2.2.2	Le rendement de pulvérisation	2-9
2.2.3	La vitesse de pulvérisation	2-15
2.2.4	L'influence du bombardement sur la topographie et les défauts sous la surface 2-16	
2.3	Les modèles mathématiques du bombardement ionique des solides	2-18
2.3.1	Introduction	2-18
2.3.2	Approximation de collisions binaires	2-18
2.3.3	Dynamique moléculaire	2-18
2.3.4	Les principaux modèles de simulations numériques	2-19
2.4	Applications de la pulvérisation ionique	2-21
2.4.1	Techniques de dépôt de couche mince	2-21
2.4.2	Usinage ionique (correction de forme par faisceau d'ions)	2-22
2.4.3	Gravure par faisceau focalisé	2-26
2.4.4	L'analyse ionique par émission secondaire	2-26
2.5	Technologies des sources ioniques	2-27
2.5.1	Les sources de types Kaufman	2-28
2.5.2	Les sources RF	2-31
2.5.3	Les sources sans grilles	2-31
2.5.4	Comparaison des différents types de sources ionique	2-33
2.6	Bibliographie	2-33

2.1 Généralités sur l'interaction ion-matière

Les différents mécanismes d'interaction ion - matière

Le bombardement d'une surface solide par des ions primaires s'accompagne, si l'ion n'est pas réfléchi, d'une séquence d'interactions au cours desquelles les ions primaires transfèrent tout ou une partie de leur énergie. Une particule primaire (l'ion incident) peut parcourir dans le solide une certaine distance, dissiper son énergie avant d'être finalement arrêtée ou éjectée du solide. Nous allons discuter brièvement les deux types d'interactions qui sont mises en jeu entre les ions énergétiques et les atomes du solide et qui provoquent le ralentissement des ions [2.1] : les pertes d'énergie nucléaire et électronique. Signalons aussi que deux autres mécanismes peuvent exister (génération de photons et réaction nucléaire) à des énergies plus élevés.

Perte d'énergie nucléaire

La première interaction est la perte d'énergie nucléaire. Les ions et les atomes rentrent en collision et diffusent élastiquement. Il s'agit d'un transfert de la quantité de mouvement des ions incidents aux atomes contenus dans le matériau-cible. Les ions incidents sont donc ralentis au fil des collisions. Le freinage nucléaire est quantifié par le pouvoir d'arrêt nucléaire¹ :

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_n = -N S_n(E) \quad (2.1)$$

où N est la densité atomique et $S_n(E)$ la section efficace d'arrêt nucléaire pour l'énergie E. C'est le principal mécanisme de perte d'énergie pour les ions à faible énergie (~keV).

Pour évaluer $S_n(E)$, on part du potentiel d'interaction entre deux atomes Z_1 et Z_2 (séparés par la distance r) qui peut être pris comme étant un potentiel de Coulomb écranté :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \varphi\left(\frac{r}{a}\right) \quad (2.2)$$

où φ est la fonction d'écrantage et a le rayon d'écrantage de Thomas-Fermi (~0.1-0.2 Å).

Dans l'approximation d'un potentiel en $1/r^2$, on peut montrer que :

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_n = N \frac{\pi^2}{2} Z_1 Z_2 e^2 a \frac{M_1}{M_1 + M_2} \quad (2.3)$$

, donc que la perte d'énergie est indépendante de l'énergie.

Lindhard, Scharff et Schiott (théorie LSS) ont exprimé le freinage nucléaire dans un système de coordonnées dites « réduites » où l'énergie réduite ε et la longueur réduite ρ valent :

$$\varepsilon = \frac{M_2}{M_1 + M_2} \frac{4\pi\epsilon_0 a}{Z_1 Z_2 e^2} E \quad \rho = N M_2 4\pi a^2 \frac{M_1}{(M_1 + M_2)^2} x \quad (2.4)$$

où M la masse, Z le nombre atomique et e la charge de l'électron. Les indices 1 et 2 se rapportent à l'ion incident et l'atome cible respectivement.

¹ nuclear stopping power

Dans ce formalisme, le « pouvoir d'arrêt nucléaire » s'écrit comme :

$$\left(\frac{d\mathcal{E}}{d\rho}\right)_n = S_n(\mathcal{E}) \quad (2.5)$$

ou

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_n = a N Z_1 Z_2 e^2 \frac{M_1}{M_1 + M_2} S_n(\mathcal{E}) \quad (2.6)$$

Dans ce système de coordonnées, le pouvoir d'arrêt nucléaire est représenté par une relation unique $S_n(\mathcal{E})$, indépendante de la particule incidente et de la cible. $S_n(\mathcal{E})$ dépend de la forme du potentiel $V(r)$. Un potentiel en $1/r$ (Thomas-Fermi) conduit à une perte d'énergie nucléaire qui diminue à haute énergie, et donc qui est plus proche de la réalité que celui en $1/r^2$ (indépendant de l'énergie). Une forme approximative est donnée par Kalbitzer et al.:

$$\left(\frac{d\mathcal{E}}{d\rho}\right)_n = \frac{1.7\mathcal{E}^{0.5} \text{Log}(\mathcal{E} + e)}{1 + 6.8\mathcal{E} + 3.4\mathcal{E}^{1.5}} \quad (2.7)$$

Perte d'énergie électronique

La deuxième interaction est la perte d'énergie électronique. La plupart des projectiles ne frappent pas de plein fouet les atomes du matériau, mais passent plutôt au voisinage de ceux-ci. Etant donné que les ions restent chargés tant qu'ils possèdent une certaine vitesse, il se produira une interaction électrostatique entre ceux-ci et les électrons et charges nucléaires des atomes du matériau (collisions inélastiques). Les atomes de la cible sont excités ou ionisés. Ceci va également provoquer le ralentissement des ions incidents. Il est quantifié par le « pouvoir d'arrêt électronique »:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = -N S_e(E) \quad (2.8)$$

où N est la densité atomique et S la section efficace d'arrêt électronique pour l'énergie E . C'est ce mécanisme ion-électron qui est le plus important à plus haute énergie (\gg keV)

Dans le cas des collisions à faible énergie (pour $v < 2.2 \cdot 10^6$ m/s, ce qui correspond +/- à des énergies inférieures au MeV), la théorie LSS dit que le pouvoir d'arrêt électronique est proportionnel à la racine carrée de l'énergie :

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = -K \sqrt{E} \quad (2.9)$$

Dans le cas des collisions à forte énergie (pour $v > 2.2 \cdot 10^6$ m/s, ce qui correspond +/- à des énergies supérieures au MeV), on peut montrer que le pouvoir d'arrêt électronique est inversement proportionnel à l'énergie :

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = -kE^{-1} \quad (2.10)$$

K et k dépendent du couple ion- atome cible (Z_1, Z_2, M_1, M_2).

Perte d'énergie totale

On considère les processus de perte d'énergie électronique et nucléaire comme indépendants et additifs. La perte d'énergie totale subie par l'ion est donc égale à l'addition des deux.

$$\left(\frac{dE}{dx}\right) = \left(\frac{dE}{dx}\right)_n + \left(\frac{dE}{dx}\right)_e \quad (2.11)$$

Les deux mécanismes varient différemment avec l'énergie. La section efficace sera maximale pour des énergies de l'ordre du keV pour l'interaction nucléaire et pour des énergies de l'ordre du MeV pour l'interaction électronique. Souvent une des deux contributions peut être considérée comme négligeable (voir Figure 2.1).

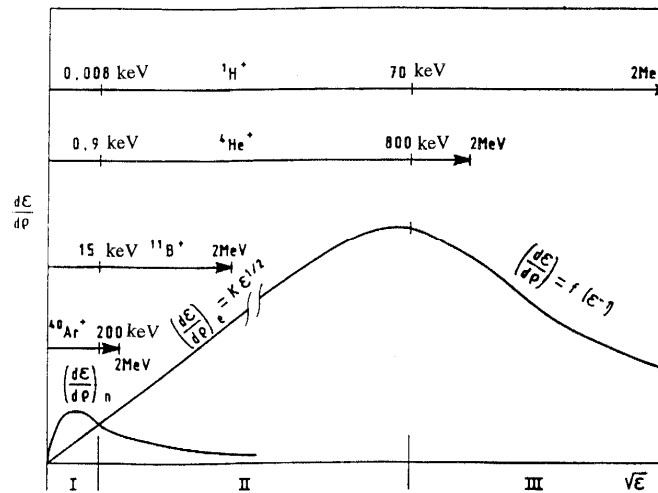


Figure 2.1. Domaine d'applications des différentes théories en fonction de l'ion incident (I: interaction nucléaire, II: interaction électronique à faible énergie, III: interaction électronique à haute énergie) [2.1].

Principaux phénomènes se produisant sur la matière

Dans une certaine gamme d'énergie (de la centaine d'eV à quelques keV), l'impact des ions provoque l'émission de particules de différente nature. Principalement des atomes neutres (pulvérisation ionique), mais aussi des ions (émission d'ions secondaire), des photons (ionoluminescence), des électrons secondaires. L'éjection de particules de la cible requiert une séquence de collisions pour changer la quantité de mouvement incidente, dirigée vers l'intérieur du matériau, vers la surface. Ici le parcours des ions dans la matière est faible et ce sont les premières couches atomiques qui participent à la pulvérisation. A titre d'exemple, à la limite supérieure de la gamme d'énergie que nous traitons ici, la profondeur de pénétration pour des ions d'Argon d'1 keV bombardant de la silice fondue sous incidence normale est de l'ordre de 4 nm.

Pour des énergies plus élevées (de quelques keV à quelques MeV), l'ion incident pénètre beaucoup plus profondément dans le solide (quelques dixièmes de microns à 100 keV) : il s'agit du phénomène d'implantation ionique qui est mis à profit pour implanter des dopants dans un matériau.

En résumé, on distingue généralement 4 phénomènes concernant les modifications de la cible bombardée (voir Figure 2.2) :

- La pulvérisation de particules de la surface
- L'implantation d'ions primaires

- Des modifications dans la structure de la matière
- Des effets chimiques tels que la rupture et la formation de liaison

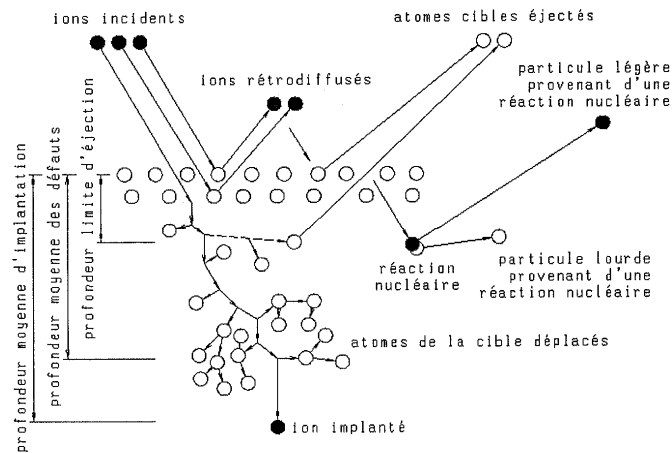


Figure 2.2 Principaux phénomènes lors du bombardement ionique d'un matériau [2.1].

2.2 La pulvérisation ionique

2.2.1 Le mécanisme de pulvérisation

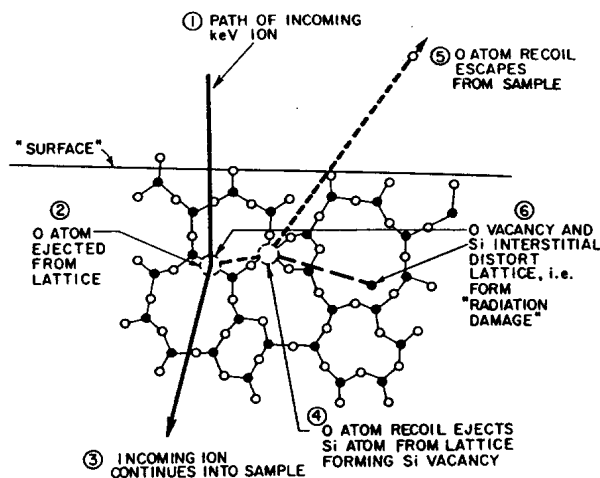


Figure 2.3: Illustration d'un processus de pulvérisation typique se produisant lors du bombardement de la surface du verre par des ions [2.2]. Les cercles pleins représentent les atomes d'oxygène, les cercles creux les atomes de silicium.

Un des effets principaux de l'interaction ion-surface est la pulvérisation (*sputtering* en anglais). La Figure 2.3 illustre un processus physique typique produisant la pulvérisation dans la gamme de 1 keV. La particule incidente, énergétique, pénètre dans le matériau et perd de l'énergie dans une série de collisions avec les atomes de la cible. Si l'énergie transmise à l'atome cible est supérieure à une énergie de déplacement, il peut quitter sa position et engendrer une série de chocs avec d'autres atomes du matériau (cascades de collisions). Un atome éjecté de sa position initiale peut s'échapper du matériau s'il a suffisamment d'énergie pour compenser les pertes énergétiques qu'il subit lorsqu'il traverse la matière et s'il acquiert suite aux collisions une composante de vitesse dirigée vers l'extérieur du matériau. De plus, il

doit lui rester suffisamment d'énergie pour vaincre les forces de liaisons de surface (de 1 à quelques dizaines d'eV) et être finalement éjecté de la surface, produisant l'effet de pulvérisation. On dit que l'énergie du projectile a atteint le seuil de pulvérisation si elle conduit à l'éjection des atomes de la surface.

Au-delà de cette description générale de mécanisme de pulvérisation, on distingue généralement trois types de régime de collisions :

- Le régime des collisions uniques²:

L'ion incident transfère de l'énergie aux atomes de la cible, lesquelles, après avoir subi un petit nombre de collisions ultérieures sont éjectés de la surface. Dans ce mode, peu de collisions se produisent et seuls les atomes heurtés en premier contribuent à la pulvérisation de manière significative. Ce régime s'applique pour les bombardements de faible énergie (≤ 1 keV)

- Le régime de cascades linéaires :

Dans ce régime, les atomes de la cible reçoivent suffisamment d'énergie pour engendrer le recul d'autres atomes et donc un régime dit en cascades, mais de densité assez faible si bien que les collisions entre atomes en mouvement sont très improbables. Ce régime s'applique pour des bombardements d'ions de nombre atomique moyen ou élevé et dans une gamme d'énergie de quelques keV.

- Le régime des pointes thermiques³

Les collisions sont telles qu'elles mettent en mouvement une densité importante de particules à l'intérieur d'un certain volume de la cible (appelé le « spike » volume) et les collisions entre atomes en mouvement peuvent se produire. Ce régime est atteint pour des bombardements de cibles d'atomes lourds par des ions lourds et des énergies élevées (20-80 keV).

2.2.2 Le rendement de pulvérisation

Le phénomène de pulvérisation ionique est quantifié en terme de rendement de pulvérisation $Y(E)$, qui est égal au nombre d'atomes éjectés par ion incident. C'est une des valeurs les plus importantes dans le domaine de la pulvérisation ionique.

2.2.2.1 Le modèle de Sigmund

Le modèle le plus connu pour le calcul du rendement de pulvérisation est celui de Sigmund [2.3] [2.4]. C'est un modèle basé sur l'équation de transport de Boltzmann, valable pour des cibles monoatomiques (amorphes et polycristallines).

Le rendement de pulvérisation peut s'exprimer comme :

$$Y(E) = \Lambda Fd(E) \quad (2.12)$$

Λ contient les propriétés du matériau et l'état de la surface :

$$\Lambda \cong 0.042 / (N U_0) \quad (2.13)$$

avec U_0 l'énergie de liaisons des atomes de surface et N sa densité atomique. U_0 peut être estimé à partir de l'énergie de sublimation du matériau cible et est compris en général entre 2 et 4 eV.

² *single knock-on regime*

³ *spike regime*

$Fd(E)$ est la densité d'énergie déposée en surface :

$$Fd(E) = \alpha N S_n(E) \quad (2.14)$$

où $N S_n(E)$ est le pouvoir d'arrêt nucléaire (voir paragraphe 2.1) et α un facteur de correction dépendant de l'angle de pulvérisation et de contributions dues à des grands angles de diffusion. En incidence normale, le facteur α dépend de l'énergie (facteur m) et surtout du rapport de masse de l'ion incident (M_1) et de l'atome cible (M_2). La valeur de α est comprise entre 0.15 et 1.5 (voir Figure 2.4).

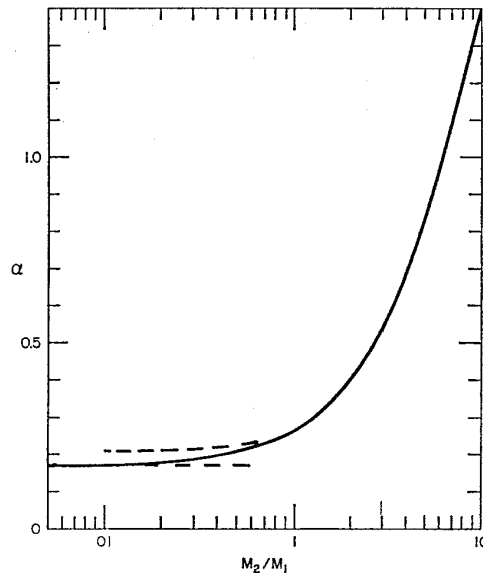


Figure 2.4. Facteur α en fonction du rapport de masse M_2/M_1 dans le domaine des collisions élastiques (incidence normale) [2.3].

Pour le calcul du pouvoir d'arrêt nucléaire dans son modèle, il distingue plusieurs cas en fonction notamment de l'énergie des ions incidents et de la masse des ions. La limite exacte en énergie entre les deux cas décrits ci-dessous dépend du couple ion incident-atome cible.

Pour le cas des faibles énergies (< 1 keV), il privilégie la pulvérisation causée directement par le recul de l'atome cible plutôt que par le processus de collisions en cascades. Le rendement de pulvérisation en incidence normale Y_0 s'écrit dans ce cas:

$$Y_0(E) \approx \frac{3}{4\pi^2} \alpha \frac{\gamma E_0}{U_0} \quad (2.15)$$

Avec :

- α le facteur dépendant du rapport M_2/M_1 (Figure 2.4)
- E_0 l'énergie de l'ion incident
- U_0 l'énergie de liaisons des atomes de surface
- γ le coefficient de transfert d'énergie

$$\gamma = \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} \quad (2.16)$$

La quantité γE_0 correspond en fait à l'énergie maximale transmise à un atome cible lors d'une collision. Elle est maximale (et donc le rendement de pulvérisation aussi) quand les masses de l'ion incident et de l'atome cible sont identiques.

Pour des énergies plus élevées (<10 keV) et des ions de masses intermédiaires, où la pulvérisation est toujours gouvernée par les pertes nucléaires (région des collisions élastiques), Sigmund utilise pour le pouvoir d'arrêt nucléaire la relation LSS (équation (2.6)) exprimée en énergie réduite ε (voir paragraphe 2.1). Le rendement de pulvérisation s'exprime alors :

$$Y_0(E) = 0.042 \alpha Z_1 Z_2 e^2 a \frac{M_1}{U_0(M_1 + M_2)} S_n(\varepsilon) \quad (2.17)$$

où α est le facteur décrit à la Figure 2.4, a est le rayon d'écrantage de Thomas-Fermi, Z_1 et Z_2 sont les nombres atomiques de l'ion incident et l'atome cible respectivement. Comme vu précédemment, $S_n(\varepsilon)$ est une fonction unique (pour tous les couples ions – atomes cibles), tabulée par les auteurs du modèle LSS et dont les valeurs sont reprises dans l'article de Sigmund [2.3].

Dans le cas de l'approximation de la perte d'énergie nucléaire indépendante de l'énergie telle que décrite par l'équation (2.3), le rendement de pulvérisation peut s'exprimer [2.4] comme:

$$Y_0(E) = 0.021 \alpha \pi^2 Z_1 Z_2 e^2 a \frac{M_1}{U_0(M_1 + M_2)} \quad (2.18)$$

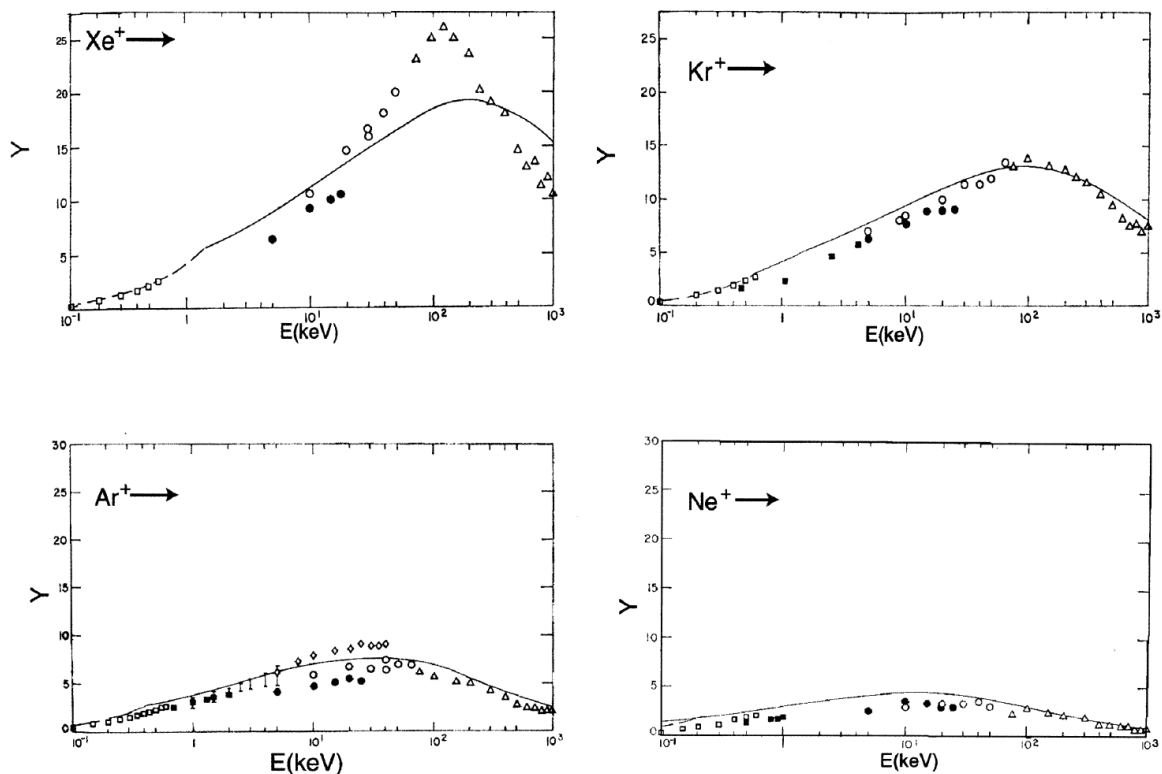


Figure 2.5. Rendements de pulvérisation du Cu mesurés expérimentalement (points) et calculés selon le modèle de Sigmund (lignes) en fonction de l'énergie pour des ions primaires Xe, Kr, Ar et Ne [2.3] [2.4].

La Figure 2.5 compare le rendement de pulvérisation du cuivre obtenus à l'aide du modèle de Sigmund (Equations (2.15) et (2.18)) et celles mesurées expérimentalement. Aux faibles énergies, le rendement de pulvérisation augmente linéairement avec l'énergie, comme décrit par l'équation (2.15). Pour des ions de plus grandes énergies, les ions pénètrent plus profondément dans le matériau, l'énergie déposée en surface diminue, ainsi que le rendement

de pulvérisation. L'énergie à laquelle le rendement est maximum diminue pour des ions incidents plus légers.

Comme illustré à la Figure 2.5, on constate en général une bonne adéquation entre le modèle de Sigmund et les mesures expérimentales pour les matériaux polycristallins et amorphes, sauf pour les hautes énergies (> 10 keV) dans le cas d'ions lourds (comme pour le Xe^+). Dans le domaine des faibles énergies (< 1 keV), certaines incertitudes sur le calcul des sections efficaces de collisions nucléaires peuvent également limiter la précision sur la valeur du rendement calculé par ce modèle.

2.2.2.2 Influence de l'angle d'incidence

Sous incidence oblique, la pulvérisation ionique est favorisée par le fait qu'une composante de la quantité de mouvement de l'ion incident est parallèle à la surface et donc qu'une part plus importante de son énergie peut être transférée aux atomes de surface. Le rendement croît donc avec l'angle d'incidence des ions de la surface. Le rendement de pulvérisation s'exprime dans le modèle de Sigmund comme [2.3] :

$$Y(\theta) = \frac{Y_0}{\cos^f(\theta)} \quad (2.19)$$

Où

Y_0 est le rendement de pulvérisation

θ est l'angle d'incidence par rapport à la normale à la surface

f est un paramètre dépendant des conditions de pulvérisation.

Pour des angles d'incidence raisonnables, f dépend principalement du rapport M_2/M_1 . Il est également lié au coefficient m ($0 < m < 1$) qui dépend de la gamme d'énergie, et donc de la section efficace des collisions élastiques (Thomas-Fermi), et qui est approximé de la manière suivante :

$m=1 \rightarrow$ Rutherford (hautes énergies)

$m=1/2 \rightarrow$ gamme autour du keV et moyennes énergies

$m=1/3 \rightarrow < \text{keV}$

$m \rightarrow 0 \rightarrow$ dans la gamme de quelques eV.

La courbe de f pour $m=1/2$ et $1/3$ (gamme qui nous intéresse ici) se trouve à la Figure 2.6. On peut constater que les 2 courbes sont très semblables, ce qui signifie que l'influence de l'angle d'incidence sur le rendement de pulvérisation est très peu sensible à l'énergie de l'ion incident dans la gamme de la centaine d'eV à quelques keV. De plus, pour $M_2/M_1 \leq 3$, f est quasiment constant ($\sim 5/3$) et donc le rendement de pulvérisation est également indépendant du rapport de masse.

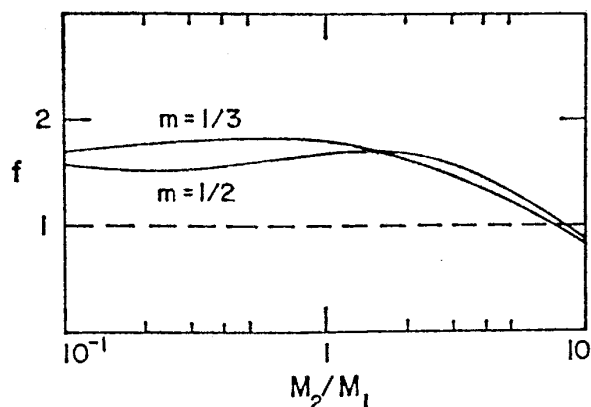


Figure 2.6. Facteur f en fonction du rapport de masse M_2/M_1 et de l'énergie ionique (quelques keV pour $m=1/2$ et <1 keV pour $m=1/3$) [2.3].

Pour des angles d'incidence élevés (au-delà de l'angle critique $\sim 70^\circ$), le rendement de pulvérisation diminue alors très rapidement en raison de la réflexion des ions incidents sur la surface (l'action répulsive de la surface est assez grande pour empêcher les ions de pénétrer dans le matériau) et tend vers 0 pour $\theta=90^\circ$.

Notons que des valeurs expérimentales pour f dans la gamme entre 0.7 et 2.5 peuvent être trouvées dans la littérature [2.4]. Ainsi, la grande dépendance du rendement de pulvérisation du diamant avec l'angle d'incidence pour des ions argon est illustrée à la Figure 2.7.

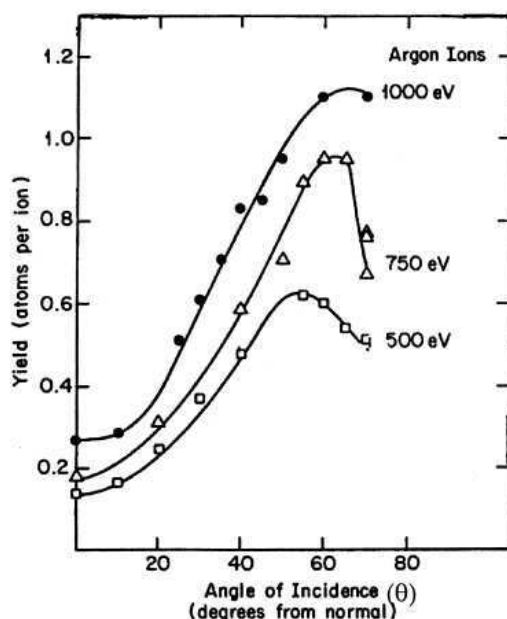


Figure 2.7. Mesure du rendement de pulvérisation du diamant en fonction de l'angle d'incidence pour des ions Argon de 500, 750 et 1000 eV [2.4].

2.2.2.3 Influence de la structure du matériau

Bien que le processus physique de pulvérisation soit le même pour les matériaux amorphes, cristallins et polycristallins, l'arrangement régulier des atomes dans une structure cristalline induit des effets qui n'ont pas lieu dans les structures désordonnées. Pour les cristaux, le

rendement de pulvérisation dépend également du plan cristallin qui subit le bombardement ionique.

Lorsque le bombardement s'effectue selon certaines directions cristallographiques privilégiées, la profondeur de pénétration dans le cristal est beaucoup plus importante que dans le cas amorphe. L'alignement des atomes dans les cristaux procurent en effet de véritables « boulevards » pour les ions incidents ayant la même direction. Ne rencontrant que peu d'obstacles, la perte d'énergie de l'ion est beaucoup plus faible. Il en résulte un rendement de pulvérisation Y plus faible car les collisions se produisant plus en profondeur, les atomes ont une probabilité plus faible d'être éjectés. Ce phénomène est connu sous le nom de l'effet de canalisation (*channeling effect* en anglais).

Au contraire, lorsque le bombardement s'effectue perpendiculairement aux plans de hautes densités atomiques, le rendement de pulvérisation est supérieur à celui observé sur les matériaux amorphes ou polycristallins.

2.2.2.4 Pulvérisation de matériaux biatomiques

Les différences de rendement de pulvérisation des différents constituants du matériau vont engendrer la formation d'une couche de surface (dite « couche altérée ») de typiquement quelques nm d'épaisseur enrichie du constituant ayant le rendement de pulvérisation le plus faible (« pulvérisation différentielle ») [2.5].

Pour un alliage A-B, les rendements de pulvérisation Y_A et Y_B des constituants A et B dans l'alliage A-B s'écrivent :

$$Y_A = \frac{N_{A-B}}{N_A} S_A \qquad Y_B = \frac{N_{A-B}}{N_B} S_B \qquad (2.20)$$

avec

S_A = coefficient de pulvérisation de A dans A pur

N_A = densité atomique de A pur

N_{A-B} = densité atomique de A-B

Idem pour constituant B

Au fur et à mesure que la pulvérisation se poursuit, la concentration de surface du composant avec le rendement le plus élevé va diminuer. Après un certain temps, un état d'équilibre va être atteint pour lequel la concentration des constituants peut être très différente que celle initiale.

A l'équilibre [2.6] :

$$\frac{\theta_A Y_A}{C_A} = \frac{\theta_B Y_B}{C_B} \qquad (2.21)$$

C_A = fraction initiale de A dans l'alliage

θ_A = fraction en surface de A dans l'alliage à l'équilibre

C_B = fraction initiale de B dans l'alliage

θ_B = fraction en surface de B dans l'alliage à l'équilibre

Le concept peut être généralisé à un matériau à plusieurs constituants.

2.2.3 La vitesse de pulvérisation

La vitesse de pulvérisation (plus communément appelée la vitesse d'érosion) correspond à la profondeur de matière pulvérisée par unité de temps. Pour un matériau monoatomique, elle est liée au rendement de pulvérisation par la relation empirique suivante donnée par Kaufman (en Angstroms/min) [2.7]:

$$V_e = \frac{dz}{dt} = 62,2 J \cos(\theta) \frac{M_2}{\rho} Y(\theta) \quad (2.22)$$

avec

J est la densité de courant ionique (mA/cm²)

M₂ la masse atomique de la cible

ρ la densité du matériau (g/cm³)

Nombre atomique	Elément	Masse atomique (uma)	Densité (g/cm ³)	Rendement Y (atomes/ion)	Vitesse à 1 mA/cm ² (nm/min)
4	Be	9.01	1.85	0.62	19
6	C	12.01	2.25	0.12	4
13	Al	26.98	2.7	1.03	64
14	Si	28.09	2.33	0.45	34
22	Ti	47.9	4.54	0.51	33
23	V	50.94	6.11	0.64	33
24	Cr	52	7.2	1.18	53
25	Mn	54.94	7.44	1.9	87
26	Fe	55.85	7.87	1.1	49
27	Co	58.93	8.9	1.2	49
28	Ni	58.71	8.9	1.35	55
29	Cu	63.55	8.96	2	88
32	Ge	72.59	5.32	1.08	92
39	Y	88.91	4.47	0.68	84
40	Zr	91.22	6.51	0.65	57
41	Nb	92.91	8.57	0.58	39
42	Mo	95.94	10.22	0.81	47
45	Rh	102.91	12.41	1.26	65
46	Pd	106.4	12.02	2.05	110
47	Ag	107.87	10.5	3.03	190
50	Sn	118.69	7.31	1.2	120
73	Ta	180.95	16.65	0.56	38
74	W	183.85	19.3	0.56	33
78	Pt	195.09	21.45	1.37	78
79	Au	196.97	19.32	2.43	150
82	Pb	207.2	11.35	2.7	310
83	Bi	208.98	9.75	6.64	880
92	U	238.03	18.85	0.84	66

Tableau 2.1. Rendement et vitesses de pulvérisation des principaux éléments en incidence normale, pour des ions Argon de 500 eV (vitesses mesurées pour une densité de courant de 1 mA/cm²) [2.7].

Kaufman fournit également une table de valeurs expérimentales de rendement et de vitesse de pulvérisation pour des ions d'argon de 500 eV d'énergie et 1 mA/cm² de densité de courant, sous incidence normale (voir Tableau 2.1). Les rendements et vitesses de pulvérisation sont fournis également pour quelques matériaux composés (semi-conducteurs ...) au Tableau 2.2.

La conversion entre vitesses et rendement de pulvérisation peut se calculer à l'aide de la relation (2.22).

Il convient de considérer ces valeurs comme un ordre de grandeur car on constate une dispersion assez grande des valeurs en fonction des expérimentateurs (des écarts de 20% sont fréquents). Il est donc vivement conseillé d'effectuer des mesures dans les conditions expérimentales de l'application si l'on désire disposer de valeurs précises.

Si on substitue $Y(\theta)$ dans l'équation (2.22) par

$$Y(\theta) = \frac{Y_0}{\cos^f(\theta)} \quad (2.19)$$

, nous obtenons l'équation suivante qui exprime la dépendance de la vitesse de pulvérisation avec l'angle d'incidence :

$$V_e = \frac{dz}{dt} = 62,2 J \frac{M_2}{\rho} \frac{Y_0}{\cos^{f-1}(\theta)} \quad (2.23)$$

Composés	Symbole	Orientation	Masse moléculaire (uma)	Densité (g/cm ³)	Rendement Y (molécules/ion)	Vitesse à 1 mA/cm ² (nm/min)
Oxyde d'aluminium	Al ₂ O ₃	1102	101.9	3.96	0.05	8.3
Sulphure de cadmium	CdS	1010	144.46	4.82	1.2	220
Arséniure de gallium	GaAs	100	144.64	5.316	0.38	65
Arséniure de gallium	GaAs	110	144.64	5.316	0.95	160
Antimoniure de gallium	GaSb	111	191.47	5.619	0.88	187
Antimoniure d'indium	InSb		236.57	5.775	0.6	152
Tellure de plomb	PbTe	111	334.8	8.16	1.48	377
Niobate de lithium	LiNbO ₃	coupe Y	147.85	4.65	0.2	39
Carbure de silicium	SiC	0001	40.09	3.21	0.45	35
Dioxyde de silicium	SiO ₂	001	60.086	2.65	0.23	33
Photorésine Riston 14						25
Photorésine Shipley AZ 1350						20

Tableau 2.2. Rendement et vitesses de pulvérisation de quelques matériaux composés en incidence normale, pour des ions Argon de 500 eV (vitesses mesurées pour une densité de courant de 1 mA/cm²) [2.8].

2.2.4 L'influence du bombardement sur la topographie et les défauts sous la surface

Le bombardement ionique d'un solide étant un processus destructif, la couche superficielle de celui-ci va subir des changements qui se traduiront de différentes manières :

- modification de la topographie de la surface
- modification de la composition de la couche superficielle
- création de défauts
- implantations d'impuretés
- ...

2.2.4.1 Influence sur la couche superficielle en fonction du type de matériaux

Métaux

Un effet commun sur les matériaux polycristallins est le développement des frontières de grains. Les plans cristallographiques d'orientation différente vont être pulvérisés avec des rendements également différents. Ces propriétés sont d'ailleurs mises à profit pour révéler la structure des métaux et autres matériaux polycristallins en les soumettant à la pulvérisation ionique. Une autre caractéristique est le développement de protubérances (cônes, pyramides, ...).

Semi-conducteurs

Un changement de structure spectaculaire est observé pour les semi-conducteurs où le bombardement ionique rend la couche superficielle amorphe. Le passage de l'état cristallin à amorphe se produit uniquement si la température du semi-conducteur est suffisamment basse pour que les dégâts engendrés ne soit pas annulé (par diffusion) aussi vite qu'ils sont créés. Cette température critique va dépendre du type de semi-conducteur, de l'ion incident, de son énergie et du flux.

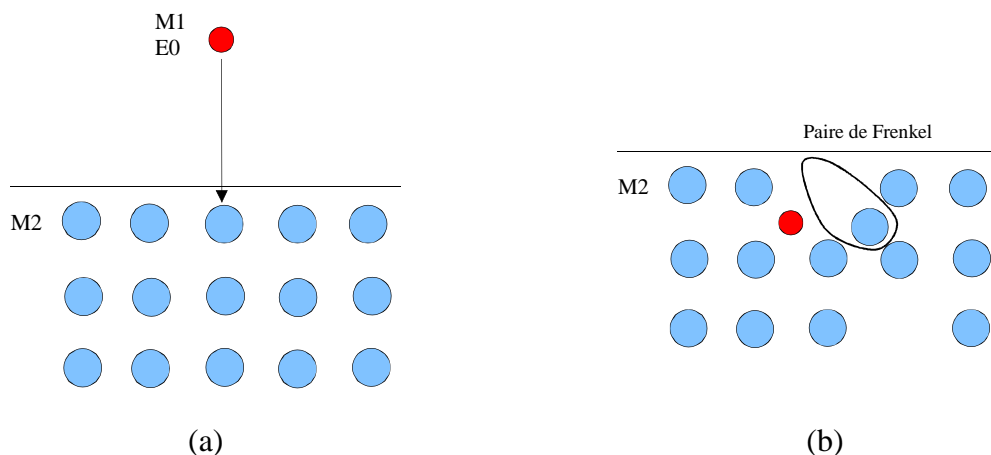
Matériaux amorphes

L'absence de structure ordonnées dans les matériaux amorphes (verres, ...) et de directions préférentielles pour le rendement de pulvérisation a pour conséquence que les effets sur la topographie des surfaces (et donc l'évolution de la rugosité) est beaucoup plus limité que pour les matériaux polycristallins. La topographie de la surface est donc généralement peu modifiée sous bombardement à faible et moyenne énergie. Néanmoins, ces effets ne sont pas inexistantes comme nous le verrons plus en détails au chapitre 4.

2.2.4.2 Les défauts dans les matériaux cristallins

Lors des collisions nucléaires, si l'énergie transmise par l'ion incident aux atomes du réseau est supérieure à un certain seuil E_d (énergie de déplacement), l'atome cible quitte son site cristallin normal, laissant un site vacant (lacune). Si son énergie est grande, l'atome déplacé pourra même déplacer d'autres atomes du réseau tant que son énergie est supérieure à E_d . Ces déplacements d'atomes dans la structure cristalline constituent des défauts.

Si l'atome déplacé va se positionner un peu plus loin en position interstitielle en laissant à sa place normale un site vacant, on forme un couple lacune-interstice appelé paire de Frenkel. C'est le défaut le plus élémentaire induit par le bombardement ionique.



Schématisation (a) de l'ion incident sur une cible cristalline et (b) de la création d'une paire de Frenkel.

Autour du parcours de l'ion incident dans le matériau, nous avons une zone fortement perturbée. Pour les doses faibles, le matériau est dégradé localement. Pour les doses importantes (comme pour notre étude), il y a recouvrement des zones et formation d'une couche amorphe. Cette couche amorphe est située soit en surface pour des énergies faibles (comme pour notre étude), soit en profondeur pour des énergies plus élevées (implantation ionique).

Une notion importante est celle de « déplacement par atome » (dpa) qui donne le nombre moyen de déplacements pour chaque atome du réseau. Pour chaque matériau, il existe un seuil critique de déplacement au-delà duquel on assiste à son amorphisation complète.

2.3 Les modèles mathématiques du bombardement ionique des solides

2.3.1 Introduction

Les grandeurs physiques de base de la pulvérisation (rendement de pulvérisation, parcours, ...) sont en général calculées sur base de modèles plus complexes que la relation (2.15) donnée par Sigmund. Les modèles de simulations informatiques du phénomène de simulation peuvent être séparés en deux groupes [2.9] : les modèles basés sur l'approximation de collisions binaires (BCA pour *Binary Collision Approximation*) et les modèles de « dynamique moléculaire » (MD pour *Molecular Dynamics*).

Dans les deux types de modèles, l'interaction entre atomes de la cible est décrite par un potentiel interatomique $V(r)$ qui, si on suppose que l'interaction dépend uniquement de la distance r entre deux atomes i et j , peut s'écrire sous la forme :

$$V_{ij}(r) = \frac{Z_i Z_j e^2}{r} \phi(r) \quad (2.24)$$

où on distingue le terme coulombien de répulsion entre les noyaux des atomes et la fonction $\phi(r)$ qui décrit l'effet d'écran du nuage d'électrons sur le noyau.

2.3.2 Approximation de collisions binaires

Les modèles basés sur l'approximation de collisions binaires peuvent être à leur tour divisés en deux catégories : ceux utilisant un calcul sur grilles pour des structures monocristallines et ceux utilisant des algorithmes de Monte Carlo pour des structures amorphes [2.9]. Ces modèles sont mieux adaptés au domaine des hautes énergies. Dans ces modèles, le mouvement des atomes est habituellement traité comme une suite de collision individuelle entre l'ion incident et l'atome de la cible. Pour chaque collision individuelle, l'intégrale de diffusion classique est résolue par intégration numérique. Cette méthode a recueilli pas mal de succès avec par exemple de bonnes corrélations entre les rendements de pulvérisation calculés et ceux mesurés. Néanmoins, en raison de l'hypothèse de départ que les collisions sont binaires, des difficultés surviennent si on veut décrire de manière réaliste les collisions atomiques [2.10].

2.3.3 Dynamique moléculaire

Dans les modèles de dynamique moléculaire, on calcule l'évolution d'un système d'atomes en fonction du temps par résolution des équations du mouvement de Newton. Dans le formalisme de Newton, la force F_i exercée sur un atome i est calculée comme suit :

$$F_i(r_i) = \sum_{j \neq i} F_{ij}(r_{ij}) = - \sum_{j \neq i} \nabla V_{ij}(r_{ij}) \quad (2.25)$$

où F_{ij} est la force agissant entre les atomes i et j et $V_{ij}(r_{ij})$ est le potentiel décrit à l'équation (2.24).

La somme sur j est calculée pour tous les atomes j ayant un potentiel avec l'atome i supérieur à un seuil minimal V_{\min} . Quand toutes les forces F_i ont été calculées pour l'ensemble des atomes i mobiles du système, les équations du mouvement sont résolues à l'aide d'un algorithme. Le calcul détermine le changement de position, de vitesse et d'accélération de chaque atome i sur un intervalle de temps fini Δt . Une fois ce changement calculé, on recommence le processus sur base des forces calculées dans la nouvelle position.

Donc, contrairement aux modèles de collisions binaires, toutes les interactions subies par un atome sont prises en compte simultanément dans les modèles de dynamique moléculaire. Néanmoins, ces modèles sont beaucoup plus gourmands en puissance de calcul que les modèles de collisions binaires, désavantage qui s'est considérablement réduit avec le développement de la puissance des ordinateurs.

Ces modèles sont bien adaptés au domaine d'énergie < 1 keV.

2.3.4 Les principaux modèles de simulations numériques

Parmi les logiciels de calcul développés, citons les plus connus :

Collisions binaires :

TRIM (TRAnsport of Ions in Matter) : le modèle classique de Monte Carlo du Dr Ziegler de IBM. Le modèle plus général s'appelle SRIM (*The Stopping and Range of Ions in Matter*) et constitue une évolution du code TRIM. SRIM est disponible gratuitement sur le net.

TRIDYN : un développement de TRIM par W. Eckstein (Max-Planck Institut für Plasmaphysik, Allemagne). Par rapport à TRIM, son code dynamique permet notamment le calcul du changement de composition lors du bombardement de cibles contenant plusieurs éléments.

MARLOWE : Convient aux applications de diffusion et pulvérisation ionique (Oak Ridge, USA). Il est adapté aux calculs de canalisation dans le silicium.

Dynamique moléculaire :

KALYPSO : programme gratuit disponible sur le net, sur interface windows avec programmation orientée graphique, mais code non disponible (M. Karolewski, Université de Brunei Darussalam, Bornéo)

CAMELION : disponible sur demande, code écrit en Fortran (B.J. Thijsse, Université de Delft, Pays-Bas)

MDRANGE (ou MDH) : optimisé pour le calcul de profondeur de pénétration (K. Nortlund, Helsinki, Finlande).

Ces modèles permettent d'estimer différentes grandeurs physiques liées au bombardement ionique de solides. Pour la pulvérisation ionique, on peut calculer le rendement de pulvérisation, la distribution angulaire des atomes pulvérisés ; pour l'implantation ionique le parcours moyen des ions, ... Néanmoins, il est difficile d'obtenir une valeur absolue précise de certaines valeurs, et particulièrement du rendement de pulvérisation, aux moyens de ces modèles en raison de leur sensibilité à tout une série de paramètres souvent difficile à estimer. Par contre, ils sont en général performants quant il s'agit d'étudier l'influence relative d'une

quantité expérimentale sur le système, comme par exemple l'énergie ou l'angle d'incidence de l'ion incident sur le rendement de pulvérisation. Ces modèles sont également limités à des restrictions importantes sur le type de matériau qui peuvent être traitées. Le Tableau 2.3 résume ces limites.

Programme	Type	Matériau	Gamme d'énergie	Grandeurs calculées
SRIM (TRIM)	BCA	Amorphe	0.1 keV- MeV	Pulvérisation, <i>range</i> *, déplacements
TRIDYN	BCA	Amorphe	0.1 keV- MeV	Pulvérisation, changement de composition
MARLOWE	BCA	Amorphe, cristallin	> keV	Pulvérisation, diffusion ionique
KALYPSO	MD	Métallique monocristallin (mono ou bi-atomique)	~ keV	Pulvérisation, diffusion ionique, perte d'énergie inélastique
CAMELION	MD	Métallique (interaction métallique), conducteurs**	dizaines eV - qqs keV	Pulvérisation (de couche mince)
MDRANGE	MD	Amorphe, polycristallin, multi-couches	0.1 keV- 100 keV	Parcours moyen, énergie déposée

Tableau 2.3. Quelques caractéristiques des modèles numériques de collisions atomiques. BCA: approximations de collisions binaires, MD: dynamique moléculaire. *Profondeur de pénétration moyenne. **Version modifiée.

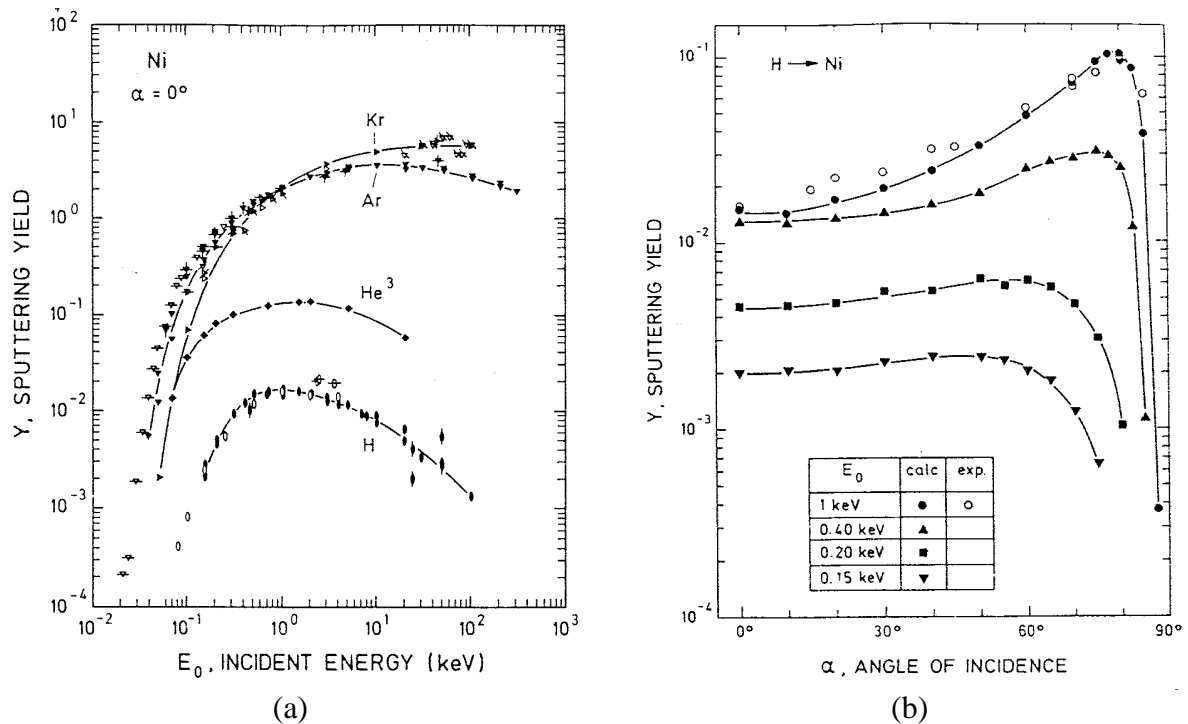


Figure 2.8. Rendements de pulvérisation du nickel (a) en fonction de l'énergie incidente pour le bombardement par différents gaz nobles et (b) en fonction de l'angle d'incidence pour le bombardement par des ions H^+ à différentes énergies. Comparaison de valeurs calculées par le modèle TRIM.SP (marqueurs « pleins ») et mesurées expérimentalement (marqueurs « creux ») [2.9].

Dans ce travail, nous utiliserons principalement le logiciel SRIM, qui utilise la méthode de cascades de collisions pour suivre les atomes individuels déplacés jusqu'à ce 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 et créer une lacune. Sachant que E_1 est l'énergie du projectile (l'ion incident) après la collision et E_2 , l'énergie transférée à un atome cible, SRIM peut rencontrer quatre situations différentes :

- $E_1 > E_d$ et $E_2 > E_d$: L'ion incident peut déplacer un atome cible de son site qui devient à son tour une particule incidente pouvant subir d'autres chocs. Il peut déplacer d'autres atomes cibles et constituer des lacunes ;
- $E_1 > E_d$ 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 pour la création des phonons (vibration de réseau). Quant à la particule incidente, elle continue son mouvement ;
- $E_1 < E_d$ 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 par la création de 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 par la création de phonons.

2.4 Applications de la pulvérisation ionique

2.4.1 Techniques de dépôt de couche mince

2.4.1.1 Pulvérisation cathodique

Dans la pulvérisation cathodique, une différence de potentiel (\sim kV) est appliquée entre la cible (cathode) et le substrat (anode) entre lesquels circule un gaz (souvent de l'argon). Ce potentiel initie un plasma entre la cathode et l'anode qui sera ensuite auto-entretenu. Les ions (positifs) créés sont accélérés vers la cible (potentiel négatif). Le matériau pulvérisé vient se déposer sur le substrat placé en vis-à-vis. C'est un procédé relativement simple et bien adapté à l'échelle industrielle. Ce procédé est cependant limité aux substrats conducteurs.

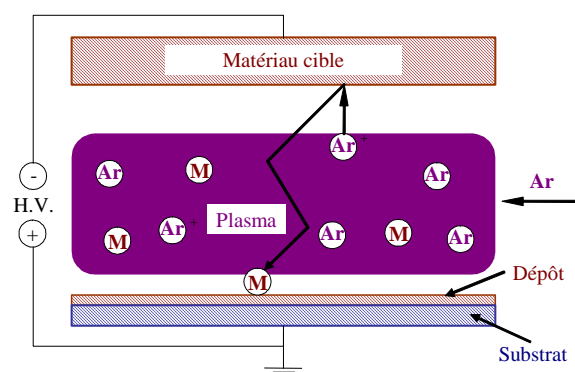


Figure 2.9. Schéma de principe de la pulvérisation cathodique.

Une autre variante est la pulvérisation cathodique magnétron, où la cible est placée sur la tête magnétron où est confiné le plasma grâce aux aimants placés derrière la cible. Comme dans la pulvérisation cathodique, le matériau pulvérisé vient se déposer sur le substrat placé en vis-à-vis. L'énergie plus élevée des atomes pulvérisés que dans la pulvérisation cathodique assure une meilleure qualité des dépôts.

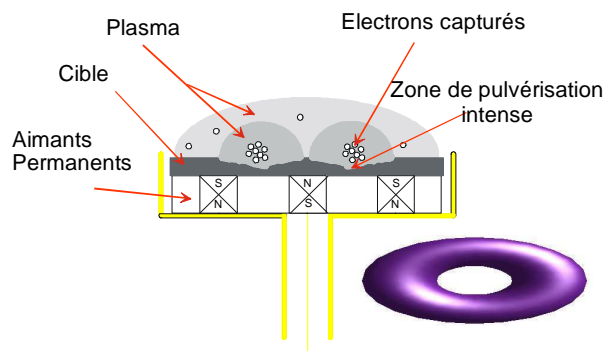


Figure 2.10. Schéma de principe de la pulvérisation magnétron.

2.4.1.2 Pulvérisation par faisceau d'ions

Dans la pulvérisation par faisceau d'ions, un faisceau d'ions, produit par une source ionique, est utilisé pour pulvériser une cible dont la matière vient se déposer sur le substrat. L'avantage est que l'énergie et la direction du faisceau peuvent être choisis et optimisés indépendamment des conditions de décharge. Cette technique permet une grande qualité et précision de dépôt. Ce procédé est par contre plus difficilement transposable à l'échelle industrielle.

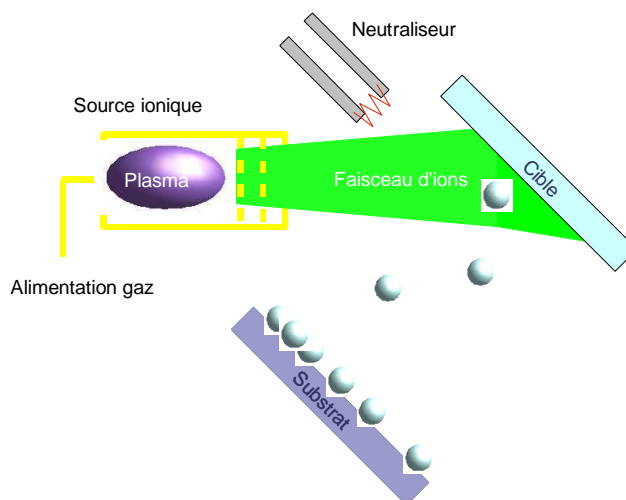


Figure 2.11. Schéma de principe de la pulvérisation par faisceau d'ions.

2.4.2 Usinage ionique (correction de forme par faisceau d'ions)

La qualité des miroirs qui sont utilisés à des fins astronomiques (comme dans l'optique des télescopes terrestres ou spatiaux) est déterminante dans la qualité des images que le système fournit. Il est donc nécessaire de fabriquer des optiques dont la forme soit la plus précise possible et dont le fini de surface soit le meilleur possible (réduction de sa rugosité). Les techniques traditionnelles du polissage de miroir sont abrasives, c'est à dire que le miroir est poli mécaniquement (par frottements).

Dans les années 60 furent tentés les premiers essais pour améliorer la surface de matériaux en les bombardant avec des ions. Diverses études ont été réalisées depuis sur le sujet et ont notamment démontré la faisabilité du polissage d'optique par bombardement ionique (réalisé par la compagnie Kodak). Les premiers essais utilisaient des faisceaux ioniques au courant

faible avec des ions d'énergies importantes de l'ordre du MeV. Les études ultérieures ont montrés l'intérêt d'utiliser un faisceau ionique suffisamment large, au courant important et avec des ions de faibles énergies (de l'ordre du keV). Des équipements compacts fournissant de tels faisceaux ioniques furent disponibles dans le courant des années 70 avec la technologie des sources ioniques de type Kaufman. La correction d'erreurs de forme par faisceau d'ions fut pour la première fois démontrée par Wilson et al [2.11] fin des années 80 (procédé mieux connue sous l'acronyme anglais IBF pour *Ion Beam Figuring*). Elle sera ensuite utilisée à une plus large échelle par quelques laboratoires et industries de pointe en fabrication optique. Nous nous étendons plus largement ici sur cette application étant donné que c'est elle qui a motivé les travaux de cette étude.

Les vitesses de pulvérisation ionique sont de l'ordre de dizaines de nanomètres par minute, ce qui rend irréaliste l'usinage de grandes profondeurs. Par contre, l'usinage ionique peut s'avérer pertinent comme étape finale de polissage effectué par des techniques conventionnelles. Les défauts résiduels laissés par les techniques de polissage mécaniques sont en général de grande longueur d'onde spatiale (~cm) mais de faible amplitude (< μm). En utilisant un faisceau d'ions qui a un profil de densité courant en forme de cloche (de type gaussien en général), on peut éliminer ces défauts. Le procédé consiste à balayer la surface optique avec le faisceau d'ions selon des vitesses appropriées de manière à enlever la quantité de matière désirée. Les temps de séjour du faisceau d'ions en face de chaque point du miroir sont calculés sur bases de la cartographie des erreurs de forme de l'optique et de la fonction d'érosion du faisceau sur le matériau concerné (voir Figure 2.12), souvent à l'aide d'un algorithme de déconvolution. En effet, la fonction de matière érodée $r(x,y)$ est égale au produit de convolution de la fonction $t(x,y)$ des temps de séjour du faisceau face à chaque point (x,y) de la surface et de la fonction d'érosion du faisceau $h(x,y)$:

$$r(x, y) = t(x, y) * h(x, y) \quad (2.26)$$

Le traitement proprement dit consiste ensuite à balayer sous vide la surface optique avec le faisceau d'ions tout en respectant les temps de séjour préalablement calculés (voir Figure 2.13a). Le balayage est réalisé en restant orthogonal et à égal distance de la surface (pour assurer un profil d'érosion constant sur toute la surface de l'optique), ce qui requiert un système de déplacements multi-axes (jusqu'à 5) pour des optiques courbes. L'utilisation des mouvements de rotation peut être en général évitée pour de légères courbures.

Une correction efficace requière une bonne adéquation entre la taille de l'optique, les fréquences spatiales des défauts à éliminer et le profil d'érosion du faisceau. La correction de grandes optiques (1m ou plus) exigera de disposer d'une source ionique suffisamment large. Pour corriger de plus petites optiques ou des fréquences spatiales plus élevées, différentes solutions peuvent être utilisées sur une source ionique donnée pour réduire fortement la taille du faisceau comme le placement de grilles de tailles plus petites (source à grilles) ou le masquage partiel du faisceau. La Figure 2.13b montre différents profils d'érosion mesurés au CSL sur du carbure de silicium (déposé par CVD⁴) et obtenus à l'aide de 2 types de sources ioniques: une source End-Hall et une source Kaufman (voir paragraphe sur les technologies des sources ioniques). Pour cette dernière source, on y voit également des profils plus minces obtenus en plaçant devant le faisceau des masques en carbone pyrolytique avec des ouvertures de différents diamètres.

⁴ *Chemical Vapour Deposition*

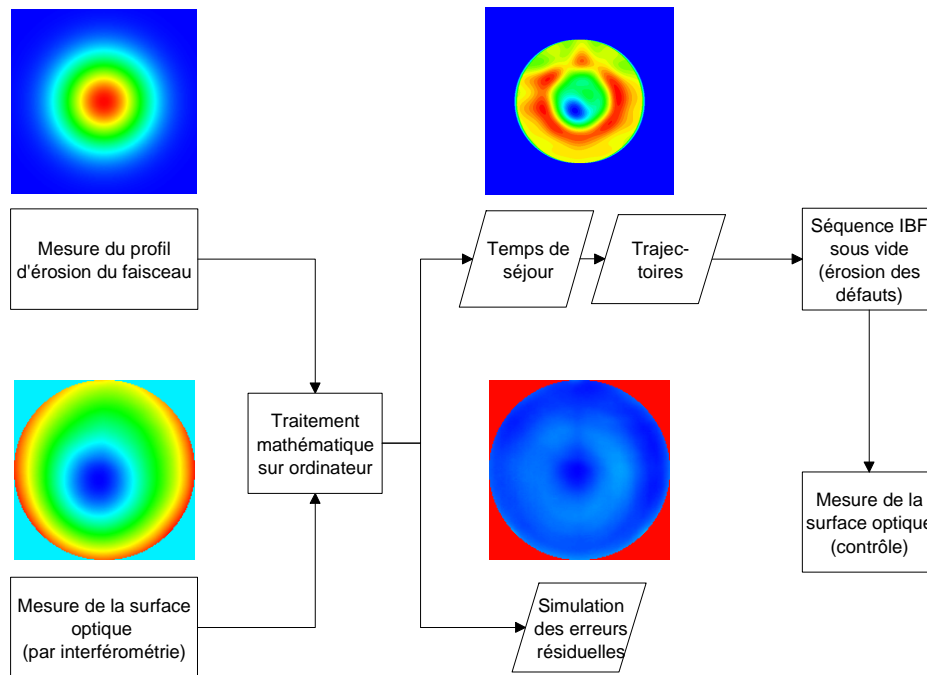


Figure 2.12. Illustration des principales quantités mesurées et calculées dans le procédé d’usinage ionique. La cartographie des erreurs de surface de l’optique (mesurées à l’aide d’un interféromètre par exemple) et le profil d’érosion du faisceau d’ions sur le matériau concerné sont utilisés par un algorithme qui calcule les temps de séjour du faisceau d’ions en face de chaque point de l’optique. La quantité de matière érodée et par conséquent les défauts résiduels peuvent également être simulés.

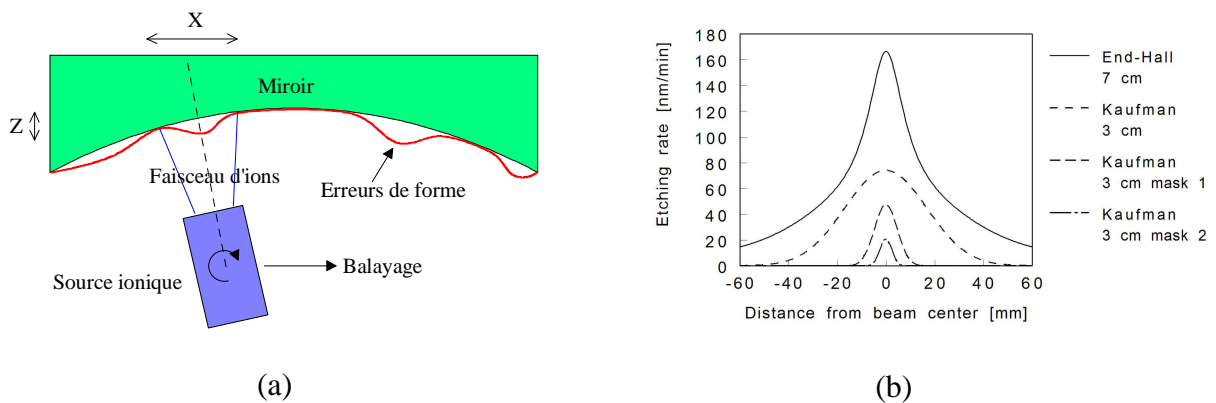


Figure 2.13. (a) Illustration de la séquence sous vide correction de forme par faisceau d’ions. Les dimensions latérales des erreurs de forme (en rouge) sont de l’ordre du cm (X) et leur amplitude dans la gamme comprise entre quelques nm à quelques μm (Z). (b) Profils d’érosion mesurés sur du carbure de silicium (CVD) et obtenus à l’aide de 2 types de sources ioniques (Kaufman et End-Hall) et de différents masques.

Un des avantages de l’usinage ionique par rapport aux méthodes mécaniques est l’absence de contact entre l’outil et la surface optique. La pression quasi nulle exercée par le faisceau d’ions peut permettre de corriger des optiques très minces sans les déformer (si les contraintes thermiques sont limitées). Un autre avantage provient de la maîtrise du caractère déterministe du processus d’érosion contrairement à d’autres méthodes mécaniques qui sont itératives (avec un nombre élevé de séquences de mesures et polissages), ce qui peut permettre de réduire sensiblement le temps de polissage. Parmi les inconvénients, citons le fait que le polissage ionique doit être réalisé sous vide, l’augmentation de température du substrat qui

peut engendrer des déformations plastiques pour certains matériaux sensibles [2.12] (certains verres, nickel, ...) et l'augmentation de la rugosité de certains matériaux sous bombardement ionique

[2.13]. C'est ce dernier aspect qui fera bien sûr l'objet de toute notre attention dans ce travail.

Deux exemples de réalisations avec l'installation d'usinage ionique du CSL se trouvent aux 2 figures ci-dessous. Le premier exemple (Figure 2.14) correspond à la correction de forme réalisée sur un miroir en carbure de silicium CVD [2.14]. La correction a été réalisée en 2 passes : la première utilisant le faisceau large de la source Kaufman, la deuxième utilisant un faisceau plus fin obtenu à l'aide d'un masque (correspondant respectivement aux profils d'érosion «3 cm » et « 3 cm mask 1 » de la Figure 2.13. Les images de la Figure 2.12 correspondent d'ailleurs au calcul de la première passe. Le deuxième exemple (Figure 2.15) correspond à la correction du front d'onde diffracté par un réseau en volume. Les erreurs de l'ensemble du réseau (constitué de 2 plaques de silice fondue, de gélatine et de colle) sont corrigées sur une face.

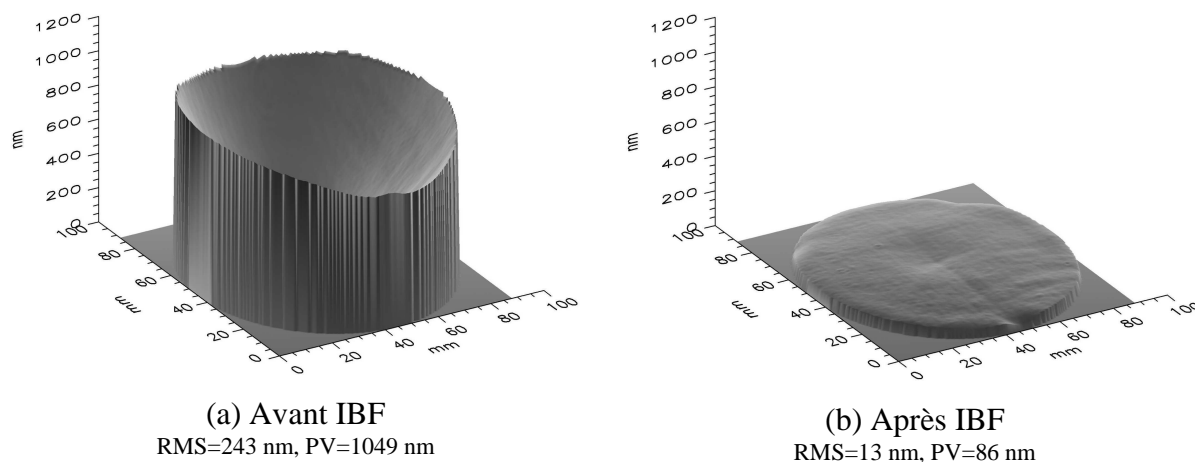


Figure 2.14. Exemple de correction par faisceau d'ions des erreurs de forme d'un miroir en carbure de silicium (CVD).

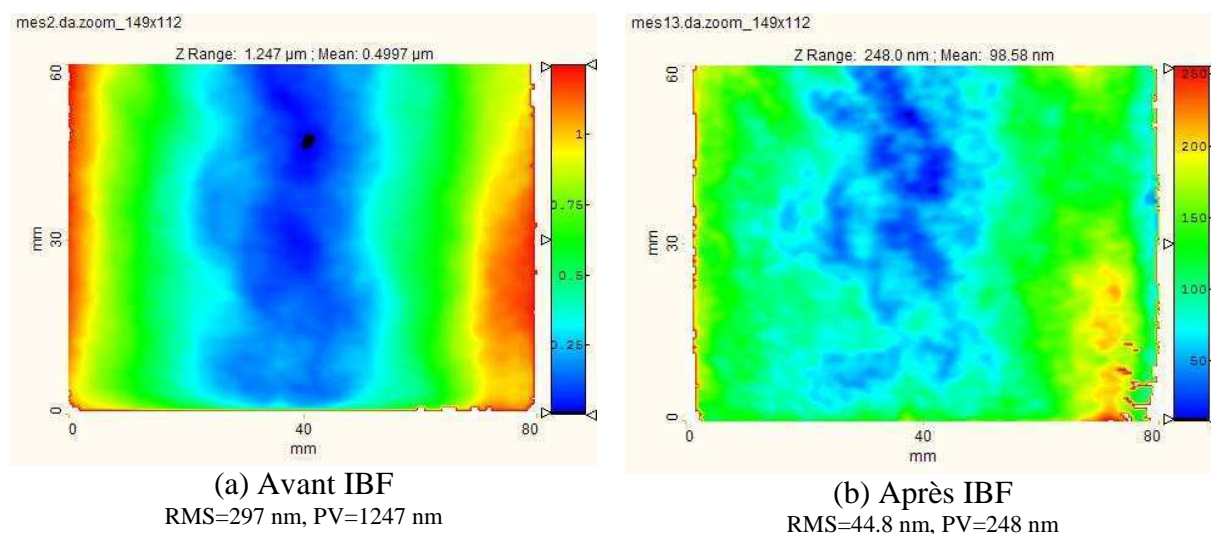


Figure 2.15. Exemple de correction par faisceau d'ions du front d'onde diffracté par un réseau en volume.

2.4.3 Gravure par faisceau focalisé

La technique de faisceaux d'ions focalisés⁵ utilise une source d'ions ou d'électrons pour la gravure ou le dépôt métallique. Des déflecteurs et lentilles électrostatiques permettent de diriger le faisceau de manière à effectuer une écriture séquentielle. L'émission ionique se fait par un dispositif appelé LMIS (Liquid Metal Ion Source). Les ions extraits de la source sont accélérés à une énergie comprise entre 1 et 50 keV et sont ensuite focalisés par des lentilles électrostatiques. Un équipement moderne, du début du XXI^e siècle, produit facilement sur un échantillon des dizaines de nano-ampères (typiquement 50nA) dans une sonde de quelques nanomètres (typiquement 7nm).

En raison de l'effet de pulvérisation, cette technique est utilisée comme un outil de micro-fabrication, pour modifier ou pour usiner la matière à l'échelle micrométrique ou nanométrique. Ces procédés permettent d'atteindre des finesses de gravure de l'ordre de 10 nm (voir Figure 2.16a). Les faisceaux d'ions focalisés sont souvent utilisés, dans l'industrie des semi-conducteurs pour réparer ou modifier un dispositif Semi-conducteur. Par exemple, dans un circuit intégré, un faisceau de gallium peut être utilisé pour couper des connexions électriques non désirées ou pour déposer un matériau conducteur pour faire une connexion.

Une autre application importante est la préparation d'échantillons pour la microscopie électronique en transmission (MET ou TEM en anglais). Le TEM nécessite des échantillons très minces, typiquement de 100 nanomètres (voir Figure 2.16b). D'autres techniques peuvent être utilisées, mais les faisceaux d'ions focalisés conviennent tout à fait pour repérer et usiner ensuite l'échantillon avec une précision nanométrique.

Dans les instruments dédiés à la microfabrication, il existe toujours une possibilité de visualiser l'échantillon usiné par microscopie à balayage, avec une détection d'électrons secondaires, comme dans la microscopie électronique à balayage. Ce peut être tout simplement la sonde ionique qui est utilisée pour générer les électrons secondaires, ou bien, la même chambre sous vide peut être dotée d'une colonne électronique ou plus généralement, la colonne FIB est montée en accessoire sur un microscope à balayage. On parle alors de *Dual Beam*.

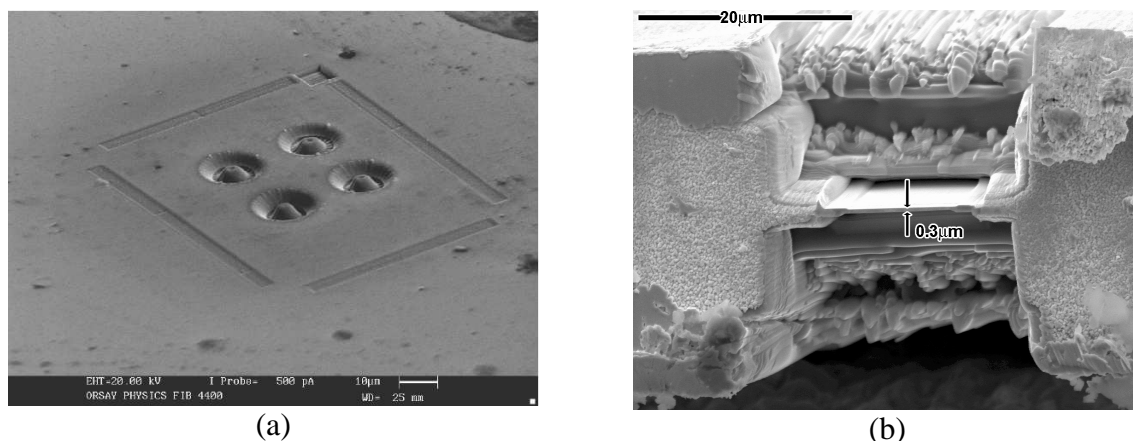


Figure 2.16. Image au SEM d'application réalisée par faisceau d'ions focalisé: (a) gravure de 4 micro-lentilles (7 µm) et (b) échantillon mince destinée à l'analyse par microscopie électronique en transmission

2.4.4 L'analyse ionique par émission secondaire

L'analyse ionique par émission secondaire (SIMS⁶) est basée sur le bombardement d'une cible par des ions lourds (éventuellement par des particules neutres monoatomiques) de moyenne et basse énergie (1 à 50 keV). Lors de la pulvérisation ionique, une petite partie des

⁵ FIB pour *Focalized Ion Beam*

⁶ *Secondary Ion Mass Spectroscopy*

particules enlevées de la surface sont ionisés soit positivement, soit négativement (phénomène d'ions secondaires). Ce sont ces particules chargées (ionisées au cours du processus de pulvérisation ou parfois obtenues par post-ionisation des particules neutres pulvérisées) qui sont filtrées en masse (éventuellement en énergie) pour accéder à la composition de l'échantillon-cible. De plus, en contrôlant précisément la vitesse de pulvérisation, on réalise une analyse en fonction de la profondeur dans le matériau.

Les performances générales propres de l'analyse ionique par émission secondaire des matériaux solides sont notamment [2.15]: une très grande sensibilité pour la quasi-totalité des éléments de la classification périodique, l'accès à l'analyse isotopique élémentaire, la détermination (en régime dynamique) de profils de concentration à partir de la surface sur des profondeurs très réduites (analyse de couches minces ou de profils de diffusion), la possibilité (en régime statique) d'accéder à la composition des premières couches atomiques ou moléculaires, la localisation spatiale avec une bonne résolution (latérale et en profondeur) des éléments, ...

L'analyse peut se faire en régime dynamique ou statique.

En régime dynamique (DSIMS), l'analyse sous faisceau primaire continu concerne une surface de l'échantillon constamment renouvelée au cours de l'acquisition. En effet un flux de 10^{15} ions par cm^2 et par seconde ($\sim 1 \mu\text{A}$ par mm^2) suffit pour pulvériser plus d'une couche atomique de l'échantillon par seconde, alors que le temps d'acquisition nécessaire pour une bonne précision de mesure des spectromètres de masse est largement supérieur à la seconde.

En régime statique (SSIMS), l'analyse consiste à diminuer de plusieurs ordres de grandeur le flux d'ions primaires pour que l'acquisition des ions secondaires ne représente qu'une fraction de couche atomique pulvérisée depuis la surface de l'échantillon (dose $\leq 10^{12}$ ions/ cm^2). Ce but est atteint, soit en diminuant le courant instantané d'ions provenant de la source primaire (quelques pA pour une surface de $100 \times 100 \mu\text{m}^2$), soit en « hachant » le flux primaire sous forme de pulses (trains d'impulsions) de très courte durée.

Le bombardement par le faisceau primaire se fait en balayant sur une surface donnée de l'échantillon (quelque 10^4 à $10^5 \mu\text{m}^2$) une sonde focalisée qui correspond à un courant ionique instantané de quelques pA à quelques centaines de μA . Il est possible d'obtenir des images de répartition spatiale des espèces ioniques dans une aire imagée (inférieure à l'aire balayée). Il existe deux procédés pour délimiter les aires analysées ou imagées et obtenir les images : le mode microscope et le mode microsonde.

La première méthode, définie comme le mode microscope, consiste à focaliser « optiquement » le faisceau d'ions secondaires pour obtenir une image ou plusieurs images successives de la surface dans certains plans sur le trajet de ce faisceau et d'interposer au niveau de l'un de ces plans un « diaphragme de champ » qui permet la délimitation de l'aire analysée. L'analyse ou la production de l'image finale concerne alors l'ensemble de l'aire délimitée par le diaphragme, et la résolution latérale de l'analyse ou de l'image dépend des aberrations « optiques » du système.

La seconde méthode, définie comme le mode microsonde, consiste à effectuer la détection des ions secondaires en synchronisme avec le balayage primaire (après correction du *temps de vol* de ces ions dans l'analyseur). Le signal détecté à un instant donné correspond donc à une position donnée du faisceau primaire focalisé (la sonde) sur la surface de l'échantillon.

2.5 Technologies des sources ioniques

Nous décrivons brièvement dans cette partie les principaux types de sources ioniques utilisés dans le cadre de l'usinage ionique. Nous ne parlons donc pas ici des systèmes de pulvérisation magnétron et autres qui sortent du contexte de ce travail. Notons qu'une différence majeure

des sources ioniques avec les autres systèmes de pulvérisation ionique est que leur fonctionnement est déterminé par le flux de gaz rentrant dans la source et non pas par la pression de l'enceinte à vide (contrairement aux systèmes cathodiques). Une source ionique fonctionne donc dans l'espace (d'où leur utilisation pour la propulsion ionique), pas un système cathodique !

2.5.1 Les sources de types Kaufman

2.5.1.1 Le principe de fonctionnement

Le schéma de principe d'une source ionique basique de type « Kaufman » est illustré à la Figure 2.17. Des électrons générés par la cathode (généralement un filament) sont attirés vers l'anode et ionise le gaz présent dans l'enceinte. Le plasma est confiné au moyen d'aimants permanents (qui entourent en général l'anode) afin d'augmenter le taux de collision des électrons. A la sortie de la source se trouve un système d'optique ionique constitué généralement de 2 grilles : la grille écran et la grille accélératrice. Il sert à extraire le faisceau d'ions. Les ions sont accélérés à travers le système de grilles depuis le potentiel positif de la chambre à décharge jusqu'au substrat proche du potentiel de la terre.

D'autre part, un filament est souvent placé à la sortie des grilles de manière à neutraliser le faisceau et à minimiser sa divergence. Il n'y a pas de recombinaison ions-électrons mais c'est la charge totale qui s'annule globalement. La grille accélératrice est placée à un potentiel légèrement négatif par rapport à la grille écran pour éviter que les électrons produits par le neutraliseur ne passent à travers le système de grille et ne faussent la mesure du courant ionique.

Des sources commerciales de ce type avec des grilles circulaires de diamètres allant de 1 à ~40 cm ont été réalisées.

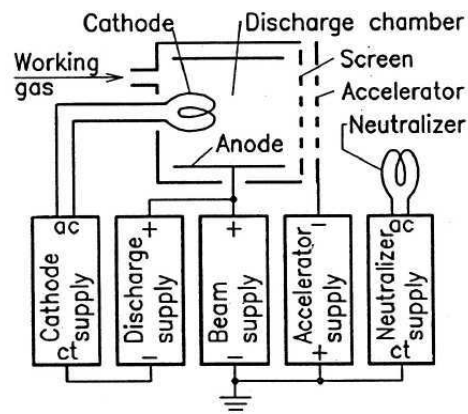


Figure 2.17. Schéma de principe d'une source ionique de type « Kaufman » [2.16].

2.5.1.2 Les cathodes

Les cathodes les plus simples sont constituées par un filament (généralement fait de W). S'ils sont peu chers et facile à remplacer, les filaments ont néanmoins principalement 2 désavantages : leur faible durée de vie (~ quelques heures à quelques dizaines d'heures) limite leur utilisation en continu et leur pulvérisation par le faisceau d'ions lorsqu'ils sont utilisés comme neutraliseur (ce qui peut générer une contamination).

C'est pourquoi certaines sources ioniques « Kaufman » utilisent une cathode creuse⁷ au lieu d'un filament pour produire les électrons à la cathode (ceci permet d'augmenter la durée de

⁷ Hollow Cathode en anglais

fonctionnement entre 2 maintenance à plusieurs centaines d'heures) et/ou au neutraliseur (pour éviter les contaminations). C'est le cas de la source ionique utilisée dans ce travail (ION TECH 3CM HC). La cathode creuse est constituée d'un tube dans lequel un gaz (Argon ou autre) circule, entouré d'un élément chauffant et d'un matériau thermo-émissif. Un potentiel est appliqué sur une électrode percée d'un mince trou à la sortie du tube et par lequel sera extrait le faisceau d'électrons. Lorsque le courant de chauffage est assez important pour initier une décharge, le plasma est ensuite entretenu par une faible tension (~20 V).

Un autre type de cathode similaire à la cathode creuse est le neutraliseur à pont plasma⁸ qui utilise un filament chaud contenu dans un petite chambre à décharge formé par un tube cylindrique alimentée en gaz.

2.5.1.3 Les optiques ioniques à grilles

L'évolution du potentiel à travers un système d'accélération à 2 grilles est illustrée à la Figure 2.18. Les ions, initialement au potentiel du plasma (~potentiel de l'anode), sont accélérés au travers de la différence de potentiel totale V_t entre les 2 grilles. Ils sont ensuite décélérer au potentiel de la cible (~masse de la facilité). Le potentiel total V_t est égale à la somme du potentiel net du faisceau V_b et du potentiel V_a appliqué sur la grille accélératrice: $V_t = V_b + V_a$.

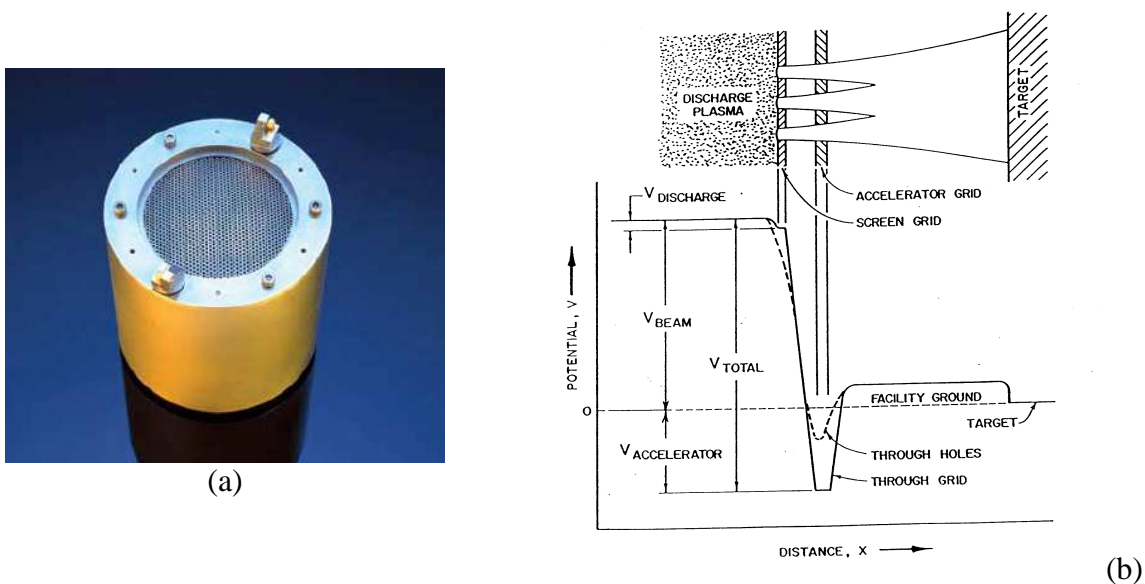


Figure 2.18. (a) Source munie d'optiques ioniques à grilles d'un diamètre de 8 cm (b) Variation du potentiel au travers d'un système optique ionique à 2 grilles [2.17].

La base théorique la plus utilisée [2.19] pour évaluer la capacité en courant d'un tel système est la loi de Child, résolvant l'équation de Poisson pour 2 plaques parallèles percées de deux ouvertures (unité SI) :

$$j = \frac{4\epsilon_0}{9} \sqrt{\frac{2e}{m}} \frac{V^{3/2}}{l^2} \quad (2.27)$$

⁸ Plasma Bridge Neutraliser en anglais

où j est la densité de courant maximum, ϵ_0 la permittivité du vide, V est la différence de potentiel totale entre les deux plaques, l est la distance entre les plaques et e/m est le rapport entre la charge et la masse des particules accélérées.

Pour un faisceau large d'ions accéléré par un système à 2 grilles, j est approximé par la loi de Child en remplaçant V par V_t , l par l_e la distance diagonale entre les grilles (voir Figure 2.18) et la constante $(4\epsilon_0/9)$ par une constante K dépendant de la configuration des électrodes. On remarque que la densité de courant est indépendante de la surface de l'ouverture. Le courant total du faisceau est dès lors maximisé en utilisant des grilles placées proches l'une de l'autre et comportant un grand nombre de petits trous. Le courant de faisceau I_b maximum est alors obtenu en multipliant la densité de courant j par la surface d'extraction totale S_e :

$$I_b \cong K \sqrt{\frac{2e}{m}} \frac{V_t^{3/2}}{l_e^2} \cdot S_e \quad (2.28)$$

En pratique, on limite toutefois la taille des trous à 2 mm ou plus (en-dessous, le courant produit est inférieure à loi de Child) et la distance entre les grilles à 1 mm. Concernant la distance entre les grilles, d'une part un champ électrique d'environ 2kV/mm est le maximum acceptable pour une utilisation prolongée. D'autre part, comme la distance importante pour la capacité d'accélération du faisceau est la distance diagonale l_e et non l , il n'y a pas beaucoup d'intérêt à réduire la distance entre grilles l à moins de la moitié du diamètre du trou d_s .

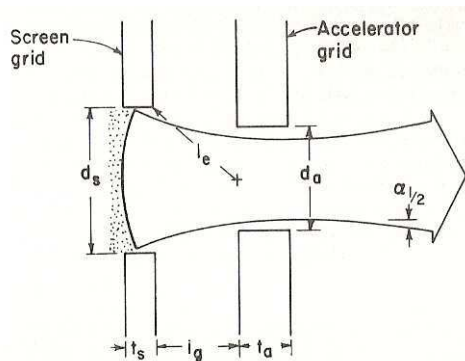


Figure 2.19. Dimensionnement d'un système à 2 grilles [2.19].

Pour produire un faisceau collimaté, on utilise un jeu de grilles collimatées dont les trous sont parfaitement alignés. Il existe aussi des grilles convergentes ou divergentes : dans ce cas, les trous de la grille accélératrice sont désalignés par rapport à ceux de la grille écran, pour défléchir les ions vers l'axe de la source ou vers l'extérieur.

Aussi, la relation (2.28) montre que le courant du faisceau diminuera fortement à faible potentiel V_t . La capacité d'extraction du courant est liée à V_t mais l'énergie du faisceau est reliée au potentiel du faisceau V_b . On peut donc compenser la diminution du courant maximum à faible énergie en augmentant la tension négative de la grille accélératrice (V_a), mais au détriment d'une plus grande divergence du faisceau. Le dimensionnement d'un système à 2 grilles est donc un compromis entre densité de courant élevée et faible divergence du faisceau.

Les systèmes à 3 grilles (où une grille décélératrice est rajoutée en aval de la grille accélératrice) améliorent la situation à faible énergie en permettant une plus faible divergence du faisceau (pour V_b/V_t petit). Ils génèrent également une contamination moindre par les particules pulvérisées de la grille accélératrice par rapport à un système à 2 grilles. En résumé,

les systèmes à 2 grilles conviennent très bien aux moyennes et hautes énergies, alors que les systèmes à 3 grilles sont mieux adaptés pour travailler à plus faibles énergies (<500 eV), mais sans pouvoir cependant rivaliser en courant avec les sources sans grilles de type end-Hall comme nous le verrons plus loin.

Les grilles sont en général planes (en graphite pyrolytique ou en molybdène) mais elles peuvent également être concaves (faisceau focalisé) ou convexes (faisceau divergent) et sont alors réalisées en titane.

2.5.2 Les sources RF

Les sources RF sont des sources plasma qui utilisent un générateur RF (13.56 MHz) pour ioniser le gaz plutôt qu'une cathode en courant continu (type filament ou cathode creuse). Tout comme les sources de type Kaufman, elles sont pourvues d'un système d'optique ionique à grilles pour extraire le plasma. Leurs principaux avantages sont leur compatibilité avec les gaz réactifs (les cathodes se détériorent au contact des gaz réactifs), leur excellent comportement sur les matériaux diélectriques (faisceau électriquement neutre) et leur faible maintenance (pas de cathode à remplacer). Ils peuvent de plus travailler à faible énergie sans réduction de densité de courant (contrairement aux sources Kaufman).

2.5.3 Les sources sans grilles

Les sources sans grilles ont été développées dans les années 60 en URSS pour la propulsion ionique. Dans les années 80 ces sources ont commencées à être utilisées pour des applications technologiques terrestres. Ces sources sont en général robuste (moins d'éléments fragiles comme les systèmes d'optique ionique à grilles) et permette un courant ionique élevé. Elles exigent par contre une puissance de pompage plus grande en raison du flux important de gaz nécessaire à leur fonctionnement et présentent une plus grande dispersion de l'énergie du faisceau.

En Russie, on utilise le terme « d'accélérateurs plasmas avec dérive proche d'électrons »⁹. Ils sont divisés principalement en deux catégories : les sources ioniques « avec zone étendue d'accélération » et « avec couche anodique » [2.21].

2.5.3.1 Les sources ioniques avec zone étendue d'accélération (*end-Hall*)

Ce type de source est connu en occident sous le terme anglais *end-Hall*. Le canal annulaire d'accélération est formé par deux cylindres coaxiaux fermés par une bride d'un côté (voir Figure 2.20). Le canal est réalisé dans un matériau diélectrique et l'anode est placée au fond du canal. Le gaz arrive dans le canal au travers de nombreux trous de petits diamètres qui traversent l'anode. Le canal est placé dans un champ magnétique produit par les bobines situées dans le cylindre extérieur (et éventuellement dans le cylindre intérieur). Une cathode à courant d'électrons élevé est placée à l'extérieur du canal d'accélération.

Lorsque la tension est appliquée à l'anode et le courant passe dans les bobines, un champ électrique dirigé selon l'axe du canal et un champ magnétique perpendiculaire sont créés. Les électrons sortant de la cathode se dirigent vers l'anode selon des trajectoires en forme de spirale, ionisant ainsi le gaz injecté dans le canal. Les ions sont accélérés par le champ électrique et sortent du canal selon un faisceau annulaire divergent. La charge des ions est compensée par le nuage d'électrons dérivant dans le canal et ceux sortant directement de la cathode : on obtient ainsi un faisceau plasma +/- neutre.

Ces sources sont capables de générer un courant ionique très important (jusqu'à plusieurs ampères) mais pour des énergies faibles à moyennes (200 à 300 eV maximum en général).

⁹ *Plasma Accelerator with Close Drift of Electrons*

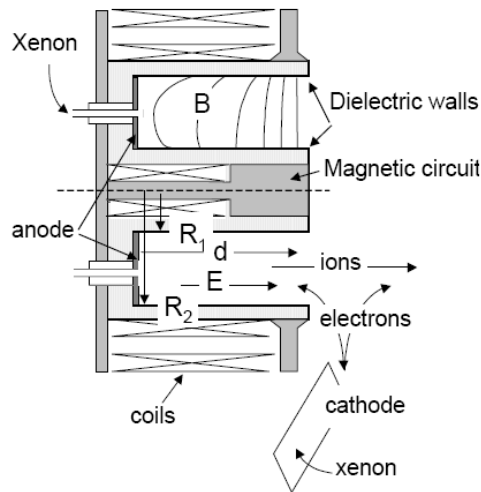


Figure 2.20. Schéma de principe d'une source ionique de type *end-Hall* [2.20].

2.5.3.2 Les sources ioniques avec couche anodique.

Les « sources ioniques avec couche anodique » ressemblent et fonctionnent de manière similaire aux sources « end-Hall » mais elles sont dépourvues de canal d'accélération diélectrique et parfois même de cathode. L'accélération des ions se produit dans une couche mince près de l'anode (d'où leur nom). Le champ électrique est alors simplement créé entre l'anode et les surfaces métalliques environnantes reliées à la masse. Le champ magnétique est créé par de simples aimants et non plus par des bobines. Ils peuvent fonctionner dans différents mode, notamment en mode 'vide' qui est caractérisé par l'absence de cathode. Dans cette configuration, ils peuvent fonctionner à des énergies plus élevées que les sources end-Hall mais le plasma n'est pas aussi bien neutralisé. En présence d'une cathode, leur fonctionnement est plus proche de celui des sources « end-Hall » (neutralité du faisceau, courant élevé à énergie faible, ...).

Un des désavantages de ce type de source est que certaines pièces de la source comme les aimants où l'anode sont plus exposés aux détériorations. Mais si les résultats sont satisfaisants pour l'application, c'est une forme très simple de source ionique (surtout modèle sans cathode) et donc peu onéreuse.

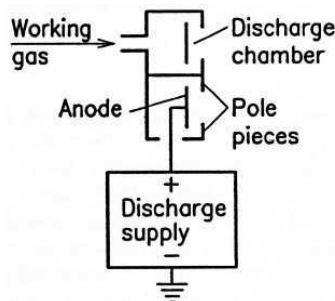


Figure 2.21. Schéma de principe d'une source à couche anodique [2.16].

2.5.4 Comparaison des différents types de sources ionique

Les principales caractéristiques des différents types de sources ioniques décrits plus haut sont reprises au Tableau 2.4. Les valeurs sont données à titre indicatif car ils dépendent bien sûr de la taille de la source (débit de gaz, courant, densité de courant) et des spécificités des modèles.

	Kaufman	RF	End-Hall
<u>Gaz</u>			
Inerte	Bon	Bon	Bon
O ₂	Moyen	Bon	Bon
réactifs	Faible	Bon	Moyen
Débit de gaz	faible (qqc sccm ¹⁰)	moyen (qqc sccm à dizaines de sccm)	Élevé (dizaines de sccm)
Energie du faisceau	Faible-élevé (50-2000 eV)	Faible-élevé (50-1500 eV)	Faible-moyen (50-300 eV)
Courant de faisceau maximum	Moyen (0.1-1 A)	Moyen (0.1 – 1 A)	Élevé (qqc A)
Densité de courant maximum	qqc mA/cm ²	qqc mA/cm ²	>20 mA/cm ²
Neutralité électrique du faisceau	Non (nécessite un neutraliseur)	Oui	Oui

Tableau 2.4. Comparaison des principales caractéristiques des différentes familles de sources ioniques.

2.6 Bibliographie

[2.1] P. -N. Favennec, *L'implantation ionique - pour la microélectronique et l'optique*, Edt MASSON, 1993

[2.2] Levy Paul W., *Shaping or figuring ceramic surfaces by ion-beam bombardement*, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York 11973

[2.3] P. Sigmund, *Theory of Sputtering. I. Sputtering Yield of Amorphous and Polycrystalline Targets*, Physical Review, Vol 184, Number 2, 1969

[2.4] V.S. Smentkowski, Trends in sputtering, Progress in Surfaces Science 64 (2000) 1-58

[2.5] Ho P.S., Lewis J.E., Wildman H.S., Howard J.K., *Auger Study of preferred sputtering on binary alloy surfaces*, Surface Science 57, 393-405, 1976.

[2.6] Glocker D.A., Shah S.I., *Handbook of thin film process technology*, Institute of physics publishing, Bristol and Philadelphia.

[2.7] H.R. Kaufman, *Fundamentals of Ion Source Operation*, Commonwealth Scientific Corp., Virginia, 1984.

[2.8] Ion source reference guide, document "Commonwealth Scientific Corporation"

¹⁰ Sccm (Standard Cubic Centimeter per Minute) signifie cm³/min dans les conditions standards de température (0°C) et pression (1 atm).

- [2.9] W. Eckstein, *Quantitative Predictions of Sputtering Phenomena*, Surface and Interface Analysis, Vol. 14, 799-808, 1989
- [2.10] K. Nordlund, Molecular dynamics simulation of ion ranges in the 1-100 keV energy range, *Mat. Sci.* 3, 448-, 1995
- [2.11] Wilson S.R., Reicher D.W., McNeil J.R., *Surface figuring using neutral ion beams*, Proc. SPIE 966, pp. 74-81, 1988.
- [2.12] P. Gailly, J.P. Collette, L. Renson, J.Ph. Tock, *Ion beam figuring of small BK7 and Zerodur optics : thermal effects*, Proc. SPIE 3739, pp. 124-131, 1999.
- [2.13] C.M. Egert, *Roughness evolution of Optical Materials induced by Ion Beam Milling*, SPIE Vol. 1752, 1992
- [2.14] P. Gailly, J.-P. Collette, K. Fleury Frenette, C. Jamar, *Ion Beam Figuring of CVD Silicon Carbide mirrors*, Proc. of the 5th international Conference on Space Optics (ICSO 2004) SP-554, pp. 691-697, 2004.
- [2.15] E. Darque-Ceretti, H.-N. Migeon, M. Aucouturier, *Émission ionique secondaire SIMS – Principes et appareillages*, Techniques de l'ingénieur, 1998.
- [2.16] Kaufman & Robinson, Inc. KRITM, Technical Note KRI-01 (2003), www.ionsources.com
- [2.17] Ion Tech, *3 cm Hollow cathode ion source*, user's manual
- [2.18] H.R. Kaufman, *Technology of Ion Beam Sources Used in Sputtering*, J. Vac. Sci. Technol., Vol. 15, pp. 272-276, Mar./Apr. 1978.
- [2.19] H.R. Kaufman, J. J. Cuomo, J. M. E. Harper, *Technology and applications of broad-beam ion sources used in Sputtering*, J. Vac. Sci. Technol., Vol. 21, pp. 725-736, Sep./Oct. 1982.
- [2.20] L. Garrigues*, A. Heron†, J.C. Adam†, and J.P. Boeuf, *Hybrid and particle-in-cell models of a stationary plasma Thruster*, Plasma Sources Sci. Technol. 9 (2000) 219-226
- [2.21] Technological ion and plasma sources, <http://home.earthlink.net/~chutko.ionsource.htm>

Chapitre 3

Rugosité et diffusion de la lumière

Table des matières

3. Rugosité et diffusion de la lumière.....	3-5
3.1. Introduction	3-5
3.2. La rugosité d'une surface	3-5
3.2.1. Paramètres de rugosité	3-5
3.2.1.1. Introduction	3-5
3.2.1.2. Notions de base	3-6
3.2.1.3. Paramètres d'amplitude.....	3-6
3.2.1.4. Paramètres spatiaux.....	3-8
3.2.1.5. Paramètres hybrides	3-9
3.2.2. Méthodes de mesures	3-13
3.2.2.1. Introduction	3-13
3.2.2.2. Mesures de profils/surfaces.....	3-13
3.2.2.3. Mesures de rugosité à partir de mesures de diffusion	3-16
3.2.2.4. Comparaison des différentes techniques	3-16
3.3. La diffusion de la lumière	3-17
3.3.1. Introduction	3-17
3.3.2. BRDF	3-17
3.3.3. TIS	3-18
3.4. Relation rugosité – diffusion	3-20
3.4.1. Surfaces optiques.....	3-20
3.4.1.1. Analogie avec les réseaux	3-20
3.4.1.2. Relation BRDF-PSD	3-20
3.4.2. Surfaces rugueuses	3-20
3.4.2.1. Introduction	3-20
3.4.2.2. Modèle de Beckmann.....	3-21
3.5. Bibliographie	3-21
Annexe A. Nouvelle norme ISO 25178 pour les paramètres surfaciques	3-23

3.1. Introduction

La **rugosité** d'une surface caractérise les structures de la surface ayant des dimensions latérales inférieures au micron et jusqu'à des fractions de millimètres. C'est la rugosité (avec les inclusions) qui est responsable de la diffusion de la lumière sur une surface. Les structures séparées par de plus grandes distances, depuis des centaines de microns jusqu'à plusieurs millimètres, sont habituellement appelées « **ondulation** » et contribuent à la diffusion avec des angles faibles autour de la direction spéculaire. Les structures séparées par de plus grandes distances encore, au-delà que quelques millimètres, sont appelées erreurs de **forme** et participent à la déviation des rayons lumineux par rapport à la forme géométrique idéale de la surface optique.

La **texture** est un terme plus général que la rugosité, utilisé pour les surfaces métalliques usinées en général et qui regroupe la rugosité, l'ondulation et l'orientation des structures. Certaines surfaces usinées comme les réseaux de diffraction, les surfaces réalisées par tournage diamant, présentent en effet une forte directionnalité des structures. Néanmoins, la majorité des surfaces sont isotropes, c'est à dire que les structures sont identiques dans toutes les directions.

3.2. La rugosité d'une surface

3.2.1. Paramètres de rugosité

3.2.1.1. Introduction

Les paramètres de rugosité peuvent être calculés soit pour des profils à 2 dimensions (2D) ou des surfaces à 3 dimensions (3D). En 2D, on considère un profil dont la hauteur de chaque point Z_i a été mesurée sur une ligne divisée en N points. En 3D, on considère une surface dont la hauteur de chaque point Z_{ij} a été mesurée sur une zone divisée selon une matrice de M x N points.

Nous expliquons ici brièvement une série de paramètres importants pour caractériser la rugosité d'une surface [3.1] [3.2]. Ces paramètres peuvent être regroupés en 3 catégories suivant leur fonctionnalité : les paramètres d'amplitude, spatiaux et hybrides. Nous introduisons tout d'abord quelques notions importantes utilisées dans la définition de ces paramètres. Nous définissons dans ce chapitre l'ensemble des paramètres pour des profils à 2 dimensions (pour ne pas alourdir la présentation des équations), même si ce sont des mesures et paramètres 3D qui seront utilisés dans la partie expérimentale de ce travail.

Il est à noter que la nouvelle norme **ISO 25178**¹ définit l'analyse des états de surface surfaciques (appelés aussi états de surface 3D). Elle écrit les paramètres avec un S lorsqu'ils sont calculés sur une surface (3D), à la place d'un R comme pour les paramètres traditionnels 2D lorsqu'ils sont calculés sur un profil. Une comparaison des paramètres 3D utilisés dans cette nouvelle norme avec les paramètres 2D est fournie en annexe A.

¹ La nouvelle norme ISO 25178 désigne un ensemble de normes internationales définissant l'analyse des états de surface surfaciques. Elle est considérée comme devant redéfinir à la base les états de surface en partant du principe que la nature est intrinsèquement 3D. Il est prévu que les futurs travaux déclineront ces nouveaux concepts pour l'analyse profilométrique des états de surface, entraînant une révision complète de toutes les normes actuelles d'états de surface.

3.2.1.2. Notions de base

La ligne (surface) moyenne de référence

C'est la ligne (surface) de référence par rapport à laquelle les hauteurs mesurées sont données. Il s'agit de la ligne droite (plan) moyen(ne) passant à travers les pics et les vallées de manière à ce que les surfaces (volumes) au-dessus et en-dessous de ces lignes soient égales. Mathématiquement, la ligne moyenne de référence doit remplir la condition :

$$\sum_{i=1}^n z_i = 0 \quad (3.1)$$

La hauteur de profil Z(x) ou Z(x,y)

C'est la différence entre les hauteurs mesurées du profil (de la surface) et la ligne (surface) moyenne de référence.

La longueur d'évaluation est la longueur sur laquelle les paramètres de rugosité sont évalués.

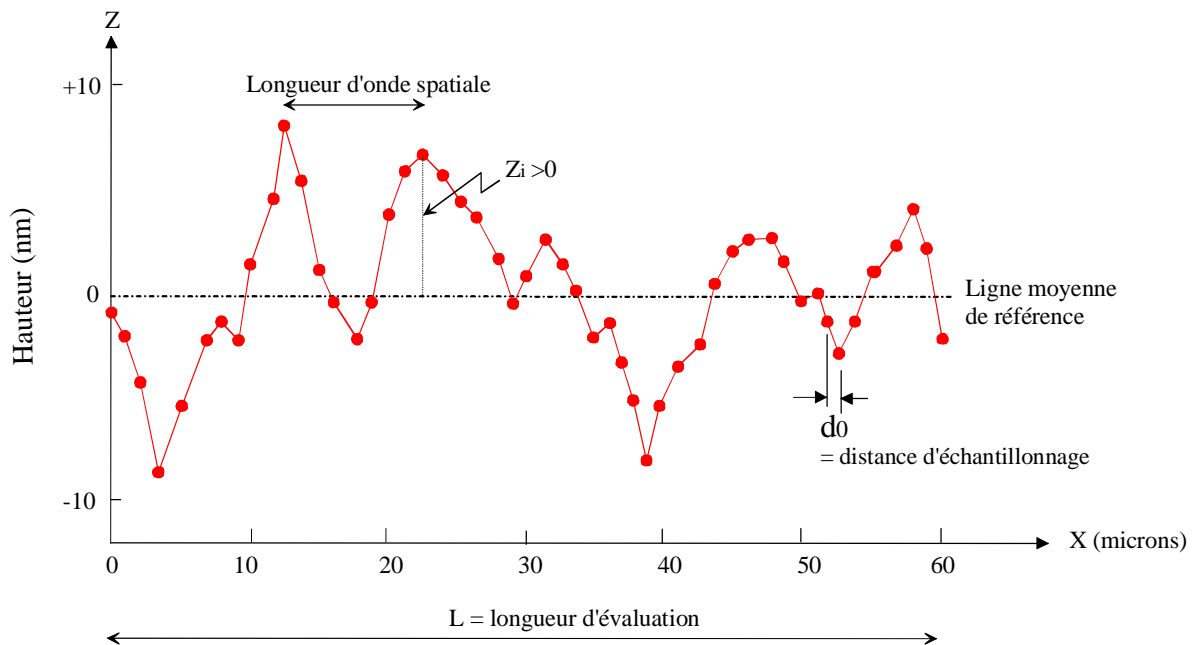


Figure 3.1. Représentation schématique d'un profil mesuré et des notions de bases pour le calcul des statistiques de rugosité.

3.2.1.3. Paramètres d'amplitude

La hauteur moyenne arithmétique (R_a)

La hauteur moyenne arithmétique est la moyenne des déviations (en valeur absolue) des irrégularités par rapport à la ligne moyenne sur la longueur d'échantillonnage. Sous sa forme digitalisée, elle s'écrit :

$$R_a = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n |z_i| \quad (3.2)$$

Le paramètre R_a est très utilisé pour décrire la rugosité des surfaces usinées.

La rugosité RMS (R_q)

R_q (souvent appelée rms pour *Root-Mean-Square* en anglais) est définie comme la racine carrée de la moyenne des carrés des hauteurs de profil. Il représente l'écart-type de la fonction de distribution des hauteurs lorsque celle-ci est une parfaite gaussienne. Ce paramètre est plus sensible que R_a aux écarts importants par rapport à la ligne moyenne. R_q est souvent utilisé pour décrire la rugosité des surfaces optiques. Sous sa forme digitalisée, il s'écrit :

$$R_q = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n z_i^2} \quad (3.3)$$

La hauteur 10 points (R_z)

La hauteur 10 points est définie dans le système international ISO comme la différence de hauteur entre la moyenne des 5 pics les plus élevés et la moyenne des 5 vallées les plus profondes ($n=5$).

$$R_z = \frac{1}{n} \left(\sum_{i=1}^n p_i - \sum_{i=1}^n v_i \right) \quad (3.4)$$

La hauteur maximale (R_t)

C'est la différence de hauteur qui est la différence entre le pic le plus haut et la vallée la plus basse le long de la longueur d'évaluation. C'est pourquoi elle est aussi appelée communément *peak-to-valley* en anglais. Mathématiquement, c'est la somme entre la hauteur de pic (R_p) et la profondeur de vallée (R_v). C'est évidemment une valeur très sensible aux valeurs extrêmes et donc pas très répétable.

$$R_t = R_p + R_v \quad (3.5)$$

La fonction de distribution des hauteurs

Cette fonction représente l'histogramme de distribution des hauteurs. Pour calculer cet histogramme, l'amplitude des hauteurs du profil est divisée en petits intervalles identiques Δz . Pour un profil de hauteurs constitué de N points de mesure, N_k points auront des hauteurs comprises entre z et $z+\Delta z$ et N_k/N représente la densité de points dont les hauteurs sont comprises dans cet intervalle. L'histogramme est ensuite obtenu en portant en graphique la densité de points du profil pour chaque intervalle de hauteurs ainsi définis, à la fois pour les hauteurs positives et négatives (au-dessus et en-dessous de la ligne de référence).

La fonction de distribution des hauteurs z est une gaussienne pour une surface aléatoire (ainsi qu'en général pour les surfaces réelles) dont l'équation s'écrit :

$$F(z) = A e^{\frac{-z^2}{2b^2}} \quad (3.6)$$

Dans ce cas, l'écart-type b de la fonction de distribution gaussienne correspond à la valeur R_q définie plus haut et son amplitude A est obtenue par :

$$A = \frac{\Delta z}{R_q \sqrt{2\pi}} \quad (3.7)$$

Le coefficient de symétrie R_{sk}

Le coefficient de symétrie R_{sk} (*skewness* en anglais) est défini comme le troisième moment de la fonction de distribution de hauteurs. Sous sa forme digitalisée, il s'écrit :

$$R_{sk} = \frac{1}{R_q^3} \cdot \frac{1}{N} \cdot \sum_{i=1}^N z_i^3 \quad (3.8)$$

Il est utilisé pour mesurer la symétrie d'un profil autour de la ligne moyenne de référence. Il est particulièrement sensible aux profondes vallées ou aux pics élevés. Une valeur de R_{sk} positive indique la dominance de pics élevés tandis qu'une valeur négative indique la dominance de profondes vallées. Le coefficient de symétrie est en général compris entre -3 (comme certaines surfaces polies *ground* ou *lapped*) et +3 (comme certaines surface obtenues par tournage diamant), bien qu'il n'y ait pas de limites absolues.

Le coefficient d'aplatissement R_{ku}

Le coefficient d'aplatissement R_{ku} (*kurtosis* en anglais) est défini come le quatrième moment de la fonction de distribution de hauteurs. Sous sa forme digitalisée, il s'écrit :

$$R_{ku} = \frac{1}{R_q^4} \cdot \frac{1}{N} \cdot \sum_{i=1}^N z_i^4 \quad (3.9)$$

Il est utilisé pour mesurer la forme de la fonction de distribution de hauteurs. La valeur de R_{ku} est en général comprise entre 0 et 8. Une fonction de distribution de hauteurs qui est parfaitement gaussienne donne $R_{ku}=3$. Une valeur de $R_{ku} < 3$ indique une présence faible de points extrêmes tandis qu'une valeur >3 indique la présence d'un nombre relativement important de profondes vallées ou de pics élevés.

R_{sk} et R_{ku} sont des paramètres utiles pour les surfaces usinées mais sont plus rarement utilisés pour les surfaces optiques.

3.2.1.4. Paramètres spatiaux

Le nombre de pics (P_c)

Il est défini comme le nombre de pics locaux par unité de longueur (/cm). Un pic est défini pour P_c si une irrégularité du profil intercepte à la fois une ligne limite haute et basse. Ces lignes limites sont parallèles et équidistantes à la ligne moyenne de référence et sont fixées par l'opérateur.

Distance moyenne de pics locaux adjacents (S)

S est la distance moyenne entre deux pics locaux adjacents, mesurée sur la longueur d'évaluation. Un pic local pour S est le point le plus haut du profil entre deux minimums adjacents à condition que la distance verticale entre le pic et le précédent minimum soit supérieure ou égale à $x\%$ de R_t . (x valant 1% selon [3.2], 10 % selon [3.4]. Ce paramètre peut être calculé par :

$$S = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N S_i \quad (3.10)$$

où N est le nombre pics locaux adjacents

Distance moyenne à la ligne moyenne (S_m)

S est la distance moyenne entre les pics qui interceptent la ligne moyenne mesurée sur la longueur d'évaluation. Ce paramètre peut être calculé par :

$$S = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N S_i \quad (3.11)$$

où N est le nombre pics à la ligne moyenne

3.2.1.5. Paramètres hybrides

La pente moyenne arithmétique (Δ_a) et RMS (Δ_q)

La pente du profil en un point est l'angle que fait la tangente en ce point avec une ligne parallèle à la ligne moyenne de référence. La pente moyenne arithmétique (Δ_a) ou RMS (Δ_q) est la moyenne arithmétique ou RMS des pentes mesurées pour l'ensemble des points du profil sur la longueur d'échantillonnage.

$$\Delta_a = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^{N-1} \left| \frac{z_{i+1} - z_i}{x_{i+1} - x_i} \right| \quad (3.12)$$

$$\Delta_q = \sqrt{\frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^{N-1} \left(\frac{z_{i+1} - z_i}{x_{i+1} - x_i} \right)^2} \quad (3.13)$$

Il est à noter que certains logiciels ou instruments utilisent d'autres formules pour le calcul de la pente moyenne (par exemple le profilomètre Wyko que nous utilisons dans les chapitres suivants calcule chaque pente individuelle sur 6 points et non sur 2)

La longueur d'onde moyenne arithmétique (λ_a) et RMS (λ_q)

Les longueurs d'onde moyenne arithmétique (λ_a) et RMS (λ_q) sont définies comme :

$$\lambda_a = \frac{2\pi R_a}{\Delta_a} \quad (3.14)$$

$$\lambda_q = \frac{2\pi R_q}{\Delta_q} \quad (3.15)$$

Ils mesurent la distance entre les pics et vallées locales, en tenant compte des amplitudes relatives et des fréquences spatiales individuelles.

La fonction de densité spectrale de puissance

La fonction de densité spectrale de puissance (PSD pour *Power Spectral Density* en anglais) est le spectre en fréquence de la rugosité de la surface en unité de longueur inverse. C'est une fonction très importante pour l'analyse de la rugosité des surfaces. Elle est calculée par analyse de Fourier de la surface $z(x,y)$. Cela correspond à décomposer le profil de la surface z en une somme de sinusoides de différentes fréquences f .

Soit un profil de hauteur mesuré en N points équidistants sur une longueur L. La distance d'échantillonnage est la distance entre deux points de mesures adjacents et est égale à d_0 . La plus grande sinusoides définie sur la longueur L définit la fréquence fondamentale ($f_{\min}=1/L$). La plus petite sinusoides correspond à celle définie sur 3 points de mesures adjacents. La période de cette sinusoides est donc 2x celle de la distance d'échantillonnage (d_0). Autrement dit, la fréquence spatiale la plus élevée (f_{\max}) est égale à la moitié du nombre de points de mesures divisé par L. Cette fréquence est connue sous le nom de fréquence de Nyquist.

En pratique, la PSD est calculée comme étant le carré de la transformée de Fourier du profil de la surface, ou encore la transformée de Fourier de la fonction d'auto-corrélation. La PSD à une dimension est définie mathématiquement comme suit sur une longueur L:

$$PSD(f_x) = \lim(L \rightarrow \infty) \frac{1}{L} \left| \int_{-L/2}^{L/2} z(x, y) e^{-j2\pi f_x x} dx \right|^2 \quad (3.16)$$

Sous sa forme digitale, elle s'exprime comme :

$$PSD(f) = \frac{d_0}{L} \left| \sum_{j=1}^N z_j e^{-i2\pi f(j-1)d_0} \right|^2 \quad (3.17)$$

et a une unité de longueur élevé à la 3° puissance (à la 4° puissance en 3D).

Fréquence		Période	
Minimum	1/L (=1/N*d ₀)	Maximum	L (=N*d ₀)
Maximum	N/2L (=1/(2*d ₀))	Minimum	2L/N (=2*d ₀)

Table 3.1. Bande de fréquence de la PSD pour un profil de longueur L mesurés en N points équidistants et séparés par une distance τ₀.

Il est de plus intéressant de noter que la rugosité RMS notée σ (≅R_q) et la pente RMS notée m (≅Δ_q) peuvent tous deux se calculer directement à partir de la PSD :

$$Rq \cong \sigma = \left(2 \int_{f_{\min}}^{f_{\max}} PSD(f_x) df_x \right)^{1/2} \quad (3.18)$$

$$\Delta_q \cong m = \left(2 \int_{f_{\min}}^{f_{\max}} (2\pi f_x)^2 PSD(f_x) df \right)^{1/2} \quad (3.19)$$

où f_{min} et f_{max} définissent la bande de fréquence spatiale sur laquelle ces paramètres sont définis.

Fonction d'auto-covariance (ACF)

Les fonctions de corrélation sont utilisées pour décrire la relation entre deux séries de données. La fonction d'auto-covariance (ACF pour *Autocovariance Function* en anglais) est obtenue en multipliant une fonction par une version translatée d'elle-même d'une distance de décalage τ (*lag length* en anglais) et en moyennant ensuite :

$$G(\tau) = \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{1}{L} \int_{-L/2}^{L/2} z(x) z(x + \tau) dx \quad (3.20)$$

Sous sa forme digitale, elle s'exprime comme :

$$G(\tau_k) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N-k} z_i z_{i+k} \quad k = 0, 1, 2, \dots, N-1 \quad (3.21)$$

où k est un entier relié à la distance de décalage numérique τ_k par la relation τ_k=k*d₀ (d₀ étant la distance d'échantillonnage) qui correspond à la distance entre deux points dont on évalue la corrélation. Cette fonction est très intéressante pour caractériser des motifs qui se répètent sur

une surface. Une valeur importante de la fonction ACF à une valeur τ_k donnée indique qu'une structure de la surface se répète pour cette longueur τ_k particulière.

La fonction d'auto-covariance a une unité de longueur élevée à la 2^o puissance et vaut R_q^2 pour un décalage nul.

Quant à la fonction d'auto-corrélation $C(\tau)$, elle est similaire à la fonction d'auto-covariance $G(\tau)$ et ces deux fonction sont reliées par la relation :

$$G(\tau) = C(\tau) - z^{-2} \quad (3.22)$$

Il est de plus intéressant de noter que la transformée de Fourier de la fonction d'auto-corrélation donne la fonction de densité spectrale de puissance (PSD). Deux fonctions qui forment une paire de transformées de Fourier sont simplement deux façons différentes de véhiculer la même information. La fonction d'auto-corrélation exprime les statistiques du profil en fonction de distances, la PSD en fonction des fréquences spatiales (unités inverse de distances).

La longueur de corrélation (l_c)

La longueur de corrélation l_c est définie comme la plus petite distance pour laquelle la fonction d'autocorrélation chute à une certaine valeur (1/e ou 10 % généralement). Elle peut être vue comme représentant la dimension latérale de la structure de la surface. C'est un paramètre similaire mais pas égal à la longueur d'onde moyenne (λ_q).

Dimension fractale (D_f)

La PSD d'une surface fractale peut être modélisée par la relation suivante :

$$PSD(f) = \frac{A}{f^B} \quad (3.23)$$

où A et B sont des constantes. Il est intéressant de noter que les surfaces fractales ont l'avantage indéniable d'avoir leur PSD caractérisée uniquement par 2 constantes. Ils peuvent être déterminés par une droite de régression linéaire sur un graphique log-log de la PSD :

$$\log(PSD(f)) = \log(A) - B \log(f) \quad (3.24)$$

La dimension fractale, D_f , est ensuite définie pour un profil (2D) ou une surface (3D) par :

$$D_f = 2 - \frac{B}{2} = 2 - \alpha \quad (2D) \quad (3.25)$$

$$D_f = 3 - \frac{B}{2} = 3 - \alpha \quad (3D)$$

Où α est l'exposant de rugosité de la théorie d'invariance d'échelle défini au chapitre suivant.

L'ensemble des statistiques de rugosité décrites ci-dessus sont reprises à la Table 3.2

Symbole	Dénomination	Approximation digitale	Unité
R_a	Hauteur moyenne arithmétique	$R_a = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n z_i $	nm
R_q (ou σ)	Rugosité RMS	$R_q = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n z_i^2}$	nm
R_z	Hauteur 10 points	$R_z = \frac{1}{n} \left(\sum_{i=1}^n p_i - \sum_{i=1}^n v_i \right)$, n=5	nm
R_p	Hauteur maximale des pics	$R_p = \max(z_i)$	nm
R_v	Profondeur maximale des vallées	$R_v = \min(z_i)$	nm
R_t	Hauteur maximale	$R_t = R_p + R_v$	nm
R_{sk}	Paramètre de symétrie (skewness)	$R_{sk} = \frac{1}{R_q^3} \cdot \frac{1}{N} \cdot \sum_{i=1}^N z_i^3$	-
R_{ku}	Paramètre d'aplatissement ('kurtosis')	$R_{ku} = \frac{1}{R_q^4} \cdot \frac{1}{N} \cdot \sum_{i=1}^N z_i^4$	-
P_c	Le nombre de pics		mm ⁻¹
F(z)	La fonction de distribution des hauteurs		-
S	Distance moyenne de pics locaux adjacents	$S = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N S_i$	μm
S_m	Distance moyenne à la ligne moyenne	$S = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N S_i$	μm
Δ_a	La pente moyenne arithmétique	$\Delta_a = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^{N-1} \left \frac{z_{i+1} - z_i}{x_{i+1} - x_i} \right $	radians
Δ_q	La pente moyenne RMS	$\Delta_q = \sqrt{\frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^{N-1} \left(\frac{z_{i+1} - z_i}{x_{i+1} - x_i} \right)^2}$	radians
λ_a	La longueur d'onde moyenne arithmétique	$\lambda_a = \frac{2\pi R_a}{\Delta_a}$	μm
λ_q	La longueur d'onde moyenne RMS	$\lambda_q = \frac{2\pi R_q}{\Delta_q}$	μm
ACF	Fonction d'auto-corrélation	$ACF(\tau_l) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N-l} z_i z_{i+1}$	nm ²
PSD	La fonction de densité spectrale de puissance	$PSD(f) = \frac{d_0}{L} \left \sum_{j=1}^N z_j e^{-i2\pi f(j-1)d_0} \right ^2$	nm ³ (2D) nm ⁴ (3D)
l_c	La longueur de corrélation (l_c)	τ tq $ACF(\tau)=ACF(0)/e$	μm
D_f	Dimension fractale	$PSD(f) = \frac{A}{f^B}$ $D_f = 2 - \frac{B}{2}$ (2D), $D_f = 3 - \frac{B}{2}$ (3D)	

Table 3.2. Résumé des principaux paramètres et fonctions utilisées pour caractériser la rugosité d'un profil (2D) ou d'une surface (3D).

3.2.2. Méthodes de mesures

3.2.2.1. Introduction

La rugosité peut être obtenue en mesurant directement le profil de la surface ou en réalisant des mesures de diffusion en utilisant une théorie reliant la diffusion à la rugosité (voir paragraphe 3.4). Le principe de fonctionnement de plusieurs de ces instruments (liste non exhaustive) est brièvement décrit ci-dessous.

3.2.2.2. Mesures de profils/surfaces

Profilomètre de contact

L'instrument le plus classique pour réaliser des mesures de rugosité est le profilomètre à contact pour réaliser des mesures 2D ou 3D. Une pointe en diamant permet de mesurer la surface à l'aide d'un dispositif de balayage latéral.

Profilomètre optique

Parmi différents types de profilomètre optique, ce sont les microscopes interférométriques qui sont surtout utilisés pour les mesures de rugosité.

Dans un microscope interférométrique, l'interféromètre Mirau (ou Michelson) est monté sur un transducteur piézo-électrique (ou un axe motorisé), ce qui permet de réaliser le décalage de phase dans un bras de l'interféromètre (voir Figure 3.2). Les microscopes interférométriques (essentiellement 3D actuellement) sont deux types : à glissement de frange ou en lumière blanche.

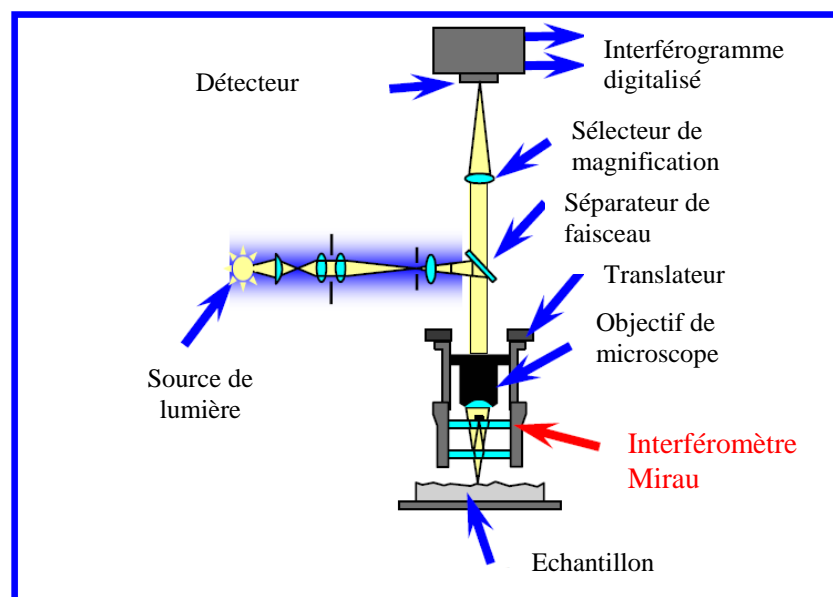


Figure 3.2. Schéma de principe d'un microscope interférométrique [3.6].

Ceux à glissement de frange² utilisent de la lumière monochromatique. Les franges d'interférence sont enregistrées pour plusieurs valeurs différentes de la phase (fractions de longueur d'onde) d'un chemin optique par rapport à l'autre et la hauteur des points est reconstituée à l'aide d'un algorithme de déroulage de phase. Ce mode a une haute précision verticale de l'ordre de l'angström. Son désavantage est que sa dynamique verticale est limitée car la différence de hauteur entre 2 points adjacents doit être inférieure à $\lambda/4$ (~ 160 nm pour $\lambda=632$ nm). Cette technique convient donc aux surfaces lisses ou faiblement rugueuses.

² Phase Shifting

Ceux en lumière blanche (ou à cohérence de phase) utilise la faible longueur de cohérence de la lumière blanche pour évaluer la hauteur de chaque point au maximum de contraste des franges d'interférence. La dynamique verticale de ce mode est limitée uniquement par le déplacement possible du transducteur, mais sa résolution verticale est inférieure à celle du mode PSI.

Des profilomètres optiques commerciaux combinent ces 2 techniques sur le même instrument. La résolution latérale est de l'ordre de quelques dixièmes de microns et la résolution verticale est par contre de l'ordre de l'angström. La surface visualisable dépend de l'objectif utilisé, et peut aller de dizaines de microns à plusieurs mm carrés.

Microscope à force atomique

Le microscope à force atomique (MFA ou AFM pour *Atomic Force Microscope* en anglais) est un type de microscope à sonde locale dont le principe est de mesurer les différentes forces d'interaction entre une pointe idéalement atomique fixée à l'extrémité d'un bras de levier³ et les atomes de la surface d'un matériau (forces de répulsion ionique, forces de van der Waals, forces électrostatiques, forces de friction, forces magnétiques...). La pointe balaie la surface à représenter, et l'on agit sur sa hauteur selon un paramètre de rétroaction et on peut ainsi reconstituer une image de la surface. La déflexion du micro-levier est suivie en positionnant un faisceau laser sur la face supérieure du micro-levier, le faisceau est réfléchi sur un miroir puis tombe sur des photodétecteurs qui enregistrent le signal lumineux. Les déplacements x,y,z se font grâce à une céramique piézo-électrique.

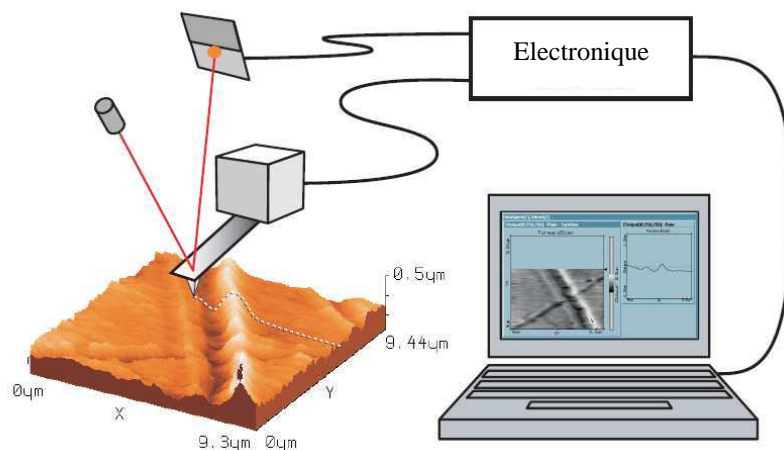


Figure 3.3. Schéma de principe d'un microscope à force atomique [3.7].

Il existe plusieurs modes de fonctionnement :

Mode contact

Il consiste à utiliser les forces répulsives : la pointe appuie sur la surface, elle est donc repoussée du fait du principe de Pauli, et le levier est dévié. En mode contact, les principales forces d'interaction entre la pointe et la surface sont des forces répulsives de très courte portée (quelques nm au maximum), c'est dans ce mode qu'est obtenue la résolution atomique. En mode contact, deux modes d'imagerie sont possibles : le mode hauteur et le mode force.

- Dans le mode hauteur, ou mode à force constante, la déflexion du bras de levier est maintenue constante par une boucle d'asservissement, qui pilote le déplacement de la céramique piézo-électrique sous l'échantillon. Les lignes de forces équivalentes sont donc

³ *Cantilever*

interprétées comme la topographie de l'échantillon : le contraste de l'image est dû uniquement au déplacement en z du piezo. Cette méthode permet de mesurer des variations en z de l'ordre de 0.01 nm.

- Dans le mode force, ou mode à hauteur constante : la hauteur de l'échantillon est maintenue constante et la déflexion du bras de levier est enregistrée. Ce mode donne également des informations topographiques mais il introduit une limite dans le choix de l'échantillon : il doit être très peu rugueux de manière à ce que le bras de levier puisse suivre la surface sans être endommagé. Ici le contraste de l'image est uniquement du aux variations locales de forces. Ce mode est généralement utilisé pour obtenir des images à l'échelle atomique.

Le mode contact permet d'obtenir la meilleure résolution, mais les forces adhésives et les forces de friction augmentent la force totale, ce qui peut endommager la pointe et l'échantillon, lorsqu'on travaille sur des matériaux fragiles. Pour palier à cet inconvénient, des modes résonants ont été développés. La rétroaction s'effectue sur la mesure de la direction de la déviation.

Mode résonant

- Le mode modulation d'amplitude⁴, de loin le plus utilisé, consiste à faire vibrer le levier à une fréquence proche de sa fréquence propre de résonance (typiquement de l'ordre de la centaine de kHz), avec une certaine amplitude. Quand la pointe interagit avec la surface, l'amplitude se modifie (parce que la fréquence de résonance change). La rétroaction se fait alors sur l'amplitude d'oscillation du levier.
- Le mode modulation de fréquence est plus délicat à gérer, mais permet contrairement au mode modulation d'amplitude de séparer directement l'effet des forces conservatives et dissipatives. Il est essentiellement utilisé sous vide. La rétroaction s'effectue soit sur la déviation de la fréquence de résonance.

Pour atteindre la résolution atomique, des surfaces ultra-propres et préparées dans des systèmes de vide poussé sont requises. Néanmoins, l'utilisation du mode dynamique dans l'air donne déjà des résultats très satisfaisants, avec une résolution latérale de l'ordre de quelques nanomètres et une résolution verticale de l'ordre de l'angström. La surface visualisable dépend de la céramique piézoélectrique utilisée, et peut aller de quelques dizaines de nanomètres à environ 150 micromètres.

Microscope à effet tunnel

Le microscope à effet tunnel (STM pour *Scanning Tunnelling Microscope*) est un autre type de microscope à sonde locale qui utilise un phénomène quantique, l'effet tunnel, pour déterminer la morphologie et la densité d'états électroniques de surfaces conductrices ou semi-conductrices avec une résolution spatiale pouvant être égale ou inférieure à la taille des atomes. On mesure le courant résultant du passage d'électrons entre la pointe et la surface par effet tunnel. Dans la plupart des cas, ce courant dépend très rapidement (exponentiellement) de la distance séparant la pointe de la surface, avec une distance caractéristique de quelques dixièmes de nanomètres. Ainsi, on fait bouger la pointe au-dessus de l'échantillon avec un mouvement de balayage et on ajuste la hauteur de celle-ci de manière à conserver une intensité du courant tunnel constante, au moyen d'une boucle de rétroaction. On peut alors déterminer le profil de la surface avec une précision inférieure aux distances interatomiques.

⁴ *tapping mode*

3.2.2.3. Mesures de rugosité à partir de mesures de diffusion

TIS

La TIS (*Total Integrated Scattering* en anglais) est le rapport entre la lumière diffusée et la lumière totale réfléchiée par une surface (voir paragraphe 3.3.3). La TIS est mesurée en illuminant l'échantillon avec une source lumineuse (typiquement un laser HeNe). La lumière diffusée est mesurée au moyen d'une sphère intégrante ou hémisphère aluminisée, percée d'un trou dans la direction spéculaire (typiquement de demi-angle inférieure ou égale à 2.5°), et de détecteurs. Cette technique permet de déterminer la rugosité rms R_q en mesurant la TIS au moyen de la relation :

$$R_q = \frac{\lambda}{4\pi} \sqrt{TIS} \quad (3.26)$$

ARS et BRDF

Les techniques mesurant l'angle de diffusion comme l'ARS (*Angle-Resolved Scattering*) ou une de ces formes particulières la BRDF (*Bidirectional Reflectance Distribution Function*) permettent de relier la distribution angulaire de la lumière diffusée à la rugosité de la surface (voir 3.4). Elles permettent de déterminer la fonction de densité de puissance ou encore la fonction d'auto-covariance. La rugosité rms peut être calculée par le carré du terme zéro de la fonction d'auto-covariance. Elle ne permet cependant de retrouver la surface de manière univoque car l'information sur la phase est perdue.

3.2.2.4. Comparaison des différentes techniques

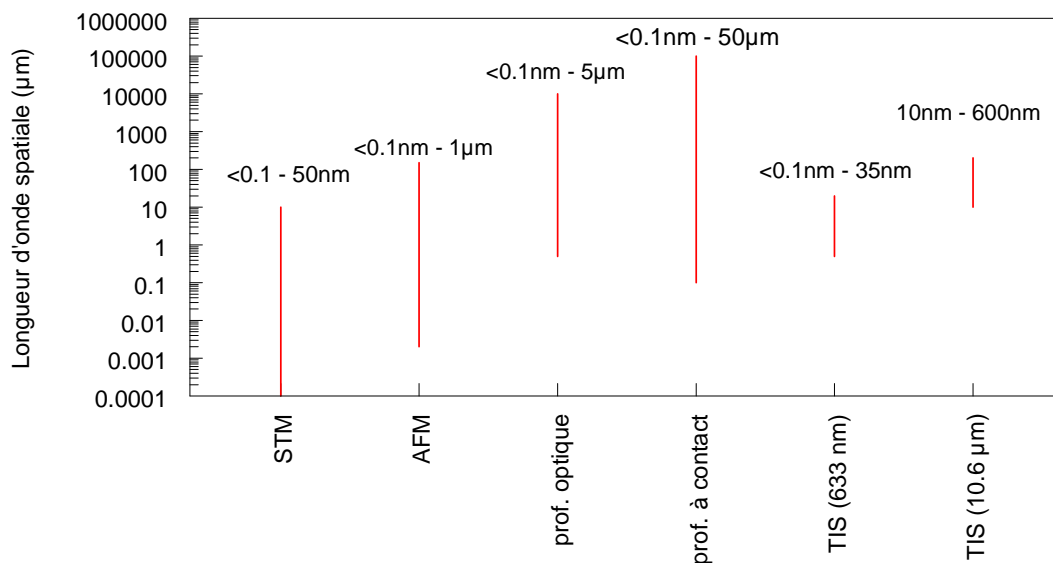


Figure 3.4. Gamme de longueur d'onde spatiale (ligne verticale rouge) pour différentes techniques de mesure de rugosité (mesures topographiques ou de diffusion). La gamme de rugosité (rms) qui peut être mesurée pour chaque technique est donnée en chiffre au dessus des lignes verticales sur le graphique.

Il est important de noter qu'il n'existe pas une valeur unique pour les paramètres de rugosité (R_a , R_q , ...) pour une surface donnée. Cela dépend en effet :

- La longueur L du profil de surface (fixant la longueur d'onde spatiale maximum mesurée).

- La distance entre les points de mesures (fixant la longueur d'onde spatiale minimum mesurée)

C'est pourquoi une même surface mesurée avec des instruments différents (par exemple entre un profilomètre à contact et optique) peut présenter des valeurs pour les paramètres de rugosité très différentes parce que les bandes de fréquences spatiales mesurées ne sont pas les mêmes.

Il en va de même si la rugosité est calculée à partir de mesures de diffusion (TIS, ARS). Cela va dépendre dans ce cas de la longueur d'onde utilisée et de la plage angulaire utilisée pour mesurer la réflexion diffuse.

Toutes les techniques utilisées pour mesurer la rugosité sont donc limitées en fréquence spatiales. Le domaine de longueur d'onde spatiale typique mesuré par ces différentes techniques [3.4] [3.5], ainsi que le domaine de rugosité rms, est résumé à la Figure 3.4. Les domaines pour une catégorie couvrent une large gamme, mais sont souvent plus beaucoup réduits sur un équipement particulier. Ainsi les caractéristiques d'un AFM avec un champ large (100 μm) ou réduit (1 μm) sont très différentes, de même que celles d'un profilomètre optique suivant l'objectif et le mode utilisé.

Il est donc important de cibler le domaine de fréquence spatiale en fonction de l'application. Si on veut déterminer la diffusion de la lumière à une longueur d'onde λ sur une surface à partir de mesures de rugosité, le domaine de longueur d'onde spatiale à considérer est $\sim\lambda/2$ à $\sim 150 \lambda$ [3.4].

3.3. La diffusion de la lumière

3.3.1. Introduction

La lumière peut être diffusée de différente manière :

- Par la surface d'un objet (surface optique ou non)
- Par les contaminants présents sur la surface
- Par la matière et les défauts sous la surface
- Par des particules (aérosols ...)
- Par effets de résonance (diffusion de Raman)
- ...

Nous nous intéressons ici uniquement à la diffusion provoquée par la surface de l'objet. Pour les surfaces optiques, la théorie de la diffraction est en général appliquée et il existe un lien direct entre le profil de surface et la distribution angulaire de la lumière diffusée (relation PSD-BRDF). Pour les surfaces rugueuses, la relation est plus difficile à établir ; un modèle (Beckmann) sera brièvement présenté.

3.3.2. BRDF

La BRDF (*Bidirectional Reflectance Distribution Function*) est communément utilisée pour décrire la façon dont un matériau réfléchit la lumière. Ceci dépend de l'onde incidente (longueur d'onde, angle d'incidence, puissance) et du matériau (orientation, transmittance, réflectance, état de surface, contamination, homogénéité en profondeur, ...). Nous reprenons ici la définition utilisée par Stover [3.3], qui est créditée à Nicomedus et al. [1977]. La BRDF est définie en terme radiométrique comme la radiance différentielle divisée par l'irradiance incidente différentielle.

$$BRDF \equiv \frac{\text{radiance différentielle}}{\text{irradiance différentielle}} \equiv \frac{dP_s / d\Omega_s}{P_i \cos \theta_s} \equiv \frac{P_s / \Omega_s}{P_i \cos \theta_s} \quad (3.27)$$

La géométrie est reprise à la Figure 3.5 où les indices i et s se rapportent aux quantités incidentes et diffuses respectivement. L'unité de la BRDF est l'inverse du stéradian.

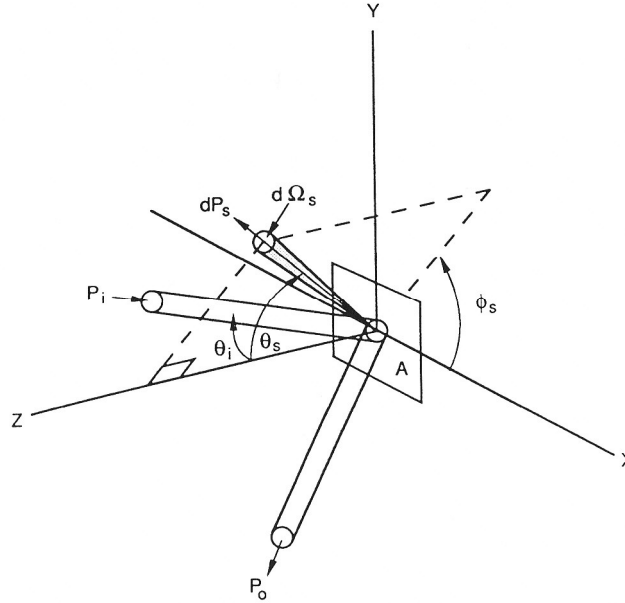


Figure 3.5. Géométrie utilisée pour la définition de la BRDF [3.3].

Néanmoins, les hypothèses faites par Nicomedus ne sont pas toujours valables dans les situations de mesures réelles, notamment parce que beaucoup d'échantillons ne sont pas purement réfléchissants ou isotropes. Ce qu'on mesure ne correspond donc pas exactement à la définition originale de la BRDF. C'est pourquoi la BSDF (*Bidirectional Scatter Distribution Function*) a été introduite et est définie exactement comme le dernier terme de l'équation (3.26), et non plus par le rapport radiance / irradiance :

$$BSDF \equiv \frac{P_s / \Omega_s}{P_i \cos \theta_s} \quad (3.28)$$

Elle exprime la puissance diffusée P_s dans l'angle solide Ω_s divisée par la puissance incidence P_i et le facteur $\cos \theta_s$. Le facteur $\cos \theta_s$ n'a pas vraiment de sens physique du point de vue de la mesure et est donc plutôt à voir comme un vestige historique de la définition de la BRDF. Lorsqu'on laisse tomber ce terme dans la BSDF, on parle de BSDF « corrigée en cosinus » ou encore de « fonction de diffusion ».

En fait, la distinction n'est souvent pas faite entre BRDF et BSDF et c'est généralement le terme BRDF qui est utilisé pour désigner en fait la BSDF.

3.3.3. TIS

Les premiers diffusomètres n'essayaient pas de mesurer la BRDF, mais plus simplement la fraction de lumière diffusée dans un hémisphère par un échantillon réfléchissant et collectée sur un simple détecteur. La TIS (*Total Integrated Scatter*) est définie comme le rapport entre cette puissance mesurée P_d et la puissance réfléchie spéculaire P_s .

D'autre part, la « théorie de diffusion scalaire » [3.4] relie la réflectance spéculaire R_s d'une surface et la réflectance totale R_0 à la rugosité rms ici notée⁵ σ (pour éviter les confusions avec les termes de réflectance) d'une surface et à la longueur d'onde de la lumière λ :

$$\frac{R_s}{R_0} = e^{-\left(\frac{4\pi\sigma\cos\theta_i}{\lambda}\right)^2} \quad (3.29)$$

En réalité, les trois types de mesures de réflectance (totale R_0 , spéculaire R_s et diffuse R_d) sont contenues dans cette relation et sont reliées par :

$$R_0 = R_s + R_d \quad (3.30)$$

Pour les mesures de surfaces lisses, la rapport R_s/R_0 est très proche de l'unité. Il est donc préférable de récolter et de mesurer la lumière diffusée plutôt que de mesurer la perte sur la réflectance spéculaire. On peut à cette fin réécrire la relation (3.29) en termes de TIS :

$$\frac{R_d}{R_0} = 1 - e^{-\left(\frac{4\pi\sigma\cos\theta_i}{\lambda}\right)^2} \approx \left(\frac{4\pi\sigma\cos\theta_i}{\lambda}\right)^2 \approx \frac{R_d}{R_s} \equiv TIS \quad (3.31)$$

Cette relation célèbre fut publiée par H. Davies en 1954 lors de travaux sur la diffusion des ondes radar par la surface de l'océan. Elle relie la TIS à la rugosité rms σ pour une surface lisse, propre et conductrice. L'approximation utilisée dans la relation (3.31) limite l'erreur sur σ à moins de 1% si une surface avec une rugosité rms σ de 10 nm maximum est mesurée (pour $\lambda = 633$ nm). En plus de la condition de surface lisse ($4\pi\sigma\cos\theta_i \ll \lambda$), Davies pris pour hypothèse que la plupart de la lumière diffusée était proche de la direction spéculaire ($\theta_s \approx \theta_i$) et que la fonction de distribution de hauteur est gaussienne. Il a cependant été démontré par après que cette dernière condition n'est toutefois pas nécessaire ; d'autres formes de distributions de hauteur sont également valides.

Pour les mesures de surfaces rugueuses ($R_d/R_0 > 0.01$), il est préférable d'utiliser directement la relation (3.29). Néanmoins, il est fréquent que les mesures de TIS ne coïncident pas avec les valeurs de rugosité mesurées par un instrument de mesure de la surface tel un profilomètre. Ceci est dû d'abord à ce que chaque système de mesure possède des limites en bande de fréquence, et qu'il faut des limites identiques pour comparer valablement différentes mesures. La difficulté pour la TIS est qu'il n'est pas si simple de déterminer la fréquence haute car premièrement l'hypothèse $\theta_s \approx \theta_i$ est d'autant moins bonne que la fréquence est élevée, deuxièmement le signal réfléchi par le détecteur (et donc non détecté) augmente avec l'angle d'incidence. La fréquence basse (près de la direction spéculaire) de la TIS est quant à elle facile à déterminer dans le cas où le faisceau spéculaire est centré sur un trou circulaire dans l'hémisphère.

⁵ Autre notation fréquemment utilisée pour la rugosité rms

3.4. Relation rugosité – diffusion

3.4.1. Surfaces optiques

3.4.1.1. Analogie avec les réseaux

Si on considère le profil d'une surface optique comme une superposition de réseaux de différentes fréquences, chaque réseau diffracte la lumière à un angle défini par l'équation des réseaux :

$$\sin(\theta_n) = \sin(\theta_i) + n f \lambda \quad (3.32)$$

où n est l'ordre de diffraction, f la fréquence du réseau.

3.4.1.2. Relation BRDF-PSD

Pour le cas spécial des surfaces lisses, propres et réfléchissantes, il existe une relation bien connue entre la BRDF et la PSD qui ressort de la théorie vectorielle de perturbation de Rayleigh-Rice :

$$BRDF = \frac{dP_s / d\Omega_s}{P_i \cos \theta_s} = \frac{16\pi^2}{\lambda^4} \cos \theta_i \cos \theta_s Q PSD(f_x, f_u) \quad (3.33)$$

avec Q étant la moyenne géométrique entre les réflectances spéculaires aux angles incident et diffus.

$$Q = \sqrt{R_s(\theta_i) R_s(\theta_s)} \quad (3.34)$$

L'adjectif lisse signifie que les variations de hauteur de la surface sont beaucoup plus petites que la longueur d'onde. Ceci peut s'exprimer par le critère de Rayleigh suivant (ou σ est la rugosité rms et a l'amplitude du réseau) :

$$\left(\frac{4 \pi \sigma \cos \theta_i}{\lambda} \right)^2 = \frac{1}{2} \left(\frac{4 \pi a \cos \theta_i}{\lambda} \right)^2 \ll 1 \quad (3.35)$$

Propres et réfléchissantes signifient qu'il s'agit d'une réflexion de surface et non pas d'une contamination en surface ou de défauts sous la surface.

Cette relation est évidemment très puissante car elle permet pour les surfaces optiques :

- Soit de calculer la BRDF (et donc son comportement en diffusion) à partir de la mesure de la topographie de la surface.
- Soit de calculer la PSD et d'autres paramètres de rugosité à partir de la mesure de la BRDF.

3.4.2. Surfaces rugueuses

3.4.2.1. Introduction

Pour une surface rugueuse, il n'est plus possible de trouver une relation biunivoque entre la BRDF et la PSD comme dans le cas d'une surface lisse. En effet, lorsqu'on applique la théorie de la diffraction, on a besoin de la condition de surface lisse pour réaliser le calcul (pour faire converger une série ...). Pour comprendre le problème de manière plus intuitive, il faut imaginer que lorsque qu'on applique l'équation des réseaux à une surface lisse, on prend en compte seulement le terme de diffraction du 1^{er} ordre car celui du 2^{ème} ordre est

négligeable. Ce n'est plus le cas pour une surface rugueuse. Ainsi, la diffraction du 2^{ème} ordre vaut ~7% du 1^{er} ordre si l'argument $(4 \pi a \cos \theta_i / \lambda)$ vaut 1 et ~ 40% s'il vaut 2. Donc si on examine le motif de diffusion d'une surface réelle (qui est composée d'une superposition de réseaux de différentes fréquences spatiales), il n'est plus possible de savoir si le signal mesuré à l'angle correspondant à la fréquence $2f$ provient de la diffraction du 1^o ordre de la composante $2f$ ou de la diffraction du 2^o ordre de la composante f .

Cela signifie que l'on ne peut pas calculer la PSD (et donc le profil de surface) à partir de la mesure de la BRDF. Il est par contre possible de calculer la BRDF sur base de la PSD, mais elle n'est pas unique : beaucoup de PSD différentes peuvent générer une même BRDF.

3.4.2.2. Modèle de Beckmann

Beckmann dérivait une relation pour la diffusion de surfaces rugueuses aléatoires et isotropiques avec une distribution de hauteur gaussienne et une fonction d'auto-corrélation gaussienne. La PSD, qui contient la longueur de corrélation l_c et la rugosité rms σ , s'écrit comme :

$$PSD(f) = \pi \sigma^2 l_c^2 e^{-\pi f l_c} \quad (3.36)$$

L'équation de la BRDF pour le cas d'une surface rugueuse est réécrite comme suit par Stover [3.3] à partir de la solution de Beckmann :

$$BRDF = \pi R(\theta_i) F_3^2 \left(\frac{L}{\lambda} \right)^2 e^{-(\pi f L)^2} \quad (3.37)$$

où

$$L = \frac{l_c \lambda}{2 \pi \sigma (\cos \theta_i + \cos \theta_s)} \quad (3.38)$$

$$F_3(\theta_s, \phi_s) = \frac{1 + \cos \theta_i \cos \theta_s - \sin \theta_i \sin \theta_s \cos \phi_s}{\cos \theta_i (\cos \theta_i + \cos \theta_s)} \quad (3.39)$$

$$f(\theta_s, \phi_s) = \frac{\sqrt{(\sin \theta_s \cos \phi_s - \sin \theta_i)^2 + (\sin \theta_s \sin \phi_s)^2}}{\lambda} \quad (3.40)$$

F_3 est le facteur d'obliquité de Beckmann (dépend uniquement de θ_i , θ_s et Φ_s) et f la fréquence spatiale des réseaux.

Il est intéressant de remarquer que la rugosité rms et la longueur de corrélation l_c apparaissent toujours dans le rapport σ/l_c qui devient une simple variable. Ceci va dans le sens des remarques faites dans l'introduction, c'est à dire qu'on ne peut pas retrouver la PSD à partir de la BRDF et que différentes PSD avec un rapport σ/l_c identique vont donner la même BRDF.

3.5. Bibliographie

- [3.1] E.S. Gademawla, M.M. Koura, T.M.A. Maksoud, I.M. Elewa, H.H. Soliman, *Roughness parameters*, *Journal of Materials Processing Technology* 123 (2002) 133-145
- [3.2] Wyko corporation, *Wyko Surface profilers*, Technical Reference Manual, April 1995
- [3.3] J.C. Stover, *Optical scattering – Measurement and Analysis*, SPIE Press, 1995.
- [3.4] J. M. Bennett, L. Mattsson, *Introduction to surface roughness and scattering*, Optical Society of America, Washington, D.C., 1989

[3.5] N.K. Myshkin, A.Ya. Grigoriev, S.A. Chizhik, K.Y. Choi, M.I. Petrokovets, *Surface roughness and texture analysis*, *microscaleWear* 254 (2003) 1001–1009

[3.6] J.C. Wyant, “White Light Interferometry” from OPTI513 course materials (<http://www.optics.arizona.edu/jcwyant>)

[3.7] Nanosurf AG, EasyScan DFM, *Operating Instructions*, Version 2.3, 2003

[3.8] F. Blateyron, *États de surface : la norme*, MESURES 787, SEPTEMBRE 2006

Annexe A. Nouvelle norme ISO 25178 pour les paramètres surfaciques

Les nouveaux paramètres de l'ISO 25178		
	Paramètres 2D (normes ISO 4287, ISO 13565-1 et 2)	Paramètres surfaciques (future norme ISO 25178)
Paramètres d'amplitude	Ra, Pa, Wa (Ecart moyen arithmétique du profil)	Sa (Rugosité moyenne arithmétique de la surface)
	Rq, Pq, Wq (Ecart moyen quadratique du profil)	Sq (Rugosité moyenne quadratique de la surface)
	Rsk, Psk, Wsk (Facteur d'asymétrie du profil)	Ssk (Facteur d'asymétrie de la surface)
	Rku, Pku, Wku (Facteur d'aplatissement du profil)	Sku (Facteur d'aplatissement de la surface)
	Rp, Pp, Wp (Hauteur maximale de saillie du profil)	Sp (Hauteur maximale des pics)
	Rv, Pv, Wv (Profondeur maximale de creux du profil)	Sv (Profondeur maximale des creux)
	Rt, Pt, Wt (Hauteur totale du profil)	St remplacé par Sz
	Rz (Hauteur maximale du profil)	Sz (Hauteur maximale de la surface, du plus haut point à la plus profonde vallée)
	Rc (Hauteur moyenne des éléments du profil)	Pas d'équivalent
	Rsm (Largeur moyenne des éléments du profil)	Pas d'équivalent
	Rdq (Pente moyenne du profil)	Sdq (Pente moyenne de la surface)
Paramètres de taux de portance	Rmr, Pmr, Wmr (Taux de longueur portante du profil)	Smr (Taux de surface portante)
	Rdc, Pdc, Wdc (Différence de hauteur de coupe du profil)	Sdc (Différence de hauteur de surface portante)
	Pas d'équivalent	Smc (Hauteur de taux de surface portante)
Paramètres d'isotropie	Pas d'équivalent	Str (Rapport d'aspect de la texture de surface)
	Pas d'équivalent	Sal (Longueur d'autocorrélation de la surface)
	Pas d'équivalent	Std (Direction de texture de la surface)
Paramètres fonctionnels	Rk, Rpk, Rvk	Sk, Spk, Svk
	Pas d'équivalent	Vmp, Vmc, Vvc, Vvv (Paramètres de volume)

Figure 3.6. Comparaison des paramètres surfaciques (3D) de la nouvelle norme ISO25178 avec les paramètres 2D [3.8].

Chapitre 4

L'effet du bombardement ionique à faible énergie sur la topographie des surfaces

4 L'effet du bombardement ionique à faible énergie sur la topographie des surfaces 4-5

4.1	Introduction	4-5
4.2	Evolution observée à l'échelle micrométrique.....	4-5
4.2.1	Etudes générales menées dans le cadre de l'usinage ionique.....	4-5
4.2.2	Evolution observée sur quelques familles de matériaux	4-6
4.2.2.1	Les verres	4-6
4.2.2.2	Le dépôt chimique de nickel	4-7
4.2.2.3	Les métaux	4-7
4.2.2.4	Les couches minces	4-8
4.2.2.5	Le carbure de silicium	4-8
4.3	Développement de structures à l'échelle nanométrique.....	4-9
4.3.1	Introduction	4-9
4.3.2	Les structures extrinsèques.....	4-10
4.3.3	Les structures intrinsèques intergrains	4-10
4.3.4	Les structures intrinsèques intragrans	4-10
4.3.4.1	Les cônes	4-10
4.3.4.2	Les pyramides	4-10
4.3.5	Les structures périodiques auto-arrangées	4-10
4.3.5.1	Les ondulations	4-11
4.3.5.2	Les structures en « damiers »	4-11
4.3.5.3	Les points quantiques	4-12
4.4	Les théories d'évolution de la surface.....	4-13
4.4.1	La théorie d'invariance d'échelle.....	4-13
4.4.1.1	Les lois d'invariance d'échelle.....	4-13
4.4.1.2	Les surfaces fractales	4-15
4.4.2	Les équations continues d'évolution cinétique de la rugosité.....	4-16
4.4.2.1	Introduction	4-16
4.4.2.2	L'équation d'Edwards and Wilkinson (EW).....	4-16
4.4.2.3	L'équation de Kardar-Parisi-Zhang (KPZ)	4-16
4.4.2.4	L'équation de Kuramoto-Sivashinsky (KS).....	4-16
4.4.3	Le modèle de Bradley et Harper : la théorie linéaire de la formation des ondulations	4-17
4.4.4	Le modèle non-linéaire de Makeev, Cuerno et Barabasi	4-20
4.4.5	La formation d'ondulation sur les métaux : régimes d'érosion et de diffusion	4-23
4.5	Bibliographie	4-24
Annexe A.	Mesure des exposants de la théorie d'échelle à partir de mesures de surfaces	4-26
Annexe B.	Calcul des ondulations selon le modèle de Bradley-Harper	4-27

4.1 Introduction

Le bombardement ionique d'un solide, même à faible énergie, perturbe l'arrangement des atomes dans la matière et à sa surface. L'évolution de la topographie de la surface est souvent importante, peut se passer à différentes échelles (depuis l'échelle atomique jusqu'à l'échelle millimétrique) et est en général un processus dynamique. Cette évolution de la rugosité est souvent perturbatrice pour les techniques utilisant la pulvérisation ionique comme celles décrites au chapitre 2 (polissage ionique, érosion ionique, analyse de profil, ...) ou parfois bénéfique (dépôt assisté par faisceau d'ions, texturation). C'est pourquoi il est important de s'y intéresser dans ces applications technologiques.

L'évolution de la topographie dépend à la fois de l'ion incident (masse, énergie), du matériau bombardé (structure, masse, température, rugosité initiale, ...) et des conditions de pulvérisation (angle d'incidence, dose ionique, flux ionique).

Il est important de noter que nous nous intéressons ici au cas de surfaces optiques bombardées par des faisceaux d'ions de faible énergie (< 1 keV). Il faut encore distinguer le cas d'ions incidents lourds et légers. En effet, dans le cas d'ions incidents lourds, leur pénétration dans le solide est relativement faible et c'est le phénomène de pulvérisation qui domine l'évolution de la surface. C'est le cas que nous développons ici. Dans le cas d'ions incidents légers (typiquement pour des ions H et He bombardant des métaux), leur pénétration dans le solide est plus grande et de fortes concentrations de gaz implémenté peuvent s'accumuler dans la couche superficielle du solide. Dans ces conditions, la topographie de surface qui se développe est du type boursoufflures, pelage ou « éponge » [4.1].

4.2 Evolution observée à l'échelle micrométrique

C'est a priori l'échelle qui nous intéresse le plus car la rugosité à l'échelle micrométrique est celle mesurée par les profilomètres classiques (optiques ou mécaniques) et dont on tiendra compte pour les applications optiques (proche UV, visible et IR). En outre, ces effets pourront souvent être directement observés par l'œil (diffusion de la lumière). Les observations expérimentales reportées dans ce chapitre sont souvent directement liées à des études menées dans le cadre de l'usinage ionique de surfaces optiques, comme c'est le cas pour le présent travail.

4.2.1 Etudes générales menées dans le cadre de l'usinage ionique

McNeil et Herman [4.2] publient un des premiers articles donnant de manière systématique des mesures de rugosité rms mesurées en fonction de la profondeur érodée (jusqu'à ~ 0.5 μm) pour différents matériaux optiques : Cu, Mo, Si, Ni-P, ThF₄, ZnS et différents verres (BK7, Dynasil et quartz – voir paragraphe sur les verres et Figure 4.1a). Les énergies étaient comprises entre 500 et 1500 eV, l'angle d'incidence était généralement 60° (des variations de l'angle entre 0 et 60° y sont commentées comme n'ayant pas un effet prononcé), la densité de courant comprise entre 0.5 et 1 mA/cm², mais les conditions exactes pour chaque mesure ne sont pas précisées. Parmi les matériaux étudiés, le silicium, le Ni-P (electroless Ni), le BK7 et le quartz présentaient la plus faible augmentation de rugosité (< 0.5 nm pour 300 nm érodés).

Egert [4.3] mesure l'évolution de la rugosité rms pour un grand nombre de matériaux optiques : substrats de miroir (silice fondue, Al, Cu électroformé, Ni-P, SiC CVD), matériaux infra-rouge (Si, Ge, sapphire, ZnS CVD) et dépôts métalliques (Al/SiO₂, Cu/SiO₂, Au/O₂, Au/Al). Il utilise un faisceau d'ions Ar de 500 eV, un courant total compris entre 4 et 30 mA

et une distance échantillon – source ionique de 9 à 10 cm. Il classe les matériaux dans 3 catégories en fonction de la vitesse d'augmentation de la rugosité rms par rapport à la profondeur érodée (I : <0.5 nm/μm, II : 0.5-5 nm/μm, III : > 5 nm/μm). Les résultats obtenus sont résumés au tableau. La catégorie I, qui reprend les matériaux présentant une faible augmentation de leur rugosité avec l'érosion ionique, comprend : la silice fondue, le Ni electroless, le SiC CVD, le silicium, le germanium, le saphire et les dépôts or. Le type de défauts observés à la surface (dernière colonne du tableau) sont les creux, les particules, le relief en grain et les sillons. Les « fosses » sont des trous sphériques et isolés sur la surface qui sont observés sur des surfaces de différentes natures (SiO₂, Ni-P, SiC CVD, ...) et qui sont attribués à des dommages sous la surface (souvent introduits par le procédé de fabrication du verre et qui sont révélés par l'érosion ionique). Les particules sont des impuretés ou des phases différentes avec un rendement de pulvérisation différent qui produisent une dépression ou une protubérance sous bombardement ionique. Le relief en grain est dû aux différences de rendement de pulvérisation qui existent entre les différentes orientations des grains à la surface. L'importance du relief est proportionnelle à la dose ionique. Les sillons sont des griffes parallèles observées sur des échantillons préparés par tournage diamant.

Material	Pre-Ion Mill Fab. Process	Ion Beam Voltage (V)	Parameters Current (mA)	Initial/Final Roughness (Å rms)	Max. Depth Milled (μm)	Roughness Evolution Category*	Type of Roughness
Mirror Substrates							
Fused Silica	polished	1500	10-30	3.0 / 2.6	23	I	pits
Aluminum-cast	diamond turned	500	4-8	106 / 299	0.7	III	grain relief, pits, ridges
Aluminum-6061	diamond turned	500	4	67 / 273	2.8	III	grain relief, pits, ridges, particulates
Copper (electroplated)	diamond turned	500	10	27 / 244	0.8	III	grain relief, pits, ridges
Ni-P (electroless)	diamond turned	500	10-20	13 / 16	5	I	pits
Silicon Carbide (CVD)	ductile ground	500	20	4.3 / 9.0	6	I	pits
Silicon Carbide (CVD)	polished	500	20	2.1 / 22	2	II	pits
IR Materials							
Silicon	polished	500	10-20	2.2 / 2.1	5	I	pits
Germanium	polished	500	10-20	1.5 / 2.3	6.3	I	pits, grain relief
Sapphire	polished	500	20	3.4 / 2.6	9.4	I	pits
Zinc Selenide (CVD)	polished	500	20	11 / 216	0.9	III	grain relief, pits
Metallic Films							
Aluminum/fused silica	.15 μm sputtered	500	10	31 / 57	0.15	III	grain relief, particulates
Copper/fused silica	2.5 μm sputtered	500	10	14 / 61	2.4	II	grain relief, particulates
Gold/fused silica	2 μm sputtered	500	10	2.6 / 3.8	2	I	particulates
Gold/Aluminum	2 μm sputtered	500	10	83 / 81	2	I	particulates

* Roughness Evolution Categories:

I - low roughness evolution rate, can be ion milled to large depths without roughening

II - moderate roughness evolution rate, can only be ion milled to small depths or for applications where low roughness is not required.

III - high roughness evolution rate, cannot be ion milled without producing gross roughness

Tableau 4.1 Résumé des mesures d'évolution de rugosité de différents matériaux optiques selon Egert [4.3].

4.2.2 Evolution observée sur quelques familles de matériaux

4.2.2.1 Les verres

Les verres ont été parmi les premiers matériaux à être étudiés au niveau de leur rugosité, comme en atteste les travaux de Perveyev dans les années 70 [4.4] ou de McNeil dans les années 80 (voir Figure 4.1a). Les verres sont réputés comme présentant peu d'évolution de leur rugosité sous érosion ionique en raison de leur structure amorphe. Aucune augmentation

de la rugosité n'est observée sur la silice fondue (SiO₂) par Egert, même pour des profondeurs d'érosion jusqu'à 23 μm [4.3].

4.2.2.2 Le dépôt chimique de nickel¹

Toujours selon l'étude d'Egert, la rugosité de dépôt chimique de nickel évolue peu avec l'érosion ionique (voir Figure 4.1b). Le fini de surface est conservé; seule l'apparition de « fosses » est observée, comme sur d'autres matériaux.

Un travail ciblé sur l'évolution de l'état de surface de dépôt chimique de nickel a été publié par M. Ghigo et co. [4.5]. Leur but était d'évaluer la faisabilité de la correction de forme par faisceau d'ions de mandrins en aluminium avec un dépôt chimique de nickel utilisés pour la production de miroirs à rayons X. Ils ont utilisés pour leur étude une source ionique identique à la nôtre (source de type Kaufman de 3 cm de Ion Tech Inc.) avec un faisceau argon de 500 eV (courant de faisceau : 65 mA, distance de travail : 200 mm). Leurs échantillons étaient constitués de disques d'aluminium 6061 avec un dépôt chimique de nickel de 200 μm. Ils ont constatés l'apparition d'anneaux d'une taille d'environ 60 microns et dont la profondeur augmentait avec le temps d'érosion (~25 nm après ~2.3 μm érodés). Le facteur déterminant pour l'apparition de tels défauts semblait être la qualité de la surface d'aluminium avant le dépôt du nickel. Ils ont en effet pris deux échantillons d'aluminium, un poli à 12 nm rms (S1) et l'autre à 1 nm rms (S2). Les deux reçurent ensuite un dépôt de nickel de 200 μm. La croissance du nickel était différente sur les échantillons, celui non poli montrant des structures de la taille des anneaux observés précédemment (60 μm), l'autre ayant une structure plus lisse. Ils furent ensuite tous deux polis avec le même grain jusqu'à 0.9 nm rms. Après érosion ionique de ~2.3 μm, S1 présentait à nouveau des structures du type observées après dépôt du nickel et sa rugosité était montée à 2.4 nm rms alors que S2 ne présentait pas de structures particulières et sa rugosité était stable (1.0 nm rms).

La rugosité du dépôt chimique de nickel semble donc stable vis-à-vis de la pulvérisation ionique à condition que le dépôt de nickel soit effectué sur un substrat de bonne qualité.

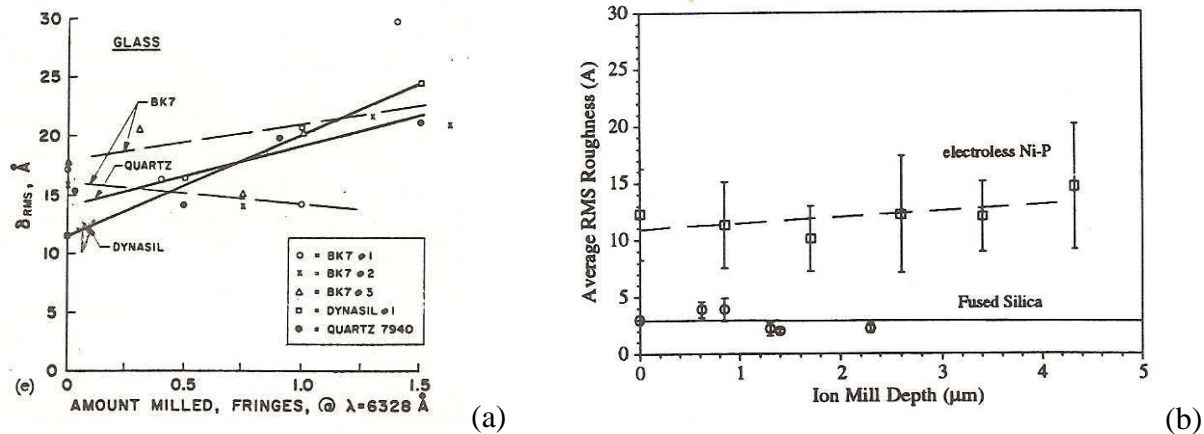


Figure 4.1. Variation de la rugosité rms pour (a) les « verres » [4.2] et (b) de la silice fondue et du dépôt chimique de nickel [4.3].

4.2.2.3 Les métaux

Les métaux subissent une augmentation importante de leur rugosité en raison de leur structure cristallographique où les grains d'orientation différente présentent une vitesse d'érosion différente. Le bombardement ionique engendre donc l'apparition d'une structure en grains, d'autant plus marquée que la dose ionique (ou la profondeur érodée) est importante.

¹ *electroless nickel* en anglais

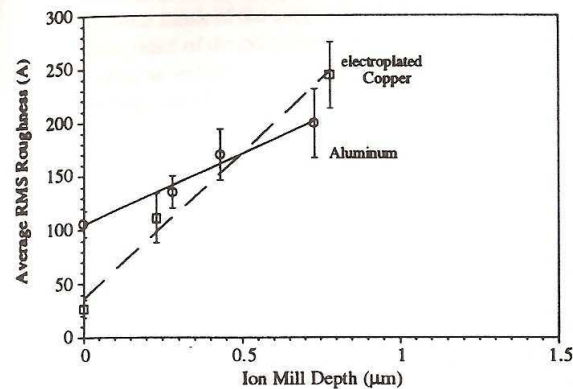


Figure 4.2. Variation de la rugosité rms pour l'aluminium et le cuivre [4.3].

4.2.2.4 Les couches minces

Egert a réalisé des mesures de rugosité sur des couches minces pour différents matériaux en fonction de l'épaisseur de la couche [4.6]. L'usinage sur une couche mince déposée sur le substrat plutôt que directement dans le substrat est une technique intéressante dans le cas où le substrat est un matériau pour lequel la rugosité augmente fortement avec l'érosion ionique. On constate à la Figure 4.3 que l'or et le silicium sont d'excellents candidats pour cette technique. En effet, les films de silicium et d'or inférieur à 2.5 µm ne montraient pas d'augmentation significative de leur rugosité.

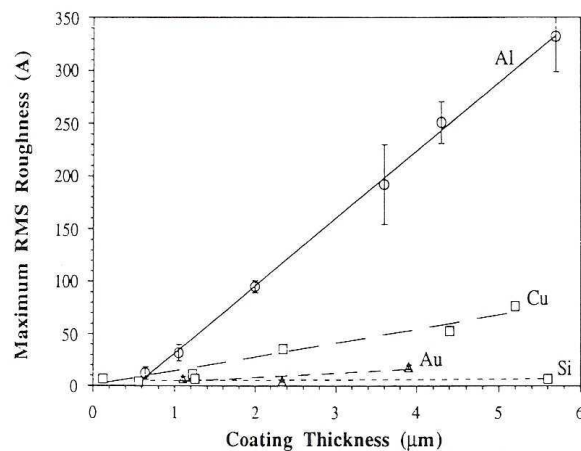


Figure 4.3. Rugosité maximum observée en fonction de l'épaisseur du dépôt pour l'aluminium, le cuivre, l'or et le silicium [4.6].

4.2.2.5 Le carbure de silicium

Il est intéressant de se pencher sur le cas du SiC CVD pour lequel les vitesses d'évolution de rugosité présentaient des différences selon la méthode de polissage utilisée pour préparer l'échantillon (« rectification de précision² », « rectification douce³ » et « polissage »). L'échantillon préparé par « rectification douce » présentait la plus faible augmentation de rugosité alors que celui préparé par « polissage » voyait sa rugosité évoluer peu jusque 1 micron, puis augmenter fortement au-delà (voir Figure 4.4). Les mesures effectuées par

² precision grinding

³ ductile grinding

microscopie électronique à balayage ne permirent pas de détecter une évolution type relief en grain, malgré la nature polycristalline du SiC CVD. Ceci est supposé être probablement dû à un phénomène d'amorphisation de la couche près de la surface soumise au bombardement ionique.

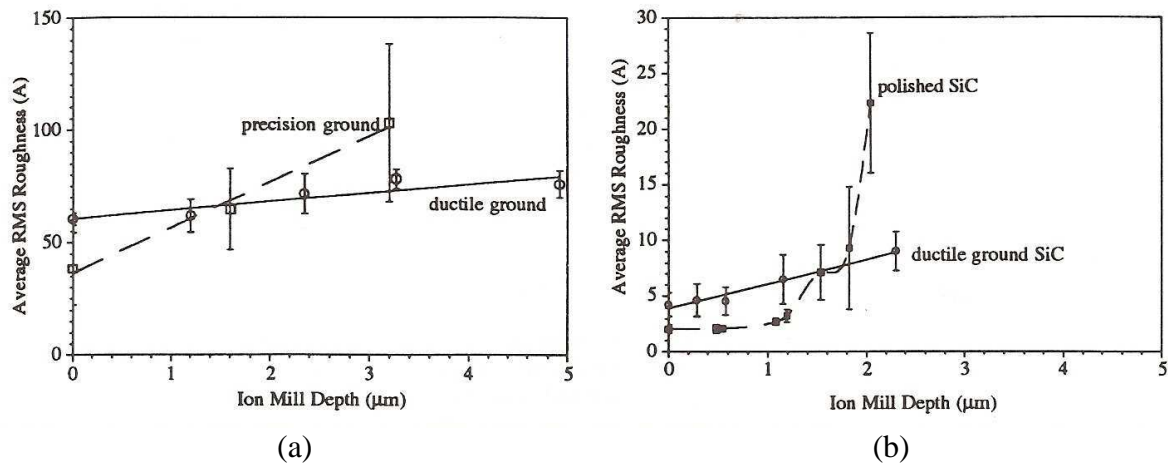


Figure 4.4 Evolution du SiC CVD (a) rugueux préparé par rectification douce et de précision, (b) poli préparé par rectification douce et par polissage [4.3].

Fawcett, Drueding et Bifano [4.8] ont étudié l'évolution d'échantillons en SiC CVD préparés par rectification douce et polissage. Ils montrent également l'importance de la méthode de préparation du SiC CVD sur l'évolution de la rugosité : ceux présentant des dommages sous la surface verront leur rugosité augmenter fortement en raison de l'apparition de cavités hémisphériques. Ils montrent par ailleurs que des échantillons préparés par rectification douce ne présentent pas d'augmentation de rugosité même jusqu'à 5 µm de profondeur érodée.

4.3 Développement de structures à l'échelle nanométrique

4.3.1 Introduction

Parmi les effets topographiques qui peuvent se développer sur une surface, on peut distinguer les effets intrinsèques et extrinsèques. Les effets intrinsèques qui sont dus à l'interaction ion-solide seul. Les effets extrinsèques sont dus à des perturbations de l'interaction ion-matière par la présence d'impuretés, contaminants et inclusions sur ou sous la surface de la matière. La préparation du substrat (nettoyage ...) est donc très importante si on veut observer uniquement les effets intrinsèques.

Pour les effets intrinsèques sur les matériaux cristallins et polycristallins, ceux-ci peuvent également se produire à deux niveaux : intergrains et intragrains.

Les effets intergrains se produisent sur les matériaux polycristallins en raison de différence de rendement de pulvérisation entre les grains de différentes orientations et aux frontières des grains.

Les effets intragrains se produisent sur un matériau amorphe, monocristallin ou sur un même cristallite d'un matériau polycristallin.

Enfin nous verrons un cas spécifique d'effet intragrain que sont les structures périodiques auto-arrangées.

4.3.2 Les structures extrinsèques

Si des impuretés se situent à la surface du matériau, elles auront généralement un rendement de pulvérisation différent de celui du matériau. Si la valeur du rendement de pulvérisation est plus faible, alors les impuretés auront un effet de masquage et des cônes se développeront à la surface du matériau. Dans le cas contraire, des dépressions se développeront.

4.3.3 Les structures intrinsèques intergrains

Les effets intergrains se produisent sur les matériaux polycristallins en raison de différence de rendement de pulvérisation entre les grains de différentes orientations et aux frontières des grains. Ceci peut conduire à une surface en mosaïque composée de plateaux (les grains) située à des niveaux de hauteurs différents. L'importance de ces différences de hauteurs (et donc de la rugosité) est souvent proportionnelle à la dose ionique reçue.

4.3.4 Les structures intrinsèques intragrains

4.3.4.1 Les cônes⁴

La formation de protubérances sur des matériaux extrêmement purs a cependant été mise en évidence, prouvant l'existence d'un mécanisme intrinsèque. La formation de ces structures a surtout été montrée dans le cas du bombardement de matériau cristallins (métaux ou semi-conducteurs) par des ions compris entre 1 et 100 keV. Le mécanisme fondamental de formation de ces cônes est encore mal compris. Néanmoins, il semble associé à des régions localisées de la surface où des dislocations se produisent et où le rendement de pulvérisation est augmenté [4.1]. La forme des cônes dépend du cristal et de son orientation.

4.3.4.2 Les pyramides

Les pyramides sont des protubérances qui se distinguent des cônes ou des structures extrinsèques par leur symétrie crystallographique et leur forme en « facettes ». Leur développement est supposé résulter de l'augmentation du rendement de pulvérisation dans l'entourage de la pyramide plutôt que d'une diminution à leur emplacement. Enfin, les pyramides peuvent se courber.

4.3.5 Les structures périodiques auto-arrangées

Lorsqu'un matériau est pulvérisé par des ions de faible énergie sous certaines conditions, il peut apparaître des structures périodiques de dimensions latérales et verticales nanométriques (des quelques nm à quelques centaines de nm). Ces structures peuvent prendre la forme d'ondulation (sillons), de « damiers » ou encore de points quantiques. La taille, la forme et l'orientation exacte de ces structures dépend du matériau, des paramètres du faisceau d'ions (angle d'incidence, direction et énergie du faisceau d'ions) et de la dose ionique.

Ces structures sont appelées spontanées ou auto-arrangées car elles se développent spontanément par bombardement de la surface (et non par balayage de la surface par un faisceau d'ions focalisé par exemple) et sont le résultat d'un processus ion-matière dynamique (qui dépend du temps). Les observations de ses structures se sont accélérées ces dernières années avec le développement des techniques de mesures topographiques à l'échelle nanométrique tel que le microscope à force atomique⁵ ou le microscope à effet tunnel⁶. Quelques exemples des dimensions de ces structures périodiques observés sur différents

⁴ *etch pits* en anglais

⁵ AFM (*Atomic Force Microscope*)

⁶ STM (*Scanning Tunnel Microscope*)

matériaux sont résumés au Tableau 4.2. Les mécanismes et modèles expliquant la formation de ces structures auto-arrangées seront eux détaillés au paragraphe 4.4.

4.3.5.1 Les ondulations

Lorsqu'un matériau est pulvérisé par des ions de faible énergie sous certaines conditions (en général sous incidence oblique), il peut apparaître une modulation périodique de la hauteur de la surface (ondulation). La longueur d'onde de ces ondulations est submicronique, entre quelques dizaines et quelques centaines de nanomètres. L'orientation de ces ondulations dépend de l'angle d'incidence du faisceau d'ions. Le vecteur d'onde est parallèle à la direction du faisceau d'ions pour des angles proches de l'incidence normale, alors qu'il est perpendiculaire pour des angles proches de l'incidence rasante (voir Figure 4.5).

Ces ondulations ont été observées sur de nombreux matériaux [4.9]-[4.19]: matériaux amorphes (SiO_2), semi-conducteurs monocristallins (Si, Ge, AIII/BV), métaux monocristallins (Cu, Ag). Les observations se sont en accélérées ces dernières années avec le développement des techniques de mesures topographiques.

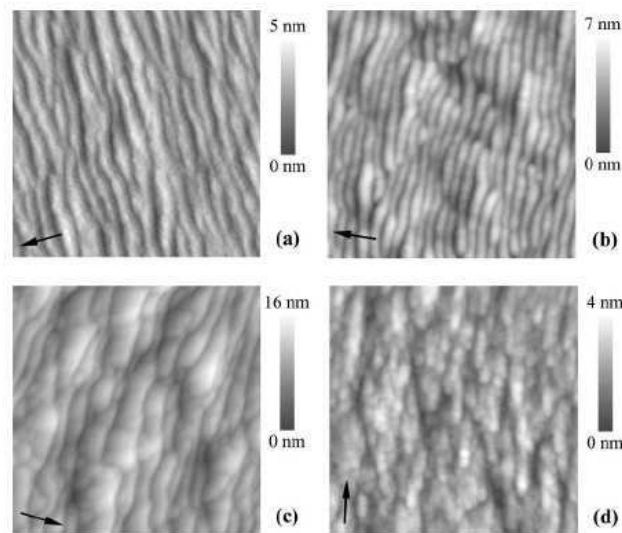


Figure 4.5. Topographies (AFM) de surfaces de silice fondue pulvérisées par un faisceau d'ions argon de 800 eV ($J=400 \mu\text{A}/\text{cm}^2$, $t=20 \text{ min}$) à différents angles d'incidence : (a) 50° , (b) 60° , (c) 70° et (d) 80° . La flèche indique la direction de la projection du faisceau d'ions sur la surface. La dimension des images est $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ [4.9].

4.3.5.2 Les structures en « damiers »

Par structures de type « damiers », on entend une succession de dépressions (ou de protubérances) répétés de manière périodique selon les 2 dimensions de la surface. Un exemple de telles structures est donné à la Figure 4.6. Ces structures en damiers ont été observées sur des surfaces métalliques (Ag, Cu, ...).

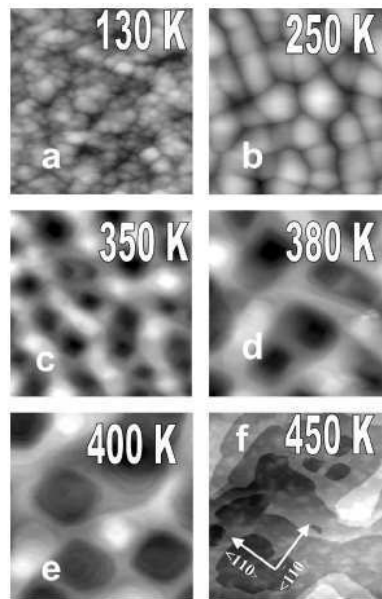


Figure 4.6. Topographie (mesurées au STM) de surfaces Ag (001) bombardées par un faisceau d'ions Néon de 1 keV ($\theta=0^\circ$, $J=2.2 \mu\text{A}/\text{cm}^2$, $t=20 \text{ min}$) en fonction de la température du substrat. La taille des images est de $85 \times 85 \text{ nm}^2$ (a-b) $170 \times 170 \text{ nm}^2$ (c-e), $340 \times 340 \text{ nm}^2$ (f) [4.10].

4.3.5.3 Les points quantiques

Les points quantiques sont un autre type de structures auto-arrangée qui ont été observées lors de la pulvérisation ionique de semi-conducteurs sous incidence normale et à faible énergie. Une matrice périodiques de points quantiques de $\sim 20 \text{ nm}$ de largeur et de hauteur, espacés de 40 nm , ont été réalisés sur du GaSb (100) érodé par un faisceau argon de 500 eV à incidence normale et à une température maintenue constante de 60°C [4.13]. Leur mécanisme de formation est similaire aux structures périodiques en ondulation : la compétition entre l'instabilité de l'érosion et l'effet lissant de la diffusion.

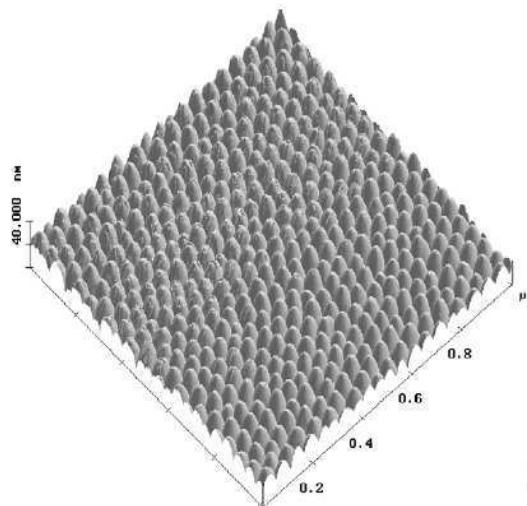


Figure 4.7. Topographie (AFM) de points quantiques créés sur un semi-conducteur (GaSb) par un faisceau d'ions argon de 500 eV [4.13]

Notons que des plots inférieurs à 100 nm ont également été réalisés sur d'autres semi-conducteurs comme InP ($\sim 90 \text{ nm}$) [4.15] ou Si ($\sim 45 \text{ nm}$) [4.16], mais en faisant tourner l'échantillon pendant la pulvérisation en incidence oblique.

Matériau	Type	Ion	θ (°)	Energie (keV)	Structures	Période (μm)	Référence
Ag	(110)	Ar	0	1	Ondulations	0.015	[4.10]
	(001)	Ne	0	1	Damier	0.05-0.1	
	(100)	Ne	70	1	Ondulations damier	0.02-0.1	
Cu	(110)	Ar	15 - 70	1	Ondulations	0.01 - 0.02	[4.12]
GaSb	(100)	Ar	0	0.5	Plots	0.04	[4.13]
Ge	(001)	Xe	55	1	Ondulations	0.2	[4.11]
Ge	(100)	Xe	5	2	Ondulations	0.05	[4.16]
Graphite	pyrolytique	Xe	30-70	5	Ondulations	0.04 - 0.07	[4.14]
Si	(100)	Xe	5-25, 85	1.2-2	Ondulations	0.045-0.1	[4.16]
Si	(001)	Ar	67.5	0.75	Ondulations	0.2 - 0.6	[4.17]
SiO ₂		Xe	55	1	Ondulations	0.03	[4.18]
SiO ₂	(film)	Ar	45	0.5-2	Ondulations	0.05 - 0.15	[4.19]
SiO ₂		Ar	50 - 80	0.6 - 1.5	Ondulations	0.05 - 0.25	[4.9]

Tableau 4.2. Exemples de structures spontanées (ondulations, plots ...) observées sur différents matériaux et pour différentes conditions de pulvérisation ionique.

4.4 Les théories d'évolution de la surface

4.4.1 La théorie d'invariance d'échelle

4.4.1.1 Les lois d'invariance d'échelle

Pour introduire les concepts de la théorie d'invariance d'échelle⁷, il est aisé d'utiliser l'exemple d'un modèle simple de croissance d'une surface, la « déposition balistique » [4.20]. Dans ce modèle, les particules sont lâchées de manière arbitraire au-dessus de la surface, suivent une trajectoire verticale jusqu'à ce qu'elle se dépose sur la surface en se collant sur la première particule de la surface qu'elle « touche », par le bas ou par son flan (voir Figure 4.8a). Ce type de modèle génère une surface (formée par l'ensemble des particules les plus élevées dans chaque colonne) dont la rugosité augmente avec le temps (c-à-d le nombre de particules déposées), puis sature comme décrit quantitativement par le modèle ci-dessous et illustré à la Figure 4.8b.

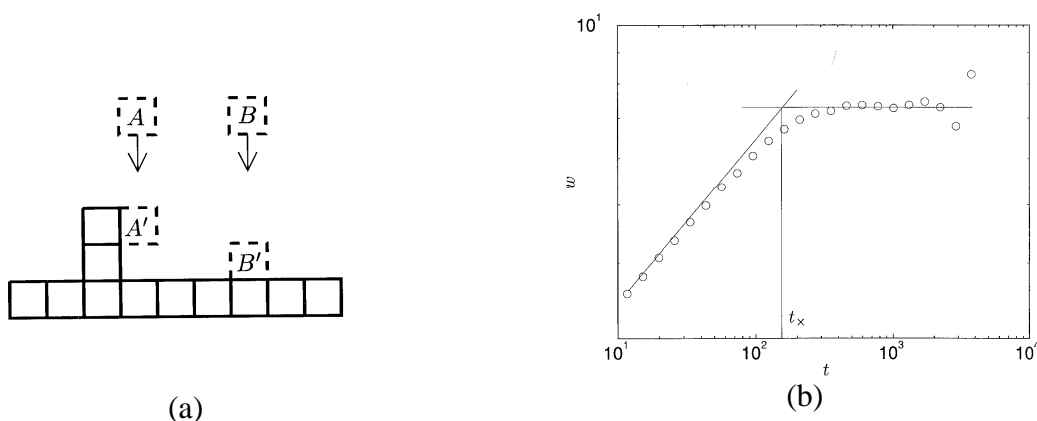


Figure 4.8. (a) Illustration du modèle de « déposition balistique ». (b) Courbe typique d'évolution de la rugosité en fonction du temps. [4.20]

Soit :

- $h(i,t)$ la hauteur de l'interface dans la colonne i au temps t .

⁷ scaling theory

- L la dimension du système, c-à-d le nombre de colonnes dans le modèle déposition ballistique.
- $\sigma(L,t)$ la largeur de l'interface, qui correspond à la rugosité rms, tel que défini en (4.1) et exprimée ici en fonction du temps :

$$\sigma(L,t) = \sqrt{\frac{1}{L} \sum_{i=1}^L [(h(i,t) - \bar{h}(t))]^2} \quad (4.1)$$

où $\bar{h}(t)$ est la hauteur moyenne de la surface :

$$\bar{h}(t) = \frac{1}{L} \sum_{i=1}^L h(i,t) \quad (4.2)$$

La courbe typique d'évolution de σ en fonction de t (voir Figure 4.8b) est constituée de deux régions séparées à un temps t_x .

Au départ, la rugosité σ augmente selon une loi de puissance

$$\sigma(L,t) \approx t^\beta \quad (t \ll t_x) \quad (4.3)$$

où β est l'exposant de croissance.

Ensuite, on atteint un régime de saturation où la rugosité atteint la valeur de saturation σ_{sat} qui dépend de la taille du système selon également une loi de puissance :

$$\sigma_{sat} \approx L^\alpha \quad (t \gg t_x) \quad (4.4)$$

où α est l'exposant de rugosité.

Le temps auquel se produit le passage du régime de croissance au régime de saturation dépend également de la taille du système :

$$t_x \approx L^z \quad (4.5)$$

où z est l'exposant dynamique.

Il est très intéressant de remarquer que si l'on porte en graphique la rugosité σ/σ_{sat} en fonction de t/t_x (ce qui correspond à une « mise à l'échelle » de la rugosité et du temps), on obtient une courbe unique quel que soit la taille L du système (voir Figure 4.9). Ceci conduit à la relation d'échelle de Family-Vicsek qui décrit l'évolution de la rugosité dans les deux régimes:

$$\sigma(L,t) \approx L^\alpha f\left(\frac{t}{L^z}\right) \quad (4.6)$$

où f est appelé la fonction d'échelle. La forme générale de la fonction d'échelle s'écrit en fonction de son argument ($u=t/t_x$) :

$$\begin{aligned} f(u) &\approx u^\beta && \text{si } u \ll t_x \\ f(u) &\approx \text{const} && \text{si } u \gg t_x \end{aligned} \quad (4.7)$$

De plus, on peut montrer que, pour tout phénomène de croissance satisfaisant à la relation d'échelle, les coefficients α , β et z ne sont pas indépendants et sont reliés par la loi d'invariance d'échelle :

$$z = \frac{\alpha}{\beta} \quad (4.8)$$

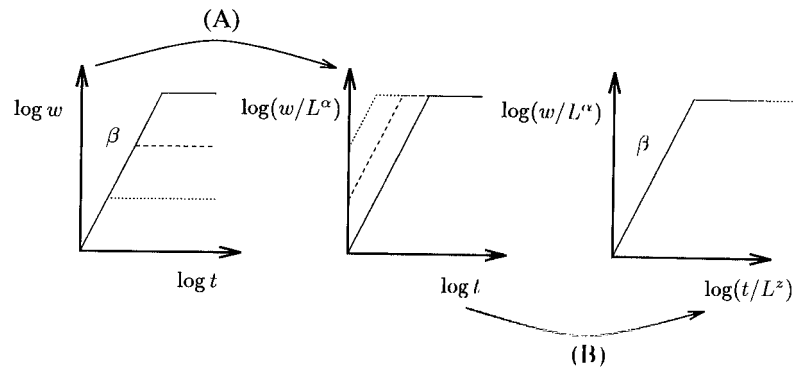


Figure 4.9. Illustration de la mise à l'échelle de la rugosité et du temps dans la relation de Family-Vicsek [4.20].

La relation (4.6) définit une classe universelle. Le concept de classe universelle est un produit de la mécanique statistique moderne, et signifie qu'il y a peu de facteur déterminant pour caractériser le comportement tel que repris par la théorie d'échelle. Deux phénomènes à priori très différents peuvent se comporter de manière très semblable. Les valeurs des coefficients α et β sont indépendants de beaucoup de détails du système et sont uniques pour une même classe universelle. Par contre, les quantités t_x où σ_{sat} ne sont pas universelles et dépendent de beaucoup de détails du système.

On peut maintenant se poser la question suivante : pourquoi la rugosité sature t'elle ? Ceci est lié à la notion de **corrélation** dans le système. Ceci peut se comprendre en reprenant le modèle de déposition balistique. Des corrélations se développent car la hauteur d'une colonne n'est pas indépendante de la hauteur des colonnes voisines. Il s'en suit que l'information concernant la hauteur d'un point va se répandre latéralement dans le processus de croissance de l'interface. La distance typique sur laquelle les colonnes sont en relation avec les autres colonnes est appelée la distance de corrélation et est notée $\xi_{//}$. Cette longueur de corrélation, qui augmente au fil du temps, ne peut croître indéfiniment car elle est limitée par la taille du système L . Quand elle a atteint la taille du système ($\xi_{//} \sim L$), l'interface entier est corrélé et on aboutit à la saturation de la rugosité.

Enfin, une façon pragmatique de calculer les exposants des lois d'échelle à partir de mesures topographiques 2D de la surface est renseignée Annexe A.

4.4.1.2 Les surfaces fractales

La théorie des fractales constitue un langage naturel pour décrire et interpréter les lois d'échelles.

Les « vrais » objets fractals sont invariants pour des transformations d'échelle isotropiques: on dit qu'ils sont auto-similaires. De tels objets sont formés de parties qui sont similaires à l'ensemble. Pour de telles surfaces, $\alpha=1$.

En général, les surfaces fractales réelles sont invariantes pour des transformations d'échelle anisotropiques: on dit qu'elles sont auto-affines. Pour de telles surfaces, α est compris entre 0 et 1.

La dimension fractale d'une surface est donnée par :

$$D_f = 2 - \alpha \quad (\text{profil 1D}) \quad (4.9)$$

$$\text{ou} \\ D_f = 3 - \alpha \quad (\text{profil 2D}) \quad (4.10)$$

4.4.2 Les équations continues d'évolution cinétique de la rugosité

4.4.2.1 Introduction

Les équations décrites dans cette partie appartiennent à la famille des théories continues décrivant de manière générale le comportement asymptotique du processus de croissance des surfaces (déposition, croissance, pulvérisation, ...). La résolution de ces équations peut permettre de calculer les coefficients d'échelle correspondants de manière analytique ou numérique en fonction de leur complexité.

4.4.2.2 L'équation d'Edwards and Wilkinson (EW)

L'équation d'Edwards and Wilkinson (EW) est de la forme :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = \nu \nabla^2 h + \eta \quad (4.11)$$

Le premier terme décrit la relaxation de l'interface en raison de la tension de surface et le deuxième est un terme de bruit qui rend compte des fluctuations aléatoires dans le processus. Pour les surfaces à deux dimensions, les exposants d'échelle sont $\alpha=\beta=0$ et $z=2$. Ceci implique un comportement logarithmique de l'augmentation de rugosité : $\sigma(t) \approx \log t$ dans un premier temps et $\sigma(L) \approx \log L$ à la saturation.

4.4.2.3 L'équation de Kardar-Parisi-Zhang (KPZ)

L'évolution temporelle d'une interface peut être décrite par l'équation de Kardar-Parisi-Zhang (KPZ) :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = \nu \nabla^2 h + \frac{\lambda}{2} (\nabla h)^2 + \eta \quad (4.12)$$

Par rapport l'équation EW, un terme non-linéaire a été rajouté. Il représente la croissance latérale (l'érosion pour nous).

Pour les surfaces à deux dimensions les plus courantes, les simulations numériques donnent les exposants d'échelle suivants : $\alpha \approx 0.38$ et $\beta \approx 0.25$.

Il existe également une version anisotrope de l'équation KPZ appelée AKPZ

4.4.2.4 L'équation de Kuramoto-Sivashinsky (KS)

L'équation de Kuramoto-Sivashinsky (KS) est de la forme :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -|\nu| \nabla^2 h - K \nabla^4 h + \frac{\lambda}{2} (\nabla h)^2 \quad (4.13)$$

Elle est déterministe mais hautement instable. Ainsi, les résultats ne sont pas clairs pour les surfaces à deux dimensions. Elle a par contre permis à une dimension de simuler la formation d'ondulation pour les solutions après un court intervalle de temps.

4.4.3 Le modèle de Bradley et Harper : la théorie linéaire de la formation des ondulations

Parallèlement aux investigations expérimentales, des modèles théoriques, ont été développés pour tenter d'expliquer les ondulations observées dans certaines conditions de pulvérisation ionique (voir paragraphe 4.3.5). Le plus populaire est celui de Bradley-Harper (BH) qui explique la formation d'ondulation sur des solides amorphes bombardés par des ions [4.21]. L'origine de cette ondulation y est décrite comme une instabilité de surface due à la compétition entre des processus d'augmentation de rugosité (érosion) et de lissage (diffusion de surface). Sur base d'un mécanisme d'augmentation de la rugosité proposé par Sigmund [4.22], ils démontrent l'instabilité d'une surface plane par rapport à une perturbation périodique. Pour ce faire, ils s'appuient sur la dépendance du rendement de pulvérisation avec la courbure de la surface. Dans l'approche de Sigmund, la vitesse à laquelle la matière est pulvérisée en un point est proportionnelle à la quantité d'énergie déposée en ce point par le processus de ralentissement des ions (voir chapitre 2).

L'équation d'évolution de la topographie de la surface est de la forme :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = \frac{fa}{n} Y_{(0)}(\theta) \left(\Gamma_x(\theta) \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} + \Gamma_y(\theta) \frac{\partial^2 h}{\partial y^2} \right) \quad (4.14)$$

où h est la hauteur locale de la surface par rapport à la surface moyenne, f le flux d'ions incident, a la profondeur moyenne de distribution d'énergie, θ l'angle d'incidence des ions par rapport à la normale à la surface, $Y_0(\theta)$ le rendement de pulvérisation. La projection du faisceau d'ions incident sur le plan moyen de la surface parallèle à l'axe x , comme illustré à la Figure 4.10.

Γ_x et Γ_y sont des paramètres calculés par BH qui dépendent du faisceau d'ion, de l'angle d'incidence et du matériau. Les détails sur le calcul de ces paramètres sont renseignés en Annexe B. Ils déterminent la dépendance de la vitesse d'érosion par rapport à la courbure de la surface.

Γ_x < 0 en dessous d'un angle critique ($0 < \theta < \theta_c$)
 > 0 au-delà d'un angle critique ($\theta > \theta_c$)
 Γ_y toujours < 0 , quel que soit l'angle d'incidence

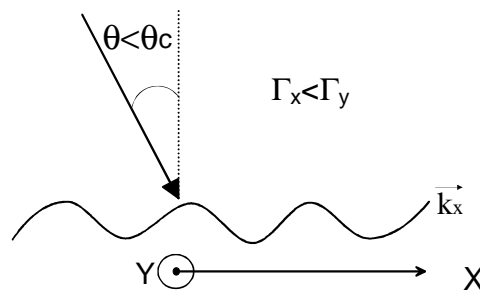


Figure 4.10. Le schéma illustre le cas $\Gamma_x < \Gamma_y$, où l'ondulation a son vecteur d'onde orienté selon X . Convention pour les axes dans le modèle de Bradley-Harper : la projection de la direction du faisceau d'ions sur le plan moyen $X-Y$ de la surface est parallèle à l'axe X .

Bradley et Harper montrent que lorsqu'un faisceau d'ions bombarde en incidence normale ($\theta=0$) ou modérément oblique ($\theta < \theta_c$) une perturbation périodique, les creux sont érodés plus

rapidement que les sommets ($\Gamma_x, \Gamma_y < 0$ et la courbure d'un creux < 0). Donc, la pulvérisation conduit à amplifier la perturbation initiale et crée ainsi une instabilité. Au-delà des équations de la théorie, ce phénomène peut être compris en observant la Figure 4.11. Elle montre un ion incident sur un creux et sur une crête. L'énergie déposée au point O (O') par l'ion frappant la surface en O (O') est la même pour un creux ou pour un sommet. Par contre, l'énergie déposée en O (O') par un ion incident en A (A') est plus importante pour un creux que pour un sommet. En incidence légèrement oblique, ce phénomène est encore plus accentué (voir Figure 4.12).

Par contre, lorsque l'incidence est rasante ($\theta \sim \pi/2$), cette instabilité ne se produit pas car les deux termes de l'équation (4.14) sont de signes opposés. Physiquement, cela peut se comprendre au moyen de la Figure 4.12. L'énergie déposée en O (O') par l'ion incident en P (P') est nettement plus importante pour un creux que pour un sommet. Mais pour des angles obliques importants, ceci est largement compensé par le fait que le flux d'ions en P est moins important pour un creux que pour un sommet. Les sommets s'éroderont donc plus vite et il n'y aura pas d'instabilité.

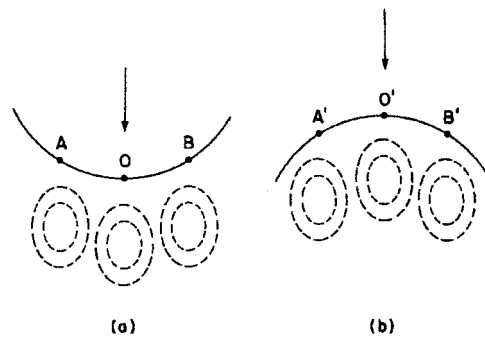


Figure 4.11. Faisceau d'ions frappant sous incidence normale un creux (a) et un sommet (b). Les contours de même énergie déposée sont dessinés (lignes pointillées) pour un ion frappant en O, O', A, A' et B, B' [4.21]

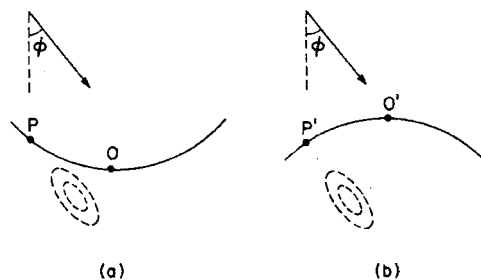


Figure 4.12. Faisceau d'ions frappant sous incidence oblique un creux (a) et un sommet (b). Les contours de même énergie déposée sont dessinés (lignes pointillées) pour un ion frappant en P et P' [4.21].

Donc, la dépendance du rendement de pulvérisation avec la courbure de la surface explique qu'il y ait une augmentation de la rugosité, mais pas l'émergence d'une longueur d'onde spatiale dominante correspondant aux observations. En effet, en considérant uniquement cette instabilité de l'érosion, ce sont les perturbations périodiques de plus courtes longueurs d'ondes qui l'emportent, ce qui correspond ici à la dimension seuil du modèle ($\sim a$).

C'est pourquoi il faut y joindre l'effet de la diffusion de surface qui contribue au lissage de la surface. En effet, les gradients dans la courbure de la surface entraînent un transport de masse depuis les régions convexes (sommets) vers les régions concaves (creux). L'effet sur la hauteur de la surface de la diffusion de surface peut s'écrire sous la forme :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -B \nabla^2 \nabla^2 h \quad (4.15)$$

B est la constante de diffusion de surface :

$$B = \frac{D_s \gamma C}{n^2 k_B T} \quad (4.16)$$

Avec D_s la diffusivité de surface, γ l'énergie libre par unité de surface, C la concentration d'espèces mobiles sur la surface, n la densité atomique, k_B la constante de Boltzmann et T la température du matériau.

Il est important de noter que cette expression pour B peut être sous-évaluée pour les cas de températures basses et de flux élevés où la diffusion induite par le bombardement devient importante.

La perturbation d'une surface initiale (par définition non plane) peut être considérée comme une superposition de sinusoïdes. L'évolution de cette surface perturbée en fonction du temps résulte de l'action simultanée des deux effets (érosion et diffusion). Les équations (4.14) et (4.15) sont linéaires et peuvent être soumises à une analyse de Fourier. Pour chaque composante de vecteur d'onde k de la surface, la solution est de la forme :

$$h_k(t) = h_k(0) \exp(r_k t) \quad (4.17)$$

avec $h_k(0)$ la surface initiale et r_k un facteur d'amplification égal à :

$$r_k = -\frac{fa}{n} Y_{(0)}(\theta) (\Gamma_x k_x^2 + \Gamma_y k_y^2) - B (k_x^2 + k_y^2)^2 \quad (4.18)$$

Le vecteur d'onde k qui se développera sera celui pour lequel le facteur r_k est le plus important. Cette ondulation aura son vecteur d'onde dirigé selon le terme d'instabilité qui est le plus important (min de Γ_x ou Γ_y si $\Gamma_x < 0$). Il sera parallèle à la direction du faisceau d'ions pour des angles obliques modérés tels $0 < \theta < \theta_c$ ($\Gamma_x < \Gamma_y$). Il sera perpendiculaire à la direction du faisceau d'ions pour des angles rasants $> \theta_c$ ($\Gamma_x > \Gamma_y$). L'angle critique θ_c est déterminé par la condition $\Gamma_x = \Gamma_y$ pour $\theta > 0$ (voir Figure 4.13). Enfin, pour que $\Gamma_x < \Gamma_y$, il faut que la condition suivante soit remplie aux petits angles sur les paramètres décrivant la distribution de l'énergie déposée (voir annexe B):

$$\left(\frac{a}{\sigma}\right)^2 + \left(\frac{\alpha}{\mu}\right)^2 > 3 \quad (4.19)$$

La longueur d'onde spatiale de cette ondulation dominante est prédite par le modèle ($\lambda = 2\pi / k$) comme :

$$\lambda = 2\pi \sqrt{\frac{2nB}{faY_0 |\min(\Gamma_x, \Gamma_y)|}} \quad (4.20)$$

qui est souvent écrit dans la littérature sous la forme simplifiée:

$$\lambda = 2\pi \sqrt{\frac{2B}{|\min(S_x, S_y)|}} \quad \text{avec} \quad S_{x,y} = \frac{fa}{n} Y_{(0)}(\theta) \Gamma_{x,y}(\theta) \quad (4.21)$$

De part (4.16), en considérant classiquement une loi exponentielle décroissante pour la diffusivité de surface et (4.20), il est également intéressant de remarquer qu'à température élevée et flux ionique faible, la longueur d'onde spatiale varie suivant la loi :

$$\lambda \approx \frac{1}{\sqrt{fT}} \exp\left(-\frac{\Delta E}{2kT}\right) \quad (4.22)$$

où ΔE est l'énergie d'activation pour l'autodiffusion.

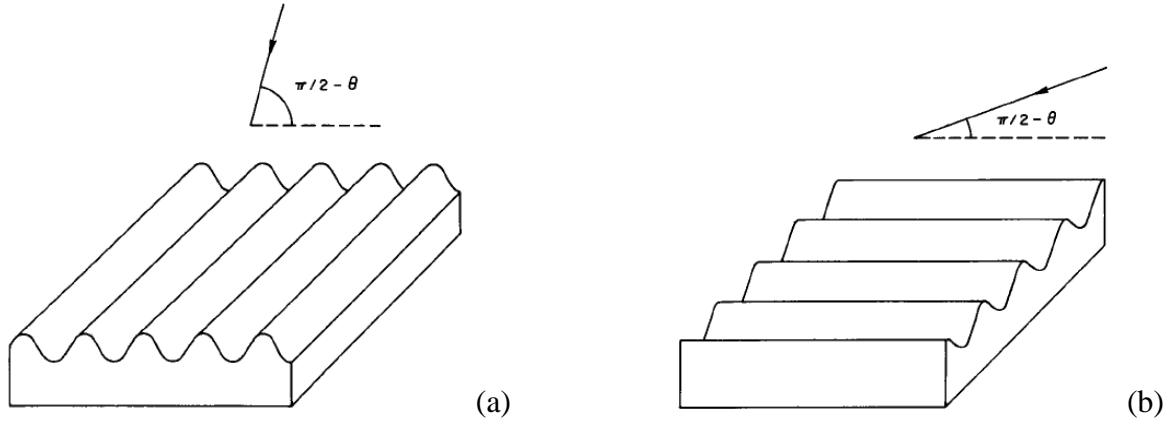


Figure 4.13. Orientation des ondulations en fonction de l'angle d'incidence θ des ions par rapport à la normale à la surface: (a) pour une incidence faible $< \theta_c$ et (b) pour une incidence rasante $> \theta_c$.

Le modèle prédit de plus que pour une incidence normale ($\Gamma_x = \Gamma_y$), il n'y a pas de direction préférentielle pour l'instabilité et un damier de sommets et de creux est généré.

4.4.4 Le modèle non-linéaire de Makeev, Cuerno et Barabasi

Si le modèle de Bradley-Harper permet de prédire avec succès la longueur d'onde et l'orientation des ondulations observées, il n'est pas suffisant pour expliquer la saturation de l'amplitude de l'ondulation (le modèle BH prédit une croissance exponentielle) ou l'augmentation cinétique de la rugosité (selon un comportement décrit par la théorie d'échelle). L'inclusion de termes non-linéaires proposée par Cuerno et Barabasi [4.24] permet d'en rendre compte. L'équation d'évolution topographique de la surface prend alors la forme :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = S_x \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} + S_y \frac{\partial^2 h}{\partial y^2} - B \nabla^2 \nabla^2 h + \frac{\lambda_x}{2} \left(\frac{\partial h}{\partial x} \right)^2 + \frac{\lambda_y}{2} \left(\frac{\partial h}{\partial y} \right)^2 + \eta(x, y, t) \quad (4.23)$$

où λ_x λ_y décrivent la dépendance de la vitesse d'érosion par rapport à la pente locale. $\eta(x, y, t)$ est un bruit blanc de moyenne nulle rendant compte de la nature stochastique de l'arrivée des ions sur la surface.

On remarquera que l'équation (4.23) est parente d'autres équations citées précédemment (paragraphe 4.4.2) et décrivant l'évolution cinétique de la rugosité de surface. Il s'agit de celle de Kuramoto-Sivashinsky (KS), qui est isotrope et sans le terme de bruit blanc, ou encore celle de Kardar-Parisi-Zhang (KPZ), qui est isotrope (sauf qu'il existe aussi une version anisotrope) et ne comporte pas de terme de diffusion.

L'intérêt de cette théorie est de présenter un modèle unifié pour deux types de comportement auparavant traités séparément : l'augmentation cinétique de la rugosité (décrit par la théorie d'échelle) et la formation d'ondulation (décrit par le modèle linéaire de BH).

Si le modèle non-linéaire de Cuerno et Barabasi est réputé comme un de ceux décrivant au mieux les procédés de rugosité et de lissage des surfaces bombardées par faisceau d'ions, la nature complexe des interactions non linéaires décrites par l'équation (4.23) ne permet d'aboutir à une solution simple et stable de l'évolution de la surface.

De plus, dans certaines expériences, on a observé des ondulations à basse température, que la longueur d'onde était indépendante de la température ou encore augmentait linéairement avec l'énergie, ce qui ne colle pas non plus avec le modèle de B-H. Makeev, Cuerno et Barabasi [4.26] ont développé encore plus loin le modèle en montrant l'existence d'un deuxième mécanisme de relaxation dû à la pulvérisation (le premier étant la diffusion thermique). Ce mécanisme de lissage prend une forme mathématique similaire à la diffusion thermique (termes D_{xy} , D_{xx} et D_{yy}) et permet d'expliquer la formation des ondulations à basse température.

$$\begin{aligned} \frac{\partial h}{\partial t} = & S_x \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} + S_y \frac{\partial^2 h}{\partial y^2} - B \nabla^2 \nabla^2 h - D_{xy} \frac{\partial^4 h}{\partial x^2 \partial y^2} - D_{xx} \frac{\partial^4 h}{\partial x^4} - D_{yy} \frac{\partial^4 h}{\partial y^4} \\ & + \frac{\lambda_x}{2} \left(\frac{\partial h}{\partial x} \right)^2 + \frac{\lambda_y}{2} \left(\frac{\partial h}{\partial y} \right)^2 + \eta(x, y, t) \end{aligned} \quad (4.24)$$

A court terme, la théorie non linéaire prédit le développement d'une ondulation (tout comme dans le modèle linéaire de Bradley-Harper), alors qu'à plus long terme elle prédit soit l'augmentation cinétique de la rugosité ou encore l'apparition de nouvelles ondulations, différentes de celles apparues à court terme. Le temps t_c après lequel on passe d'un comportement régit par les termes linéaires à celui dominé par les termes non linéaires est également prédit par la théorie selon la relation :

$$t_c \approx \frac{B}{S^2} \ln \left(\frac{S}{\lambda} \right) \quad (4.25)$$

où B et S correspondent à la direction parallèle à l'ondulation formée (de longueur d'onde λ).

Makeev et al. ont utilisé des diagrammes de phase pour décrire la formation des ondulations et/ou l'évolution de la rugosité selon qu'on soit dans les régimes linéaires ou non linéaires, à basse (diffusion induite par les ions) ou haute température (diffusion thermique), et suivant le cas symétrique ($\sigma=\mu$) ou asymétrique ($\sigma \neq \mu$) pour la distribution de la fonction d'énergie déposée. Les variables de ces diagrammes sont la profondeur réduite d'énergie déposée a_σ et l'angle d'incidence θ du faisceau incident. La profondeur réduite d'énergie déposée a_σ est le rapport entre la profondeur d'énergie déposée (a) et la largeur de la distribution de la fonction d'énergie déposée dans la direction du faisceau (σ) :

$$a_\sigma = \frac{a}{\sigma} \quad (4.26)$$

Le diagramme de phase de la Figure 4.14 illustre l'analyse des équations selon la théorie linéaire (a) et non linéaire (b), dans le cas où la diffusion thermique domine sur la diffusion induite par la pulvérisation (haute température) et symétrique ($\sigma=\mu$).

Dans le cas de la théorie linéaire, le diagramme est divisé en 2 régions et on retrouve des résultats similaires à la théorie de Bradley-Harper. Dans la région I, les ondulations ont leur

vecteur d'onde orienté selon la direction x parallèle au faisceau d'ions. Dans la région II, les ondulations ont leur vecteur d'onde orienté selon la direction y perpendiculaire au faisceau d'ions.

Dans le cas de la théorie non linéaire, le diagramme est divisé en 3 régions décrites ci-dessous :

La région I correspond au cas où $S_x, S_y, \lambda_x, \lambda_y$ sont tous <0 . A court terme ($t \leq t_c$), la théorie prédit la formation d'une ondulation orientée selon la direction x ou y en fonction de l'importance du terme d'érosion (S_x ou S_y) le plus élevé comme dans le modèle de Bradley et Harper. A plus long terme, les termes non linéaires prennent le dessus et la surface subit une augmentation cinétique de sa rugosité. L'évolution de la surface devrait donc être décrite selon Makeev et al par l'équation KPZ, pour laquelle les coefficients d'échelle sont $\alpha \approx 0.38$ et $\beta \approx 0.25$.

La région II correspond au cas où S_x, S_y sont <0 , λ_x et λ_y sont de signes opposés. Ici aussi, il y a au départ ($t \leq t_I$) formation d'une ondulation comme dans le modèle de c. Ensuite ($t_I < t \leq t_{II}$), une augmentation cinétique de la rugosité se développe qui devrait être décrite par l'équation EW (échelle logarithmique). A plus long terme ($t > t_{II}$), une nouvelle ondulation se développe mais orientée avec un angle θ_c par rapport à la direction x.

Dans la région III, $S_x >0$ et $S_y <0$. A court terme ($t \leq t_c$), une ondulation orientée selon la direction y se forme comme dans le modèle de BH. A plus long terme ($t > t_c$), l'équation est instable et a été peu explorée. L'analyse suggère cependant une rotation de l'ondulation comme pour la région II.

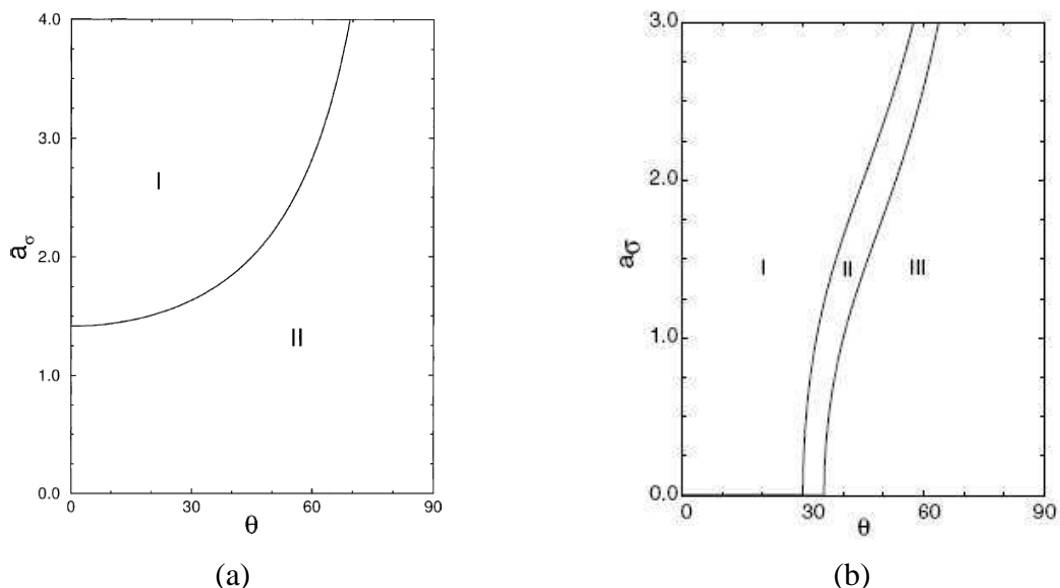


Figure 4.14. Diagramme de phase (cas haute température et symétrique $\sigma=\mu$) décrivant la dépendance de la formation des ondulations ou de la rugosité en fonction de la profondeur moyenne d'énergie réduite (a_0) et de l'angle d'incidence θ : (a) théorie linéaire, (b) théorie non linéaire [4.26].

4.4.5 La formation d'ondulation sur les métaux : régimes d'érosion et de diffusion

Les théories mentionnées jusqu'ici décrivent la formation des structures comme dépendante de l'orientation entre le faisceau d'ions et la surface bombardée pour les matériaux amorphes ou les semiconducteurs, mais pas de la direction du faisceau par rapport à la surface cristallographique. Des observations particulières aux métaux ont ainsi été faites où l'orientation des ondulations étaient modifiées sur des surfaces de Cu (100) en gardant l'angle du faisceau constant (45°) mais en faisant tourner le cristal dans la direction azimutale. Par contre, pour un angle plus important (70°), des ondulations orientées selon la direction du faisceau ont été observée comme dans le modèle de BH.

L'existence de deux régimes a été introduite récemment par Valbusa et al [4.10] de manière à expliquer pourquoi les structures observées sur des métaux dépendent dans certains cas de l'orientation du cristal bombardé et dans d'autres de la direction du faisceau d'ions.

Lorsqu'on est dans le régime d'érosion (ce qui est le cas en général pour des températures basses et des angles d'incidence élevés), les structures dépendent de la direction du faisceau, ont une forme d'ondulation comme dans le modèle de BH et sont indépendants de l'orientation cristallographique du matériau.

A l'inverse, lorsqu'on est dans le régime de diffusion (ce qui est le cas en général pour des températures élevées et des angles d'incidence proches de la normale), les structures dépendent de l'orientation cristallographique du matériau et non plus de la direction du faisceau. Dans ce régime, les structures sont soit de types « damiers », soit de types ondulation, mais toujours orienté selon l'orientation cristallographique du matériau.

La Figure 4.15 montre la transition entre ces deux régimes obtenue uniquement en augmentant la température d'Ag (100) durant sa pulvérisation.

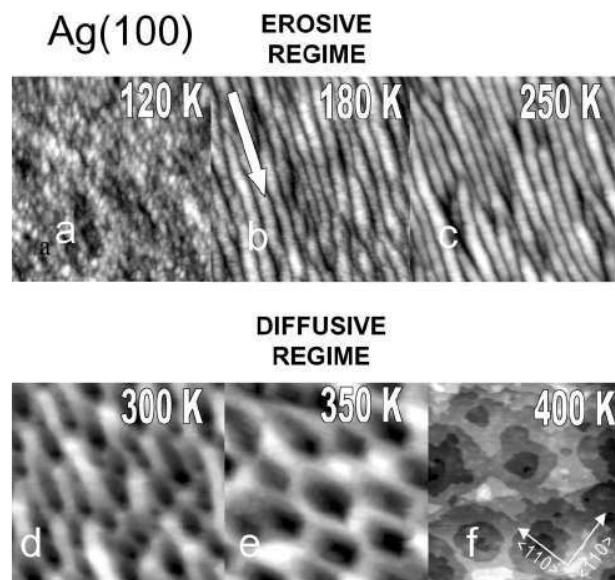


Figure 4.15. Transition du régime d' « érosion » au régime de « diffusion » obtenu en modifiant la température du substrat durant la pulvérisation de surfaces Ag (100) par un faisceau d'ions néon de 1keV ($\theta=70^\circ$, $J=1\text{mA/cm}^2$, $t=20$ min. La flèche (b) indique la direction de la projection du faisceau d'ions sur la surface. La taille des images est de $180 \times 180 \text{ nm}^2$ (a-e), $90 \times 90 \text{ nm}^2$ (f). [4.10]

4.5 Bibliographie

- [4.1] R. Behrisch, *Sputtering by Particle Bombardment II*, Springer-Verlag, Topics in Applied Physics, Vol. 52, 1983
- [4.2] J.R. McNeil, W.C. Hermann, *Ion beam applications for precision infrared optics*, J. Vac. Sci. Technol., 20(3), March 1982
- [4.3] C.M. Egert, *Roughness evolution of Optical Materials induced by Ion Beam Milling*, SPIE Vol. 1752, 1992
- [4.4] A.F. Perveyev, V.V. IL'in, A.V. Mikhaylov, *Ion polishing of Glass*, Optical Technology, Vol. 39, Number 10, October 1972
- [4.5] M. Ghigo, P. Cerutti, O. Citterio, P. Conconi, F. Mazzoleni, *Ion Beam Polishing of electroless nickel masters for x-ray replications*, SPIE Vol 3113, 1997
- [4.6] C.M. Egert, *Ion Beam Milling of Thin Films for Optical Fabrication*, SPIE Vol. 1994, ?
- [4.7] S.R. Wilson and J.R. McNeil, *Neutral Ion Beam Figuring of Large Optical Surfaces*, Proc. SPIE 818, 320, 1987
- [4.8] S.C. Fawcett, T. W. Drueding, T. G. Bifano, *Neutral ion figuring of chemical vapor deposited SiC*, *Optical Engineering*, 33 (1994) 967
- [4.9] D. Flamm, F. Frost, D. Hirsch, *Evolution of surface topography of fused silica by ion beam sputtering*, *Appl. Surf. Sci.* 179 (2001) 95.
- [4.10] U. Valbusa, C. Boragno, F. Buatier de Mongeot, *Nanostructuring by ion beam*, *Materials Science and Engineering*, C23 (2003) 201-209
- [4.11] E. Chason, T.M. Mayer, B. K. Kellerman, D. T. Mellroy and A.J. Howard, *Roughening Instability and Evolution of the Ge(001) Surface during Ion Sputtering*, *Phys. Rev. Lett.* 72 (1994) 3040-3043
- [4.12] S. Rusponi, G. Costantini, C. Boragno, and U. Valbusa, *Scaling Laws of the Ripple Morphology on Cu(110)*, *Phys. Rev. Lett.* 81, 13 (1998) 4184-4187
- [4.13] T. Bobek, S. Facsko, T. Dekorsy, H. Kurz, *Ordered quantum dot formation on GaSb surfaces during ion sputtering*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 178 (2001) 101-104
- [4.14] S. Habenicht, W. Bolse, K.P. Lieb, K. Reimann, U. Geyer, *Nanometer ripple formation and self-affine roughening of ion-beam-eroded graphite surfaces*, *Phys. Rev. B* 60, 2200 (1999)
- [4.15] F. Frost, A. Schindler, F. Bigl, *Roughness evolution of ion sputtered rotating InP surfaces: Pattern formation and scaling laws*, *Physical Review Letters*, 85 (2000) 4116-4119
- [4.16] B. Ziberi, F. Frost, B. Rauschenbach, *Formation of large-area nanostructures on Si and Ge surfaces during low energy ion beam erosion*, *J. Vac. Sci. Technol. A* 24, 4 (2006) 1344-1348
- [4.17] E. Chason, J. Erlebacher, M. J. Aziz, J.A. Floro, M. B. Sinclair, *Dynamics of pattern formation during low-energy ion bombardment of Si(001)*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 178 (2001) 55-61
- [4.18] T. M. Mayer, E. Chason, A. J. Howard, *Roughening instability and ion-induced viscous relaxation of SiO₂ surfaces*, *J. Appl. Phys.* 76 (1994) 1633-1643
- [4.19] C. C. Umbach, R. L. Headrick and K. C. Chang, *Spontaneous Nanoscale Corrugation of Ion-Eroded SiO₂: The Role of Ion-Irradiation-Enhanced Viscous Flow*, *Phys. Rev. Lett.* 87 (2001) 246104

[4.20] A. L. Barabási, H.E. Stanley, *Fractal concepts in Surface Growth*, Cambridge University Press, Cambridge, 1995

[4.21] R.M. Bradley, J.M.E. Harper, *Theory of ripple topography induced by ion beam bombardment*, J. Vac. Sci. Technol. A 6 (1988) 2390.

[4.22] P. Sigmund, *A mechanism of surface micro-roughening by ion bombardment*, J. Matls. Sci. 8, 1545-1553 (1973)

[4.23] E. Chason, M. J. Aziz, *Spontaneous formation of patterns on sputtered surfaces*, Scripta Materialia 49 (2003) 953-959

[4.24] R. Cuerno et A.-L. Barabási, *Dynamic Scaling of Ion-Sputtered Surfaces*, Physical Review letters, 74 (1995) 4746

[4.25] S. Park, B. Kahng, H.Jeong and A.-L. Barabási, *Dynamics of Ripple Formation in Sputter Erosion : nonlinear Phenomena*, Physical Review letters, 83 (1999) 3486

[4.26] M. A. Makeev, R. Cuerno, A.L. Barabási, *Morphology of ion-sputtered surfaces*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 197 (2002) 185-227

Annexe A. Mesure des exposants de la théorie d'échelle à partir de mesures de surfaces

Soit $h(x,y,t)$ la surface à 2 dimensions mesurée expérimentalement.

Au lieu de mesurer l'entièreté de l'échantillon $L \times L$, on choisit une fenêtre de taille l et de rugosité $\sigma(l)$.

L'exposant β peut être évalué facilement en prenant la pente de la droite sur une graphique log-log de σ en fonction de l . Par contre α ne peut être trouvé si facilement si les mesures prises ne permettent pas d'atteindre la saturation de la rugosité (ou pour une simulation numérique si le système est trop large).

Heureusement, il existe une autre quantité qui suit la relation d'échelle comme la rugosité σ ; il s'agit de la fonction de corrélation hauteur-hauteur :

$$H(l) \equiv \left[\left\langle (h(r) - h(r'))^2 \right\rangle_r \right]^{1/2} \quad [l = |r - r'|] \quad (4.27)$$

Les hauteurs de surface sont considérées au même moment, donc nous n'écrivons pas le temps explicitement. L'exposant de rugosité α est déterminé par la relation :

$$H(l) \approx l^\alpha \quad [l \ll \xi_{//}] \quad (4.28)$$

On trouve alors l'exposant α en prenant la pente de la droite sur un graphique log-log de $H(l)$ en fonction de l .

Annexe B. Calcul des ondulations selon le modèle de Bradley-Harper

Pour rappel, selon le modèle de Bradley-Harper (B-H), la longueur d'onde spatiale des ondulations est donnée par :

$$\lambda = 2\pi \sqrt{\frac{2nB}{faY_0|\min(\Gamma_x, \Gamma_y)|}} \quad \text{avec } B = \frac{D_s \gamma C}{n^2 k_B T} \quad (4.29)$$

f le flux d'ions incident,
a la profondeur moyenne de distribution d'énergie,
 Y_0 le rendement de pulvérisation,
B est la constante de diffusion de surface
 D_s la diffusivité de surface,
 γ l'énergie libre par unité de surface,
C la densité de surface d'espèces mobiles,
n la densité atomique,
 k_B la constante de Boltzmann,
T la température du matériau.

Γ_x et Γ_y sont les paramètres de tension de surface calculés par B-H :

$$\Gamma_x(\phi) = \frac{A}{B_1} \sin \phi - \frac{B_2}{2B_1} \left(1 + \frac{A^2}{B_1}\right) \cos \phi - \frac{AC}{B_1^2} \left(3 + \frac{A^2}{B_1}\right) \cos \phi \quad (4.30)$$

$$\Gamma_y(\phi) = -\frac{\mu^2}{a^2} \cos \phi \left(\frac{1}{2} B_2 + \frac{AC}{B_1}\right) \quad (4.31)$$

$$\begin{aligned} A &= \left(\frac{a}{\sigma}\right)^2 \sin \phi \\ B_1 &= \left(\frac{a}{\sigma}\right)^2 \sin^2 \phi + \left(\frac{a}{\mu}\right)^2 \cos^2 \phi \\ B_2 &= \left(\frac{a}{\sigma}\right)^2 \cos \phi \\ C &= \frac{1}{2} \left[\left(\frac{a}{\mu}\right)^2 - \left(\frac{a}{\sigma}\right)^2 \right] \sin \phi \cos \phi \\ D &= \frac{1}{8} \left[\left(\frac{a}{\mu}\right)^2 \sin^2 \phi - \left(\frac{a}{\sigma}\right)^2 \cos^2 \phi \right] \end{aligned} \quad (4.32)$$

ϕ est l'angle d'incidence du faisceau par rapport à la normale à la surface (nommé θ dans ce document). Les paramètres a, σ et μ sont tirés de la théorie de Sigmund où ils modélisent la distribution gaussienne de l'énergie déposée par un ion incident, comme illustré à la Figure 4.16 et modélisé par la relation :

$$F_D = \frac{E}{(2\pi)^{3/2} \sigma \mu^2} \exp\left\{-\frac{(z-a)^2}{2\sigma^2} - \frac{(x^2 + y^2)}{2\mu^2}\right\} \quad (4.33)$$

E est l'énergie de l'ion incident, σ et μ sont les largeurs de la distribution gaussienne dans les directions parallèles et perpendiculaires à la direction du faisceau.

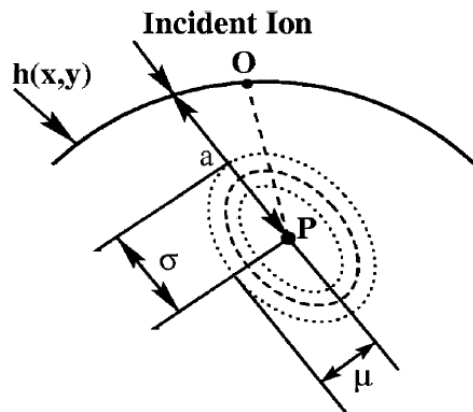


Figure 4.16. Illustration schématique de l'énergie déposée par un ion incident [4.26]. L'ion pénètre le matériau jusqu'au point P , où toute son énergie cinétique est relâchée dans le voisinage selon une distribution gaussienne : a est la profondeur moyenne d'énergie déposée, σ et μ sont les largeurs de la distribution (respectivement parallèle et perpendiculaire à la direction du faisceau).

Chapitre 5

Equipements, procédure expérimentale et
conditions de pulvérisation

Table des matières

5	Equipements, procédure expérimentale et conditions de pulvérisation.....	5-5
5.1	Introduction	5-5
5.2	Equipements de pulvérisation ionique	5-5
5.3	Procédures expérimentales	5-7
5.3.1	Préparation des échantillons.....	5-7
5.3.2	Conditions de pulvérisation.....	5-7
5.3.3	Caractérisation du faisceau d'ions et de la profondeur érodée.....	5-8
5.3.4	Caractérisation topographique de la surface	5-13
5.4	Bibliographie	5-15
Annexe A.	Conditions de pulvérisation.....	5-16

5.1 Introduction

Ce chapitre décrit les équipements de pulvérisation ionique et de métrologie, ainsi que la procédure expérimentale générale utilisée pour les mesures d'évolution de rugosité de différents matériaux qui seront détaillées aux chapitres suivants. Quelques généralités sur les conditions d'érosion et la caractérisation du faisceau d'ions seront également décrites.

5.2 Equipements de pulvérisation ionique

Les échantillons testés ont été bombardés principalement avec la source ionique de type Kaufman (3 cm) équipant l'installation d'usinage ionique du CSL (voir Figure 5.1 et Figure 5.2). En fonction des besoins des projets et des disponibilités des installations, certains échantillons ont cependant aussi été bombardés avec 2 autres sources ioniques: une autre source Kaufman de 10 cm (équipant une installation de dépôt) et une source end-Hall de 7 cm (voir Figure 5.3). Les principales caractéristiques de ces sources sont résumées au Tableau 5.1.

	IT3	Platar	SI70
Type	Kaufman	Kaufman	End-Hall
Marque	Ion Tech inc (USA)	Platar (RUS)	Snecma (F)
Gaz	Ar, Xe (...)	Ar, Xe (...)	Xe, Kr, Ar, O ₂
Débit de gaz	1-4 sccm	1-5 sccm	20-80 sccm
Diamètre de sortie de la source	3 cm	10 cm	7 cm
Neutraliseur	Cathode creuse	Filament	Cathode creuse
Energie du faisceau	50-1200 eV	50-1000 eV	50 - 450 eV
Courant de faisceau max.	100 mA	50 mA	> 2 A
Densité de courant max.	~10 mA/cm ²	~1 mA/cm ²	~ 30 mA/cm ²

Tableau 5.1. Principales caractéristiques des sources ioniques utilisées

Les principaux paramètres régulant les caractéristiques du faisceau d'ions (énergie, densité de courant, forme ...) et leurs acronymes utilisés dans ce document (si nécessaire) sont donnés ci-dessous. Pour plus de détails sur le fonctionnement des sources ioniques, voir le chapitre 2.

Source ionique Kaufman	Source ionique end-Hall
BV: tension du faisceau	Vd: tension de décharge
BC: courant du faisceau	Id: courant de décharge
AV: tension de la grille accélératrice	Iint: courant de la bobine intérieure
AC : courant sur la grille accélératrice	Iext: courant de la bobine extérieure

Tableau 5.2. Principaux paramètres (et leurs acronymes) des sources ioniques Kaufman et end-Hall

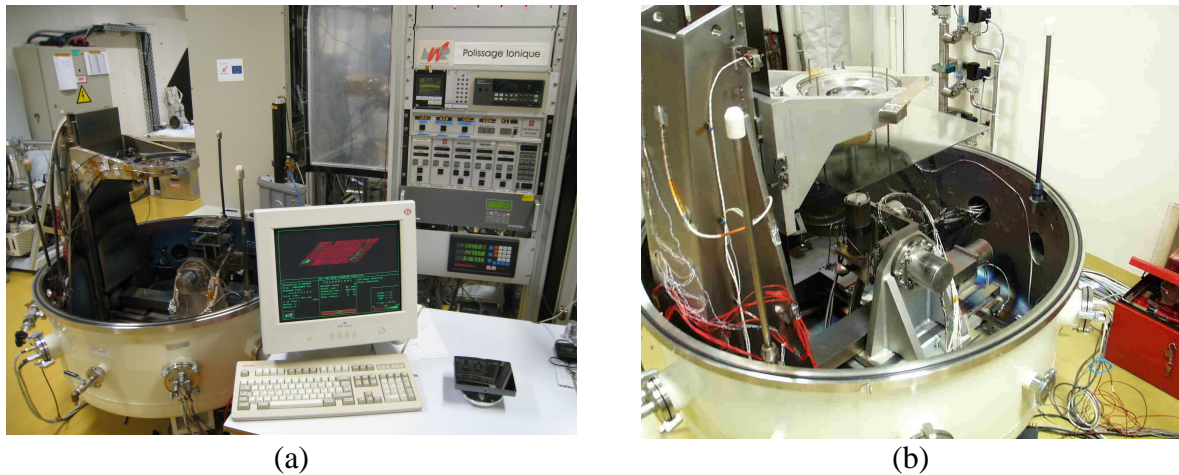


Figure 5.1. Installation d'usinage ionique du CSL. (a) A droite, armoire avec les contrôleurs de la source ionique, des débits de gaz, de la pression, de la pompe turbo, des axes et des encodeurs. On aperçoit sur l'écran une cartographie des temps de séjour utilisée pour la correction du miroir en SiC déposé sur la table. (b) Vue générale de l'intérieur de l'enceinte à vide avec la source ionique fixée au bras 4 axes motorisés (translation X-Y, rotations A-B), le cinquième axe (Z) étant sur le support miroir/échantillon.

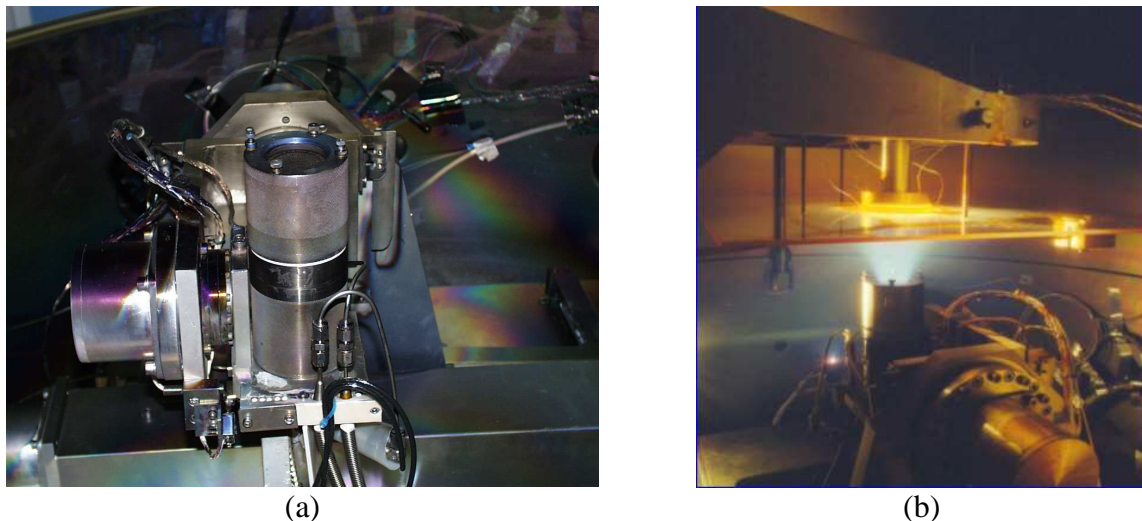


Figure 5.2. Source ionique Kaufman 3 cm (a) montée sur le bras 4 axes motorisés et (b) pendant la pulvérisation d'un substrat en BK7.

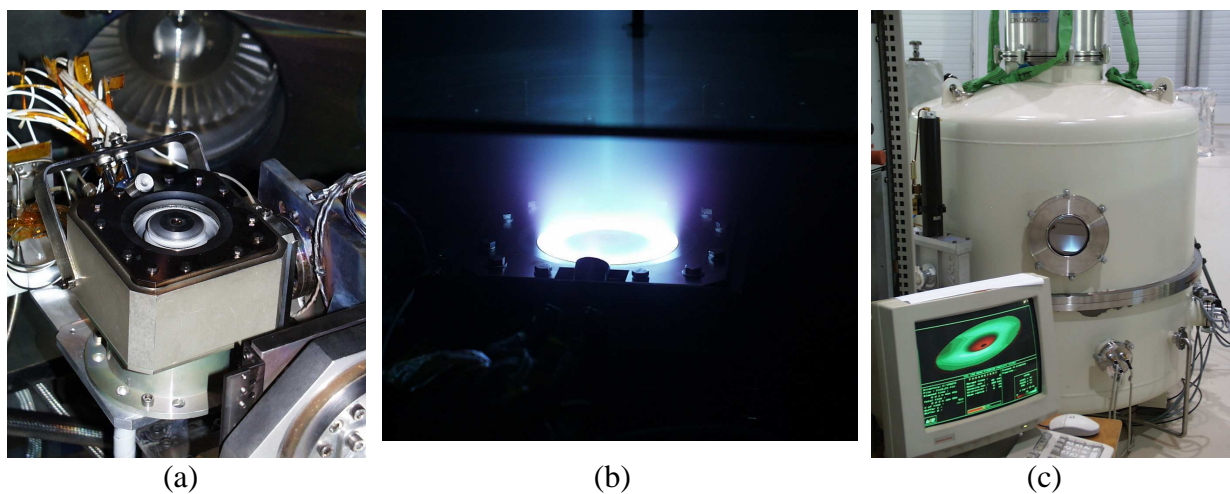


Figure 5.3. Source ionique end-Hal SI70 (a) montée sur le bras 4 axes motorisés et (b) en fonctionnement (faisceau en mode tige) dans (c) l'enceinte d'usinage ionique du CSL (faisceau visible par le hublot).

5.3 Procédures expérimentales

5.3.1 Préparation des échantillons

Chaque échantillon est manipulé avec des gants en salle propre (classe 10.000). Avant la première érosion, il est soufflé avec de l'air sec, nettoyé à l'acétone et ensuite à l'alcool isopropylique. Il est ensuite mesuré avant tout traitement ionique. Après la première érosion ionique, la surface de l'échantillon est très propre (dégazée et « nettoyée » par le faisceau d'ion) et est donc directement mesuré (également en classe 10000). Il est ensuite replacé dans l'installation de pulvérisation ionique, après être simplement soufflé à nouveau à l'air sec, pour une nouvelle pulvérisation.

5.3.2 Conditions de pulvérisation

5.3.2.1 Généralités

Les matériaux testés ici ont été pulvérisés en incidence normale, typiquement avec la source Kaufman 3cm, un faisceau d'ions Argon, les conditions standards étant une énergie de 650 eV et une densité de courant de $\sim 2 \text{ mA/cm}^2$. Des gaz (Krypton, Xénon) et énergies différentes (200 à 1000 eV) ont également été testés. La pression dans l'enceinte avant injection des gaz est inférieure à 2×10^{-5} mbar et inférieure à 2×10^{-4} mbar lorsque la source ionique est allumée (jusqu'à 8 sccm de débit de gaz si le neutraliseur¹ fonctionne). Les principales conditions sont précisées pour chaque expérience. Les conditions exactes de pulvérisation (gaz, énergie, densité de courant, distance) pour l'ensemble des matériaux présentés dans ce travail sont reprises en annexe A.

5.3.2.2 Méthodes de pulvérisation

La méthode la plus souvent utilisée pour pulvériser un échantillon est l'érosion statique : l'échantillon est érodé pendant un temps t , avec tous les autres paramètres constants. Des conditions d'érosion identiques (gaz, paramètres du faisceau d'ions, angle, distance, ...) sont utilisées à chaque séquence d'érosion sur un même échantillon. Seule la dose ionique (temps d'érosion) peut être modifiée entre 2 érosions successives.

Afin de permettre l'érosion de plusieurs petits échantillons en une séquence de pompage, le dispositif suivant est utilisé dans l'installation d'usinage ionique:

- Les échantillons sont placés sur un porte échantillon en « croix » (voir Figure 5.4) qui peut accueillir jusqu'à 4 échantillons. La distance entre chaque emplacement (~ 120 mm) est largement supérieure au rayon du faisceau de la source (40 à 80 mm selon les paramètres). Pour les pulvérisations en incidence oblique, l'échantillon est placé sur une interface ayant la pente désirée. La distance est spécifiée par rapport au milieu de l'échantillon.
- La procédure d'érosion des échantillons est contrôlée par un logiciel.
- La source ionique est allumée dans une position où aucun échantillon n'est pulvérisé de manière significative (position 1 de la Figure 5.4). La source ionique est stabilisée pendant une période de minimum 10 minutes.
- La source ionique est ensuite déplacée sous le premier échantillon afin que le faisceau d'ions l'érode pendant un temps t déterminé.
- Le temps écoulé, le faisceau d'ions est éteint automatiquement et la source déplacée vers une autre position éloignée des échantillons (position 2). Le faisceau d'ions est alors à nouveau allumé par l'opérateur, les paramètres du faisceau éventuellement

¹ Générateur d'électrons externe qui neutralise les charges sur la surface d'une cible isolante

adaptés (énergie, ...) aux conditions pour l'échantillon suivant. Une fois le faisceau stabilisé, il est alors déplacé vers le nouvel échantillon et ainsi de suite.

- Notons que l'axe motorisé du support (Z) est également adapté si nécessaire (échantillons d'épaisseur ou d'inclinaison différentes) pour garder la distance source-échantillon constante.

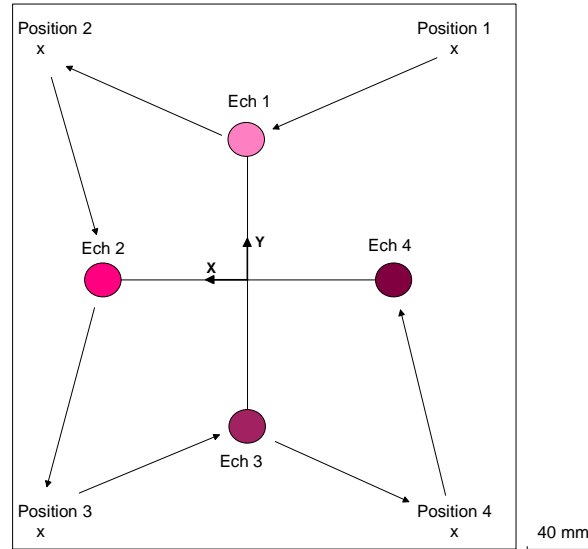


Figure 5.4. Schéma illustrant les déplacements de la source ionique pour l'érosion statique d'échantillons placés sur un support « en croix ». La source ionique est stabilisée à la position 1 (2, 3, 4) avant d'être déplacée sous l'échantillon 1 (2, 3, 4). Le cadre extérieur représente l'enveloppe des déplacements possibles des axes X et Y de la source dans l'installation d'usinage ionique (293 x 317 mm).

D'autres méthodes que le tir statique sur des petits échantillons ont parfois été utilisées (la méthode est mentionnée dans ce cas) lorsqu'il s'agissait de grands échantillons :

- Les mesures après une séquence de correction de forme (IBF) sur une optique permettent de mesurer la rugosité à différente profondeur sur base de la cartographie des profondeurs érodées sur le miroir.
- La réalisation d'une pente (profondeur érodée augmentant linéairement en fonction de la position sur l'optique) permet de disposer d'une gamme de profondeur érodée sur un seul (grand) échantillon [5.1].
- Les mesures après pulvérisation d'une épaisseur constante sur une large surface (balayage à vitesse constante de la source ionique) sur une optique permettent de mesurer la rugosité à différents endroits de la surface.

Les deux premières méthodes supposent cependant que l'état de surface initial est identique sur l'ensemble de la surface optique (en général grande dans ce cas).

5.3.3 Caractérisation du faisceau d'ions et de la profondeur érodée

5.3.3.1 Densité de courant ionique, flux, fluence

La densité de courant ionique J est égale au courant d'ions mesuré par unité de surface (habituellement exprimée en mA cm^{-2}). Elle est fournie pour chaque expérience. Elle est mesurée au moyen d'une sonde de Faraday en positionnant celle-ci au centre du faisceau d'ions dans les mêmes conditions que celles subies par l'échantillon étudié.

Le flux ionique ϕ est égale au nombre d'ions par unité de temps et de surface (exprimé en ions $s^{-1} cm^{-2}$). Elle se déduit de nos mesures de densité de courant par la relation (q est la charge élémentaire et vaut $1.6 \cdot 10^{-19} C$) :

$$\phi = \frac{J}{q} \quad (5.1)$$

La dose ionique ou fluence F est elle égale à au nombre d'ions incidents par unité de surface (exprimée en ions cm^{-2}). Elle est reliée à la densité de courant J (en A/cm^2) et au temps de pulvérisation t (en s) comme suit :

$$F = \frac{J}{q} \cdot t = \phi \cdot t \quad (5.2)$$

5.3.3.2 Profil de densité de courant et homogénéité spatiale de l'érosion

L'homogénéité spatiale de la dose ionique reçue par l'échantillon dépend du type de source ionique (taille, optique ionique, ...), des paramètres de la source (énergie, courant, ...) et de la distance entre l'échantillon et la source (en raison de la divergence du faisceau).

Des exemples de profil de densité de courant de la source ionique Kaufman munie d'un jeu de 2 grilles de 3 cm collimatées (configuration largement utilisée pour cette étude) sont fournis à la Figure 5.5. Ils sont mesurés à l'aide d'une sonde de Faraday fixe (senseur de 1 mm de diamètre), la source ionique étant mobile pour réaliser le profil selon les axes X et Y. Les profils de densité de courant d'une telle source peuvent être très souvent modélisés par une simple gaussienne définie dans ce travail par la relation:

$$J(x, y) = J_0 e^{-\frac{1}{2} \left(\left(\frac{x-x_0}{s_x} \right)^2 + \left(\frac{y-y_0}{s_y} \right)^2 \right)} \quad (5.3)$$

où J_0 est la densité de courant au centre (x_0, y_0) et (s_x, s_y) sont les écarts types de la gaussienne selon les directions x et y. Le profil du faisceau d'ions est en général relativement symétrique ($s_x \sim s_y \sim s$). Les profils de densité de courant sont d'autant plus larges (homogènes) que la distance est grande, que l'énergie du faisceau est faible et que la tension de la grille accélératrice est élevée. Notons que pour le procédé d'usinage ionique, c'est un profil étroit qui est recherché pour corriger les erreurs de forme.

La valeur totale du courant ionique I du faisceau peut être retrouvée en intégrant la fonction de densité de courant, qui se réduit dans le cas d'une gaussienne à :

$$I = 2\pi J_0 s_x s_y \quad (5.4)$$

avec I en mA, J_0 en mA/cm^2 et $s_{x,y}$ en cm. Cette relation permet également d'estimer J_0 lorsque s et I sont connus.

En considérant des trajectoires rectilignes pour les ions, la divergence du faisceau peut être approximée géométriquement par :

$$q = \arctg \left(\frac{l_1 - l_2}{d_1 - d_2} \right) \quad (5.5)$$

Où l_1 et l_2 sont les demi-largeurs de faisceau aux distances d_1 et d_2 . Pour une distribution gaussienne, la demi-largeur du faisceau est définie par le paramètre s ($\sim s_x \sim s_y$) ou plus souvent $\sqrt{2}s$ de l'équation (5.3): la valeur à la demi-largeur vaut alors 0.607 ou 0.368 (e^{-1})

respectivement de la valeur au centre. D'autres conventions sont évidemment possibles pour définir la largeur du faisceau, par analogie avec les conventions utilisées en optique pour caractériser les faisceaux lumineux (comme la largeur complète à la moitié du maximum²).

Distance radiale $r = \sqrt{x^2 + y^2}$	Densité de courant relative $J(r)$	Courant intégré r $\int_{-r}^r J(r)dr / \int_{-\infty}^{\infty} J(r)dr$
s	0.607	0.393
$\sqrt{2} s$	0.368	0.632
1.177s	0.500	0.500
2s	0.135	0.865
3s	0.011	0.989

Tableau 5.3. Densité de courant et courant relatif en fonction de la position radiale pour un profil gaussien.

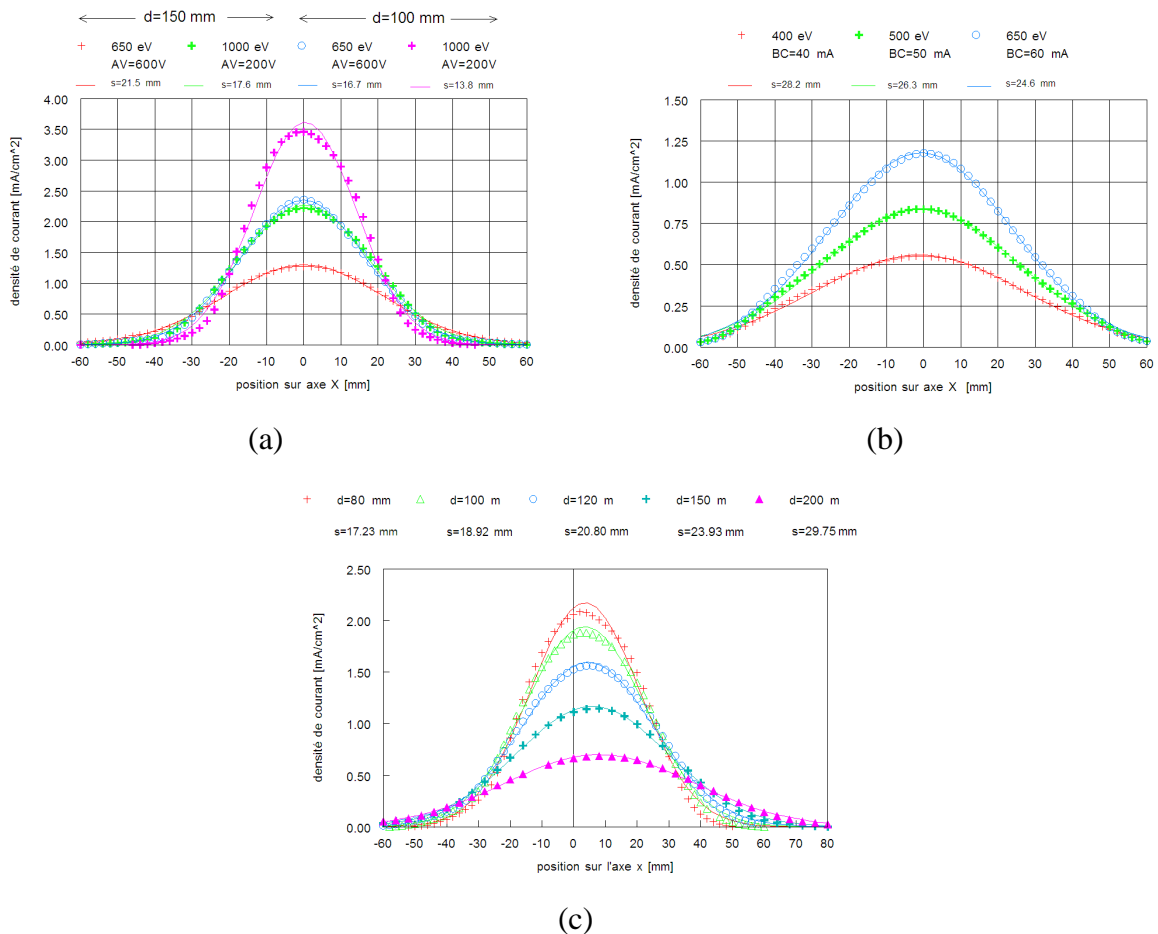


Figure 5.5. Profils de densité de courant mesurés pour un faisceau d'Argon avec la source Kaufman munie de grilles de 3 cm : (a) pour des énergies (650 et 1000 eV) et distances d différentes (100 et 150 mm), à courant de faisceau constant (BC=60 mA) (b) pour des énergies différentes (400, 500 et 650 eV) à 150 mm de distance et tension de la grille accélératrice constante (AV=600 V) (c) pour différentes distances de 80 à 200 mm (BV=650V, BC=60 mA, AV=600 V, AC=2mA). La courbe continue correspond à la modélisation par une gaussienne dont l'écart-type s est fourni sur le graphique. Neutraliseur allumé dans tous les cas (courant d'électrons à 200% du BC). Débit d'Argon de 8 sccm (4 sccm pour la source et 4 sccm pour neutraliseur) et pression de 1.4×10^{-4} mbar. Pour chaque graphique, les courbes ont été réalisées dans les mêmes conditions l'une à la suite de l'autre. Pour le graphique (c), on observe une déviation latérale du faisceau due à un léger désalignement des grilles.

² Full Width Half Maximum (FWHM)

Le Tableau 5.3 donne pour un profil parfaitement gaussien les valeurs relatives en fonction de la distance radiale au centre. Pour un profil de courant gaussien et un rayon de $3s$, on prend en compte $\sim 99\%$ du courant total du faisceau et la densité de courant vaut $\sim 1\%$ de sa valeur au centre.

La Figure 5.6 illustre la divergence du faisceau en fonction de la distance à la grille, calculé sur base de la Figure 5.5c et de la relation (5.5) en prenant $\sqrt{2} s$ comme rayon du faisceau. Alors que le procédé de correction de forme (IBF) est réalisé typiquement à une distance de 80 à 100 mm afin de disposer d'un profil de faisceau relativement fin, les érosions pour mesures de rugosité sont réalisées de préférence à plus grande distance (150 mm) afin de garantir une meilleur homogénéité de la densité de courant (et donc de la dose ionique ou de la profondeur érodée) sur la zone centrale de l'échantillon. Ainsi, à une distance de 150 mm et considérant un profil gaussien, la densité de courant à 5 mm du centre du faisceau (zone de mesure pour la rugosité) est de $\sim 99\%$ à 650 eV et de $\sim 97\%$ à 1000 eV de la valeur au centre. Par convention, la distance d renseignée dans ce travail correspond à la distance entre la surface extérieure de la grille accélératrice de la source et la sonde (ou l'échantillon pulvérisé).

Les densités de courant mesurées pour les différentes conditions de pulvérisation utilisées pour cette étude sont reprises en Annexe A.

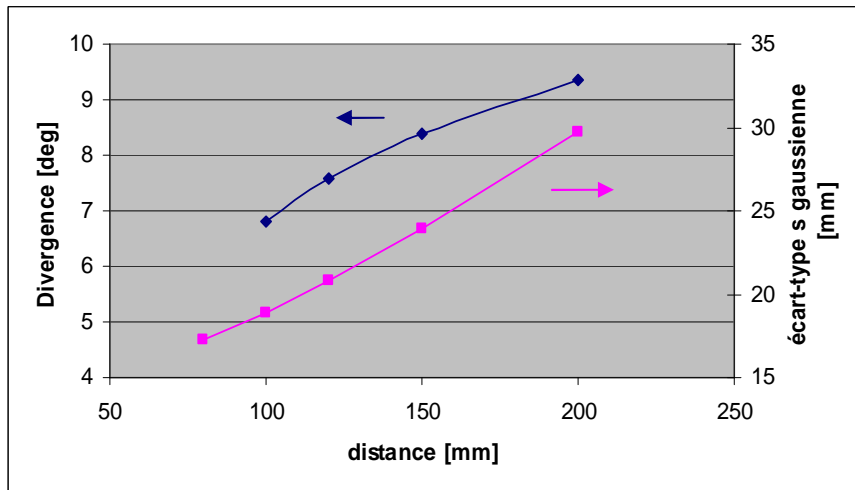


Figure 5.6. Divergence du faisceau en fonction de la distance à la grille de la source ionique (BV=650V, BC=60 mA, AV=600 V, AC=2mA), en prenant $\sqrt{2} s$ comme demi-largeur du faisceau.

5.3.3.3 Influence de la pression et du débit de gaz sur la densité de courant

La pression régnant dans l'enceinte détermine le libre parcours moyen des ions et donc le flux ionique (ou la densité de courant) arrivant sur l'échantillon. La pression dans l'enceinte dépend de la vitesse de pompage et du débit de gaz alimentant la source ionique (et le neutraliseur si présent et utilisé). Cette influence peut devenir non négligeable à une distance de 150 mm ($\sim 10\%$) entre les conditions extrêmes d'utilisation d'une source ionique Kaufman (avec ou sans utilisation du neutraliseur, temps de pompage long ou court) comme illustré à la Figure 5.7.

Le libre parcours moyen λ de particules identiques dans un volume est donné par la relation suivante [5.2]:

$$\lambda = \frac{1}{\sqrt{2}\pi n d^2} \quad (5.6)$$

où d est le diamètre des particules et n est la densité des particules.

Pour l'air à température ambiante, le libre parcours moyen est relié simplement à la pression P par l'expression :

$$\lambda = \frac{6.6}{P} \quad (5.7)$$

où λ est exprimé en mm et P en Pascal.

La théorie cinétique prédit que la probabilité P(x) pour qu'une molécule parcoure une distance x avant de rentrer en collision avec une autre par la relation :

$$P(x) = e^{-\frac{x}{\lambda}} \quad (5.8)$$

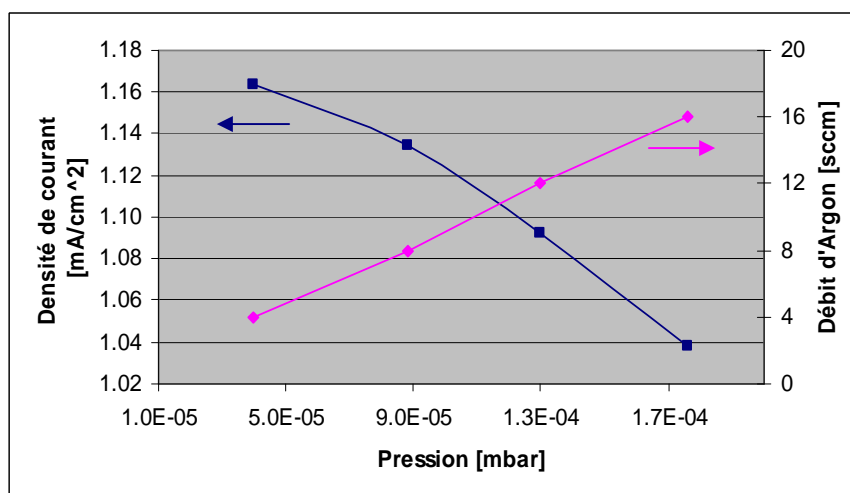


Figure 5.7. Densité de courant au centre du faisceau d'ions (en bleu) en fonction la pression régnant dans l'enceinte. Le débit d'Argon donné (en fuchsia) est le débit total injecté dans l'enceinte (4 sccm pour la source + débit supplémentaire injecté directement dans l'enceinte). Paramètres source Kaufman : BV=650 V, BC=60 mA, AV=600 V, AC= 3 mA. Distance = 150 mm.

5.3.3.4 Estimation de la profondeur érodée et de la vitesse de pulvérisation

La profondeur érodée est obtenue en mesurant la hauteur de la marche créée sur un échantillon témoin partiellement masqué lors de son érosion. Le masque utilisé est en général une bande de kapton adhésif de 2-3 mm d'épaisseur appliquée sur l'échantillon et passant par le centre de celui-ci. L'échantillon est ensuite érodé par le faisceau d'ions centré sur le milieu de la bande « masque » pendant un temps déterminé (par exemple 5 min). Le masque est ensuite retiré et la hauteur de la marche mesurée correspond à la profondeur érodée.

La vitesse de pulvérisation (nm/min) considérée est donnée par le rapport entre la profondeur érodée mesurée et le temps d'érosion.

$$v_0 \approx \frac{\text{profondeur érodée}}{\text{temps d'érosion}} \quad (5.9)$$

Les vitesses de pulvérisation mesurées pour les différents matériaux testés dans cette étude sont fournies en Annexe A. Il est important de noter que cette vitesse n'a du sens que tant que la surface reste lisse. Lorsque sa rugosité devient plus importante, on peut encore considérer le niveau moyen de la surface. Cependant, profondeur érodée et vitesse de pulvérisation perdent de leur sens car on peut aboutir à une surface dont certaines parties s'érodent très vite et d'autres très lentement (comme pour différents grains sur un métal). Dans ce cas, la mesure de la vitesse d'érosion a été réalisée sur un (court) intervalle de temps où la surface restait relativement lisse. La vitesse d'érosion donnée correspond donc à celle qui se produit sur une surface lisse au début de la pulvérisation ionique.

Les échantillons sur lesquels les mesures de rugosité seront effectuées sont pulvérisés de préférence sans masque pour éviter toute contamination de la surface étudiée par celui-ci. La profondeur érodée sur chaque échantillon est obtenu trivialement par (5.9). Dans le cas où un échantillon est érodé plusieurs fois, les profondeurs érodées sont additionnées.

5.3.3.5 Le choix de la profondeur érodée comme variable indépendante

Nous avons fait le choix de présenter l'ensemble des mesures d'évolution de la rugosité en fonction de la profondeur érodée (comme pour les études directement liées à l'usinage ionique) et non du temps ou de la fluence (comme dans beaucoup d'études plus générales). Ce choix nous paraissait le meilleur en raison de l'application technologique visée par ce travail qui est la correction de forme d'optique par faisceau d'ions où la variable importante est la profondeur érodée. Evidemment, la notion de profondeur érodée perd également un peu de son sens pour les surfaces très rugueuses comme expliqué au paragraphe précédent. Le temps est lui une variable naturelle pour décrire l'évolution de la rugosité comme le suggère la théorie d'invariance d'échelle (voir chapitre 4). Mais comme la profondeur érodée est directement proportionnelle au temps de pulvérisation, il s'agit d'une simple mise à l'échelle de l'abscisse (une constante à l'échelle logarithmique) qui ne change rien pour l'analyse des paramètres d'échelle. De plus toutes nos mesures de rugosité exprimées en fonction de la profondeur érodée peuvent être traduites aisément en fonction du temps ou de la fluence par (5.9) et (5.2), la vitesse d'érosion et la densité de courant mesurées au centre du faisceau (J_0) étant fournies pour chaque expérience (voir Annexe A).

A titre d'illustration, la densité de courant ionique dans nos expériences est typiquement d'environ 2 mA cm^{-2} . Cela correspond à une dose ionique de l'ordre de 10^{17} ions cm^{-2} après 1 minute et de l'ordre de 10^{19} ions cm^{-2} après 1 heure.

5.3.4 Caractérisation topographique de la surface

Un échantillon est érodé en une ou plusieurs séquences. Après chaque séquence de pulvérisation ionique, la rugosité de la surface de l'échantillon est mesurée avec un profilomètre optique (voir ci-dessous). Pour chaque échantillon et après chaque séquence de pulvérisation, 10 mesures (au minimum 5 lorsqu'il y a peu de dispersion entre les mesures) sont effectuées dans la zone d'érosion maximum de l'échantillon (en général dans un rayon de 5 mm par rapport à son centre) afin de calculer la valeur moyenne et l'écart-type des statistiques de surface (R_a , R_q , R_z , ...).

La topographie de la surface a parfois été également mesurée au microscope à force atomique (MFA ou AFM pour *Atomic Force Microscope* en anglais) pour les mesures d'évolution de rugosité des surfaces optiques (chapitre 6). Néanmoins, celui-ci ne fut disponible au CSL que dans la deuxième moitié de ce travail. Celui-ci sera par contre largement utilisé pour l'étude des structures spontanées nanométriques abordées au Chapitre 8.

Enfin le microscope à balayage électronique (MEB ou SEM pour *Scanning Electron Microscope* en anglais) fut parfois aussi utilisé pour caractériser la surface à l'échelle

nanométrie (mais il ne permet pas de mesurer la rugosité, du moins sans équipement spécial).

5.3.4.1 Mesures de rugosité au profilomètre optique

Le profilomètre optique utilisé (Wyko RST Plus) est un microscope interférométrique pouvant fonctionner selon 2 techniques interférométriques différentes (voir principe de fonctionnement au chapitre 3): glissement de frange (PSI en anglais pour *Phase Shifting Interferometry*) et cohérence de phase (VSI en anglais pour *Vertical Scanning interferometry*). La résolution verticale et la dynamique de cet instrument est donnée au Tableau 5.4 pour ses 2 modes de fonctionnement.

Mode	Résolution		Dynamique
	1 mesure (nm rms)	Multiples mesures (nm rms)	(μm)
PSI	0.3	0.1	0.16
VSI	3	< 1	500

Tableau 5.4. Dynamique et résolution verticale (exprimée en R_q) du microscope interférométrique Wyko RST Plus [5.3].

Les mesures sont effectuées soit en mode PSI pour les surfaces lisses ($R_q < 10\text{-}20\text{ nm}$) ou en mode VSI pour les surfaces plus rugueuses. Les mesures de rugosité sont effectuées avec l'objectif x10 et/ou x40 en fonction du champ de vue et des dimensions latérales des structures mesurées. Le choix de l'objectif détermine la taille de la zone mesurée et donc, en fonction du nombre de pixels, utilisée, la bande de fréquences spatiales mesurées. Avec l'objectif x40, la résolution latérale de l'instrument est de $\sim 0.5\ \mu\text{m}$. Ces grandeurs importantes sont reprises aux Tableau 5.5 et Tableau 5.6.

	X	Y
Résolution normale (RN)	368	238
Haute résolution (HR)	736	479

Tableau 5.5. Taille en pixel³ des images du profilomètre optique Wyko RST

Objectif	Champ de vue		Fréquence spatiale (X)			Taille pixel (X)	
	Dim x (mm)	Dim y (mm)	Min (μm^{-1})	Max (RN) (μm^{-1})	Max (HR) (μm^{-1})	RN (μm)	HR (μm)
x2.5	2.5	1.9	0.0004	0.074	0.147	6.79	3.40
x10	0.613	0.472	0.0016	0.300	0.600	1.67	0.83
x40	0.153	0.115	0.0065	1.203	2.400	0.42	0.21

Tableau 5.6. Champ de vue, bande de fréquence spatiale et taille du pixel des mesures au profilomètre optique Wyko RST en fonction de l'objectif et de la résolution, normale (RN) ou haute (HR), choisie.

5.3.4.2 Mesures de topographies au microscope à force atomique

L'instrument Easyscan de NanoSurf utilisé dans ce travail est un microscope à force dynamique (MFD ou DFM pour *Dynamic Force Microscope* en anglais) qui fait partie de la famille des microscopes à force atomique (AFM). L'instrument Easyscan peut travailler dans les modes à force statique (mode contact) ou dynamique (mode résonant).

Dans le mode dynamique, le bras de levier est mis en vibration durant le balayage par un élément piézo. Ce piézo oscille avec une amplitude fixe à une fréquence proche de la

³ Notons que les pixels du détecteur ne sont pas carrés mais rectangulaires (rapport Y/X = 1.16).

fréquence de résonance du cantilever. Les changements dans la fréquence de résonance engendrés par l'interaction entre la pointe et la surface sont utilisés pour contrôler la distance pointe-surface. En effet, les forces répulsives agissant sur la pointe vont augmenter la fréquence de résonance du cantilever et donc aussi l'amplitude de sa vibration mesurée par le système de déflexion laser. Cette donnée sert d'entrée à la boucle de rétroaction du système qui garde l'interaction pointe-surface constante en changeant la hauteur de la pointe, ce qui donne la hauteur locale de l'échantillon.

L'instrument utilisé est équipé d'une tête haute résolution qui permet un champ de vue maximum de 10 x 10 μm . La dynamique et la résolution de l'instrument sont reprises au Tableau 5.7. Les domaines de fréquences spatiales pour quelques champ de vue typique sont repris au Tableau 5.8. Pour des images de 512x512 pixels et un champ de 5 μm (champ souvent utilisé dans cette étude), cela donne une résolution latérale de ~ 20 nm.

Champ de vue XY maximum	10.0 μm
Dynamique verticale Z maximum	1.8 μm
Résolution XY des moteurs	0.15 nm
Résolution Z des moteurs	0.027 nm
Résolution sur la mesure dynamique en Z (bruit rms)	0.07 nm rms

Tableau 5.7. Dynamique et résolution de l'AFM Easyscan de Nanosurf pour la tête haute résolution [5.4]

Champs de vue	Fréquence spatiale (X)			Taille pixel	
	Min	Max (RN)	Max (HR)	RN	HR
(μm)	(μm^{-1})	(μm^{-1})	(μm^{-1})	(μm)	(μm)
10	0.1	12.8	25.6	0.039	0.020
5	0.2	25.6	51.2	0.020	0.010
1	1	128	256	0.004	0.002

Tableau 5.8. Champ de vue, bande de fréquence spatiale et taille du pixel des mesures au microscope à force atomique en fonction de l'objectif et de la résolution choisie : 256 pixels en résolution normale (RN), 512 pixels en haute résolution (HR).

5.4 Bibliographie

[5.1] P. Gailly, étude de l'évolution de l'état de surface dans un processus de polissage ionique, TFE DEA sciences physiques, ULg, 1997

[5.2] J. F. O'Hanlon, A user's guide to vacuum technology, 2nd edition, 'A wiley_interscience Publication', 1989

[5.3] Wyko Corporation, Wyko Surface Profilers, Technical Reference guide, Mai 1996

[5.4] Nanosurf AG, EasyScan DFM, Operating Instructions, Version 2.3, 2003

Annexe A. Conditions de pulvérisation

Le Tableau 5.9 fourni les conditions de pulvérisation utilisées pour les différents matériaux testés dans cette étude.

Matériau	Provenance	Chap.	Source	Grille	Masque	Gaz	θ (°)	BV (V)	BC (mA)	AV (V)	AC (mA)	Distance (mm)	J_0 (mA/cm ²)	Vitesse mesurée	Vitesse à 1	
														(nm/min)	(nm/min)	
Ag (PVD) Substrat: quartz	CSL	8	IT3	3 cm		Ar	0	650	60	600	3	100	1.56	705	452	
							50	650	60	600	3	100	1.00	450	449	
							60	650	60	600	3	100	0.78	312	400	
							70	650	60	600	3	100	0.53	165	309	
							80	650	60	600	3	100	0.29	76	265	
							80	900	60	150	3	100	0.54	84	155	
							80	1200	60	100	3	100	0.55	103	188	
							80	650	20	200	1	200	0.04	9	225	
							Ar	0	650	8	350	2	70	0.78	25	32.1
							Ar	0	650	60	600	2	150	1.32	12.2	9.2
Al (placage électroformé)	Media Lario (I) Série de mesures 1999	7	IT3	1 cm		Ar	0	400	8	400	5	70	0.42	50	119	
							0	650	8	350	3	70	0.78	150	193	
							0	900	8	150	1	70	1.08			
							45	400	8	400	6	70	0.30			
							45	650	8	350	2	70	0.55			
							80	400	8	400	5	70	0.07			
							80	650	8	350	3	70	0.14	20.0	148	
							80	900	8	150	2	70	0.19			
							Ar	80	650	60	600	3	100	0.27	20	74
							Ar	75	650	60	600	3	100	0.40	34	84.2
Au (PVD) (substrat: Ni électroformé)	Media Lario (I) Série de mesures 2009	8	IT3	3 cm		Ar	70	650	60	600	3	100	0.53	65	122	
							60	650	60	600	3	100	0.78	225	288	
							55	650	60	600	3	100	0.89	290	324	
							50	650	60	600	3	100	1.00	350	349	
							0	650	60	600	3	100	1.56	270	173	
							80	400	40	600		100	0.15			
							80	1200	60	100	2	100	0.74			

Chapitre 5. Equipements, procédure expérimentale et conditions de pulvérisation

BK7	Fichou	6	IT3	3cm	Ar	0	660	75	200	80		47
BK7	Fichou	6	IT3	3cm	11 mm	Ar	0	500	60	700	3	80+25
CdS		8	IT3	3 cm	Ar	0	650	60	600	3	100	1.56
Ni (dépôt chimique)	Medial Lario (I)	6	IT3	3 cm	Ar	0	650	50	65	100	2.5	245
Ni (dépôt chimique)	Kayser-threde	6	IT3	3 cm	Ar	0	650	65		100	2.5	245
Ni (pulvérisation cathodique)	CSL (dépôt)	6	IT3	3 cm	4 mm	Ar	0	650	50	700	3	80+25
Ni (électroformé)	Medial Lario (I)	8	IT3	1 cm	Ar	0	650	8	350	3	70	0.78
Silice Fondue (SiO ₂)		6	IT3	3 cm	Ar	0	650	60	600	2	100	1.66
			IT3	3 cm	11 mm	Ar	0	650	50	500	2	80+30
Si (100)		6	IT3	3 cm	Ar	0	650	60		150		
SIC CVD (sic-001)	Rohm & Haas (USA)	6	Platar		Ar	0	200	40		150	0.54	4.5
			IT3	3 cm	Ar	0	650	60	600	3	138	1.31
			End-Hall*		Xe	0	~180			150	16	100
			End-Hall*		Kr	0	~180			150	16	125
SIC CVD (sic-002)	Rohm & Haas (USA)	6	IT3	3 cm	Ar	0	200	30	600	2	150	0.14
					Ar		300	40	600	3	150	0.45
					Ar		400	50	700	3	150	0.60
					Ar		500	50	600	3	150	0.78
					Ar		650	60	600	3	150	1.06
					Ar		800	60	500	3	150	1.21
					Ar		1000	60	400	3	150	1.33
					Xe		300	40	600	3	150	2.8
					Xe		650	50	800	2	150	19.0
SIC CVD	CVD: Schunk (D)	6	IT3	3 cm	Ar	0	650	60	700	4	150	1.00
(substrat: CeSiC)	CeSiC: Alcatel (F)		IT3	3 cm	Ar	0	1000	60	400	4	150	1.74
Zerodur	AMOS	6	IT3	3 cm	Ar	0	650	65	250	100		36

Tableau 5.9. Conditions de pulvérisation (source ionique, gaz, angle d'incidence, distance, paramètres de la source, densité de courant mesurée et vitesse de pulvérisation (mesurée et ensuite normalisée pour une densité de courant de 1 mA/cm²) utilisés pour les différents matériaux étudiés. * Paramètres utilisés pour la source end-Hall: Vd=200 V, Id=2.2A, Iint=0.75 A, Iext=0.5 A

La densité de courant J_0 correspond à la densité de courant maximum mesurée au centre du faisceau d'ions par la sonde de Faraday. Elle est toujours mesurée pour un angle d'incidence θ de 0°. Pour les conditions de pulvérisation en incidence oblique, la densité de courant donnée dans le tableau correspond à celle mesurée à 0° multipliée par le facteur $\cos \theta$.

L'énergie du faisceau d'ions pour la source ionique end-Hall a été estimée au moyen d'une sonde de Faraday à 2 grilles sélective en énergie: pour une tension de décharge de 200 V, le maximum de la courbe de distribution en énergie des ions a été mesuré à ~180 eV. Lorsqu'un masque en carbone est placé devant la source (utilisé pour obtenir un faisceau fin dans le cadre de l'usinage ionique), le diamètre du trou du masque est noté dans la colonne « masque ».

Chapitre 6

Mesures d'évolution de rugosité de différents
matériaux optiques

Table des matières

6	Mesures d'évolution de rugosité de différents matériaux optiques.....	6-5
6.1	Introduction	6-5
6.2	Principaux matériaux optiques	6-5
6.3	Les verres	6-5
6.3.1	Verre optique BK7	6-5
6.3.2	Silice fondue.....	6-7
6.3.3	Zerodur	6-8
6.3.4	Conclusions	6-9
6.4	Dépôt chimique de nickel.....	6-9
6.4.1	Introduction	6-9
6.4.2	Le procédé de déposition.....	6-9
6.4.3	Propriétés.....	6-10
6.4.4	Mesures d'évolution de rugosité	6-11
6.4.5	Conclusions	6-13
6.5	Dépôt de nickel obtenu par pulvérisation par faisceau d'ions.....	6-14
6.5.1	Procédure expérimentale	6-14
6.5.2	Résultats	6-14
6.6	Le carbure de silicium (SiC-CVD).....	6-17
6.6.1	Introduction	6-17
6.6.2	Echantillons CVD-SiC de Rohm & Haas	6-18
6.6.3	Echantillons CVD-SiC/CeSiC.....	6-26
6.6.4	Discussion	6-30
6.6.5	Calcul du degré d'amorphisation du SiC CVD.....	6-30
6.6.6	Mesures de diffraction des électrons et des rayons X	6-33
6.6.7	Mesures ellipsométriques	6-33
6.6.8	Conclusions	6-34
6.7	Le silicium.....	6-34
6.8	L'aluminium.....	6-35
6.8.1	Aluminium brut poli.....	6-35
6.8.2	Placage électrolytique d'aluminium.....	6-37
6.9	Comparaison aux lois d'invariance d'échelle	6-38
6.10	Conclusions	6-44
6.11	Bibliographie	6-46
Annexe A.	Mesures de contamination par les optiques ioniques	6-47
Annexe B.	Mesures d'évolution de rugosité sur BK7	6-49
Annexe C.	Test ANOVA.....	6-51
Annexe D.	Mesures BSED et DRX du SiC CVD	6-52

6.1 Introduction

Ce chapitre rassemble l'ensemble des mesures d'évolution de rugosité qui ont été réalisées sur différents matériaux optiques couramment utilisés comme substrats pour les applications d'usinage ionique : un verre (BK7), un verre céramique (Zerodur), le Ni-P (encore appelé kanigen ou « electroless nickel »), le nickel déposé par pulvérisation cathodique, le carbure de silicium en dépôt CVD, le silicium et l'aluminium. Les résultats seront présentés indépendamment pour chaque matériau étant donné leurs spécificités. Les mesures de rugosité sur le verre ont été réalisées principalement dans le cadre de séquence IBF et ont été réalisées avec les paramètres utilisés pour la correction de forme du composant optique. D'autres matériaux, notamment le carbure de silicium, ont fait l'objet d'une étude plus approfondie en faisant varier les conditions de pulvérisation (gaz, énergie).

6.2 Principaux matériaux optiques

Les principaux matériaux utilisés pour fabriquer les optiques (miroirs ou lentilles) de précisions des instruments scientifiques terrestres ou spatiaux sont les verres (Silice fondue, Zerodur, ULE, ...), les métaux (Al, Be, Mo), les céramiques (SiC) ou encore les semi-conducteurs (Si, ZnSe ...). Ces matériaux possèdent en effet des propriétés mécaniques et thermiques intéressantes (voir Tableau 6.1) et peuvent être poli à de faibles niveaux de rugosité. En fonction de l'application et des exigences, le choix se fera sur tel ou tel matériau. Ainsi, ces dernières années, le SiC-CVD a été largement utilisés pour les applications spatiales car, grâce à ses bonnes propriétés mécaniques et thermiques en combinaison avec une faible densité, il offre des facteurs de mérite souvent plus élevés que les autres matériaux.

Matériaux	SiC-CVD	Mo	Al	Be	ULE	Zerodur
Densité ρ (g/cm ³)	3.21	10.2	2.7	1.85	2.20	2.55
CTE α (K ⁻¹ x 10 ⁻⁶)	2.4	5.4	25.0	11.4	0.03	0.15
Conductivité thermique κ (W m ⁻¹ K ⁻¹)	325	134	237	216	1.3	6.0
Module d'élasticité E (GPa)	466	250	76	303	67	90
Distorsion thermique $K\alpha^{-1}$ (Wm ⁻¹ x 10 ⁷)	13.5	2.5	.95	1.9	4.3	4.0
Charge d'inertie $E\rho^{-1}$ (Nmkg ⁻¹ x 10 ⁶)	145	24.5	28.1	164	30.4	35.3
Stress thermique $\kappa\alpha^{-1}E^{-1}$ (WmN ⁻¹ x 10 ⁻⁴)	2.9	1.0	1.25	.63	6.4	4.4

Tableau 6.1. Comparaison des propriétés physiques de matériaux utilisés comme substrats de miroirs.

6.3 Les verres

6.3.1 Verre optique BK7

Nous nous intéressons ici à un verre optique très populaire: le BK7. Les principaux constituants du BK7 sont le SiO₂ (69%), le B₂O₃ (10.1%), le Na₂O (8.8%) et le K₂O (8.4%). Il possède une excellente résistance chimique (aux acides).

Les verres en général sont connus pour exhiber peu de modifications de leur état de surface avec la pulvérisation ionique (voir chapitre 4). L'augmentation de la rugosité du BK7 et des verres en général est principalement due à l'apparition de trous ou de griffes qui sont attribués à des défauts présents en surface du verre et révélés par l'érosion ionique [6.1]. Nous illustrons ci-dessous l'évolution typique de la surface de BK7 pulvérisée à différentes profondeurs, ainsi que des défauts particuliers qui peuvent apparaître en raison de contaminations par la source ionique (voir Annexe A) ou en fonction de l'origine du BK7 (voir Annexe B).

Des tests ont été réalisés sur une lame en BK7 de 200 mm de diamètre¹. La source ionique était ici munie d'un masque en graphite pour disposer d'un faisceau fin en vue de la correction de forme d'un miroir en BK7 pour diffractomètre X. La texture de la surface n'est pas modifiée (voir Figure 6.1). On remarque par contre l'apparition de pics et de trous. Certains défauts ont parfois la double nature pic/trou (Figure 6.1d). Certains de ces pics sont attribués à des projections des grilles de la source ionique (et aussi du masque en carbone si utilisé). Cette contamination en carbone de la surface a été confirmée par une analyse chimique² (SIMS et XPS) de protubérances semblables après pulvérisation (sans masque en carbone dans ce cas) d'un échantillon en verre (voir Annexe A). D'autres pics sont quant à eux plutôt attribués à des hétérogénéités du matériau BK7. Leurs dimensions est typiquement de quelques microns de diamètres et de quelques nanomètres à des dizaines de nanomètres de hauteur. Ceci se traduit au niveau des statistiques de surface (voir Tableau 6.2) par une faible augmentation de la rugosité rms (R_q), mais logiquement plus importante de R_z et surtout R_t (points extrêmes). Les pics attribués aux BK7 peuvent être beaucoup plus nombreux sur la surface, comme le montre les résultats illustrés en Annexe B (usinage ionique d'un réseau en volume) sur une autre lame en BK7 d'origine différente.

L'évolution de la rugosité a également été mesurée sur un miroir (pour rayons X) en BK7, d'origine différente³, traités dans les mêmes conditions de pulvérisation ionique que la lame en BK7. L'état de surface initial était moins bon que pour la lame en BK7 (~2 nm rms), mais l'aspect et les statistiques de surface sont restées similaires après pulvérisation ionique de ~0.6 μm (voir résultats en Annexe B). Les pics et les trous qui peuvent apparaître avec la pulvérisation ionique ont moins d'impact dans ce cas sur l'évolution des paramètres de rugosité, étant donné la présence de défauts similaires au départ.

Emplacement sur la lame	Erosion	Ra		Rq		Rz		Rt	
		MOY	ET	MOY	ET	MOY	ET	MOY	ET
		(μm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)
A 50 mm du centre	0	0.87	0.05	1.14	0.09	16.3	4.0	22.8	7.0
	0.6	0.82	0.05	1.12	0.09	20.5	4.6	50.7	24.8
	1.8	0.80	0.15	1.21	0.14	25.5	11.4	82.5	45.5
Centre	0	0.76	0.12	0.97	0.19	10.6	3.6	17.8	6.1
	1.2	0.69	0.02	0.95	0.08	15.4	5.2	68.7	42.5

Tableau 6.2. Statistiques de rugosité avant et après pulvérisation ionique (500 eV Ar⁺, masque en carbone) à différentes profondeur d'une lame en BK7 (dia. 200 mm), mesurées en 2 endroits différents (profilomètre optique, X10). MOY : moyenne, ET : écart-type.

¹ Origine: Fichou (F)

² Ces mesures de contamination ont été réalisées en collaboration avec un laboratoire de l'Université de Mons-Hainaut (Service de Chimie Inorganique et analytique) dans le cadre du projet « polissage ionique II-étude ».

³ Origine: OSMIC (USA)

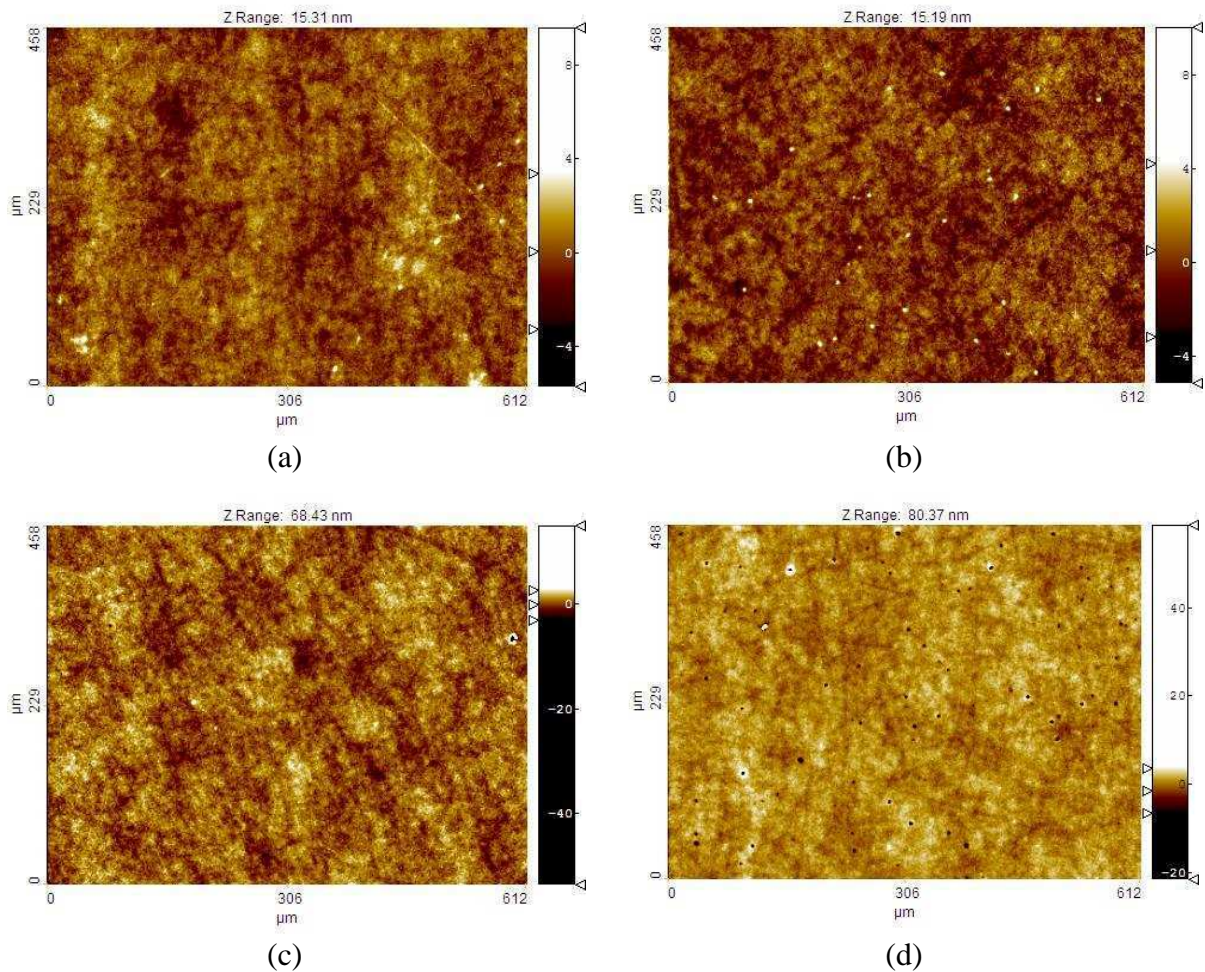


Figure 6.1. Micrographes (profilomètre optique, X10) de la surface BK7 (a) initiale et après (b) 0.6 μm , (c) 1.2 μm et (d) 1.8 μm pulvérisés (500 eV Ar^+ , masque en carbone).

6.3.2 Silice fondue

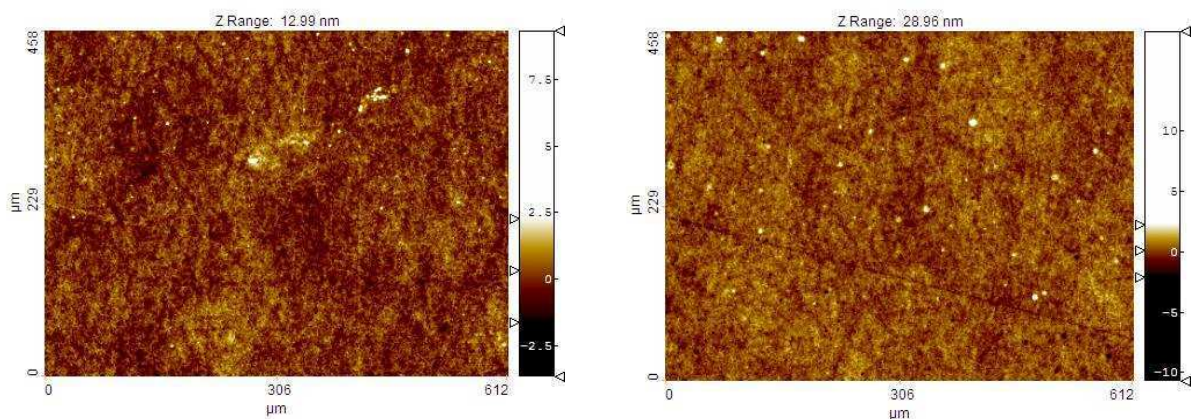


Figure 6.2. Micrographes (mesurés au profilomètre optique, X10) de la surface de silice fondue (a) initiale et (b) après 1.2 μm pulvérisés (650 eV Ar^+).

Les mesures des statistiques de surface sur silice fondue ont été réalisées après de correction des erreurs de front d'onde (IBF) d'un réseau formé de 2 plaques en silice fondue. Une

profondeur moyenne de 1.2 μm a été pulvérisée aux endroits de mesure après pulvérisation ionique. Aucune structure particulière n'apparaît au profilomètre optique. La présence de pics semble très légèrement plus importante après pulvérisation ionique, mais est beaucoup moins marquée que pour les tests sur BK7.

Erosion	Ra		Rq		Rz		Rt	
MOY	MOY	ET	MOY	ET	MOY	ET	MOY	ET
(μm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)
0	0.48	0.04	0.67	0.13	11.5	8.8	25.5	21.0
1.2	0.45	0.10	0.63	0.13	12.2	2.4	30.1	1.8

Tableau 6.3. Rugosité (R_q , R_z) mesurée (au profilomètre optique, obj. X10) sur silice fondue en fonction de la profondeur érodée (650 eV Ar^+). MOY : moyenne, ET : écart-type.

6.3.3 Zerodur

Le zerodur est un verre qui a été conçu par Schott pour être particulièrement insensible aux variations de température (CTE très faible). Du point de vue de sa structure, il est classé dans la catégorie des verres céramiques. Des petites structures cristallines sont ajoutées à son réseau vitreux.

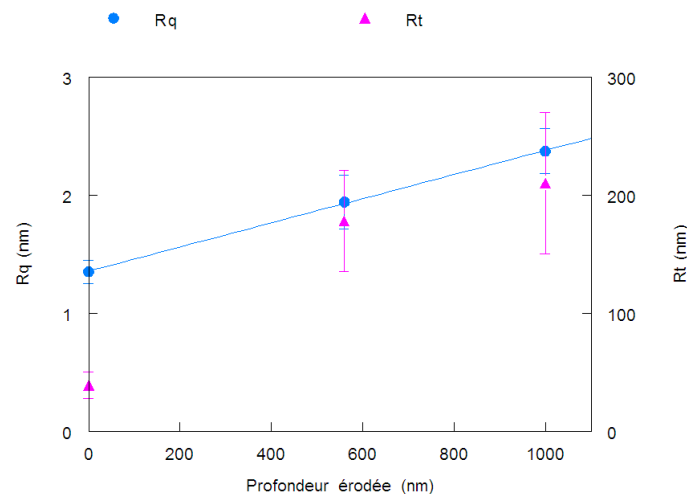


Figure 6.3. Rugosité (R_q , R_t) mesurée (profilomètre optique, X2.5) sur du verre Zerodur en fonction de la profondeur érodée (660 eV Ar^+).

L'augmentation est plus faible sur le deuxième spécimen en Zerodur : $\sim 0.2 \text{ nm rms}/\mu\text{m}$ érodé (Figure 6.4). Il s'agit ici d'un large miroir sphérique de 200 mm de diamètre dont les erreurs de forme ont été corrigées par faisceau d'ions (IBF). Nous nous sommes servis de la cartographie des profondeurs érodées sur le miroir pour réaliser les mesures de rugosité. L'état de surface initial du deuxième échantillon est meilleur que pour le premier, ce qui explique sans doute leurs différences.

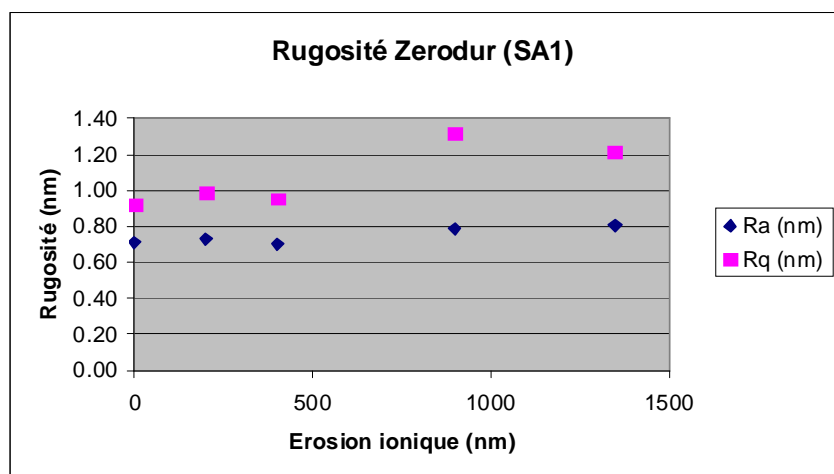


Figure 6.4. Rugosité (Rq) (profilomètre optique, X10) d'un miroir en Zerodur en fonction de la profondeur érodée (650 eV Ar⁺).

6.3.4 Conclusions

Comme dans la littérature, nous ne constatons pas d'augmentation particulière de l'état de surface des verres BK7 et silice fondue avec la profondeur érodée, en raison de la structure amorphe du verre. Les statistiques de rugosité augmentent légèrement (de manière plus importante pour R_q) en raison de l'apparition de griffes ou de trous attribués à des défauts sous la surface du verre révélés par la pulvérisation ionique. L'apparition de pics est également observée, surtout sur le BK7 avec des densités qui varient en fonction de l'origine du verre. Elle est attribuée à des hétérogénéités dans le verre. Certains pics sont également attribués à des contaminations par la source ionique (projection de particules de carbone des grilles de la source ou du masque en carbone souvent utilisé devant la source).

Une autre caractéristique des verres est que la répartition des défauts (sous à la surface) n'est pas homogène sur la surface d'un même échantillon (et donc a fortiori encore plus entre différents échantillons). Cela entraîne une plus grande dispersion des statistiques de surface en fonction de l'endroit mesuré que pour d'autres matériaux.

6.4 Dépôt chimique de nickel

6.4.1 Introduction

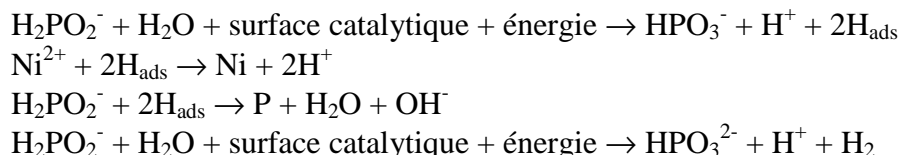
Le dépôt chimique de nickel⁴, appelé aussi dépôt autocatalytique ou encore connu sous sa dénomination commerciale Kanigen®, est un alliage nickel-phosphore obtenu par un procédé de réduction chimique, sans utilisation de courant comme pour le nickel électrolytique. Pour les applications optiques, il est souvent utilisé comme dépôt sur des substrats plus difficile à polir (ex. béryllium) en raison justement de sa facilité à être poli et de sa stabilité dimensionnelle. Les dépôts ainsi obtenus présentent une épaisseur régulière, même sur des surfaces aux formes complexes.

6.4.2 Le procédé de déposition

Le substrat subit d'abord un prétraitement durant lequel celui sera nettoyé, débarrassé de sa couche d'oxyde superficielle et activée pour l'étape d'autocatalyse.

⁴ *electroless nickel* en anglais

Ensuite, le substrat est plongé dans la solution de placage qui contient les ions à déposer (Ni et P) et les agents chimiques pour la réduction de ces ions. L'hypophosphite de sodium comme agent réducteur et le sulfate de nickel comme sel sont le plus couramment utilisés. La réaction chimique se produit sans l'apport de courant extérieur. Si la réaction se produit uniquement sur une surface activée pour la catalyse, une fois le dépôt initié, la nouvelle couche métallique sert elle-même de surface de catalyse pour la couche suivante (d'où le nom d'autocatalyse). Le phosphore est donc introduit dans le dépôt de nickel pour former un alliage dont la composition de phosphore peut varier entre 2 et 14% et peut être ajustée précisément. Cette composition influencera les propriétés du dépôt. Les réactions chimiques partielles qui se produisent durant le dépôt peuvent être décrites comme suit :



Enfin, les dépôts sont soumis à un recuit à faible température (en général inférieur à 200°C) qui a pour but d'améliorer certaines propriétés du dépôt, principalement l'adhésion en augmentant la diffusion entre le dépôt et le substrat.

6.4.3 Propriétés

6.4.3.1 Structure

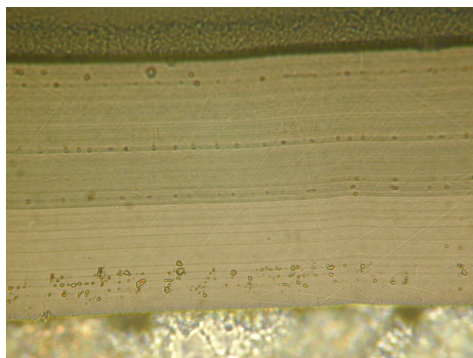


Figure 6.5. Coupe transversale d'un échantillon de dépôt chimique de nickel (Ni-P 8%) observé au microscope optique⁵ (grossissement X62.5).

Le dépôt chimique de nickel est une solution métastable, super-saturée de phosphore dans une matrice de nickel cristallin. Il est généralement considéré que les alliages Ni-P contenant moins de 7% de phosphore (en masse) ont une structure microcristalline et ceux entre 7 et 14% une structure amorphe. Le grain moyen du matériau microcristallin vaut entre 8 et 22 nm. Le dépôt exhibe une structure lamellaire parallèle à la surface du substrat comme on peut le constater à la Figure 6.5. Cette structure est attribuée à la variation de la teneur en phosphore du dépôt générée par de brèves fluctuations du pH de la solution dans l'environnement immédiat du film métallique en croissance. La morphologie de la surface est caractéristique avec une structure en « pavés » avec des crevasses relativement profondes entre ces « pavés ». La hauteur et la profondeur de ces structures est réduite quand la concentration de phosphore augmente.

⁵ Mesuré à l'AMTT (Austrian Material Technology Testhouse)

6.4.4 Mesures d'évolution de rugosité

6.4.4.1 Mesures d'échantillons de dépôt chimique de nickel sur aluminium

Les échantillons ont été fournis par la société italienne Media Lario qui réalise notamment des miroirs X. Ces tests étaient effectués dans la perspective de corriger la forme par faisceau d'ions la forme de mandrins recouverts de nickel déposé chimiquement et qui rentrent dans le procédé de fabrication de miroirs X en nickel (voir chapitre 7). Le diamètre des échantillons était de 20 mm. La rugosité de l'aluminium avant le dépôt était de $Ra \sim 10$ nm. Ils ont tous reçus un dépôt de nickel de $200 \mu\text{m}$ et ont ensuite été polis à un niveau moyen de rugosité (de 10 à 30 nm rms). Par contre, l'épaisseur finale de la couche de nickel est inconnue.

Les échantillons furent exposés à un faisceau d'ions argon de 650 eV. L'évolution de la rugosité rms de l'échantillon le moins rugueux au départ est présentée à la Figure 6.7. Des micrographes de la surface initiale et après 0,8, 2 et 4 μm érodés sont illustrées à la Figure 6.6. On constate peu d'évolution jusqu'à $\sim 1 \mu\text{m}$, ensuite à 2 μm l'apparition de structures parallèles qui s'accroissent encore à 4 μm . La rugosité rms traduit l'apparition de ces structures avec une rugosité rms stable autour de 9 nm jusqu'à 1.2 μm puis augmentant à ~ 15 nm après 4 μm érodés (objectif x40).

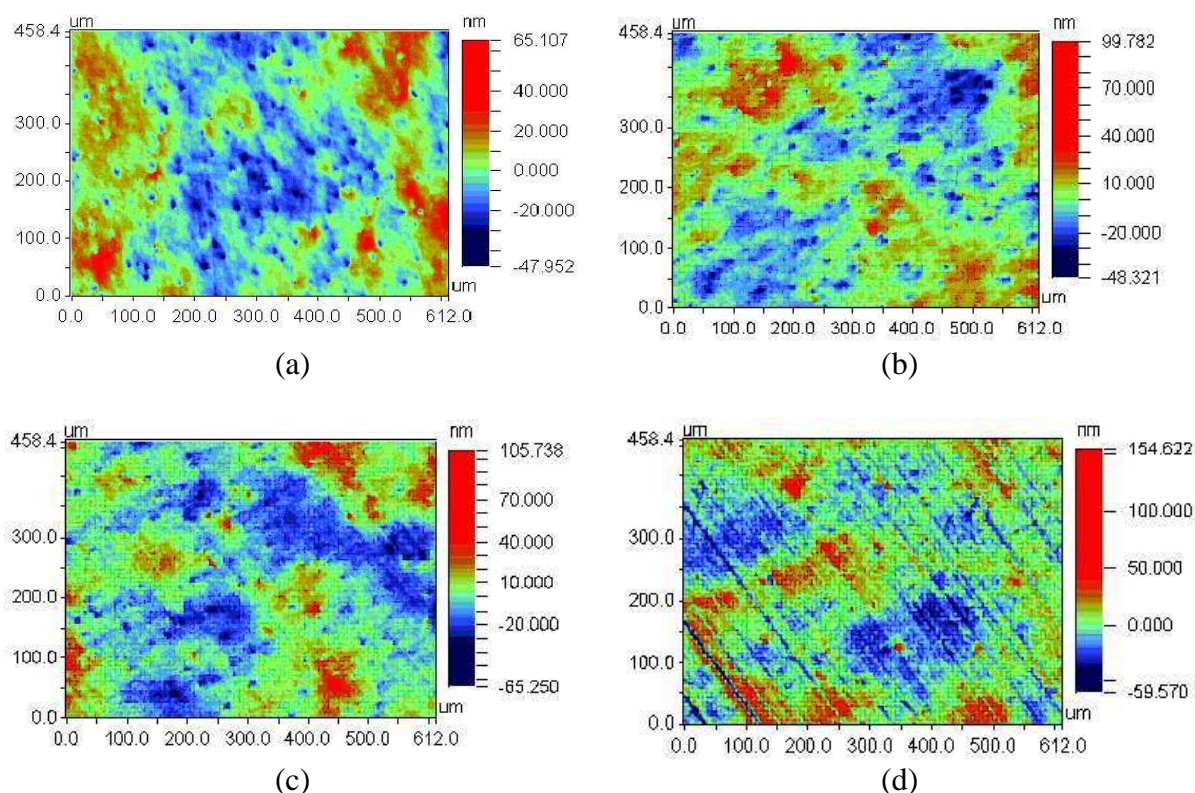


Figure 6.6. Micrographes (mesurés au profilomètre optique, X10) de la surface (a) initiale du dépôt chimique de nickel, (b) après 0,8 μm , (c) 2 μm et (d) 4 μm de nickel pulvérisés (650 eV Ar^+).

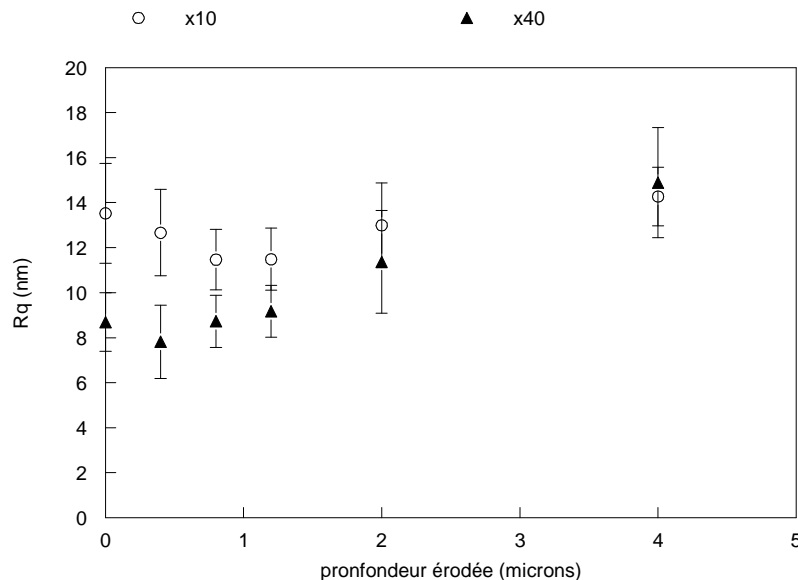


Figure 6.7. Rugosité rms (R_q) mesurée (profilomètre optique, X10 et X40) sur un dépôt chimique de nickel sur substrat aluminium en fonction de la profondeur érodée (650 eV Ar^+).

6.4.4.2 Mesures lors de l'asphérisation d'un miroir sphérique Au/Ni/Al

Les mesures suivantes ont été réalisées lors de l'asphérisation (parabolique) (correction de forme) par faisceau d'ions d'un miroir sphérique⁶. Le miroir est constitué d'un substrat en aluminium, d'un dépôt chimique de nickel (Kanigen®) et d'une couche mince d'or (100 nm). Un faisceau d'ions argon de 650 eV (BC=65 mA, distance 100 mm) a été utilisé pour les différentes étapes d'usinage ionique résumées au Tableau 6.4.

Étapes	Profondeur de nickel érodée [μm]	Ra (nm)	Rq (nm)	Rt (nm)
Initial	0	1.07 ± 0.05	1.34 ± 0.05	107
Après enlèvement de l'or	0.35	1.07 ± 0.02	1.34 ± 0.02	153
Après érosion du profil sur le nickel	0.75	1.01 ± 0.07	1.32 ± 0.12	203
Après asphérisation sur le nickel	2	1.22 ± 0.02	1.56 ± 0.03	467

Tableau 6.4. Evolution des statistiques de rugosité (profilomètre optique, X10) après chaque étape de l'asphérisation (650 eV Ar^+).

⁶ Origine: Kayser-Threde (D)

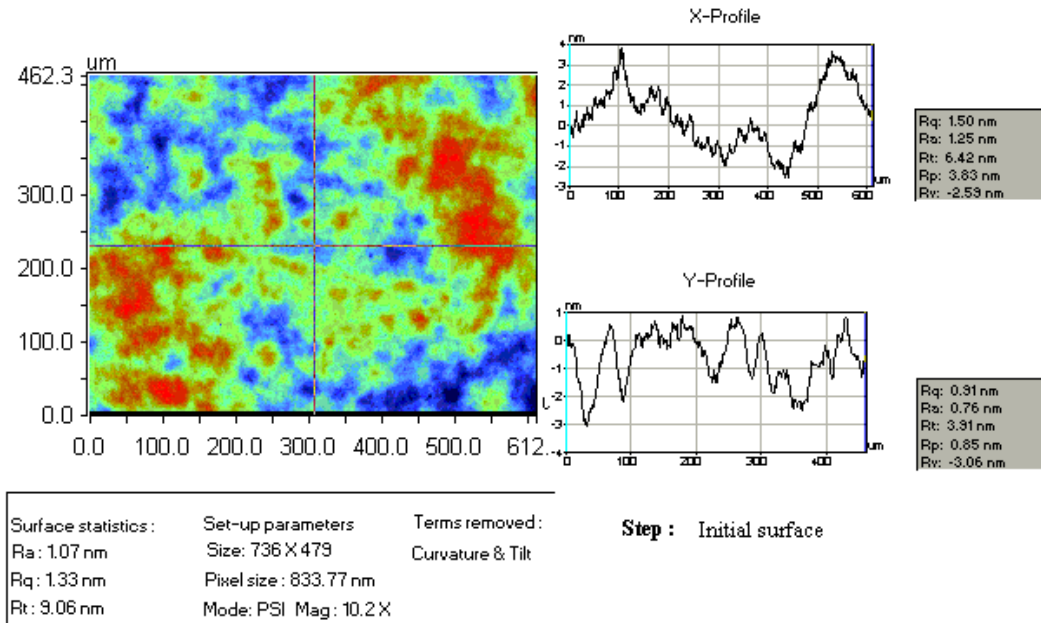


Figure 6.9. Surface du dépôt chimique de nickel initiale (profilomètre optique, X10)

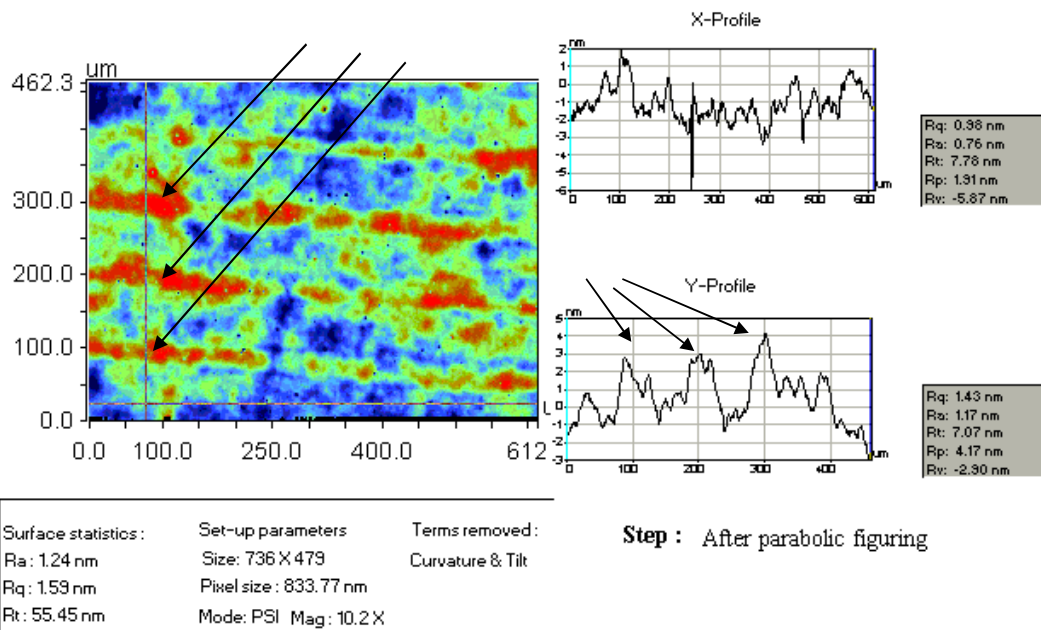


Figure 6.10 Surface du dépôt chimique de nickel (profilomètre optique, X10) après pulvérisation de 2 microns (650 eV Ar⁺).

6.4.5 Conclusions

La rugosité du dépôt chimique de nickel n'augmente quasiment pas lors de la pulvérisation ionique, de par la structure amorphe de ce matériau. Cependant des défauts sont apparus (fissures, sillons) sur nos échantillons après plusieurs microns pulvérisés. L'origine de ceux-ci n'a pu être clairement démontrée, mais pourrait être attribuée à l'influence du substrat aluminium, même si le dépôt est beaucoup plus épais que la profondeur pulvérisée. Une autre étude [6.2] sur ce matériau a en effet montré l'influence de l'état de surface du substrat aluminium sur la qualité de la croissance du dépôt chimique de nickel (voir résumé au

paragraphe 4.2.2.2 du chapitre 4). Ces structures dans le dépôt, masquées en surface par le polissage mécanique, peuvent à nouveau ressortir lors de la pulvérisation ionique.

6.5 Dépôt de nickel obtenu par pulvérisation par faisceau d'ions

6.5.1 Procédure expérimentale

En vue de corriger les erreurs de front d'onde de l'ensemble d'un dispositif optique, la forme d'un miroir en aluminium a été corrigée par usinage ionique (voir Figure 6.11). Le miroir a été tout d'abord recouvert d'un dépôt de nickel par pulvérisation par faisceau d'ions. Ce travail nécessitait en effet la pulvérisation d'une épaisseur importante (~2 microns), ce qui rendait l'usinage direct de l'aluminium impossible vu l'augmentation très importante de la rugosité de ce matériau dès les premières centaines de nanomètres pulvérisés (voir paragraphe 6.8). Les essais de dépôt de nickel par pulvérisation par faisceau d'ions ont montré que l'épaisseur maximale qui pouvait être déposée en une étape était de ~ 1 microns ; une épaisseur plus importante entraînant un délaminage du dépôt. C'est pourquoi le travail d'usinage a été décomposé en plusieurs étapes de dépôt-usinage ionique. Les épaisseurs de nickel déposées et érodées sont résumées au Tableau 6.5. La profondeur érodée est estimée sur base de la simulation de l'usinage ionique, confirmée par les mesures interférométriques avant et après usinage.



Figure 6.11. Miroir en aluminium recouvert d'une couche de nickel déposée par pulvérisation par faisceau d'ions. Le miroir est fixé à un bloc de cuivre refroidi par eau.

	Epaisseur totale de nickel déposée (μm)	Profondeur totale de nickel érodée (μm)
Après 1 ^o dépôt / usinage	1	0.8
Après 2 ^o dépôt / usinage	1.85	1.6
Après 3 ^o dépôt / usinage	2.35	2.1

Tableau 6.5. Résumé des épaisseurs de nickel déposées et érodées aux différentes étapes du travail d'usinage ionique sur le miroir.

6.5.2 Résultats

Comme on peut le constater aux Figure 6.13 et Figure 6.14, les statistiques de rugosités R_q et R_z sont relativement stables, malgré l'épaisseur importante de matière érodée. Aucun changement topographique particulier ne se remarque sur les mesures au profilomètre optique (X4) de la Figure 6.12 (de même que sur celle en X16).

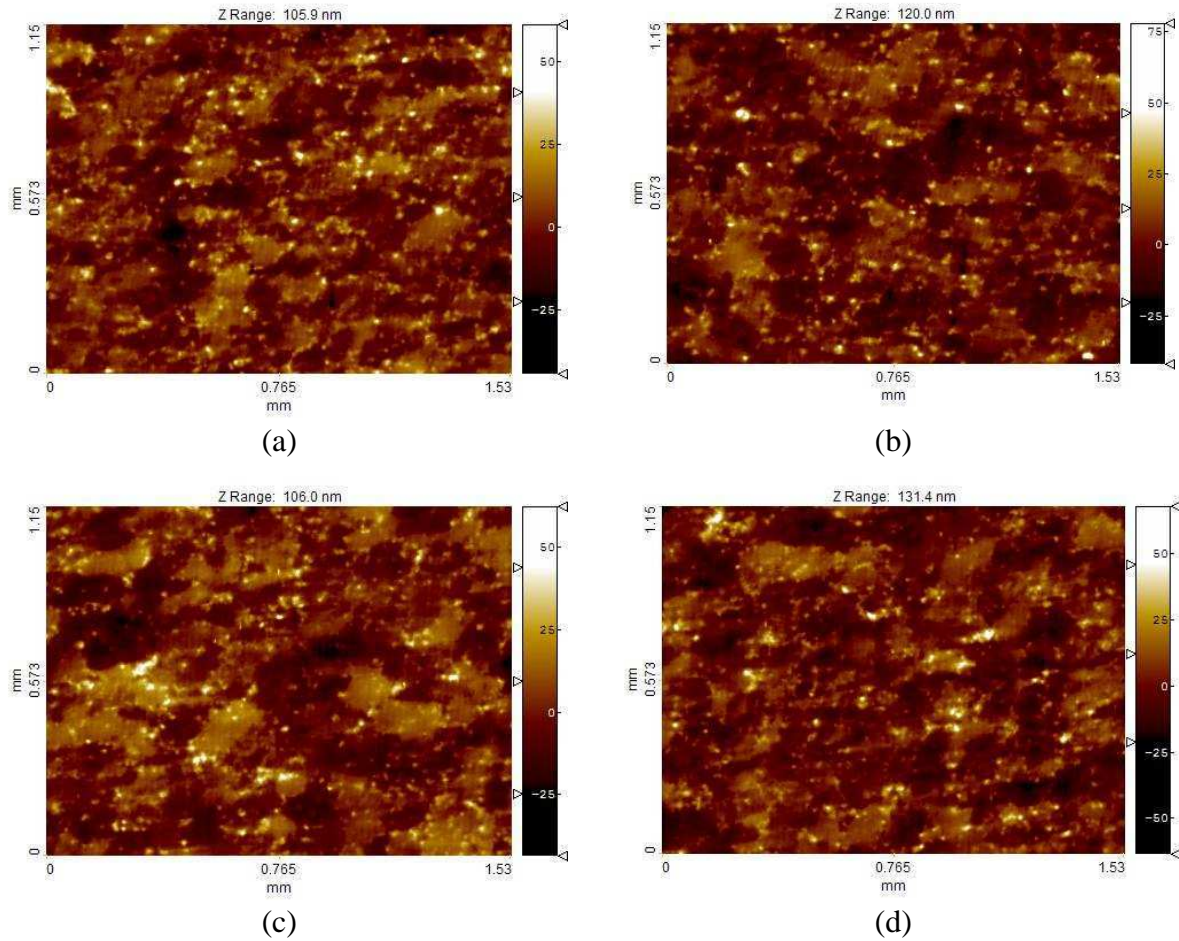


Figure 6.12. Micrographes (profilomètre optique, X4) de la surface (a) initiale du miroir en aluminium, (b) après dépôt d'une couche de nickel de $1\ \mu\text{m}$ d'épaisseur, (c) après maximum $0.85\ \mu\text{m}$ de nickel pulvérisés, (d) après maximum $2.1\ \mu\text{m}$ de nickel pulvérisés ($650\ \text{eV Ar}^+$).

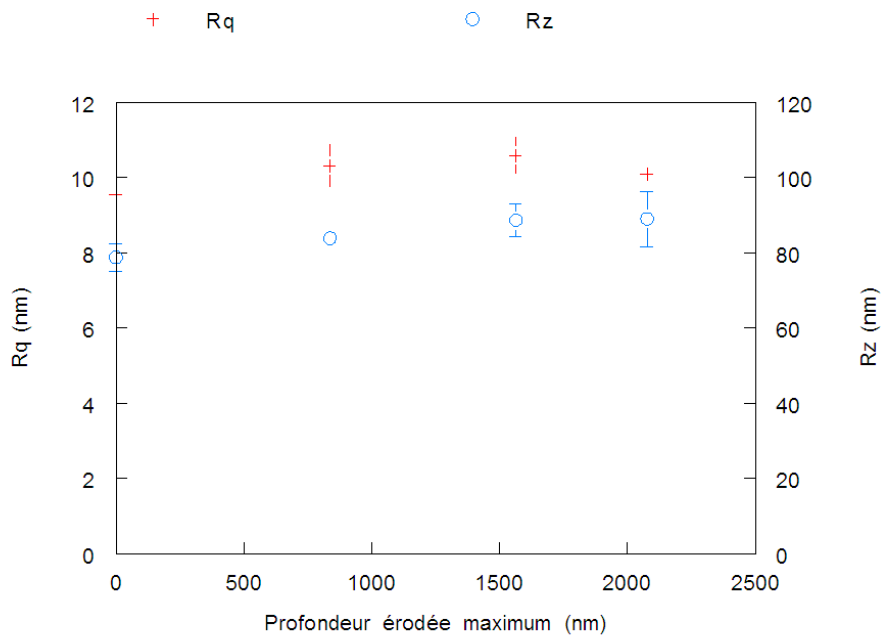


Figure 6.13. Rugosité (R_q , R_z) mesurée (profilomètre optique, X4) sur un dépôt de nickel (déposé par pulvérisation cathodique sur un miroir en aluminium) en fonction de la profondeur érodée ($650\ \text{eV Ar}^+$).

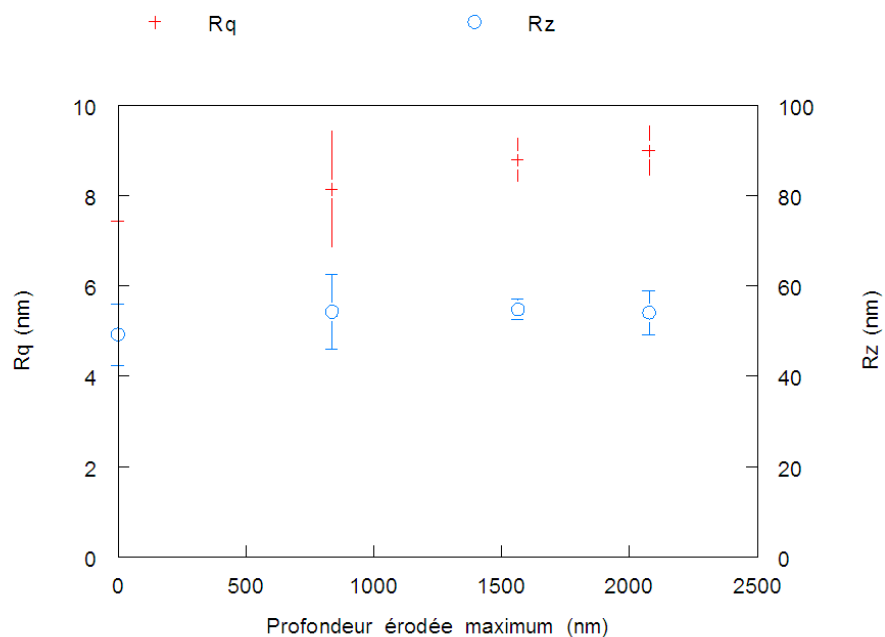


Figure 6.14. Rugosité (Rq, Rz) mesurée (profilomètre optique, X16) sur un dépôt de nickel (déposé par pulvérisation par faisceau d'ions sur un miroir en aluminium) en fonction de la profondeur érodée (650 eV Ar⁺).

6.6 Le carbure de silicium (SiC-CVD)

6.6.1 Introduction

6.6.1.1 Les différentes formes de SiC

Le carbure de silicium est un semi-conducteur qui possède des propriétés mécaniques et thermiques très intéressantes (module de Young, dureté et conductivité thermique élevés). Sa température de décomposition est de 2830°C. Le carbure de silicium pur est produit en nombreux polytypes, aux propriétés légèrement différentes, les plus importants étant :

- 4H -SiC et 6H -SiC, ou α -SiC, hexagonal
- 3C -SiC, ou β -SiC, cubique à faces centrées

Le carbure de silicium (SiC) est un matériau qui est de plus en plus utilisé depuis plus de dix ans dans la fabrication des miroirs pour les lasers haute énergie, les télescopes dans les rayons X ou VUV, les grands télescopes astronomiques, les systèmes optiques des satellites, ...

Le carbure de silicium est un excellent candidat pour les systèmes optique allégés en raison notamment de sa haute rigidité et de sa faible susceptibilité thermique. Ces dernières années, la tendance était de proposer des instruments optiques spatiaux fabriqués complètement en SiC (miroirs et structures) pour obtenir un comportement athermique.

Quatre formes de SiC sont couramment disponibles : pressé à chaud ou fritté⁷, lié par réaction⁸, monocristallin et CVD⁹. Si le substrat du miroir est souvent réalisé dans sa forme « frittée » ou « liée par réaction », celles-ci ne peuvent être que difficilement polies avec des niveaux de rugosité exigés par les systèmes optiques de pointe, en raison de la porosité de ces matériaux (typiquement 1.5 vol.% pour du SiC fritté). C'est pourquoi le substrat est en général recouvert par un dépôt CVD de carbure de silicium (SiC-CVD) qui lui peut être poli à des niveaux extrêmement bas (<0.3 nm rms) et possède de bonnes propriétés optiques. L'ensemble de l'optique peut également être réalisé directement en SiC-CVD. Des miroirs en SiC-CVD pur peuvent être réalisés par fabrication conventionnelle, « près de la forme ¹⁰ » ou par réplication précise [6.3].

Carbure de silicium	Densité (g/cm ³)	Conductivité thermique (W m ⁻¹ K ⁻¹)	CTE 20-1000°C (K ⁻¹ x 10 ⁻⁶)	Module d'élasticité (GPa)	Polissabilité (nm rms)
Monocristallin	3.21	490	---	---	< 3
« Lié par réaction »	3.1	120-170	4.3	391	≥ 20
Fritté	3.2	50-120	4.6	451	≥ 50
CVD	3.21	330	4.0	466	< 3

Tableau 6.6. Comparaison de propriétés importantes de différentes formes de SiC [6.3].

6.6.1.2 Le SiC-CVD sous l'angle de la technique IBF

En fabrication conventionnelle, une pièce de SiC CVD est usinée, mise en forme et polie. Toutefois, le SiC CVD est encore un matériau dur pour ces moyens conventionnels et requiert

⁷ Sintered or Hot Pressed, souvent noté HP-SiC

⁸ Siliconized or Reaction Bonded, souvent noté RB-SiC

⁹ Chemical Vapor Deposited, souvent noté CVD-SiC

¹⁰ near-net-shape

un usinage diamant avec des vitesses de coupe lente. Les dernières étapes de la fabrication du SiC CVD sont donc très lentes et les formes de hautes précisions sont difficiles à réaliser. C'est pourquoi la correction de forme par faisceau d'ions (IBF) d'optiques en (ou recouvertes de) SiC CVD est très intéressante. De plus, par rapport à la technique IBF, le SiC CVD présentent les avantages suivants :

- Sa vitesse de pulvérisation n'est pas très différente des autres matériaux optiques (ce qui n'est pas le cas par usinage conventionnel)
- Les risques liés à l'échauffement du matériau (très important sur le verre par exemple) n'ont pas lieu car le SiC CVD possède une sensibilité thermique très faible.
- L'augmentation potentielle de la rugosité semble faible (voir chapitre 4).

L'intérêt suscité par la correction de forme par faisceau d'ions de SiC CVD fut également partagé par le CSL. Dans le cadre d'un projet, nous disposions également d'un autre type de source ionique (End Hall) que celle utilisée habituellement (Kaufman). La source End Hall utilisée ici est une source d'un diamètre de 7 cm fourni par la société SNECMA. Il s'agit d'un type de source destiné au départ à la propulsion ionique mais qui a été adaptée pour les applications industrielles. Les principales caractéristiques de cette source sont comparées avec celles de notre source Kaufman habituelle au chapitre 5. La source End-Hall travaille à plus basse énergie mais peut fournir un courant ionique beaucoup plus élevé (> 2 A) comparé à une source à grilles (100 mA pour la notre, quelques centaines de mA pour les plus grosses). On peut donc espérer obtenir un gain en vitesse de pulvérisation (et donc de réduction du temps du procédé IBF) très attractif. Il était particulièrement intéressant de tester ce type de source sur le SiC CVD étant donné que ce matériau est capable de supporter le surcroît d'énergie thermique apportée par la source End-Hall (ce qui est plus délicat pour le verre par exemple). Des profils d'érosion typiques de notre source ionique Kaufman et end-Hall mesurés sur le SiC-CVD (Rohm & Haas) sont comparés à la figure 9b du chapitre 2. Le volume de matière érodé (intégration des profils mesurés) était 7.5 x plus élevée avec la source end-Hall qu'avec la Kaufman, bien que la première était loin d'opérer à pleine puissance (~500 W contre 1200 W maximum). Il est cependant à noter que le gain mesuré sur le taux d'ablation entre les 2 types de source ionique était plus important encore sur le verre (BK7) que sur le SiC-CVD.

C'est pourquoi nous nous intéresserons ci-après à l'évolution de la rugosité du SiC-CVD sous l'angle de ces deux types de sources (les caractéristiques du faisceau produit étant assez différentes).

6.6.1.3 Changement de composition sous pulvérisation ionique

Il est également à noter que, étant donné le rendement de pulvérisation préférentiel des atomes de silicium dans le SiC par rapport aux atomes de carbone, la surface du SiC s'appauvrira en silicium jusqu'à ce qu'un équilibre soit établi. Ainsi, pour une concentration initiale de 50-50 % des atomes C et Si, on peut calculer à l'aide la formule (2.21) et des rendements de pulvérisations individuels des atomes dans le matériau (obtenus à l'aide de SRIM, voir Tableau 6.11), la concentration à l'équilibre est de 73 % d'atome C et 27% d'atome Si pour des ions incidents Ar de 500eV.

6.6.2 Echantillons CVD-SiC de Rohm & Haas

6.6.2.1 Structure

La structure (et donc la plupart des propriétés physiques, mécaniques et thermiques du matériau) dépendent des conditions utilisées pour la croissance du SiC CVD. Les

informations fournies ci-dessous sont valables pour le type le CVD-SiC fournis par Rohm and Haas.

Le SiC CVD de Rohm and Haas se présente sous la forme polycrystalline cubique (β) avec des cristallites orientées de manière aléatoire. La Figure 6.15 donne le graphique typique d'une analyse par diffraction X du SiC CVD produit par Rohm and Haas. On y voit que l'intensité relative des pics n'indique pas d'orientation préférentielle. La structure du matériau peut être observée à la Figure 6.16. Le matériau a été au-préalable poli et trempé dans un bain d'hydroxyde de potassium. La Figure 6.16a montre la surface du matériau perpendiculairement à la direction de croissance. La structure en grains est bien visible et le grain moyen a une envergure de 5-10 microns. La Figure 6.16b montre une coupe transversale du matériau (surface parallèle à la direction de croissance) et montre que la croissance est de type colonnaire.

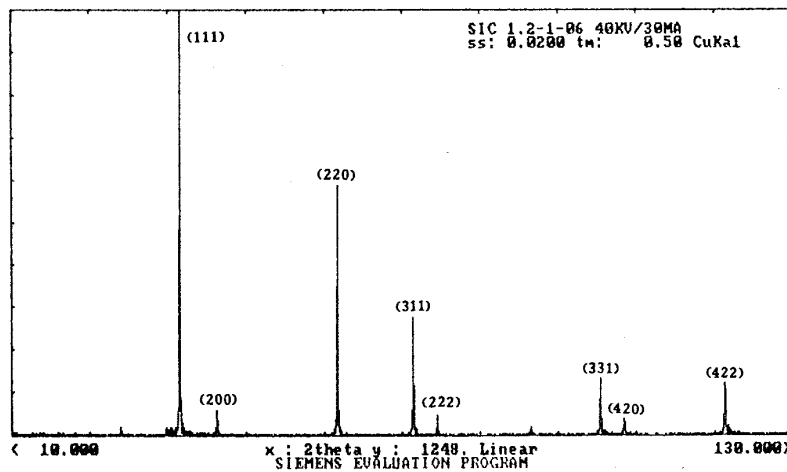


Figure 6.15. Analyse typique par diffraction X du SiC-CVD polycrystallin de Rohm & Haas [6.4].

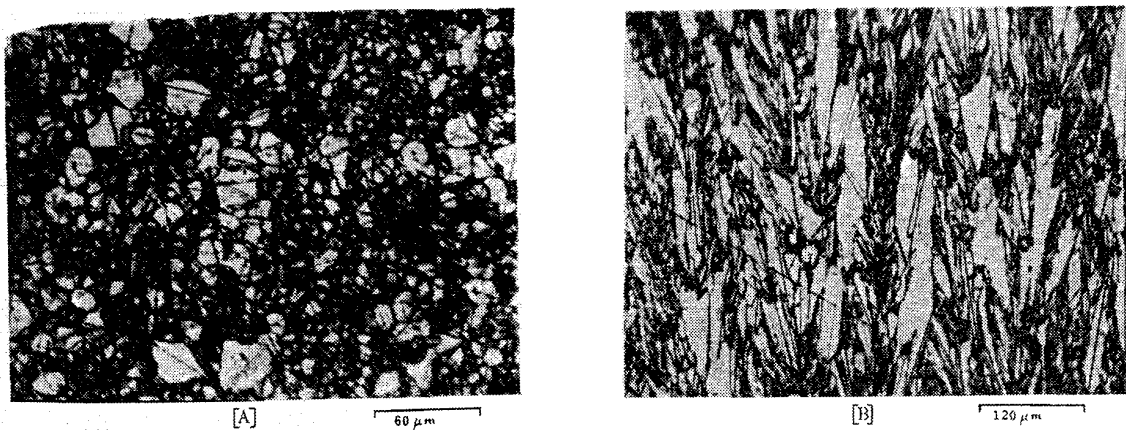


Figure 6.16. Micrographes typiques de la structure du SiC-CVD de Rohm & Haas révélées par attaque chimique (KOH) (a) sur la surface perpendiculaire à la direction de croissance (320X) (b) sur la surface parallèle à la direction de croissance (160X) [6.4].

6.6.2.2 Série d'échantillons 1 (SiC-001)

6.6.2.2.1 Procédures expérimentale

Un disque de 100 mm de SiC-CVD (sic-001) fourni par Rohm & Haas (R&H) fut découpés en 9 morceaux de taille $\sim 33 \times 33 \text{ mm}^2$ afin de constituer les différents échantillons du test.

La source ionique end-Hall fut utilisée pour éroder 3 échantillons avec un faisceau d'ions Xe^+ et 2 échantillons avec un faisceau d'ions Kr^+ jusqu'à une profondeur de 3 μm . Une distribution en énergie du faisceau d'ions centrée sur ~ 180 eV (pour 200V de tension de décharge) et une densité de courant de ~ 16 mA/cm² furent mesurées, avec notre sonde de Faraday, à une distance de travail de 150 mm.

La source Kaufman de 3cm fut utilisée pour éroder un échantillon de même taille jusqu'à une profondeur de 3 μm . L'énergie est ici plus importante (300 eV et 650 eV Ar^+), mais la densité de courant est beaucoup plus faible (0.45 et 1.3 mA/cm² à une distance de 138 mm).

Une autre source Kaufman de 10 cm fut utilisée pour éroder un échantillon de même taille avec une énergie de 200 eV également jusqu'à une profondeur de 500 nm. La densité de courant est du même ordre qu'avec la source de 3 cm (~ 1 mA/cm² à une distance de 150 mm). En complément du chapitre 5 (annexes), les principales conditions expérimentales testées sur sic-001 sont résumées au Tableau 6.7.

Source	gaz	Energie (eV)	Densité de courant (mA/cm ²)	Distance	Vitesse (nm/min)
End-Hall	Xe	~ 180	16	150 mm	100
	Kr	~ 180	16		125
Kaufman 3cm	Ar	300	0.45	150 mm	4.7
		650	1.3	138 mm	33
Kaufman 10 cm	Ar	200	1.0	150 mm	4.5

Tableau 6.7. Principales conditions expérimentales utilisées et vitesses de pulvérisation mesurées sur sic-001 (Rohm & Haas).

6.6.2.3 Mesures d'évolution de rugosité

Comme on peut le constater à la Figure 6.17, la rugosité augmente dans tous les cas, mais avec des différences importantes en fonction des différentes conditions d'érosion testées. Cette augmentation est due principalement à la révélation par la pulvérisation ionique de la structure en grains caractéristique de ce type de SiC-CVD, comme on peut le constater aux Figure 6.18 et Figure 6.19.

Les échantillons érodés au moyen de la source end-Hall montrent tous une augmentation importante de leur rugosité, que ce soit avec des ions Xe^+ ou Kr^+ .

Les échantillons érodés au moyen de la source Kaufman 3 cm montrent une augmentation beaucoup plus faible, que ce soit à faible énergie (300 eV) ou à énergie plus élevée (650 eV).

Cette augmentation moins rapide de la rugosité se comprend en observant les topographies de la Figure 6.19 : après 0.5 μm érodés, les grains sont peu révélés avec la source ionique Kaufman 3 cm (c-d) alors qu'ils le sont beaucoup plus avec la source end-Hall (a).

Par contre, l'échantillon érodé avec la source Kaufman 10 cm (200 eV Ar^+ , soit une énergie comparable au ~ 180 eV du pic de distribution la source end-hall), exhibent des grains bien révélés et une augmentation plus importante de la rugosité (b), de manière similaire à ceux érodés avec la source end-Hall. Malheureusement, cet échantillon n'a pas pu être érodé au-delà de 0.5 μm .

Ces résultats montrent que le type d'ions (Xe^+ , Kr^+ ou Ar^+) est un facteur modifiant l'évolution de la rugosité, mais il est certainement loin d'être le seul. L'énergie des ions semble également jouer un rôle vu l'augmentation plus rapide et importante de la rugosité à 200 eV qu'à 300 ou 650 eV pour les pulvérisations avec des ions argon. D'autres facteurs diffèrent également entre les sources ioniques utilisées et pourraient expliquer la différence de comportement: la distribution de l'énergie dans le faisceau, la densité de courant ou la

distribution angulaire des ions. Une plus grande dispersion en énergie dans le cas de la source end-Hall devrait en effet engendrer des différences de vitesse de pulvérisation plus importantes.

Ces résultats sur cette première série d'échantillons en carbure en silicium CVD ont fait l'objet d'une publication [6.8]

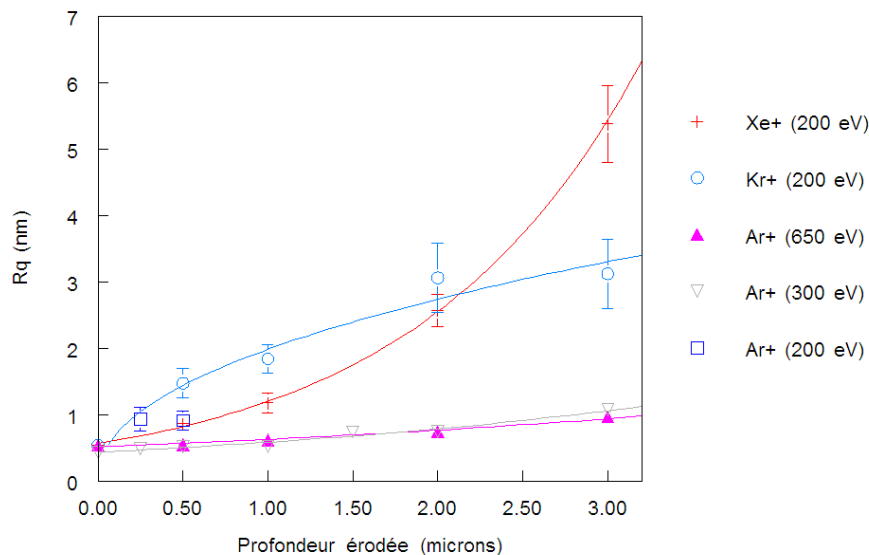


Figure 6.17. Rugosité rms (R_q) mesurée (profilomètre optique, X10) sur les échantillons SiC CVD de R&H en fonction de la profondeur érodée pour différents gaz (Argon, Krypton, Xénon) et énergies. Courbe continue: modélisation par une fonction exponentielle pour Xe^+ ($0.56 e^{0.76x}$), $300 eV Ar^+$ ($0.51 e^{0.20x}$), $650 eV Ar^+$ ($0.56 e^{0.30x}$), une fonction de puissance pour Kr^+ ($1.98 x^{0.46}$).

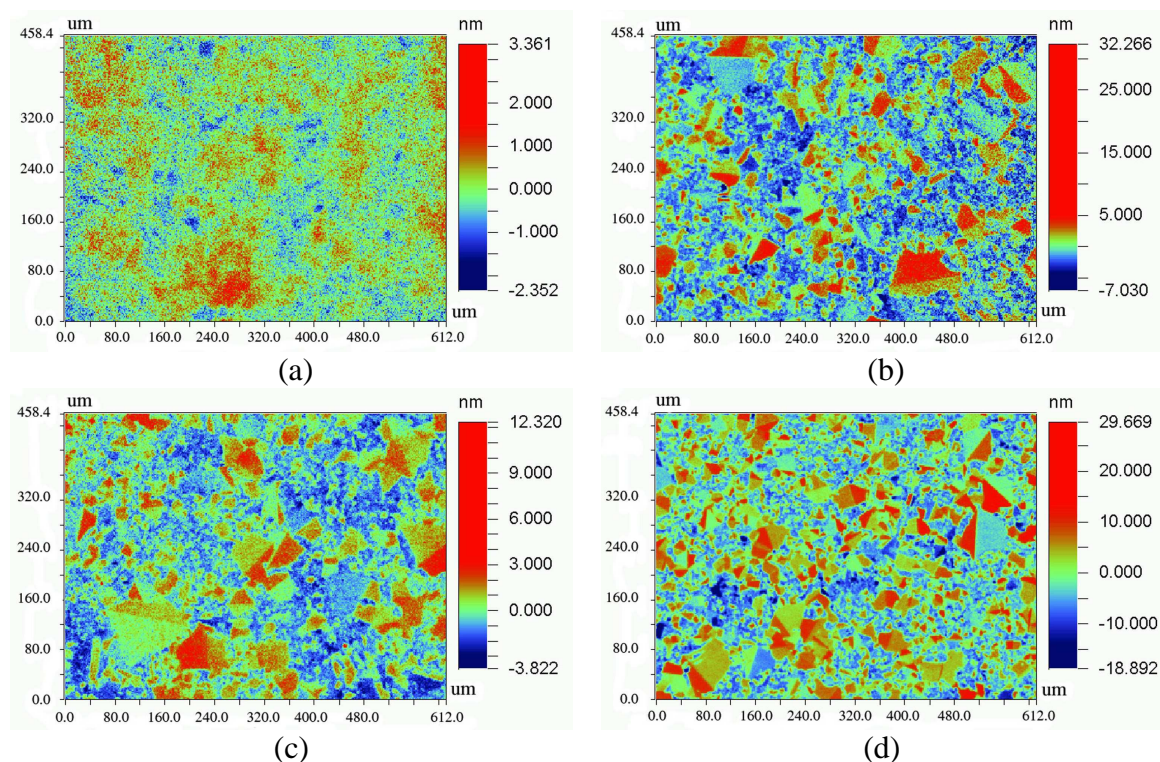


Figure 6.18. Micrographes (profilomètre optique, X10) de la surface SiC CVD pulvérisée par la source ionique end-Hall ($\sim 180 eV Kr^+$ ou Xe^+): (a) surface initiale, (b) après $1 \mu m$ pulvérisé par un faisceau Kr, (c) après $1 \mu m$ pulvérisé par un faisceau Xe, (d) après $3 \mu m$ pulvérisés par un faisceau Xe.

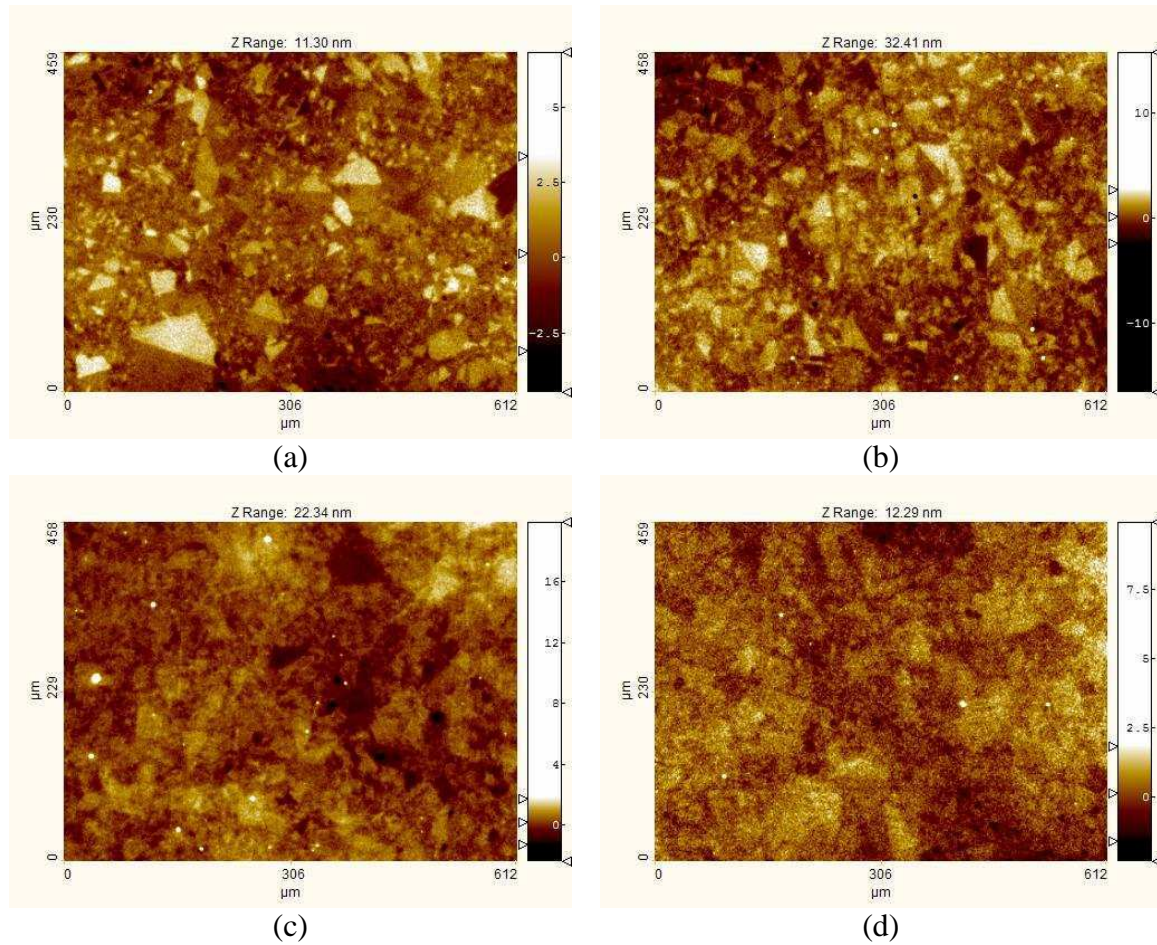


Figure 6.19. Micrographes (profilomètre optique, X10) de la surface SiC CVD après 0.5 μm pulvérisé avec différentes sources ioniques / énergies : (a) end-Hall : ~180eV Xe⁺, (b) Kaufman 10 cm : 200eV Ar⁺, (c) Kaufman 3cm : 300 eV Ar⁺ et (d) Kaufman 3cm : 650eV Ar⁺.

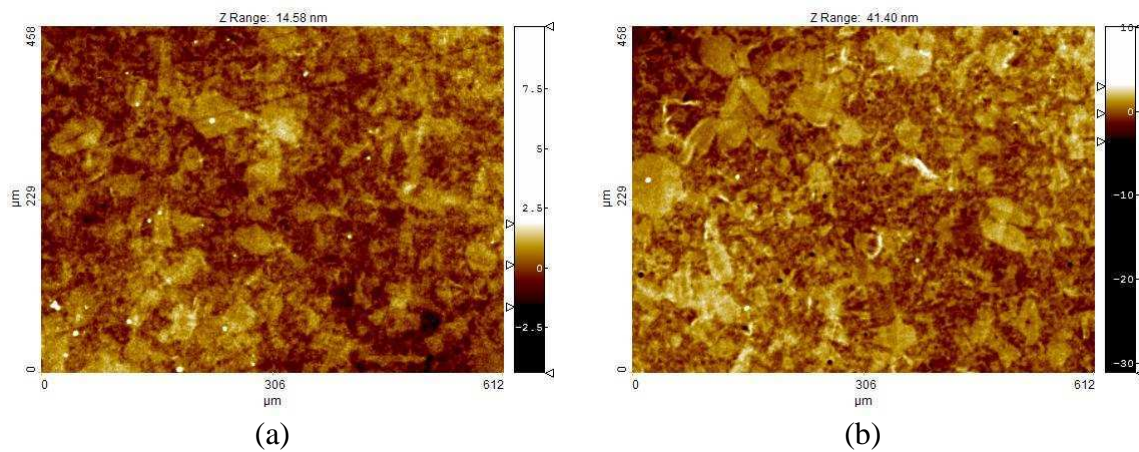


Figure 6.20. Micrographes (profilomètre optique, X10) de la surface SiC CVD pulvérisée par 300 eV Ar⁺ (source ionique Kaufman 3 cm): (a) après 1 μm pulvérisé, (b) après 3 μm pulvérisés.

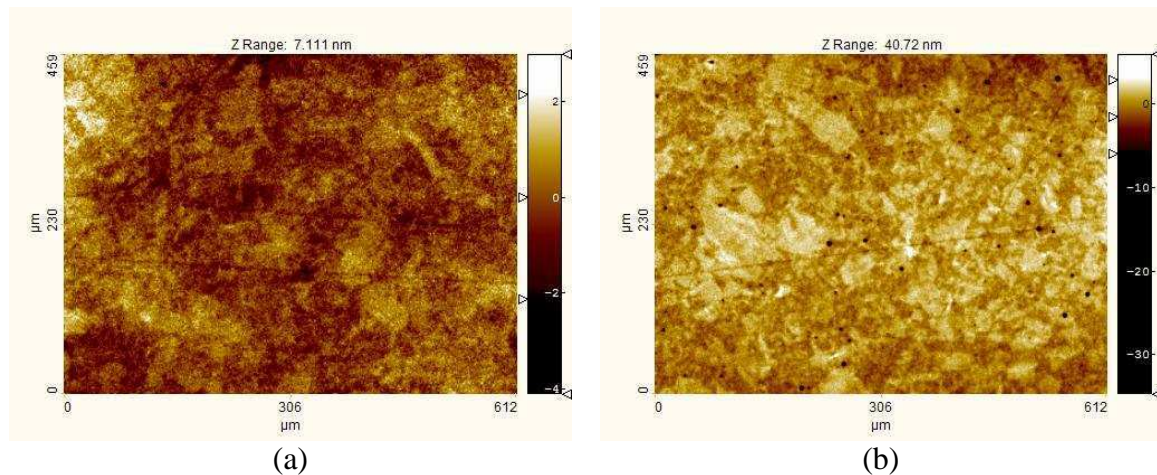


Figure 6.21. Micrographes (profilomètre optique, X10) de la surface SiC CVD pulvérisée par 650 eV Ar⁺ (source ionique Kaufman 3 cm): (a) après 1 μm pulvérisé, (b) après 3 μm pulvérisés.

6.6.2.4 Série 2 de Rohm & Haas (SiC-002)

Afin de confirmer et d'évaluer l'influence de l'énergie sur l'évolution de la rugosité, une nouvelle série d'échantillons ont été pulvérisés à différentes énergies entre 200 et 1000 eV.

6.6.2.4.1 Procédure expérimentale

Comme pour la série 1, tous les échantillons ont été découpés à partir d'un seul disque de 100 mm en SiC-CVD (sic-002) fourni par Rohm & Haas. La seule différence par rapport à la série 1 de Rohm&Haas est qu'il s'agit ici d'un grade différent de SiC-CVD (sic-002) dont la conductivité électrique a été augmentée (ce qui facilite la métrologie au MEB). Le mode de croissance et par conséquent la structure est en principe identique. 7 échantillons ont été érodés avec différentes énergies de faisceau (200, 300, 400, 500, 650, 800 et 1000 eV). Chaque échantillon a été pulvérisé à différentes profondeurs jusqu'à 3 μm à énergie (0.25 μm, 0.5 μm, 1 μm, 1.5 μm, 2 μm et 3 μm). La source Kaufman 3 cm a ici été utilisée pour toutes les érosions.

6.6.2.4.2 Mesures de rugosité

L'évolution de la rugosité rms en fonction de la profondeur d'érosion et de l'énergie du faisceau est donnée à la Figure 6.22.

Du point de vue topographique, on observe l'apparition d'une structure en grains dont les dimensions latérales augmentent avec l'augmentation de la profondeur érodée. Ceci est vrai pour toutes les énergies, mais de manière moins importante à plus haute énergie. Par contre, la dimension verticale des structures ne semblait pas augmenter. Notons que la taille des grains est bien plus petite pour cette série que pour la précédente.

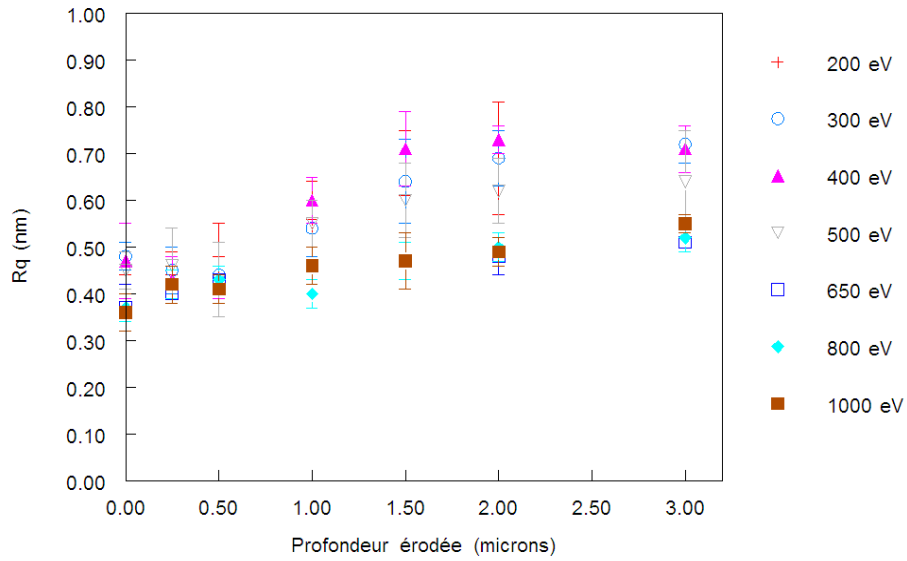


Figure 6.22. Rugosité rms mesurée (profilomètre optique, X40) sur les échantillons SiC CVD de R&H en fonction de l'énergie (650 eV Ar^+).

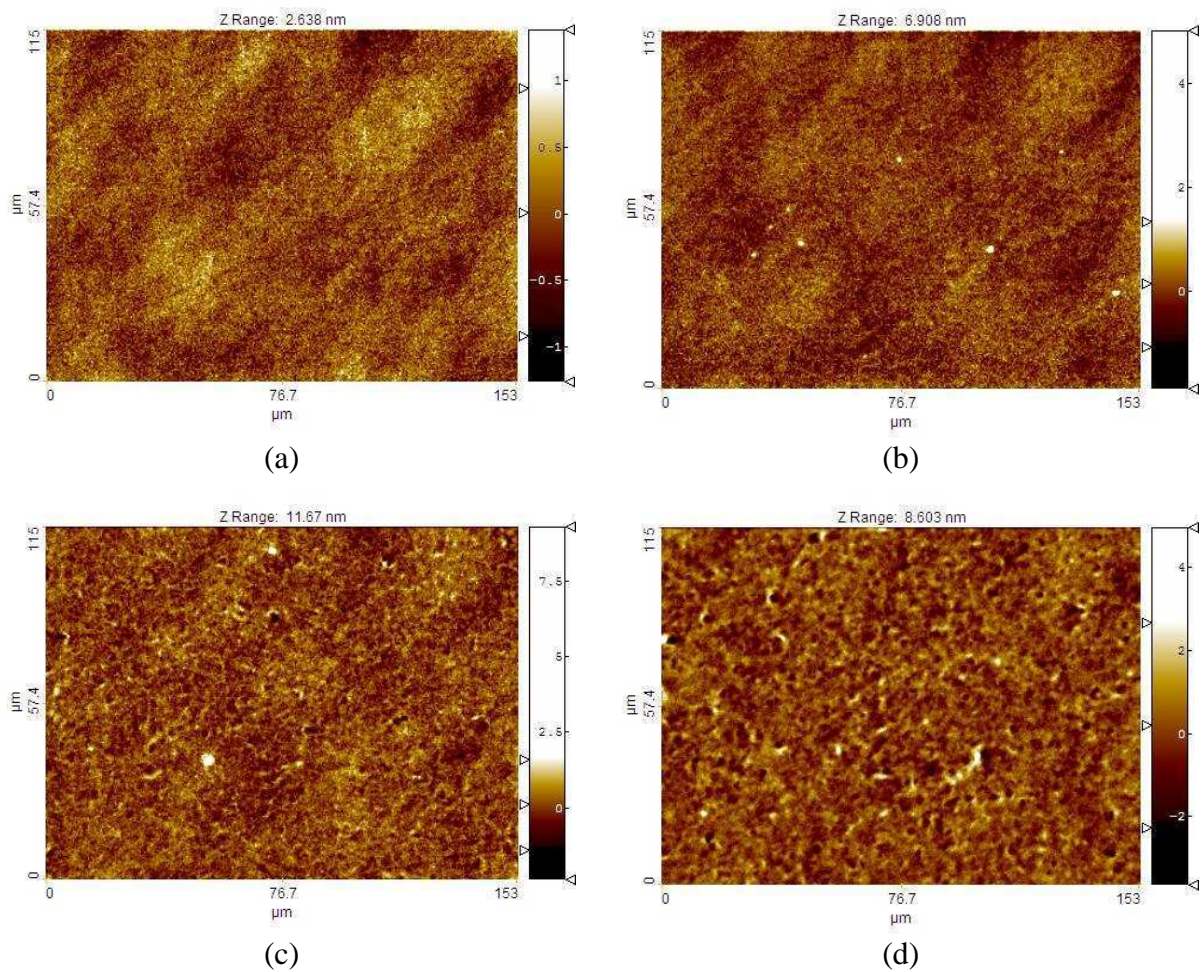
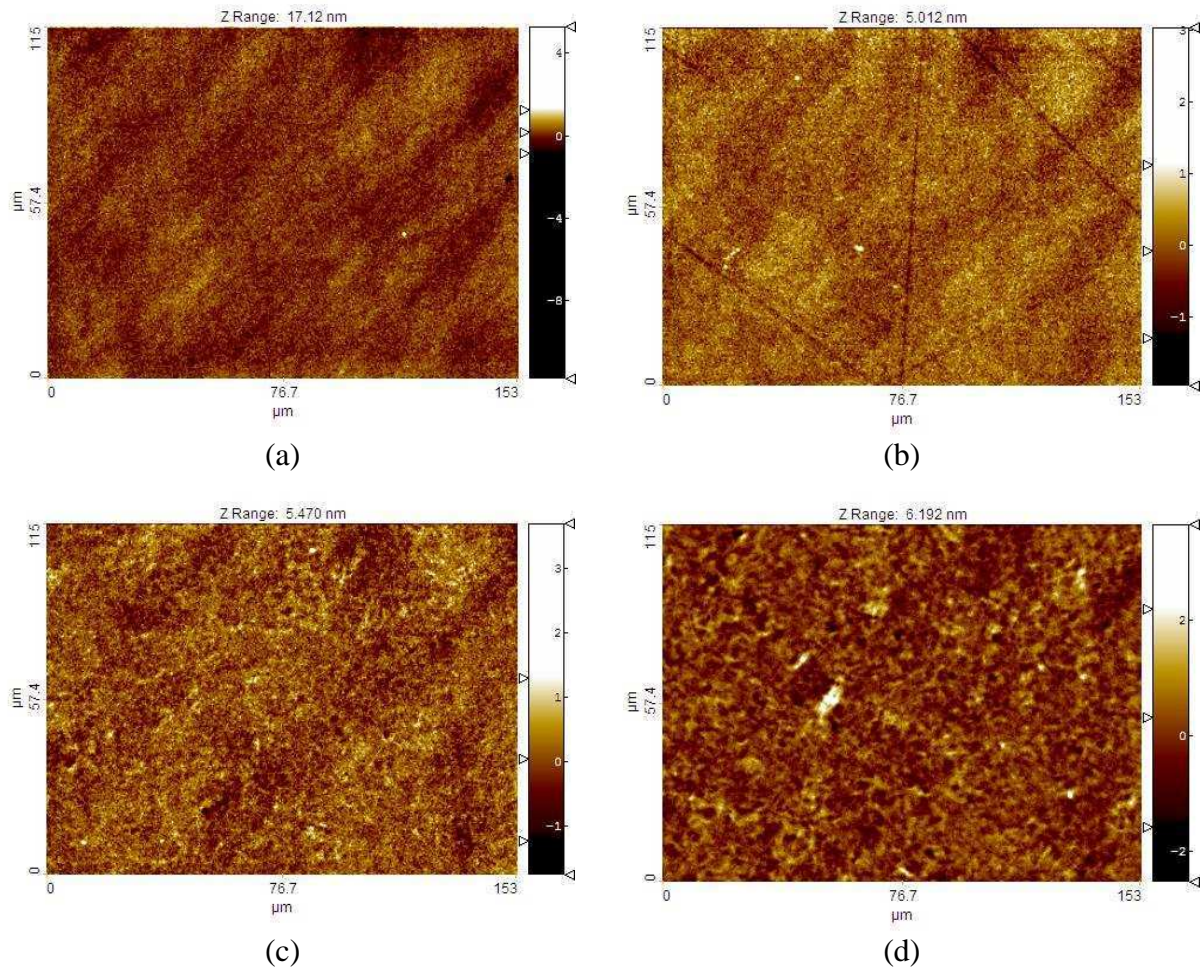


Figure 6.23. Micrographes (profilomètre optique, X40) de la surface SiC CVD (a) après $0.1 \mu\text{m}$, (b) après $0.25 \mu\text{m}$, (c) après $1 \mu\text{m}$ et (d) après $3 \mu\text{m}$ pulvérisés (300 eV Ar^+).



6.24. Micrographes (profilomètre optique, X40) de la surface SiC CVD (a) initiale, (b) après 0.25 μm, (c) après 1 μm et (d) après 3 μm pulvérisés (1000 eV Ar⁺).

Afin de déterminer plus rigoureusement si l'évolution de la rugosité dépend de l'énergie, une analyse statistique ANOVA (voir rappel théorique en Annexe C) a été réalisée sur 3 statistiques de rugosité calculées sur nos mesures: Ra, Rq et Rz. Celle ci montre que pour une profondeur érodée de 2 μm :

- on peut considérer l'ensemble des moyennes des statistiques de rugosité (Ra, Rq, Rz) différentes pour au moins une des énergies testées.
- on peut considérer les moyennes des statistiques de rugosité Ra, Rq, Rz identiques pour le groupe « 200, 300, 400 eV » et pour le groupe « 650, 800, 1000 eV ».
- Les statistiques de rugosité à 500 eV peuvent être considérés différents du groupe « 650, 800, 1000 eV », mais identiques au groupe « 200, 300, 400 eV » pour la plupart des statistiques de rugosité (sauf Ra avec obj. x10).

Mesures comparées (énergie)	Ra		Rq		Rz	
	F _{obs}	F _{th}	F _{obs}	F _{th}	F _{obs}	F _{th}
1000, 800, 650, 500, 400, 300, 200 eV	11.6	2.4	12.8	2.4	8.2	2.4
1000, 800, 650 eV	0.4	3.9	0.2	3.9	0.8	3.9
400, 300, 200 eV	0.5	3.9	0.7	3.9	2.2	3.9
500, 400, 300, 200 eV	0.4	3.2	0.7	3.2	2.0	3.2

Tableau 6.8. Valeurs de F_{observé} et F_{théorique} résultants de l'analyse ANOVA des mesures pour 3 statistiques de rugosité mesurées (Ra, Rq, Rz) avec objectif X40. Les valeurs soulignées et mises en gris indiquent les cas où il y a rejet de l'équivalence des moyennes (F_{observé} > F_{théorique}).

Cette analyse statistique confirme donc l'allure générale de la Figure 6.22 indiquant une augmentation plus importante de la rugosité à faible énergie (200-500 eV) qu'à plus haute énergie (650-1000 eV).

Enfin cette série d'échantillons a également été pulvérisée jusqu'à une profondeur de 2 μm avec un faisceau d'ions xénon à 300 et 650 eV (source Kaufman 3 cm). L'évolution de la texture de la surface était assez similaire aux expériences à l'argon (voir Figure 6.25). Par contre la rugosité a évolué de manière similaire à 300 et 650 eV avec le faisceau d'ions xénon [6.6].

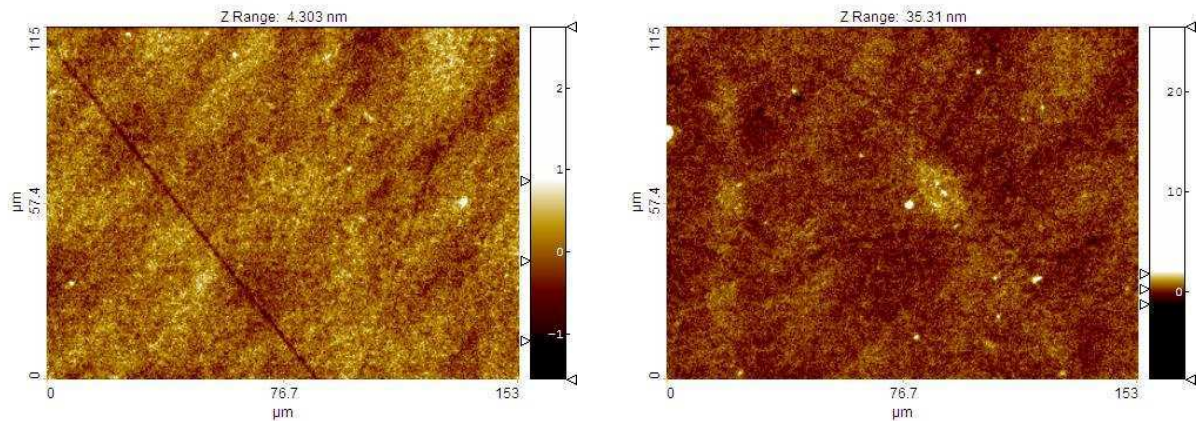


Figure 6.25. Micrographes (profilomètre optique, X40) de la surface SiC CVD après 0.5 μm pulvérisés à 650 eV avec un faisceau d'ions (a) argon et (b) xénon.

6.6.3 Echantillons CVD-SiC/CeSiC

6.6.3.1 Introduction

5 échantillons en Cestic® (dia. 50 mm) recouverts d'un dépôt de SiC CVD ont été fournis au CSL par la société Alcatel-space (France) afin d'étudier de l'évolution de la rugosité.

Le Cestic® est un réalisé par la société ECM (Allemagne). Le Cestic® est une céramique composite constituée de SiC, de Si et de C. Ce matériau est obtenu par la transformation du carbone en SiC, lors de la réaction à haute température de la matrice¹¹ C/C avec le silicium liquide.

Aucune information sur les propriétés du dépôt SiC CVD réalisé par la société Schunk (Allemagne) sur ces échantillons en particulier n'a pu être recueillie. Néanmoins, nous pouvons dire qu'il s'agit à nouveau de SiC CVD sous forme polycristalline cubique (β) avec des cristallites orientés en fonction des conditions de production. Notons ainsi que pour des applications pour les semiconducteurs et les optiques de haute précision (applications exigeant une pureté élevée), des dépôts bi-fonctionnels ont été développé par Schunk avec une orientation d'abord (220), comme barrière de diffusion des impuretés provenant du substrat, ensuite avec une orientation (111), comme barrière anti-corrosive [6.5].

La Figure 6.26 montre les grains sur la surface d'un échantillon CVD-SiC/CeSiC (testé ci-après) mesuré par AFM avant toute pulvérisation.

¹¹ greenbody

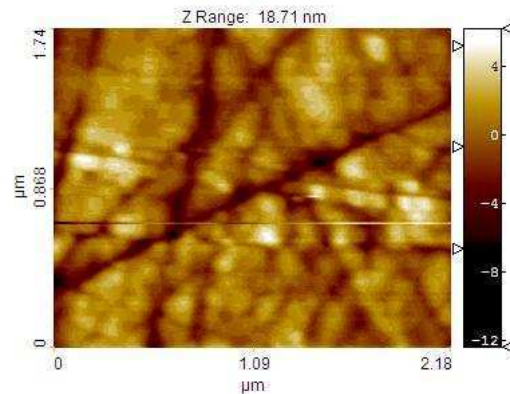


Figure 6.26. Mesure AFM du SiC CVD (sur CeSiC) avant pulvérisation ionique

6.6.3.2 Procédures expérimentale

Les mesures de rugosité ont été réalisées jusqu'à une profondeur érodée de 2 μm et avec 2 énergies de faisceau différentes : 650 eV et 1000 eV. Les profondeurs pulvérisées entre les mesures sur les quatre échantillons sont données au Tableau 6.9.

Appellation échantillon	Energie des ions (eV)	Profondeur érodée (nm)
SiCB	650	0, 70, 1000, 2000
SiCC	650	0, 200, 500
SiCD	1000	0, 200, 500
SiCE	1000	0, 70, 1000, 2000

Tableau 6.9. Profondeur érodée et énergie des ions sur les 4 échantillons testés

6.6.3.3 Résultats

La rugosité des échantillons testés n'augmente pas de manière significative jusqu'à 500 nm, du moins à 1000 eV (voir Figure 6.27). L'échantillon pulvérisé jusqu'à 500 nm à 650 eV (SiCC) présente après érosion de 200 nm et de 500 nm une densité de pics sur sa surface beaucoup plus élevée que les autres échantillons. Cependant cet échantillon présentait initialement une densité plus élevées de "défauts" (trous ou pics) sur sa surface que les autres échantillons. Ceci explique les statistiques de surfaces plus importantes mesurées pour cet échantillon, ainsi que leurs plus grandes dispersions (écart-type élevé).

Au-delà, l'augmentation des valeurs statistiques devient significative (comparé à l'écart-type des mesures) mais limitée à environ 0.1 nm par micron érodé pour R_q (rugosité rms) avec un grossissement X10. Cette légère augmentation de la rugosité est due principalement à l'apparition de griffes sur la surface après 1 et 2 microns érodés. Ces griffes qui sont révélées par l'érosion ionique résultent probablement d'une opération de polissage de la surface. La texture de la surface ne semble quant à elle ne pas avoir changé.

Il n'y a pas de différence importante entre les érosions effectuées à une énergie de 650 eV ou de 1000 eV. Néanmoins nous constatons une "tendance" à des valeurs de rugosité un peu plus faible à 1000 eV qu'à 650 eV, tendance qui devient significative après 2 microns d'érosion. La pente de la droite de régression linéaire des mesures avec grossissement X10 (voir Figure 6.28) est de 0.13 nm rms/ μm pour l'échantillon érodé à 650 eV et 0.07 nm rms/ μm pour celui érodé à 1000 eV.

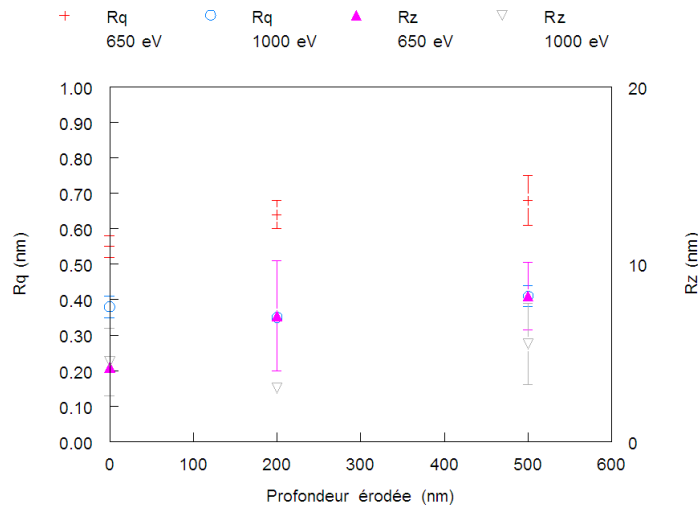
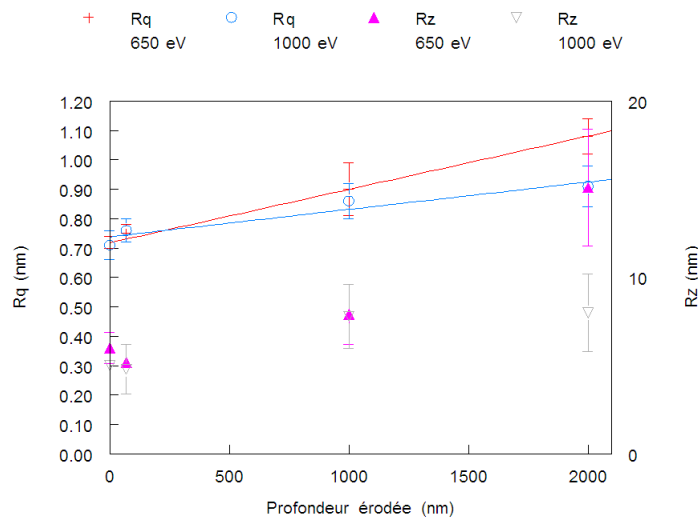


Figure 6.27. Rugosités R_q et R_z mesurées (profilomètre optique, X40) sur les échantillons SiC-CVD/CeSiC pulvérisés jusqu'à 500 nm pour 2 énergies différentes (650 eV et 1000 eV Ar^+).



6.28. Rugosités R_q et R_z mesurées (profilomètre optique, X10) sur les échantillons SiC-CVD/CeSiC pulvérisés jusqu'à 2 μm pour différentes énergies (650 eV et 1000 eV Ar^+).

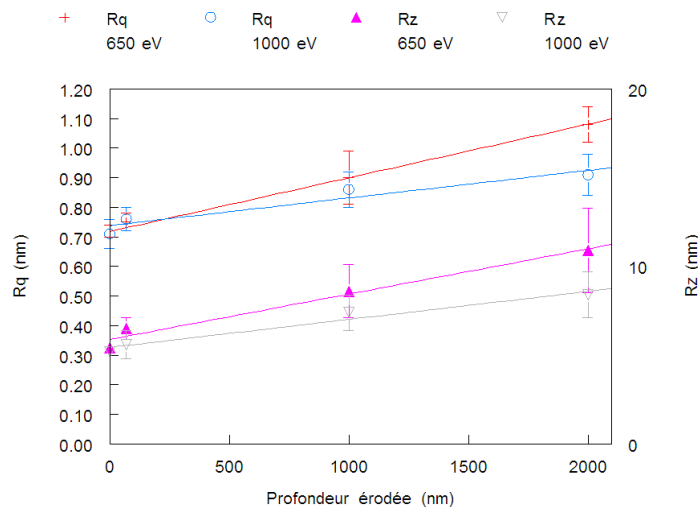


Figure 6.29. Rugosités R_q et R_z mesurées (profilomètre optique, X40) sur les échantillons SiC-CVD/CeSiC pulvérisés jusqu'à 2 μm pour différentes énergies (650 eV et 1000 eV Ar^+).

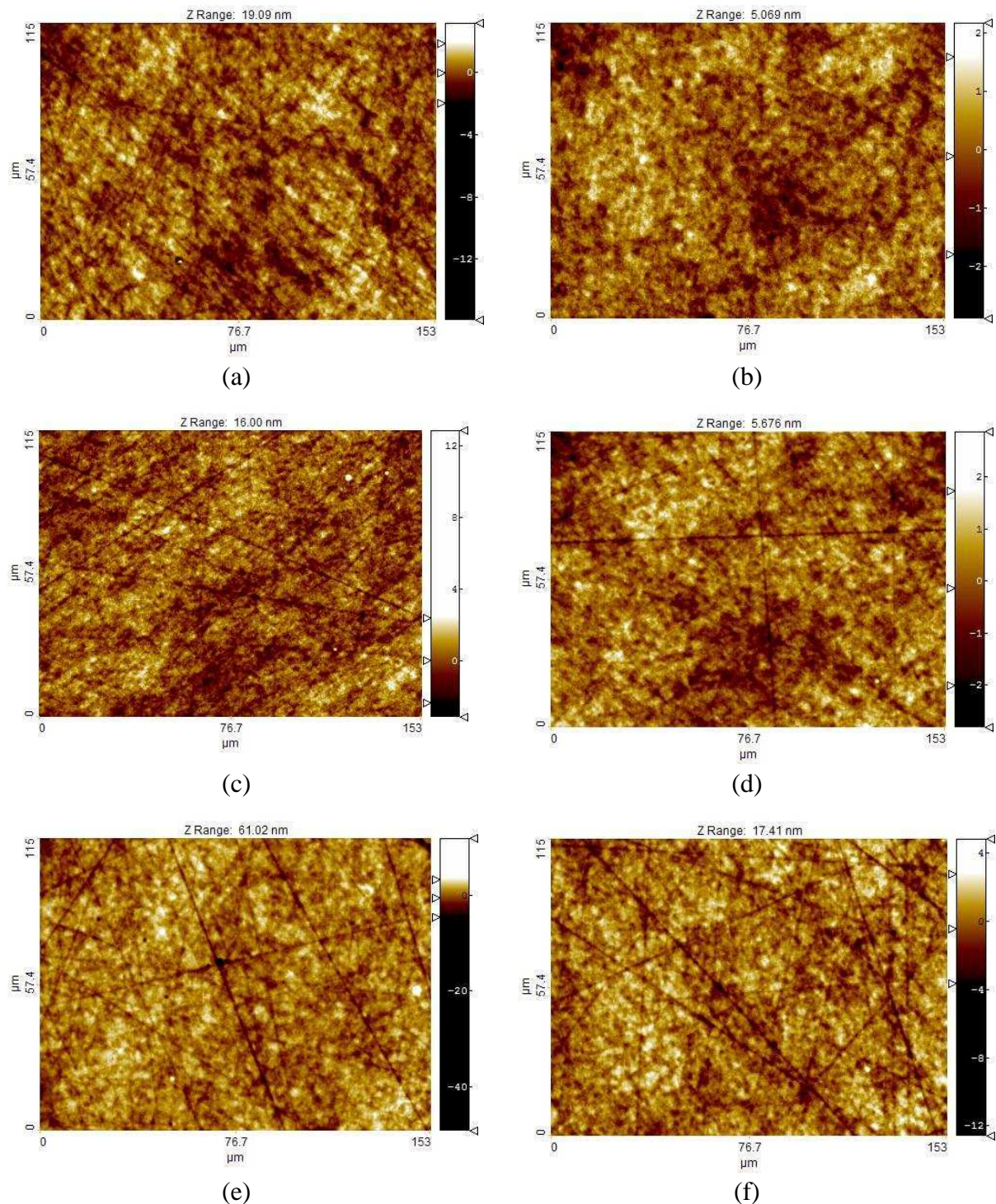


Figure 6.30. Micrographes (profilomètre optique, X40) de la surface SiC CVD (a) initiale, (c) après 0.5 μm, (e) après 2 μm pulvérisés par un faisceau d'ions argon de 650 eV ; de la surface SiC CVD (b) initiale (d) après 0.5 μm, (f) après 2 μm pulvérisés par un faisceau d'ions argon de 1000 eV.

Au-delà, l'augmentation des valeurs statistiques devient significative (comparé à l'écart-type des mesures) mais limitée à environ 0.1 nm par micron érodé pour Rq (rugosité rms) avec objectif X10. Cette légère augmentation de la rugosité est due principalement à l'apparition de griffes sur la surface après 1 et 2 microns érodés. Ces griffes qui sont révélées par l'érosion ionique résultent probablement d'une opération de polissage de la surface. La texture de la surface ne semble quant à elle ne pas avoir changé.

Il n'y a pas de différence importante entre les érosions effectuées à une énergie de 650 eV ou de 1000 eV. Néanmoins nous constatons une "tendance" à des valeurs de rugosité un peu faible à 1000 eV qu'à 650 eV, tendance qui devient significative après 2 microns d'érosion. La pente de la droite de régression linéaire des mesures avec un grandissement X10 (voir Figure 6.28) est de 0.13 nm rms/ μm pour l'échantillon érodé à 650 eV et 0.07 nm rms/ μm pour celui érodé à 1000 eV.

6.6.4 Discussion

L'évolution plus importante de la rugosité du SiC-CVD (série sic-001 et dans une moindre mesure série sic-002) pour des ions plus lourds semble trouver une justification dans une plus grande sensibilité du rendement de pulvérisation avec l'angle d'incidence pour les ions plus lourds que l'argon, comme le montre les simulations réalisées au moyen de SRIM pour différents angles d'incidence (voir Tableau 6.10). Les grains d'orientation différente présenteront donc des écarts de vitesses d'érosion plus importants dans le cas d'ions plus lourds (Kr, Xe) que l'argon. Néanmoins nous pensons que la plus grande dispersion en énergie du faisceau d'ions de la source end-Hall par rapport à la source Kaufman joue également un rôle important.

	Ar ⁺	Kr ⁺	Xe ⁺
0°	0.1	0.051	0.022
50°	0.47	0.33	0.25
70°	0.84	0.83	0.75
Y(50°)/Y(0°)	4.7	6.5	11.4
Y(70°)/Y(0°)	8.4	16.3	34.1

Tableau 6.10. Rendement de pulvérisation en fonction de l'angle d'incidence et de l'ion incident sur SiC pour une énergie de 0.2 keV.

En ce qui concerne l'influence de l'énergie, l'augmentation de la rugosité (des échantillons SiC CVD polycristallins de Rohm&Haas) est relativement faible pour un faisceau argon à plus haute énergie (de 650 à 1000 eV), mais plus élevée à plus faible énergie (de 200 à 500 eV) en raison d'une révélation plus importante des grains. La taille initiale des grains du matériau est bien sûr importante : l'augmentation de rugosité est plus marquée pour la série 1, dont les grains sont de l'ordre de 5-30 μm , que pour ceux de la série 2 de l'ordre de 2-3 μm . En réalité, la structure polycristalline du matériau devrait conduire à des différences de vitesses plus marquées entre types de grains ; une texture en grains plus marquée telle que pour les métaux devraient apparaître. Néanmoins, une amorphisation de la surface du SiC CVD a déjà été évoquée dans la littérature pour expliquer la faible évolution du SiC CVD (voir chapitre 2). L'amorphisation de la surface est en effet un phénomène connu sous bombardement ionique, notamment pour le silicium. Dans ce cas, nos résultats pourraient s'expliquer par une amorphisation plus importante à plus haute énergie. Dans les paragraphes suivants, nous résumons différentes pistes tentées pour mettre en évidence ce degré d'amorphisation différent en fonction de l'énergie utilisée.

6.6.5 Calcul du degré d'amorphisation du SiC CVD

Nous avons utilisé le logiciel SRIM (2006) pour évaluer le degré d'amorphisation du SiC CVD pour les conditions expérimentales utilisées.

Le module TRIM permet d'évaluer les défauts produits dans la cible en calculant le profil de déplacement $N_d(x)$ engendré par ion incident et par unité de longueur parcourue dans la

matière. Il est exprimé en déplacements / Ion / Angstrom. On peut en déduire facilement le profil de défauts exprimés en dpa (déplacement par atome) par la relation :

$$dpa(x) = \frac{N_d(x) F}{\rho} \quad (6.1)$$

où F est la dose ionique (ions/cm²) et ρ la densité de la cible (atomes/cm³).

En fait, le nombre de déplacements est égal au nombre de lacunes + le nombre de collisions de remplacement. Les collisions de remplacement correspondent au cas particulier où l'atome incident est le même élément que l'atome cible, transfère suffisamment d'énergie à l'atome cible pour l'éjecter de son site dans le réseau, mais n'a plus lui-même suffisamment d'énergie pour s'échapper, et occupe donc la place laissée vacante dans le réseau. Les défauts réels sur le réseau cristallin correspondent donc aux lacunes.

Energie (eV)	Y(Si) (atom/ion)	Y(C) (atom/ion)	Y(C)/Y(Si) (atom/ion)	Y (SiC) (atom/ion)	R (Å)
100	0.123	0.038	0.306	0.160	10
200	0.270	0.105	0.389	0.375	12
300	0.358	0.153	0.427	0.510	15
400	0.468	0.170	0.364	0.638	16
500	0.485	0.178	0.366	0.663	18
600	0.698	0.308	0.441	1.005	19
700	0.780	0.335	0.429	1.115	21
800	0.673	0.345	0.513	1.018	22
900	0.843	0.375	0.445	1.218	24
1000	1.020	0.423	0.414	1.443	24

Tableau 6.11. Rendement de pulvérisation (Y) et profondeur de pénétration moyenne (R) des atomes du SiC calculés pour un ion argon incident d'énergie entre 100 et 1000 eV. Energie de déplacement (E_d) : Si=15eV, C=20eV.

Il est important de noter que le modèle TRIM ne tient pas compte des effets thermiques. En effet, au-dessus de 0K, les défauts sont en partie guéris car l'énergie thermique donne suffisamment d'énergie aux atomes du réseau pour permettre aux défauts simples de retrouver leur structure cristalline (par diffusion).

Les rendements de pulvérisation et la profondeur moyenne de pénétration de l'ion incident calculés¹² au moyen de TRIM aux différentes énergies sont donnés au Tableau 6.11 et les profils de lacunes à la Figure 6.31. Comme on pouvait s'y attendre, les lacunes sont créées sur une plus grande profondeur aux plus hautes énergies. Sur la Figure 6.31, il est également intéressant de remarquer que si dans les 2-3 premières couches atomiques, le maximum des pics est similaire aux différentes énergies, le niveau de lacunes créées chute rapidement à faible énergie, alors qu'il reste important au-delà de la profondeur moyenne de pénétration pour les énergies plus élevées.

A partir des profils de lacunes et de la relation (6.1), nous avons estimé le DPA moyen pour chaque énergie (voir Figure 6.32) en calculant la moyenne des lacunes jusqu'à la profondeur de pénétration moyenne et en fixant une dose ionique identique (10¹⁷ atomes/cm²) pour chaque énergie. Cette dose correspond approximativement à la dose minimale pour qu'au moins une profondeur équivalente à la profondeur moyenne de pénétration R (*range* en

¹² Nous avons en réalité calculés les profils pour deux énergies de déplacement différentes des atomes (Si=15eV - C=20eV et Si=25eV - C=25eV), qui correspondent aux valeurs limites (minimum et maximum) trouvées dans la littérature pour le SiC.

anglais) soit pulvérisé pour chaque énergie. Nous avons de plus considéré que 99% des lacunes créées sont annihilées par diffusion thermique, comme le préconise le Dr Ziegler¹³, auteur de SRIM. Cette approximation relativise évidemment beaucoup la précision que l'on peut attendre de SRIM pour évaluer l'état d'amorphisation d'un matériau, mais cela donne au mieux un ordre de grandeur.

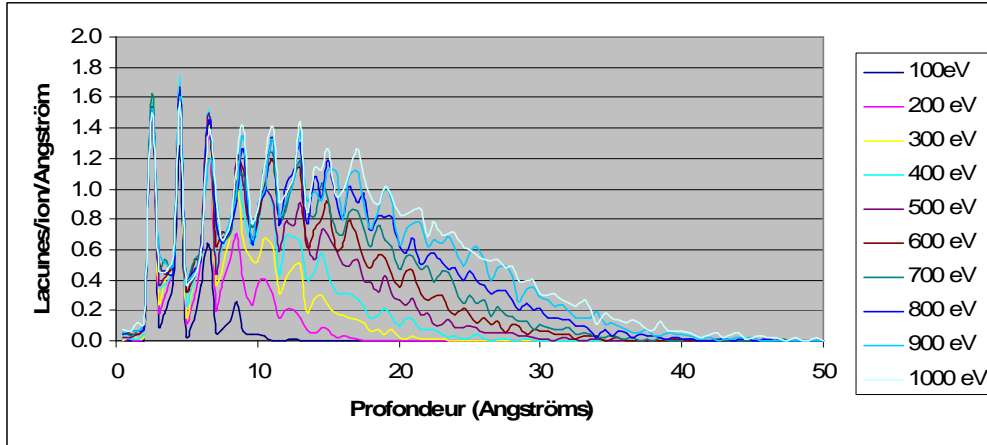


Figure 6.31. Profils de lacunes créés par un ion Ar⁺ dans le réseau SiC en fonction de la profondeur et pour des énergies entre 100 et 1000 eV. Energie de déplacement (E_d) : Si=15eV, C=20eV.

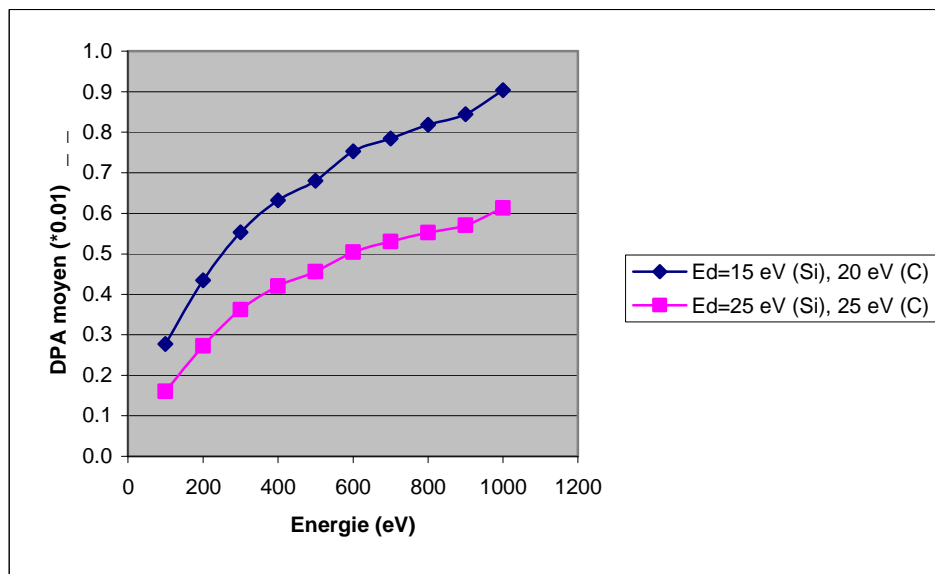


Figure 6.32. DPA moyen estimés à partir des profils de lacunes calculés par SRIM pour différentes énergies de l'ion argon incident et pour 2 énergies de déplacement des atomes C et Si (E_d). La dose ionique est ici fixée à 10^{17} ions/cm².

Selon les mesures de diffraction d'électrons réalisées par Weber et Wang [6.7] pour des échantillons de β -SiC (donc de même structure que nos échantillons) bombardés par 1.5 MeV Xe⁺ à 300 K, la présence d'une composante amorphe est observée à partir de 0.22 dpa et une amorphisation complète à partir de 0.68 dpa. Dans ce type d'étude, on s'intéresse en général à déterminer la dose conduisant à une structure amorphe pour une énergie déterminée.

Si on met en parallèle cette étude et nos résultats obtenus avec SRIM, on constate que les valeurs de dpa sont du même ordre (cas $E_d=15$ eV et 20eV pour Si et C): plutôt amorphisation

¹³ Valeur préconisée dans les leçons de SRIM 2006 (« SRIM lab#1 », <http://www.srim.org>) et confirmée dans les échanges de courriel avec le Dr Ziegler sur le sujet.

partielle (<0.7 dpa) à basse énergie (<500eV) et plutôt amorphisation totale (>0.7 dpa) à haute énergie (>500 eV). Néanmoins, nous devons nuancer ce résultat par le fait que si pour le calcul du DPA, nous considérons pour chaque énergie la dose ionique qui permet de pulvériser la profondeur de pénétration moyenne (au lieu de prendre une dose fixe pour toutes les énergies), nous obtenons un DPA plutôt uniforme en fonction de l'énergie.

6.6.6 Mesures de diffraction des électrons et des rayons X

Pour tenter de mettre en évidence l'amorphisation de la couche superficielle du SiC CVD (épaisse de ~3 nanomètres maximum à 1000 eV), des essais de mesure par diffraction d'électrons rétrodiffusés (EBSD)¹⁴ et par diffraction des rayons X (DRX) ont été réalisés à l'Université de Liège¹⁵.

Les mesures EBSD ont été effectuées sur 4 échantillons: deux à faible énergie (300 et 400 eV) et deux à énergies plus élevées (650 et 1000 eV). La profondeur de pénétration des électrons dans cette technique est de 10 à 50 nm en fonction du matériau étudié, ce qui la rend potentiellement susceptible d'être sensible à des modifications de la structure cristalline sur quelques nanomètres. Mais aucune différence significative n'a pu être observée en comparant le facteur de qualité IQ¹⁶, indicateur du niveau d'ordre cristallin, des images obtenues sur les 4 échantillons (voir Annexe D). Selon le spécialiste de la société ayant fourni le système à l'ULg, ce résultat n'est cependant pas significatif en raison d'autres facteurs qui peuvent influencer le facteur IQ (orientation des cristallites différentes selon les échantillons ...), et nécessiterait une campagne de mesure beaucoup plus poussée.

D'autre part, les mesures par diffraction des rayons X en incidence rasante ont été réalisées avec l'angle le plus rasant possible sur l'équipement (0.3°) pour tenter de réduire au maximum la profondeur de pénétration des rayons X (50% de l'intensité de diffraction provient encore d'une couche de 400 nm pour du SiC de densité 3.2 à un angle de 0.5°). Malheureusement les essais réalisés sur un échantillon SiC CVD vierge (non pulvérisé) ont montré que les mesures n'étaient pas répétables avec un angle si rasant si l'échantillon est déplacé (voir Annexe D), ce qui enleva tout espoir de déceler avec cet équipement de fines variations sur un même échantillon avant et après pulvérisation (et à fortiori entre différents échantillons).

6.6.7 Mesures ellipsométriques

Ces mesures ellipsométrique dans l'infra-rouge sont basées sur la sensibilité du phonon (vibration du réseau cristallin) avec la structure de la couche superficielle du matériau mesuré. En effet si la couche superficielle du matériau est en partie amorphisée, le signal à la résonance du phonon sera perturbé. Des mesures ellipsométriques ont été réalisées sur 2 échantillons de la série SiC-002 discutés ci-dessus. La Figure 6.33 montre que le pic de résonance du phonon du SiC CVD est mieux défini pour l'échantillon pulvérisé à 300 eV par rapport à celui pulvérisé à 1000 eV. Ceci serait potentiellement indicateur d'une structure plus amorphe pour l'échantillon pulvérisé à haute énergie (1000 eV) que pour celui pulvérisé à plus faible énergie (300 eV). Néanmoins, il faut également noter que la mesure ellipsométrique est sensible à la rugosité de la surface et au changement de composition de surface. Or la rugosité est légèrement différente entre les 2 échantillons mesurés (0.7 et 0.5 nm rms après pulvérisation de 3 µm à 300 et 1000 eV respectivement). Malheureusement il n'a pas été possible de confirmer ce premier résultat sur d'autres échantillons (pulvérisés à

¹⁴ Electron Backscatter Diffraction (EBSD)

¹⁵ Mesures effectuées par le Laboratoire de Chimie Inorganique Structurale

¹⁶ *Image Quality factor* en anglais

d'autres énergies) en raison de la disponibilité limitée de l'ellipsomètre infra-rouge du CSL. Il aurait été de plus intéressant de préparer des échantillons pulvérisés à des énergies différentes mais avec des rugosités équivalentes (par une dose ionique plus faible à basse énergie).

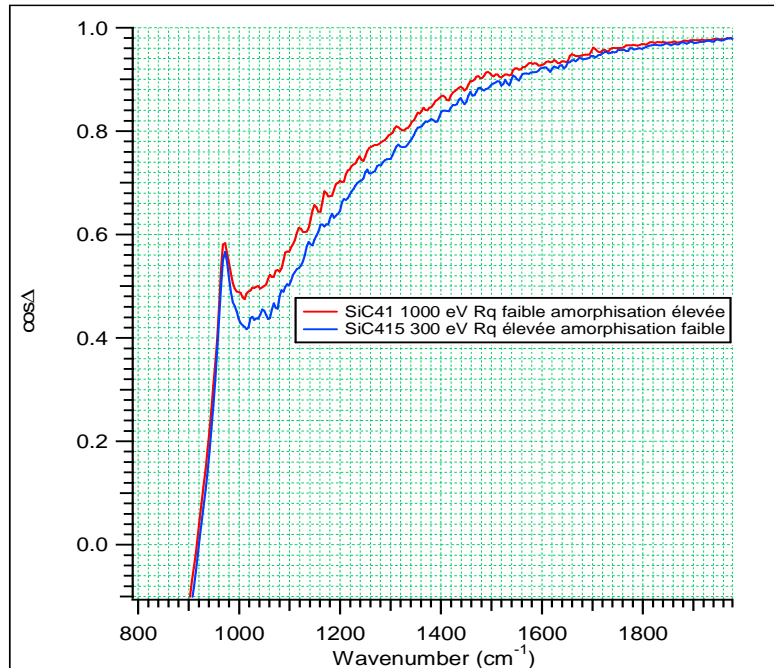


Figure 6.33. Mesure ellipsométrique ($\cos\Delta$) des échantillons SiC CVD pulvérisés à 300 eV et 1000 eV dans la zone de résonance du phonon (infra-rouge moyen).

6.6.8 Conclusions

Globalement, la pulvérisation ionique du SiC CVD n'engendre pas d'augmentation importante de la rugosité, comme déjà observé dans la littérature et comme en témoigne l'utilisation industrielle fréquente de l'usinage ionique pour les miroirs en SiC CVD. Néanmoins, nous avons pu mettre en évidence des évolutions plus fines non encore observées jusqu'à présent. En effet, notre étude montre que pour une structure polycristalline du SiC CVD comme celui utilisé ici (Rohm & Haas), l'évolution de la rugosité dépend de l'énergie. A faible énergie (<500 eV), la rugosité augmente de manière plus importante qu'à plus haute énergie (>500 eV) en raison d'une révélation plus importante des grains. L'hypothèse selon laquelle la plus faible augmentation à plus haute énergie est due à une plus grande amorphisation de la couche superficielle du SiC CVD semble confirmée par les simulations avec SRIM et est également appuyée par les premières mesures ellipsométriques. Néanmoins, l'idéal serait d'effectuer une mesure in-situ des premières couches atomique après le bombardement ionique (dans la même enceinte) par une mesure du type diffraction d'électrons lents (LEED).

6.7 Le silicium

Un échantillon de silicium monocristallin (100) (échantillons issus de gaufrette de silicium commerciale) a été pulvérisé¹⁷ jusqu'à une profondeur de 600 nm, avec un faisceau d'ions argon de 650 eV. Aucune modification particulière de la texture du silicium n'est visible sur les mesures au profilomètre optique (voir Figure 6.34). L'apparition de trous après 600 nm érodé est principalement responsable de la légère augmentation de R_q et plus importante de R_z

¹⁷ La température maximale mesurée sur l'échantillon le plus érodé (60 min) est de 150°C (face arrière).

(voir Tableau 6.12). Ces trous expliquent également l'écart type important de R_z après 600 nm érodés, en raison de leur densité de surface différente d'un endroit à l'autre de la surface (donc d'une mesure à l'autre).

Erosion	X10				X40			
	Rq		Rz		Rq		Rz	
	MOY	ET	MOY	ET	MOY	ET	MOY	ET
(μm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)
0	0.54	0.02	4.65	1.1	0.54	0.01	3.63	0.67
0.1	0.56	0.02	4.49	0.13	0.46	0.06	3.22	0.21
0.6	0.6	0.08	8.4	3.95	0.52	0.13	5.67	3.8

Tableau 6.12 Rugosité (R_q , R_z) mesurée (profilomètre optique, agrandissement X10 et X40) sur les échantillons silicium en fonction de la profondeur érodée (650 eV Ar^+).

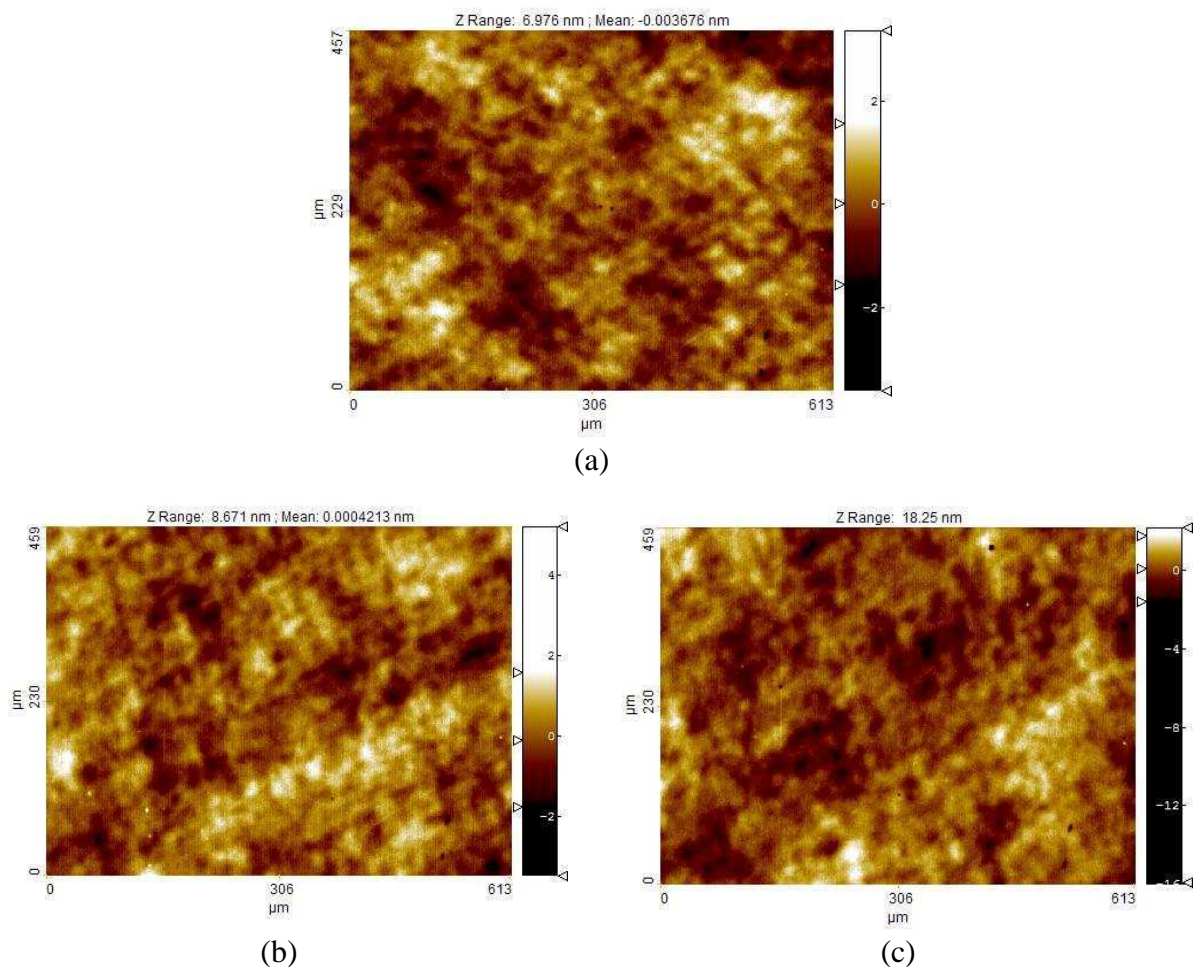


Figure 6.34. Micrographes (profilomètre optique, X10) de la surface du silicium (a) initiale et après (b) 200 nm, (c) 600 nm pulvérisés (650 eV Ar^+).

6.8 L'aluminium

6.8.1 Aluminium brut poli

Il s'agit d'un miroir en aluminium brut poli à un niveau moyen de rugosité ($\sim 35 \text{ nm rms}$). Il a été pulvérisé à différentes profondeurs jusqu'à $4.5 \mu\text{m}$. La rugosité mesurée au profilomètre optique (objectif X10) augmente rapidement avec la profondeur érodée jusqu'à devenir même trop rugueuse pour le profilomètre optique à $4.5 \mu\text{m}$ de profondeur (points non acquis en

raison de pentes locales trop fortes). Par contre on n'observe pas de différences notables au profilomètre optique (objectif X10) au niveau des valeurs de rugosité ou de l'état de surface entre la surface initiale et après 75 nm érodés. Ceci s'explique probablement par la rugosité initiale moyenne de la surface de l'échantillon et de plus par l'objectif du profilomètre ici utilisé (X10) qui ne permet pas de résoudre les défauts de petites tailles latérales.

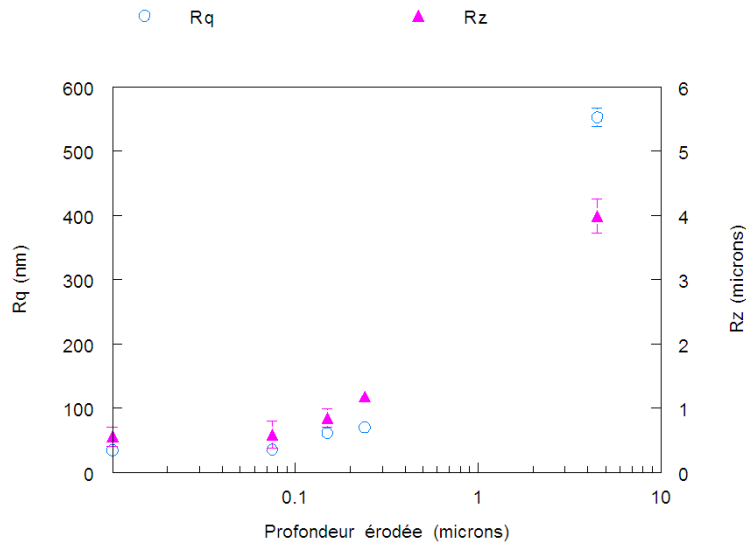


Figure 6.35. Rugosité (R_q , R_z) mesurée (profilomètre optique, X10) sur les échantillons Al en fonction de la profondeur érodée (650 eV Ar^+).

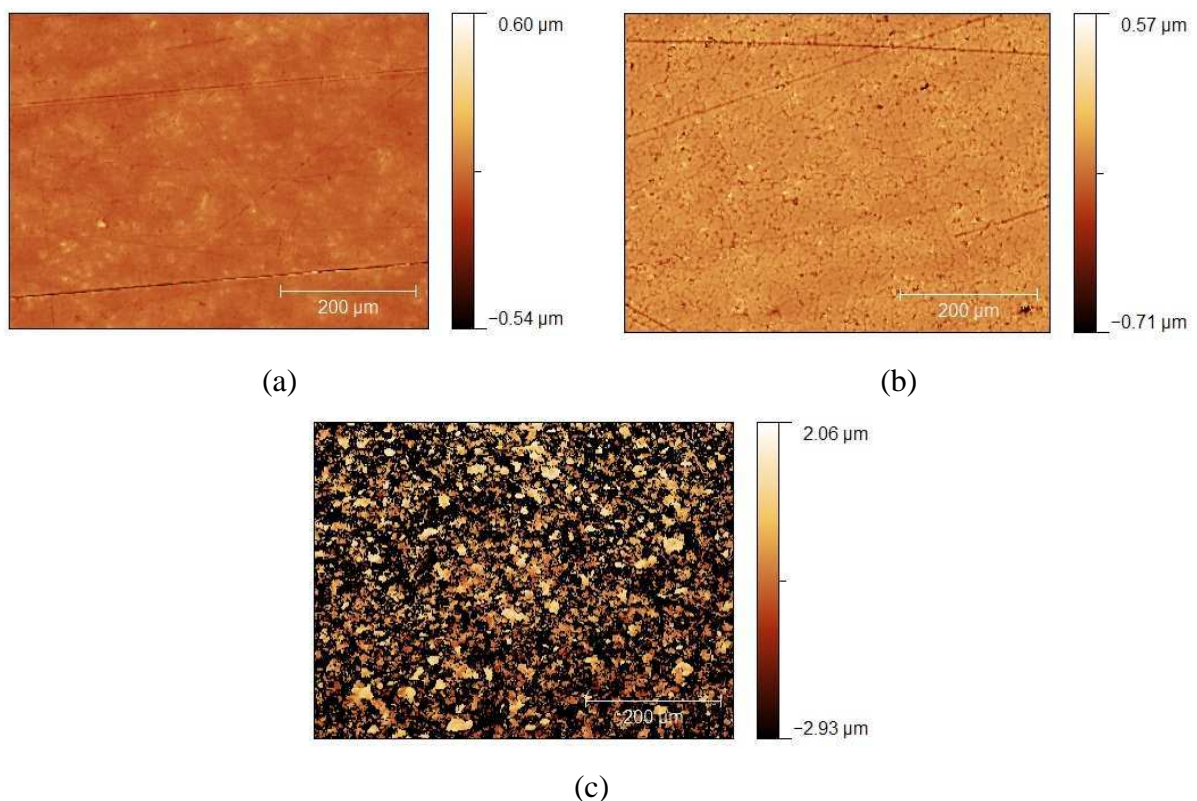


Figure 6.36. Micrographes (profilomètre optique, X10) de la surface Al après (a) 75 nm et (b) 240 nm et (c) 4.5 µm pulvérisés (650 eV Ar^+). Points non acquis par le profilomètre en noir sur l'image (c).

6.8.2 Placage électrolytique d'aluminium

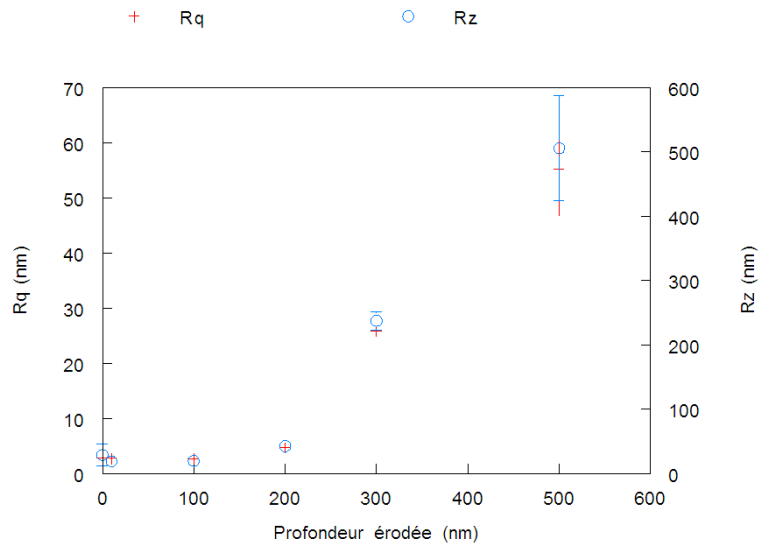


Figure 6.37. Rugosité rms (Rq) mesurée au profilomètre optique (X40, PSI sauf 300- 500 nm VSI) sur les échantillons Al en fonction de la profondeur érodée (650 eV Ar⁺).

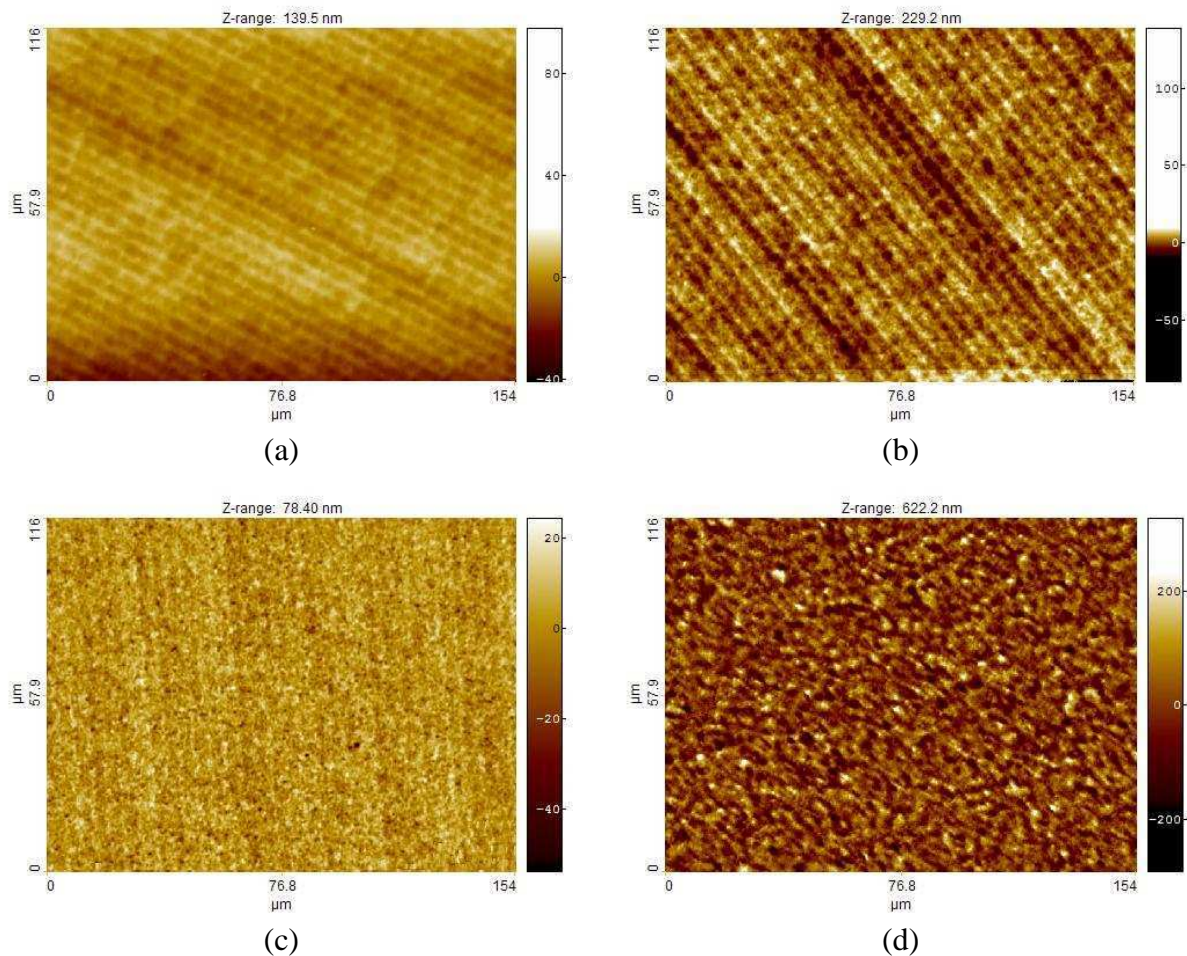


Figure 6.38. Micrographes (profilomètre optique, X40) de la surface plaquée Al (a) initiale et après pulvérisation (650 eV Ar⁺) à différentes profondeurs : (b) après 100 nm (c) après 200 nm pulvérisés et (d) après 500 nm.

Des substrats métalliques recouverts d'un placage électrolytique en aluminium avec un fini de surface optique ont été pulvérisés jusqu'à 0.5 μm . La pulvérisation a été réalisée avec un faisceau d'ions argon de 650 eV.

La surface initiale de l'échantillon ainsi qu'après différentes profondeurs érodées a été mesurée au profilomètre optique avec l'objectif X10 et X40 (voir Figure 6.38) ainsi qu'au AFM (voir Figure 6.39). L'échantillon utilisé pour ces essais avait initialement une structure en sillon due à son usinage. La rugosité mesurée au profilomètre optique (x40) augmente fortement à partir de 200-300 nm érodés (voir Figure 6.37) en raison du développement d'une texture micrométrique. Ainsi, les sillons initiaux ne sont quasiment plus visibles après 500 nm érodés. On peut constater sur les images au AFM qu'en réalité la surface est déjà modifiée à l'échelle submicronique dès 10 nm érodés, ce qui échappe à la résolution latérale du profilomètre optique.

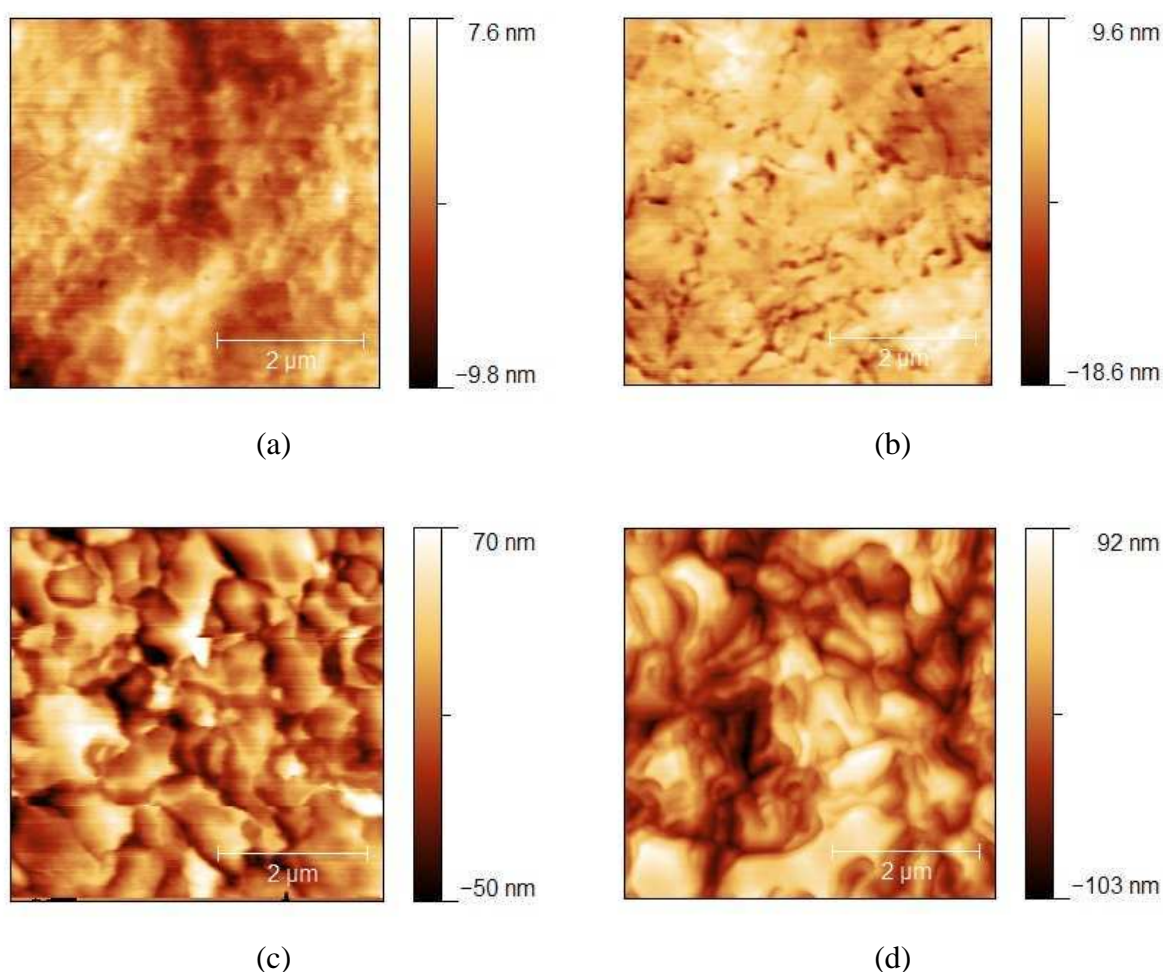


Figure 6.39. Micrographies AFM de la surface plaquée Al (a) initiale et après pulvérisation (650 eV Ar^+) à différentes profondeurs : (b) après 10 nm (c) après 100 nm pulvérisés et (d) après 500 nm. Taille image: 5 μm x 5 μm

6.9 Comparaison aux lois d'invariance d'échelle

Il est intéressant de se poser la question suivante : les évolutions de rugosité mesurées suivent-elles les lois d'invariance d'échelle (voir chapitre 4) ? Pour répondre positivement il faut notamment que l'évolution de la rugosité avec la profondeur érodée (c-à-d le temps à une constante près) suivent une loi de puissance. Ensuite les exposants d'échelle sont-ils proches

de ceux prévus par les modèles numériques ? Pour rappel, les exposants d'échelle sont $\alpha \approx 0.38$ et $\beta \approx 0.25$ pour l'équation KPZ avec les surfaces à deux dimensions les plus courantes. Pour tenter de répondre à ces questions, il est instructif de se pencher tout d'abord sur les « échelles » de nos mesures. Comparons ainsi sur un graphe log-log (Figure 6.40) le cas des mesures de rugosité effectuées sur le placage électrolytique d'aluminium à différentes échelles (profilomètre optique avec objectif X10 et X40 et AFM). Les fréquences spatiales minimales et maximales de ces mesures sont reprises au tableau ci-dessous pour les configurations de mesures utilisées. On y constate que la bande de fréquence entre les mesures au profilomètre optique avec objectif X10 et l'AFM ne se recouvre pas (en X40 les domaines se recouvrent partiellement) et donc que les structures visibles sur un instrument peuvent être complètement ignorées par l'autre. Ainsi les sillons d'usinage qui sont la principale caractéristique sur les images au profilomètre optique ne sont pas visibles sur les mesures AFM. Inversement, le développement de structures submicroniques visibles sur les micrographies AFM dès les premiers nanomètres d'érosion font augmenter plus rapidement et plus linéairement la rugosité rms sur le graphe, tandis qu'après 500 nm érodés, la rugosité rms est plus importante au profilomètre optique. Si l'évolution de la rugosité rms au profilomètre optique ne semble pas a priori linéaire sur le graphe log-log (surtout en X10), c'est peut-être en raison de la petite taille des structures. Néanmoins, la linéarité de la croissance de la rugosité au AFM ne semble valoir qu'en excluant soit la rugosité initiale, soit celle après 10 nm érodé, ce qui laisserait supposer que des très petites structures échappent également à la résolution de la mesure au AFM dans les premiers nanomètres érodés. Notons que sur ce graphique logarithmique nous avons artificiellement reporté les mesures de rugosité initiale à 0.1 nm de profondeur).

Enfin, une difficulté supplémentaire apparaît sur ce graphique: les mesures (courbes rouge et bleue) au profilomètre optique sont réalisées avec 2 modes différents (PSI sauf VSI pour les deux derniers points à 300 nm et 500 nm érodés). Mais les mesures entre les 2 modes d'une même surface ne correspondent pas en général, et semblent effectivement décalées sur notre graphique log-log. Les mesures réalisées uniquement en PSI montrent une évolution plus cohérente en X40, anormalement faible en X10 (la surface est largement sous-évaluée dans cette configuration en raison des pentes plus faibles mesurables). Nous verrons d'ailleurs au chapitre 7 (annexe C) qu'une relation linéaire¹⁸ a été établie entre les mesures réalisées en PSI et VSI sur des échantillons montrant une évolution de rugosité similaire (placage électrolytique de nickel). Cette relation concorde également avec les mesures réalisées ici (avec l'objectif X40).

En conclusion, il est important d'estimer l'exposant de croissance β dans le domaine de fréquence spatiale où se développent les structures, ce qui n'est pas toujours possible en raison des limites des instruments disponibles. Il est de plus délicat de comparer les mesures entre instruments ou mode d'un même instrument (PSI et VSI du profilomètre optique lorsqu'on passe de surfaces lisses à rugueuses) ; il est préférable d'évaluer les coefficients d'échelle sur des mesures réalisées dans le même mode du profilomètre optique.

En ce qui concerne l'évaluation de l'exposant de croissance β , la modélisation par une fonction de puissance tracée sur le graphe log-log donne une valeur de ~ 0.7 pour les mesures à l'AFM et au profilomètre optique en X40 (mode PSI uniquement). L'exposant de croissance est supérieur à celui du modèle KPZ ($\beta=0.25$) dont la droite correspondante est également tracée sur le graphe. Elle n'est en fait pas si éloignée des mesures au AFM si on ne considère pas les mesures après 10 nm d'érosion. Notons qu'une loi d'échelle allométrique semblerait

¹⁸ Valeurs mesurées en VSI $\sim 4*$ valeurs mesurées en PSI (relation établie sur placage électrolytique de nickel)

toutefois mieux correspondre (voir analyse des mesures sur SiC et relation (6.2)) à nos mesures sur le placage d'aluminium.

	Fréquence spatiale	
	Min (μm^{-1})	Max (μm^{-1})
Profilomètre optique (X10)	0.0016	0.3
Profilomètre optique (X40)	0.065	1.2
AFM (5 x 5 μm)	0.20	25.6

Tableau 6.13. Bande de fréquence spatiale des mesures de rugosité effectuées sur le placage électrolytique d'aluminium

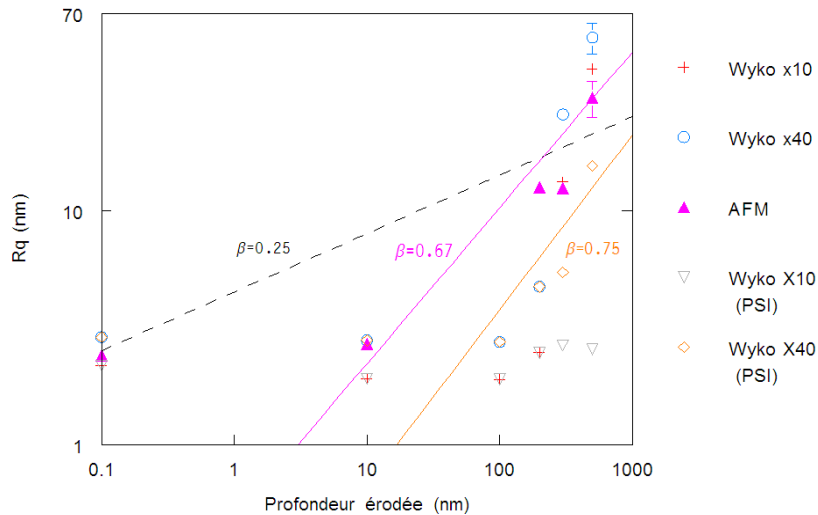


Figure 6.40. Evolution (log-log) de la rugosité (Rq) du placage électrolytique d'aluminium pour différentes échelles latérales mesurées au profilomètre optique et microscope à force atomique (650eV Ar⁺). Profilomètre optique (Wyko) : + o mesures en PSI sauf VSI à 300 et 500 nm érodés, (PSI) toutes mesures en PSI. Valeur du coefficient β calculée notée dans le graphique.

Pour le carbure de silicium CVD (R&H), l'augmentation de la rugosité semble suivre globalement une loi de puissance, sauf dans le cas de 180 eV Xe⁺ sur SiC-001 où l'augmentation de rugosité au-delà de 1 μm érodé est clairement plus rapide qu'avec une loi de puissance (voir Figure 6.41a). La Figure 6.41b illustre la modélisation par une fonction de puissance auquel un terme constant ϵ (terme de déviation) est ajouté:

$$y = ax^\beta + \epsilon \tag{6.2}$$

Cette relation est aussi parfois appelée loi d'échelle allométrique; elle ne possède par la propriété d'invariance d'échelle. Le terme ϵ peut représenter des erreurs de mesure ou tout simplement un moyen d'observer la déviance par rapport aux lois d'invariance d'échelle. Cette fonction, tout comme la fonction exponentielle (voir Figure 6.17), semble mieux correspondre à l'évolution de la rugosité du SiC-001 pulvérisé par des ions Xénon, et peut-être aussi pour les pulvérisations par des ions Argon. Ici on ne peut expliquer cette déviance par rapport à une simple loi de puissance par des structures qui seraient hors de portée de l'instrument de mesure, les tailles latérales (et verticales) des grains sur SiC-001 étant largement dans la gamme de mesure du profilomètre optique.

Pour les essais sur SiC-002 (voir Figure 6.42), on constate une décroissance de β de 0.24 à 0.09 avec l'énergie des ions, confirmant à nouveau le comportement nettement différencié en-

dessous et au-dessus de 500 eV (voir ensemble des valeurs au Tableau 6.14). Notons que β vaut ~ 0.25 à faible énergie ($< 500\text{eV}$) comme dans le modèle KPZ

Il est à noter que l'exposant de croissance (β) dépend du grade testé et des conditions d'érosion. L'exposant de croissance est plus élevé sur SiC-001 que sur SiC-002. Ainsi, pour un faisceau Argon de 650 eV, β vaut 0.3 sur SiC-001 et 0.1 sur SiC-002.

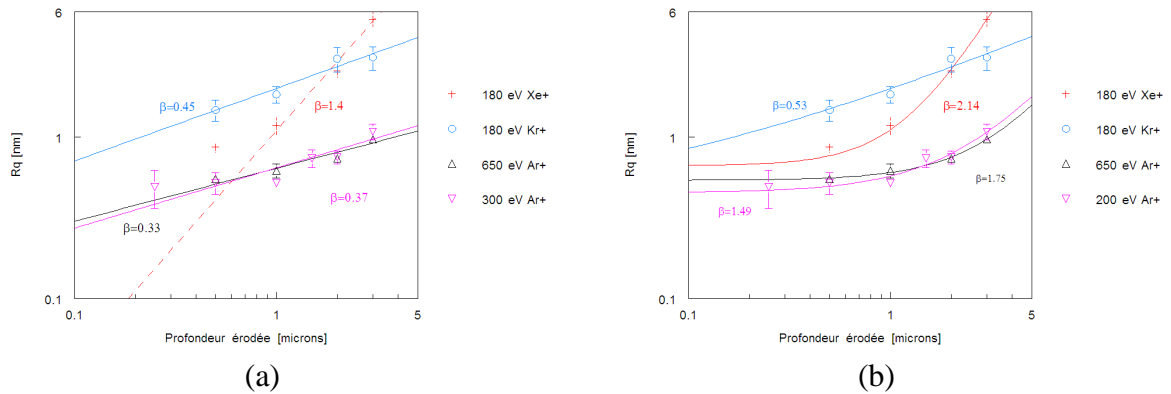


Figure 6.41. Détermination (sur graphe log-log) du coefficient de croissance (β) du carbure de silicium CVD R&H grade SIC-001 pour différentes conditions d'érosion mesurées au profilomètre optique (X10). Courbe continue: modélisation par une (a) une loi de puissance $y=ax^\beta$, (b) une loi de puissance allométrique $y=ax^\beta + \epsilon$ (a et ϵ sont des constantes).

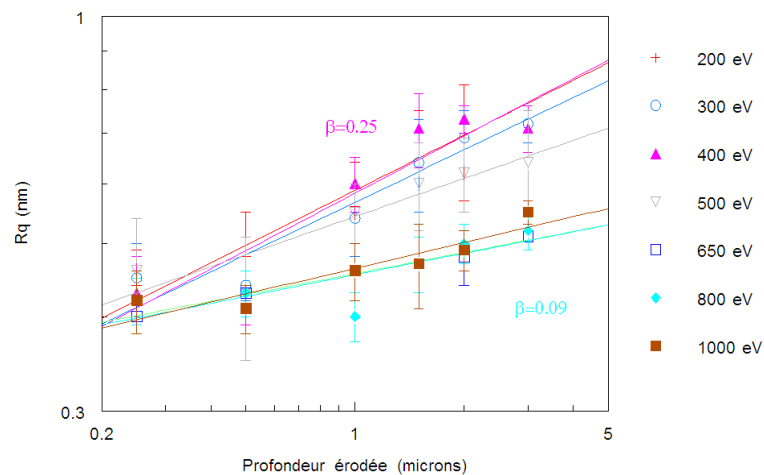


Figure 6.42. Détermination (sur graphe log-log) du coefficient de croissance (β) du carbure de silicium CVD R&H grade SIC-002 pour différentes énergie de pulvérisation (Ar^+) à partir des mesures de R_q au profilomètre optique (X40).

Concernant le coefficient de rugosité α , son évaluation est difficile car elle requiert la mesure de la rugosité à différente échelle. Néanmoins, nous l'avons estimé¹⁹ à partir de la fonction de corrélation hauteur-hauteur (voir chapitre 4) sur base des images mesurées au profilomètre optique (X40) à différentes profondeurs pulvérisées (voir exemple à la Figure 6.43). Les fonctions et la valeur α ainsi obtenues sur SiC CVD (sic-002) sont comparées à la Figure 6.44 (300 eV Ar^+) et à la Figure 6.45 (650 eV Ar^+). Alors que sur la surface initiale la valeur de α est de ~ 0.24 , elle tend à diminuer au fur et à mesure que la profondeur pulvérisée augmente. Ce n'est qu'à partir de 2 μm pulvérisés qu'elle est devient nettement plus basse (0.09 à 300 eV et 0.012 à 650 eV), pour atteindre 0.08 après 3 μm pulvérisés (300 et 650 eV). On

¹⁹ Fichier mathcad reprenant les données en format texte du profilomètre optique Wyko ou exportées par SPIP.

remarque de plus un changement au niveau de l'allure des courbes. A partir d'un micron érodé, la fonction de corrélation hauteur-hauteur augmente fortement pour les premiers points (2-3 μm de dimension latérale) en raison de l'apparition de la structure en grains. Une première distance de corrélation est ici atteinte sur la surface (voir la théorie d'invariance d'échelle au chapitre 4), correspondant à la taille des grains révélés par la pulvérisation. Ensuite, la fonction augmente de manière plus douce jusqu'à une centaine de μm pour alors atteindre la saturation.

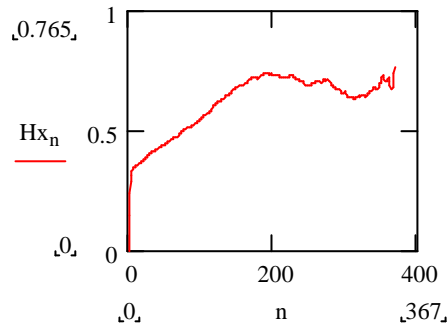


Figure 6.43. Fonction de corrélation hauteur-hauteur de la surface de SiC-CVD (sic-002) après 1 μm pulvérisés (300 eV Ar^+)

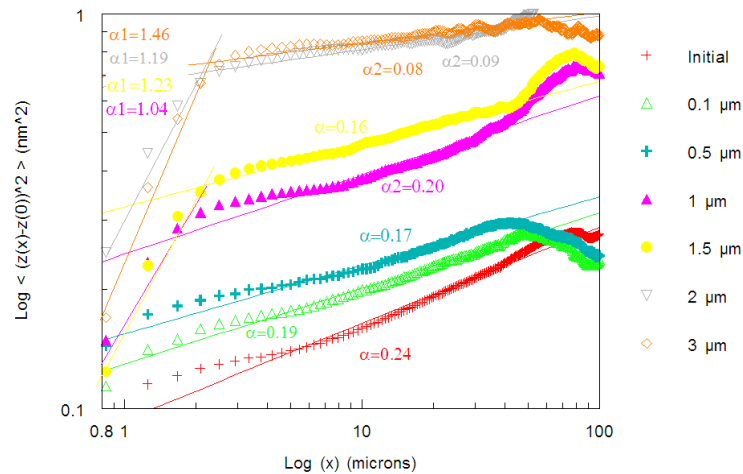


Figure 6.44. Graphique log-log de la fonction de corrélation hauteur-hauteur de la surface de SiC-CVD (sic-002) initiale (moyenne de 3 mesures) et érodée à différentes profondeurs (300eV Ar^+). La valeur de α est donnée dans le graphique (α évalué sur 2 zones distinctes, α_1 et α_2 , à partir d'1 μm pulvérisé).

Pour les courbes à partir d'un micron pulvérisé, nous pourrions donc considérer 2 zones différentes pour l'évaluation du coefficient de rugosité α : une pour les petites dimensions latérales jusqu'à 2 μm (α_1) et une pour les dimensions latérales supérieures à 2 μm (α_2), comme modélisé à la Figure 6.44. Néanmoins, la fonction de corrélation hauteur-hauteur est calculée sur quelques points seulement dans la première zone (α_1), les mesures au profilomètre optique étant mieux adaptée à l'évaluation de la deuxième zone (α_2).

Concernant le carbure de silicium CVD sur substrat CeSiC (Schunk-Alcatel), l'exposant de croissance β (calculé sur les échantillons pulvérisés jusqu'à 2 μm) vaut 0.041 à 650 eV et 0.025 à 1000 eV. Ces valeurs sont plus faibles sur le SiC-CVD de Rohm & Haas, ce qui s'explique par le fait qu'aucune structure (de grains) ne se développe sur ces échantillons.

L'estimation du coefficient de rugosité α est par contre plus délicat et contestable. La fonction de corrélation hauteur-hauteur ne suit en effet pas très bien une loi de puissance. L'allure des courbes est composée de 2 zones distinctes, comme pour les échantillons SiC-002: la fonction augmente rapidement jusqu'à une dimension latérale de 3-4 μm (ce qui correspond à la dimension de la granulométrie visible sur les mesures au profilomètre optique), plus lentement au-delà. Mais contrairement aux échantillons SiC-002, les courbes ont la même allure avant pulvérisation et aux différentes profondeurs érodées (mais décalées puisque la rugosité augmente avec la profondeur érodée), ce qui montre qu'il n'y a pas de changement important au niveau de la texture de la surface. Si on calcule le coefficient α sur une bande de fréquence limitée (abscisses entre 2 et 30 μm) aux différentes profondeurs érodées à 1000 eV, il reste stable entre 0.17 et 0.15 (voir Figure 6.46).

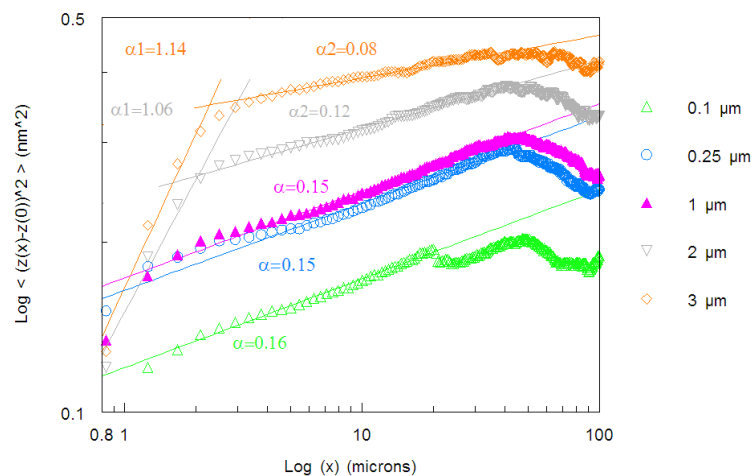


Figure 6.45. Graphique log-log de la fonction de corrélation hauteur-hauteur de la surface de SiC-CVD (sic-002) érodée à différentes profondeurs (650eV Ar⁺). La valeur de α est donnée dans le graphique (α évalué sur 2 zones distinctes, α_1 et α_2 , à partir de 2 μm pulvérisés).

Les coefficients d'invariance d'échelle calculés sur les différentes formes de SiC-CVD testées selon différentes conditions de pulvérisation (énergie et gaz) sont résumés au Tableau 6.14.

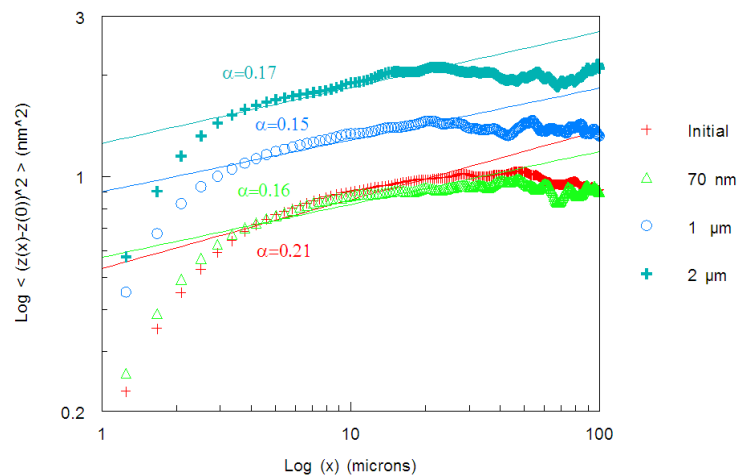


Figure 6.46. Graphique log-log de la fonction de corrélation hauteur-hauteur de la surface de SiC-CVD sur CeSiC initiale (moyenne de 3 mesures) et à différentes profondeurs pulvérisées (1000eV Ar⁺). La valeur de α est donnée dans le graphique.

	Conditions de pulvérisation	Profondeur pulvérisée max. (μm)	β	α
SiC CVD (R&H) (sic-001)	180 eV Xe+	3	(1.4)	
	180 eV Kr+	3	0.45	
	300 eV Ar+	3	0.37	
	650 eV Ar+	3	0.33	
SiC CVD (R&H) (sic-002)	200 eV Ar+	2	0.24	
	300 eV Ar+	3	0.23	0.24 \rightarrow 0.09*
	400 eV Ar+	3	0.25	
	500 eV Ar+	3	0.17	
	650 eV Ar+	3	0.093	0.24 \rightarrow 0.09*
	800 eV Ar+	3	0.095	
	1000 eV Ar+	3	0.11	
SiC CVD/CeSiC (Alcatel-Schunk)	650 eV Ar+	2	0.041	
	1000 eV Ar+	2	0.025	\sim 0.2*

Tableau 6.14. Résumé des coefficients d'échelle β et α calculés sur base de nos mesures de rugosité (au profilomètre optique) sur les différents types de SiC-CVD testés. \rightarrow Evolution de α entre la valeur initiale et la profondeur maximum pulvérisée * dans la plage de 2 à 40 μm de dimension latérale.

6.10 Conclusions

Comme on peut le constater à la Figure 6.47, la rugosité de la plupart des surfaces optiques testées varie peu (légère augmentation) avec la pulvérisation ionique d'ions argon d'énergie modérée (500-1000 eV) en incidence normale (conditions de pulvérisation typique de l'usinage ionique), à l'exception de l'aluminium où l'augmentation est extrêmement forte. L'origine de cette augmentation (ou non augmentation) de la rugosité est variée en fonction du matériau:

- Sur tous les matériaux, contamination par des particules de carbone provenant des grilles ou de la source ionique.
- Sur tous les matériaux (principalement verres et carbure de silicium CVD), révélation par la pulvérisation ionique de défauts (trous, griffes ...) présents dans le matériau sous la surface.
- Sur tous les matériaux, mais surtout sur les verres et particulièrement le BK7, des pics apparaissent. Ils sont interprétés comme des hétérogénéités du matériau présentant des vitesses de pulvérisation différentes.
- Sur un matériau amorphe (verre), pas de développement de structures particulières.
- Sur un dépôt chimique de structure quasi-amorphe (nickel suffisamment riche en phosphore), des défauts dans la structure lors de la croissance de la couche (dû à des défauts sur le substrat par exemple) peuvent générer l'apparition de structures lors de la pulvérisation ionique.
- Sur un métal polycristallin (aluminium), l'augmentation très rapide et forte de la rugosité s'explique par sa structure cristallographique et les vitesses de pulvérisation différentes des grains (et joints de grains) en fonction de leur orientation.
- Sur un semi-conducteur polycristallin (carbure de silicium CVD), la structure cristalline des grains est révélée par la pulvérisation ionique (une structure en mosaïque apparaît). Sur le SiC-CVD, l'effet des vitesses de pulvérisation différentes entre les grains est plus ou moins marqué en fonction des conditions de pulvérisations (énergie, gaz, type de source ionique). L'augmentation très modérée de la rugosité

dans le cas d'ions argon d'énergie supérieure à 500 eV s'expliquerait par une amorphisation de la surface sous bombardement ionique.

- Sur un semi-conducteur monocristallin (silicium), il n'y a pas de pulvérisation ionique différentielle entre les grains et donc pas de développements de microstructure. Le phénomène d'amorphisation sous bombardement ionique du silicium est de plus un effet reconnu dans la littérature.

Notre travail a permis de démontrer expérimentalement la dépendance de l'évolution de l'état de surface du carbure de silicium (CVD) avec l'énergie des ions : plus grande aux faibles énergies (200-400 eV) qu'aux énergies plus élevées (500-1000 eV). L'hypothèse de dépendance du degré d'amorphisation avec l'énergie est difficile à vérifier expérimentalement. Elle nécessiterait la pulvérisation et l'analyse dans la même enceinte. Néanmoins elle semble corroborée par des simulations réalisées au moyen du logiciel TRIM (même si ce logiciel est loin d'être idéal pour cette application) et des premières mesures ellipsométriques. L'influence de la nature (masse) des ions (Argon, Krypton ou Xénon) a également été illustrée.

La confrontation de nos résultats (principalement des mesures au profilomètre optique) avec la théorie d'invariance d'échelle n'est pas toujours aisée car ceci demanderait souvent un plus grand nombre de points de mesure (profondeurs érodées) ou des mesures de meilleures résolutions spatiales (différentes échelles). De plus, les mesures réalisées ne semblent pas toujours suivre les lois d'échelle (lois de puissance). Néanmoins, nous avons pu calculer les coefficients de croissance β et de rugosité α pour quelques matériaux et conditions d'érosion. Les valeurs obtenues sur le carbure de silicium CVD de Rohm & Haas (sic-002) sont consistantes avec la dépendance de l'évolution de la rugosité avec l'énergie des ions. Le coefficient β vaut ~ 0.25 à énergie < 500 eV comme pour le modèle KPZ, et diminue ensuite au-delà de 500eV jusqu'à 0.10 à 1000 eV.

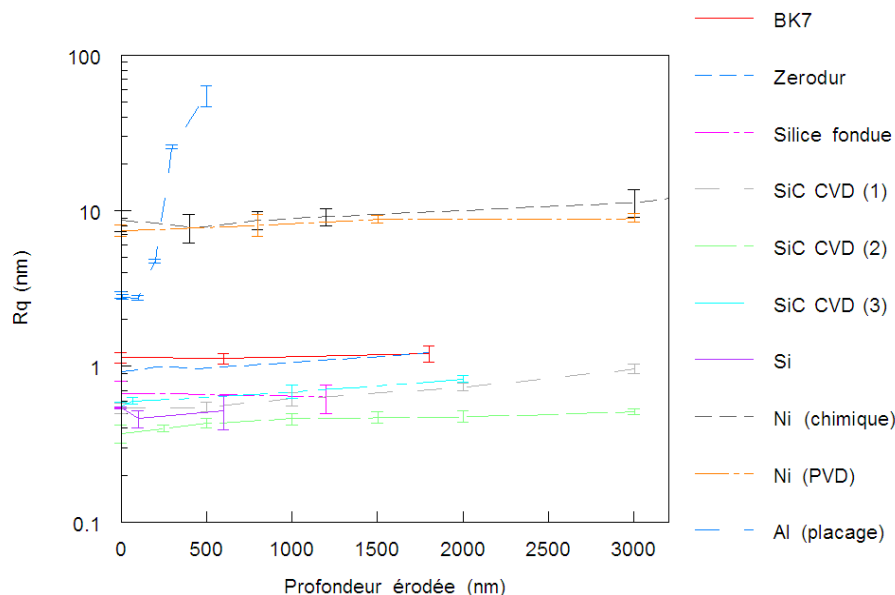


Figure 6.47. Evolution de la rugosité rms des surfaces optiques testées (mesurée au profilomètre optique) en fonction de la profondeur pulvérisées (650eV Ar⁺). SiC CVD : (1) Rohm & Haas (sic-001), (2) Rohm & Haas (sic-002), (3) Alcatel/Schunk.

6.11 Bibliographie

- [6.1] P. Gailly, *étude de l'évolution de l'état de surface dans un processus de polissage ionique*, TFE DEA sciences physiques, ULg, 1997
- [6.2] M. Ghigo, P. Cerutti, O. Citterio, P. Conconi, F. Mazzoleni, *Ion Beam Polishing of electroless nickel masters for x-ray replications*, SPIE Vol 3113, 1997
- [6.3] J.S. Goela, M.A. Pickering, *Optics applications of chemical vapor deposited β -SiC*, in: M.A. Ealey, R.A. Paquin, T.B. Parsonage (Eds.), *Advanced Materials for Optics and Precision Structures*, vol. CR67, pp. 71-104, 1997.
- [6.4] M. A. Pickering, R. L. Taylor and J. T. Keeley, G.A. Graves, *Chemically vapor deposited silicon carbide (SiC) for optical applications*, SPIE 1118, 1989.
- [6.5] K. BRENNFLECK and H. REICH, *CVD of Sic in large coating vessels*, JOURNAL DE PHYSIQUE IV, suppl. au Journal de Physique 11, Vol. 1, septembre 1991
- [6.6] P. Franssen, *Evolution de la rugosité de surface du SiC-CVD*, Rapport De Stage au CSL, 2006-2007
- [6.7] W.J. Weber, L.M. Wang, *The temperature dependence of ion-beam-induced amorphization in β -SiC*, Nucl. Instr. Meth. In Phys. Res. B 106 (1995) 298-302
- [6.8] P. Gailly, J.-P. Collette, C. Jamar, K. Fleury, P. Médart, Y. Stockman, *Roughness evolution of some X-UV materials induced by low energy (<1 keV) ion beam milling*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 216, pp. 206-212, 2004

Annexe A. Mesures de contamination par les optiques ioniques

A.1 Introduction

Un échantillon en verre (lame de microscope) a été exposé au bombardement ionique durant 15 minutes pour les conditions suivantes de source Kaufman 3cm:

BV= 8 mA; BV= 650 V; AV= 350 mA ; distance= 7 cm ; grille: 1 cm

Nous avons délibérément choisi une configuration défavorable à la contamination. Le jeu de grilles de 1 cm entraîne en effet une érosion relative des grilles plus importante. Le rapport courant grille accélératrice/courant de faisceau est en effet plus important qu'avec la grille de 3 cm. La distance grille accélératrice – échantillon était également faible. La profondeur érodée estimée est de 150 nm au centre et de 10-15 nm au bord de l'échantillon.

Cet échantillon a été soumis à deux techniques différentes d'analyse de surface : l'analyse ToF-SIMS (spectrométrie de masse d'ions secondaires) et l'analyse XPS (Spectroscopie de photoélectrons sous rayons X). Ces mesures ont été effectuées à l'Université de Mons-Hainaut, au service de Chimie Inorganique et analytique du Prof M. Hecq.

Ces deux techniques ont leurs avantages et inconvénients, d'où leur complémentarité pour notre application. L'analyse SIMS permet de mesurer des profils de concentration d'un élément sur plusieurs centaines de nanomètres. Le seuil de détection de cette technique est de plus assez bas ($\ll 0.1\%$). Malheureusement, ces profils ne donnent pas une mesure absolue mais relative de la concentration d'un élément (à moins d'effectuer des calibrations fastidieuses et coûteuses). L'analyse XPS permet une mesure absolue de la concentration d'un élément mais sur des épaisseurs très minces (quelques nanomètres). Il faut donc passer par une succession de décapage – analyse XPS si on veut établir un profil de concentration sur plusieurs centaines de nanomètres (ce qui est donc plus cher). Le seuil de détection de la mesure XPS est également plus faible ($\pm 0.1\%$). Ceci nous a tout d'abord fait hésiter à utiliser cette méthode en raison de la concentration de l'ordre de 0.1% que nous avons grossièrement pronostiquée.

Nous avons finalement décidé d'utiliser les deux techniques afin d'obtenir des profils de concentration relatif du C (SIMS) sur quelques centaines de nm et de pouvoir quantifier cette concentration en quelques points (si possible par XPS).

A.2. Analyse des résultats

Les mesures SIMS ont été effectuées au centre de la zone bombardée (150 nm érodés par la source d'ions du CSL), au bord de l'échantillon (10-15 nm érodés par la source d'ions du CSL), et sur la face arrière de l'échantillon (non bombardé). Elles fournissent les profils de concentration en C sur près de 400 nm. La Figure 6.48 distingue l'érosion due à la source d'ions du CSL (contamination) et celle due à l'analyse SIMS au centre (mesure de la contamination). Les analyses en mode ions négatifs ont révélé des profils fort semblables au centre et au bord de l'échantillon, et beaucoup plus faibles sur la face arrière. Ceci révèle bien la réalité de l'implantation de C dans le substrat. Cette concentration diminue progressivement d'un facteur 4 entre la surface et 200 nm de profondeur. De plus, il est intéressant de noter que le profil est fort semblable pour la zone du centre et la zone du bord. Ceci montre que le temps d'exposition du substrat à la source ionique influence peu l'intensité de la contamination.

D'autre part, des mesures XPS ont été réalisées au centre de l'échantillon. **Elles ont permis de quantifier la concentration du C à 1.05% en surface et à 0.28% à 50 nm de profondeur.** On retrouve encore ici le facteur 4 sur la diminution de la concentration de C, mais sur une distance plus courte.

Tous ces résultats rassemblés nous permettent d'avoir une bonne mesure de la contamination en carbone provenant des grilles sur les premières centaines de nanomètres du substrat. Nous pensons toutefois qu'il faut prendre les profils SIMS avec prudence car un effet de mixage ionique a pu se produire (atome de C continuellement projeté plus loin dans le substrat au cours de l'analyse). Ceci expliquerait le profil SIMS identique au centre et au bord de l'échantillon, ainsi que l'apparente plus

forte diminution de la concentration en C par mesure XPS. C'est pourquoi la méthode XPS semble mieux convenir à notre application, vu que le niveau contamination est légèrement supérieur à la limite de détectabilité de la méthode.

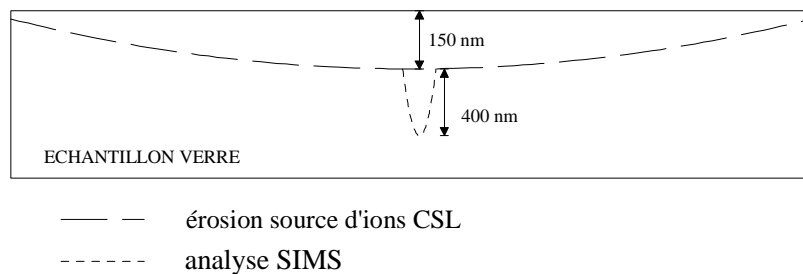
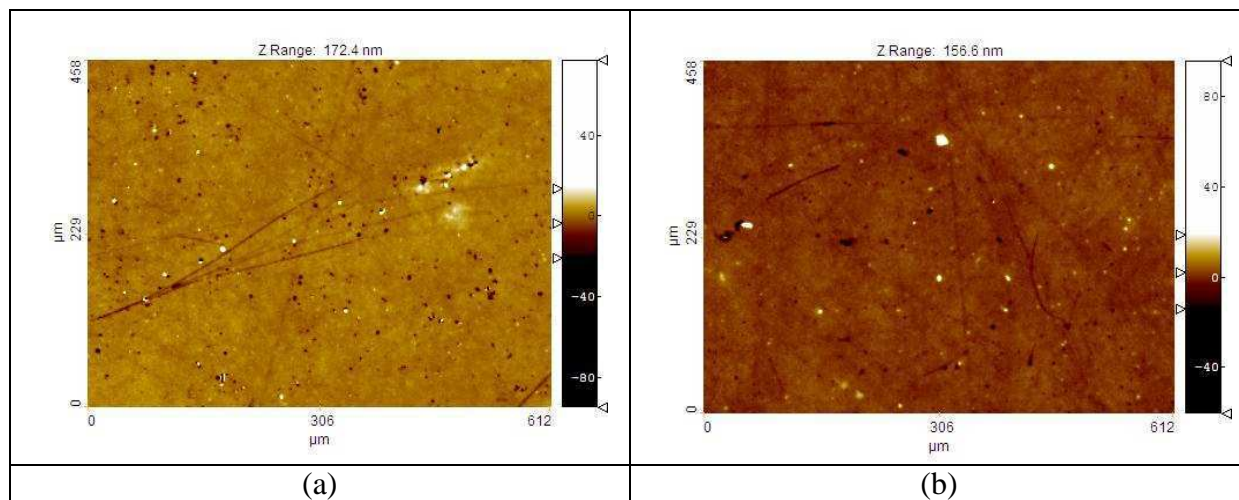


Figure 6.48. Description schématique de la pulvérisation et de l'analyse sur l'échantillon.

Annexe B. Mesures d'évolution de rugosité sur BK7

Avec masque en carbone sur optique pour diffractomètre X

Erosion	Ra		Rq		Rz		Rt	
	MOY	ET	MOY	ET	MOY	ET	MOY	ET
(μm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)
0	1.13	0.06	2.16	0.41	84.4	11.2	189.1	30.3
0.6	1.17	0.11	2.26	0.41	68.9	17.8	152.7	54.8

Tableau 6.15. Statistiques de rugosité (profilomètre optique, X10) avant et après usinage ionique d'une optique en BK7 pour diffractomètre X.

Figure 6.49. Micrographes (profilomètre optique, X10) de la surface BK7 (a) initiale et (b) après 0.6 μm pulvérisés (500 eV Ar^+ , masque en carbone).
Sans masque en carbone sur lame en BK7 (faisant partie d'un réseau en volume)

Objectif	Erosion	Ra		Rq		Rz		Rt	
		MOY	ET	MOY	ET	MOY	ET	MOY	ET
	(μm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)	(nm)
X10	0	0.69	0.04	0.99	0.14	21.1	4.8	53.7	26.8
	0.5	0.76	0.05	1.15	0.14	20.5	4.2	34.6	11.9
X40	0	0.83	0.08	1.10	0.12	10.9	2.6	26.6	16.2
	0.5	1.11	0.22	1.90	0.26	38.9	3.1	51.2	6.0

Tableau 6.16. Statistiques de rugosité (profilomètre optique, X10 et X40) avant et après usinage ionique d'une lame en BK7 (réseau en volume).

Les statistiques de surface d'échantillons de BK7 ont été déterminées après érosion d'une profondeur constante de 0.5 μm sur un diamètre de 110 mm de la surface d'un réseau en volume formé de 2 plaques en BK7 et de gélatine²⁰. Ici, il n'y avait pas de masque en carbone placé entre la source et le verre. Une profondeur moyenne de 0.5 μm a été pulvérisée aux endroits de mesure après pulvérisation ionique. On constate l'apparition sur la surface de nombreux pics d'un diamètre de $\sim 5 \mu\text{m}$ et d'une hauteur de 10 à 30 nm (voir Figure 6.50 et Figure 6.51). Ces pics ne semblent pas dues à des projections (des grilles en carbone), mais au matériau BK7 lui-même. Ces pics sont en fait déjà présents (mais avec une densité beaucoup

²⁰ Le réseau est enregistré par holographie dans la gélatine emprisonnée entre les 2 plaques de BK7

plus faible) sur la surface initiale. Ils sont donc interprétés comme des hétérogénéités présentes dans le verre, qui présentent des vitesses de pulvérisations différentes. A nouveau, en dehors de ces pics, aucune structure particulière ne semble apparaître sur la surface du matériau.

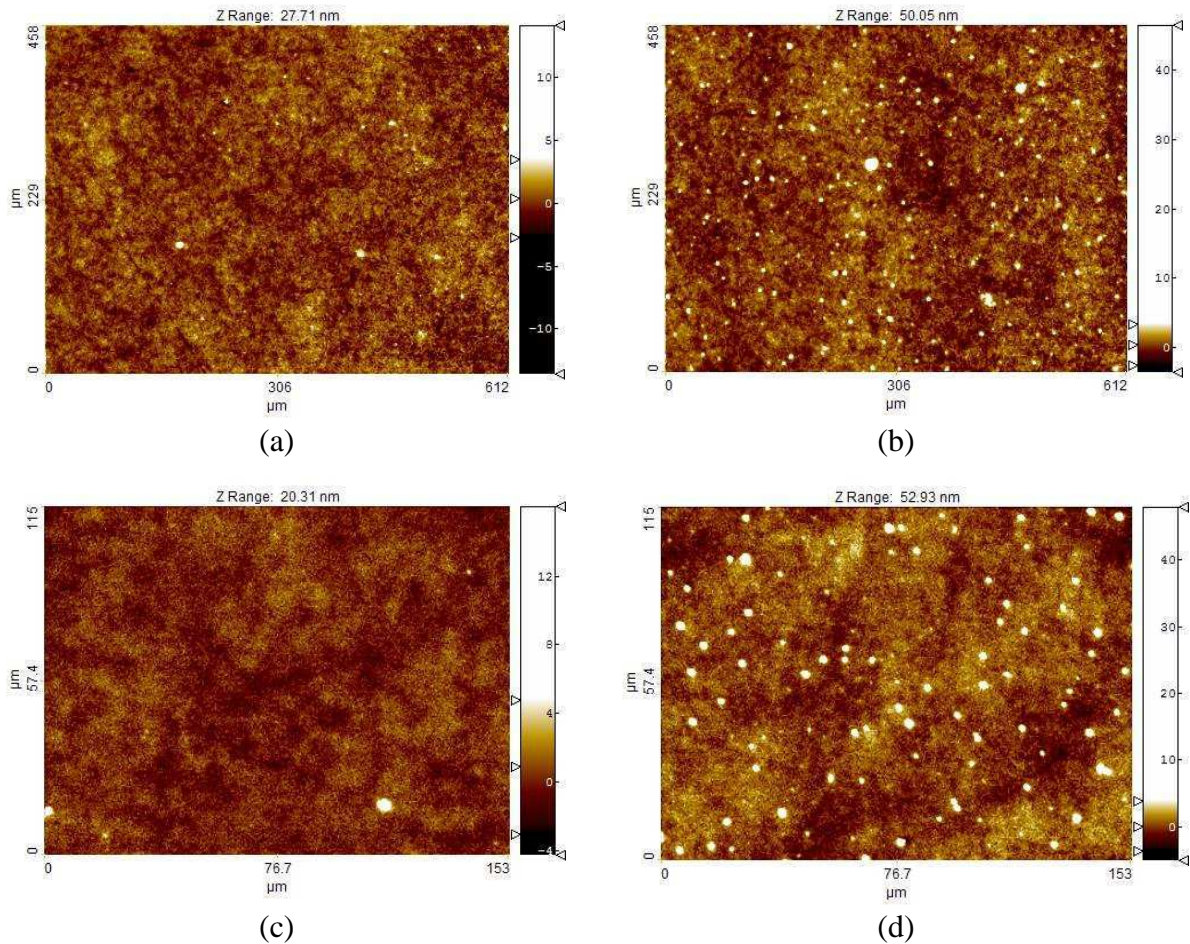


Figure 6.50. Micrographes (profilomètre optique, X10 et X40) de la surface BK7 (a-b) initiale et (b-d) après $0.5 \mu\text{m}$ pulvérisés (650 eV Ar^+).

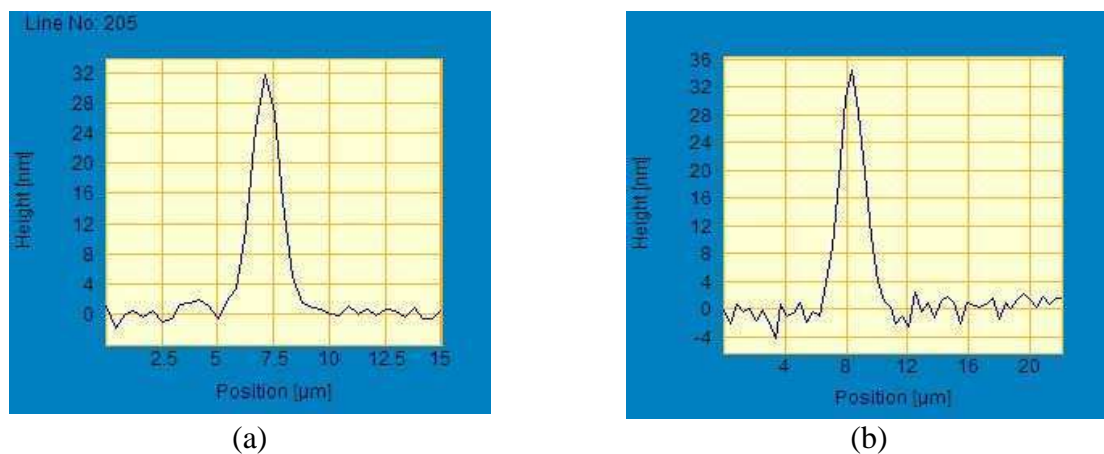


Figure 6.51. Exemples de Profil typiques de pics observés sur la surface de la lame en BK7 après $0.5 \mu\text{m}$ pulvérisés (650 eV Ar^+).

Annexe C. Test ANOVA

Afin de déterminer si les différentes valeurs de rugosité mesurées sont significativement différentes ou non du point de vue statistique, nous avons appliqué le test ANOVA à plusieurs échantillons

– Test de l'homogénéité des variances

Nous utilisons le test de Hartley qui permet de comparer plusieurs échantillons de taille identique. Le principe du calcul est repris ci-dessous.

On compare $H_{\text{observé}}$ avec $H_{\text{théorique}}$:

$H_{\text{observé}} = \text{variance la plus grande} / \text{variance la plus petite}$

$H_{\text{théorique}}$ donnée par les tables de Hartley telle que : H table pour k dl; r dl; 0,95

k est le nombre de groupes comparés

r=ni-1; c-à-d le nombre de d.l .des variances étudiées

Conclusions

Si $H_{\text{observé}} > H_{\text{théorique}}$, alors cela signifie que les variances des 2 échantillons sont trop différentes. Il est impossible de comparer des échantillons qui ne varient pas de la même manière.

Si $H_{\text{observé}} < H_{\text{théorique}}$, nous n'avons pas pu mettre en évidence de différence significative des variances. Par conséquent, il est possible de comparer les moyennes de tels échantillons.

– Test ANOVA

Si le test d'homogénéité des variances est positif, nous pouvons comparer les moyennes et appliquer le test ANOVA décrit ci-dessous.

Hypothèses

H0: toutes les moyennes sont identiques

H1: au moins une des moyennes est différente des autres

	SCE	DI	CM	Fobservé	F table
Total	SCET	N-1			dIF et dIR
factoriel	SCEF	n_a-1	SCEF/dIF	CMF/CMR	alpha 5%
résiduel	SCER	$N-n_a$	SCER/dIR		alpha 1%

SCET =somme.carres.ecarts(individus de l'expérience)

SCEF = n_i * somme.carres.ecarts(moyenne des échantillons)

SCER =(n_i-1)*somme(toutes les variances)

N est le nombre total d'observations tous échantillons confondus

n_a est le nombre d'échantillons comparés

n_i est le nombre d'individus par échantillon

Dans les tables, il faut aller rechercher:

F dl_{factoriel}; dl_{résiduel}; (1-alpha)

Conclusions

Lorsque le $F_{\text{observé}}$ est supérieur ou égal au $F_{\text{théorique}}$ (F des tables), il y a rejet de l'hypothèse nulle H0. Cela implique que l'on a réussi à mettre en évidence la présence d'au moins une moyenne différente des autres.

$F_{\text{obs}} \geq F_{\text{tables}}$, RH0

Annexe D. Mesures BSED et DRX du SiC CVD

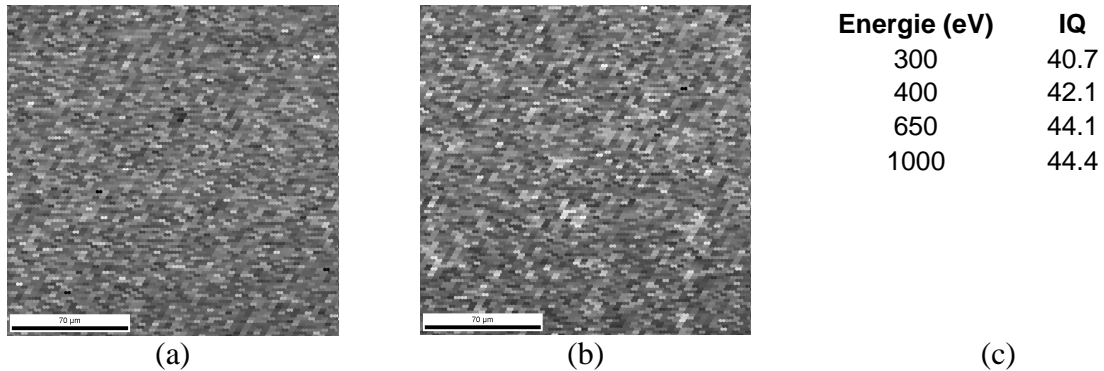


Figure 6.52. Images BSED des échantillons de SiC CVD de Rohm & Haas (SiC-002) pulvérisés à (a) 300 et (b) 1000 eV Ar⁺. Le facteur IQ mesuré en fonction de l'énergie des ions Argon est donné en (c).

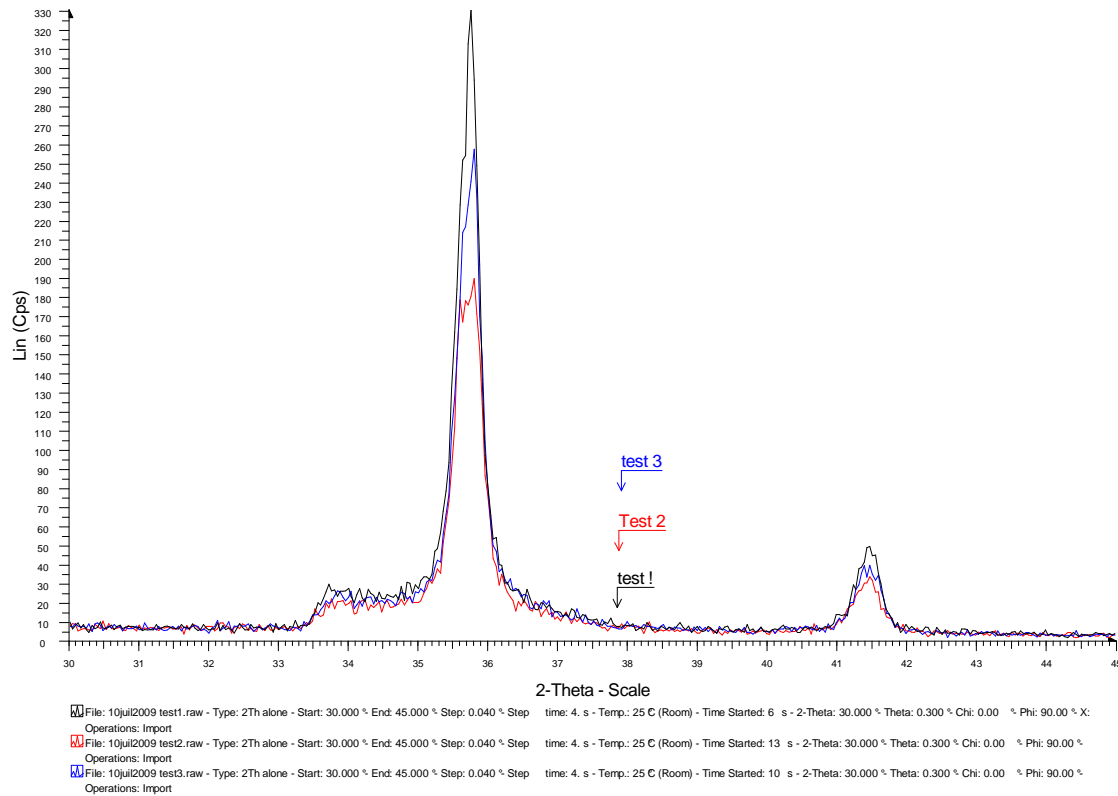


Figure 6.53. Spectre DRX d'un échantillon SiC CVD de Rohm & Haas (SiC-002) non pulvérisé. L'échantillon est enlevé puis repositionné sur son support entre chaque courbe (test 1 à 3)

Chapitre 7

Mesures d'évolution de rugosité de surfaces
or/nickel pour miroirs à rayons X

Table des matières

7. Mesures d'évolution de rugosité de surfaces or/nickel pour miroirs à rayons X

7.1.	Introduction	4
7.1.1.	Méthode de fabrication des miroirs à rayons X type XMM.....	4
7.1.2.	Le projet « NGXF »	5
7.2.	Principales caractéristiques des matériaux	6
7.2.1.	La couche mince d'or	6
7.2.2.	Le nickel électrolytique	7
7.2.2.1.	Généralités.....	7
7.2.2.2.	Microstructure des échantillons pulvérisés	7
7.3.	Procédure expérimentale	9
7.4.	Enlèvement de la couche d'or par érosion ionique	9
7.4.1.	Série 1 : échantillons de rugosité initiale moyenne.....	9
7.4.1.1.	Introduction	9
7.4.1.2.	Influence de l'angle d'incidence	10
7.4.1.3.	Influence de l'énergie en incidence rasante	12
7.4.1.4.	Influence de l'énergie en incidence normale.....	14
7.4.2.	Série 2 : échantillons de rugosité initiale faible	15
7.4.2.1.	Influence de l'énergie	15
7.4.2.2.	Evolution en fonction de la profondeur d'or érodée	16
7.4.2.3.	Influence de la masse de l'ion incident	17
7.4.3.	Discussion	18
7.4.3.1.	En incidence normale	18
7.4.3.2.	En incidence oblique	19
7.5.	Pulvérisation du nickel électrolytique	20
7.5.1.	Evolution de la rugosité.....	20
7.5.2.	Comparaison aux lois d'invariance d'échelle	23
7.6.	Conclusions	25
7.7.	Bibliographie	26
Annexe A.	Calcul de l'ondulation pour l'or pulvérisé à 80° d'incidence	27
Annexe B.	Mesures de rugosité du nickel électrolytique	30
Annexe C.	Comparaison de mesures de rugosité en mode PSI et VSI	31

7.1. Introduction

Dans ce chapitre, nous résumons l'ensemble des mesures d'évolution de rugosité qui ont été réalisées sur un type particulier de miroirs à rayons X pour télescope spatial. Ces optiques sont constituées d'une couche de nickel électrolytique de 0.5 mm sur laquelle une couche mince d'or (0.2 μm) a été déposée par PVD¹. Ce type de surface permet de réfléchir la lumière X en incidence rasante. Ce type de miroir a été utilisé pour le satellite XMM-Newton. La méthode de fabrication de telles optiques et le projet qui a conduit à étudier l'évolution de la rugosité de ces matériaux (or et nickel électrolytique) sous bombardement ionique sont brièvement décrits ci-dessous. Les propriétés des matériaux utilisés et les mesures d'évolution de la rugosité seront présentées et discutées dans la suite du chapitre.

Les mesures de rugosité ont été réalisées en partie avec C. François dans le cadre de son travail de fin d'étude [7.1]. Le chapitre présente complète ces mesures avec de nouvelles mesures et analyses.

7.1.1. Méthode de fabrication des miroirs à rayons X type XMM

Les miroirs type XMM consiste en un design Wolter avec une longueur de parabole de 300 millimètres suivie d'une hyperbole de 300 millimètres. La fabrication de ces miroirs est basée sur un processus de réplique, qui transfère une couche d'or déposée sur un mandrin fortement poli à la coquille électrolytique de nickel. Les mandrins (produits par Zeiss) sont de doubles blocs coniques d'aluminium enduits du nickel ®Kanigen, usinés à la forme exacte requise, et finalement super-polis après plusieurs cycles à une rugosité inférieure à 0.4 nanomètre rms. Les étapes principales de la production des miroirs (réalisés par Media Lario) sont :

- La couche réfléchissante d'or ($\sim 0.2 \mu\text{m}$ d'épaisseur) est évaporée sous vide sur le mandrin.
- Le mandrin plaqué or est préparé et recouvert du nickel dans un bain d'électroformage.
- Le côté intérieur du mandrin est refroidi pour permettre la séparation entre le mandrin et le miroir.
- Les 16 petits trous sont forés près du bord du segment de l'hyperboloïde du miroir pour l'attachement d'un système de suspension de fil qui est employé pour toutes les opérations de manipulation, métrologie et intégration
- La qualité optique (géométrie et rugosité) de chaque coquille de miroir est ensuite évaluée.
- Le miroir est transféré sur banc optique vertical de Media Lario (ML-VOB pour *Media Lario Vertical Optical Bench*) où les performances optiques sont mesurées et l'intégration sur la base (*spider*) commence.
- Le miroir est fixé en deux étapes sur la base à l'aide d'une colle époxy.

Il apparaît que les deux principaux facteurs limitant la performance optique du miroir sont :

- La performance du mandrin lui-même (4-5 arcsec), vu qu'une réplique 1-1 mandrin-miroir est réalisée
- La connexion du miroir sur sa base est l'étape la plus critique du procédé de fabrication. L'araignée de support est connectée à la plateforme du satellite XMM grâce à une interface (MIS-Mirror Interface Structure). Il a été démontré que l'intégration du MIS induit des déformations mesurables (effet « étoile ») au niveau de la PSF (*Point Spread Function*).

¹ *Physical Vapour Deposition*

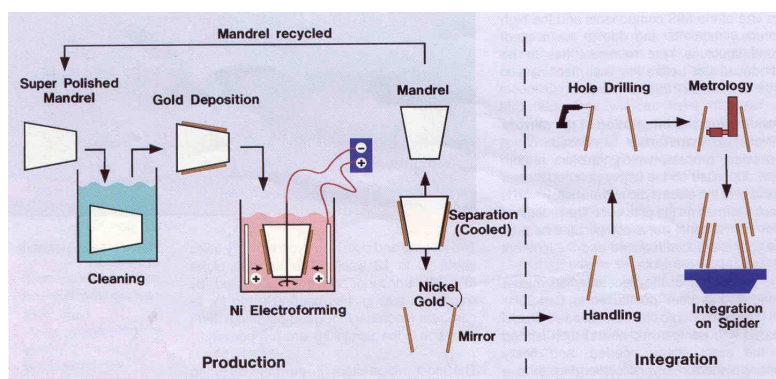


Figure 7.1. Illustration du procédé de fabrication des coquilles en nickel (miroir à rayons X)

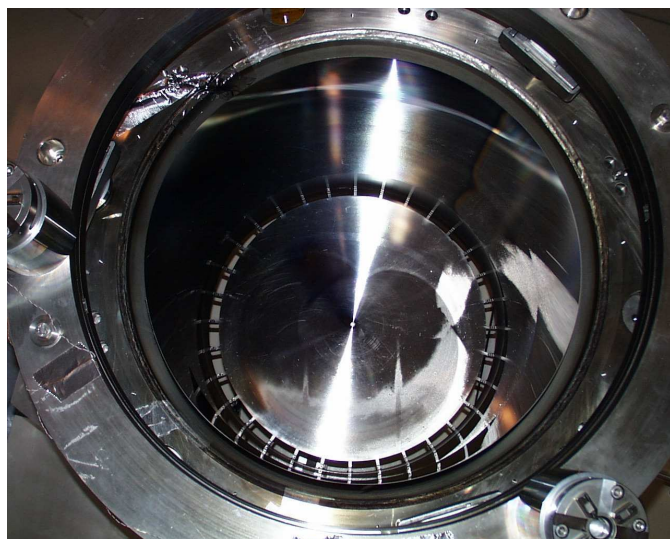
7.1.2. Le projet « NGXF »

Ce projet, intitulé NGXF (Next Generation X-ray mirror Fabrication), a été réalisé au CSL, en collaboration avec la société productrice des miroirs Media Lario, et financé par l'ESA.

Le projet consistait principalement à :

- apporter certaines améliorations mécaniques au niveau de l'intégration du miroir qui est responsable d'environ la moitié du budget d'erreurs.
- étudier la faisabilité de correction des erreurs de forme de telles optiques par faisceau d'ions.

Deux nouvelles coquilles ont ainsi été fabriquées et testées. C'est sur ce nouveau type de coquille que les essais de correction des erreurs de forme par faisceau d'ions ont été menés (voir Figure 7.2). Le projet et les résultats obtenus ont fait l'objet d'une publication [7.2].



Caractéristiques optiques de MS2

Longueur focale = 7500 mm
 Diamètre au bord de la parabole = 690.175 mm
 Diamètre à l'interface parabole-hyperbole = 683.380 mm
 Diamètre au bord de l'hyperbole = 662.849 mm
 Epaisseur = 0.7 mm
 Longueur cylindre = 100 mm
 Longueur parabole = 300 mm
 Longueur hyperbole = 300 mm
 Couche mince : Or
 Substrat : Nickel
 Masse miroir = 10 kg
 Rayon absolu: $0 < \Delta R < 20 \mu\text{m}$
 Ovacité globale = $100 \mu\text{m PTV}$
 Changement uniforme de rayon: $0 < \Delta r < 100 \mu\text{m}$
 Changement de rondeur (en phase): $< 100 \mu\text{m}$
 Changement de rondeur (hors phase): $< 4 \mu\text{m}$

Figure 7.2. Coquille de miroir (MS2) après traitement par faisceau d'ions.

Concernant la présence de la couche d'or sur les miroirs, celle-ci étant trop fine ($0.2 \mu\text{m}$) pour réaliser la correction des erreurs de forme (plusieurs μm), l'idée était d'enlever la couche d'or et de réaliser ensuite la correction dans le nickel. Pour réaliser l'enlèvement de couche d'or, la pulvérisation par faisceau d'ions a également été étudiée en parallèle avec d'autres techniques (par voie chimique et par ablation laser). Le but était évidemment de retirer la couche d'or en détériorant le moins possible l'état de surface initial et en veillant à retirer complètement cette couche (afin d'éviter par la suite des pulvérisations ioniques différentielles entre des « restes

d'or » et le nickel). C'est finalement la technique d'enlèvement par faisceau d'ions qui s'est avérée de loin la plus efficace.

7.2. Principales caractéristiques des matériaux

7.2.1. La couche mince d'or

Les informations dont nous disposons sont avant tout basées sur l'analyse réalisée pour l'ESTEC sur des échantillons Au/Ni réalisés avec la méthode de fabrication expliquée au paragraphe précédent 7.1.1. Les premières analyses sur ce type de dépôt ont fait l'objet d'un rapport commandé par l'ESA [7.3]. Des dépôts d'or sur substrat en verre (échantillons témoins) ont également été réalisés comme échantillons témoins. Dans les deux cas, une épaisseur d'or entre 130 et 170 nm a été déposée par technique PVD (entre 10^{-6} et 10^{-7} mbar). L'analyse par diffraction X de la couche d'or révèle une structure polycristalline. La taille des grains est estimée entre 34 et 37 nm sur substrat Ni (40 et 93 nm sur substrat SiO_2). Les mesures (réalisées uniquement sur substrat SiO_2) d'intensité relative des pics de réflexions de Bragg d'orientation cristalline (111), (200), (220) et (311) montrent que la surface croît principalement dans la direction (111). Le dépôt peut être considéré comme libre de dislocations et aucune structure amorphe n'a été détectée.

Par ailleurs, le profil en profondeur de la couche d'or a été mesuré² par rétrodiffusion de Rutherford (RBS³) sur un échantillon provenant du même miroir (coquille) que celui utilisé pour notre étude sur la rugosité. Le spectre obtenu (voir Figure 7.3) a permis de déduire précisément l'épaisseur d'or: 0.23 μm . On y constate également que l'interface or-nickel est nette (pas de diffusion entre les 2 matériaux).

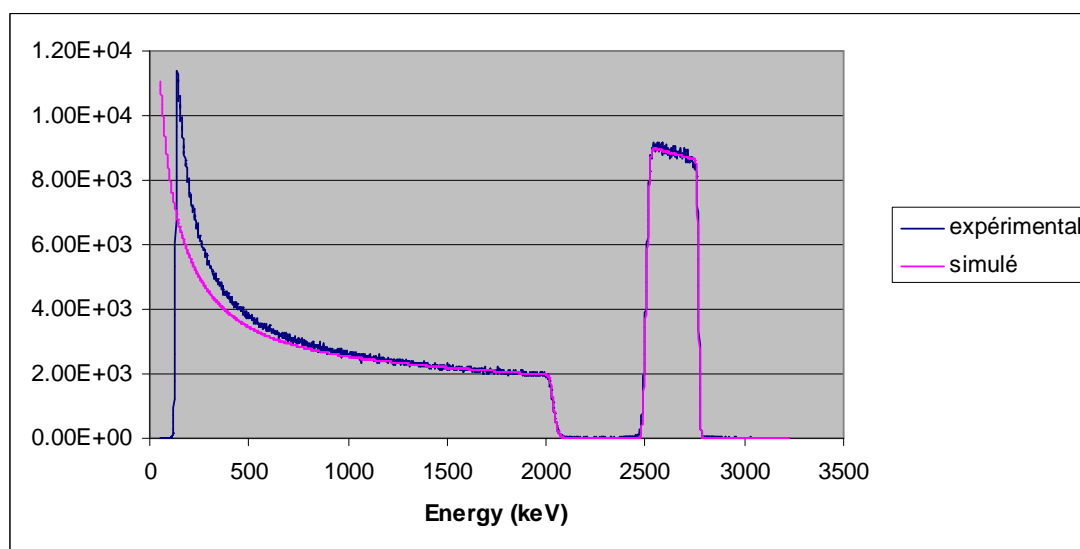


Figure 7.3. Spectre d'énergie RBS obtenu sur un échantillon de la même série que celle étudiée dans ce chapitre (couche mince d'or sur nickel). La mesure RBS a été effectuée avec une particule incidente α de 3 MeV d'énergie et un angle de détection de 165° . L'épaisseur t de 234 nm est obtenue sur base du produit $N t$ évalué par la méthode de l'aire du pic (1380×10^{15} atomes / cm^2) et de la densité atomique N théorique de l'or ($5.904 \cdot 10^{22}$ atomes / cm^3). L'épaisseur peut également être facilement approximée sur le spectre par la relation $\Delta E / [\varepsilon]$, où la perte d'énergie ΔE est la $\frac{1}{2}$ largeur du pic ($264 \text{ keV} / 2$) et $[\varepsilon]$ est la section efficace moyenne d'arrêt ($560 \text{ keV}/\mu\text{m}$).

² Mesure effectuée au laboratoire LARN des FUNDP (Université de Namur).

³ Rutherford Back-Scattering

7.2.2. Le nickel électrolytique

7.2.2.1. Généralités

Dans le cas du nickelage électrolytique, il existe plusieurs types de structure [7.4] dont la formation dépend des paramètres d'électrolyse (bains, additifs, pH, densité de courant...).

Les dépôts réalisés en bain de Watts ont généralement une structure colonnaire. Une diminution de la température de l'électrolyte provoque une diminution de la taille de grain et le nickel devient fibreux. Les effets sont identiques lorsque l'on augmente le pH (3 à 5) ou la densité de courant (5 à 20 A /dm²). Les dépôts issus de bain au fluoroborate ont une structure semblable à celle obtenue avec des bains de Watts. Les électrolytes au sulfamate ou au chlorure produisent des dépôts fibreux dont la taille de grain est inférieure à celle des dépôts réalisés avec un bain de Watts.

La structure habituellement colonnaire des dépôts semi-brillants peut laisser place à une structure lamellaire lorsque l'on augmente la vitesse d'agitation.

L'évolution de la texture est principalement reliée au pH et à la densité de courant d'un bain de Watts. La texture des dépôts est également fortement conditionnée par le type d'inhibiteur de croissance chimisorbé à la surface du nickel. Selon les auteurs, les cristallites auraient une direction (110) prépondérante lorsque les autres directions cristallographiques sont bloquées par la présence d'hydrogène atomique. L'hydrogène gazeux quant à lui favorisant la texture (210). La texture (211) est due à l'inhibition par l'hydroxyde Ni(OH)₂ des autres directions de croissance. L'ajout de composés organiques modifie les conditions chimiques et électrochimiques d'existence des différents éléments inhibiteurs (H_{ads}, H₂, Ni(OH)₂) et la structure s'en trouve modifiée de même que l'utilisation d'un courant pulsé modifie également la texture des dépôts de nickel.

7.2.2.2. Microstructure des échantillons pulvérisés

Aucune information concernant les paramètres du bain électrolytique ou la structure des échantillons fournis par le fabricant des coquilles (Media Lario) n'a pu être obtenue.

Afin de mieux comprendre la microstructure des échantillons et les résultats obtenus, des coupes transversales ont été réalisées et mesurées au microscope optique et électronique à l'*Austrian Material Technology Testhouse* (AMTT)⁴. Ces mesures ont été réalisées sur les 2 séries d'échantillons qui ont été testées par pulvérisation (voir procédure expérimentale et résultats expérimentaux). La première série (appelée « série 1 ») correspond aux échantillons découpés dans des coquilles de réserve issues du projet XMM (~1 mm d'épaisseur). La deuxième série (appelée « série 2 ») correspond aux échantillons réalisés dans le cadre du projet NGXF, qui avaient des épaisseurs plus réduites (~0.6 mm d'épaisseur) et ont sans doute été réalisés avec des paramètres légèrement différents au niveau du bain électrolytique. On constate en effet que les deux séries d'échantillons présentent des différences en ce qui concerne la structure du nickel. Le nickel de la série 1 présente deux zones bien distinctes : celle près de la couche d'or avec une structure de type colonnaire et celle plus loin dans le substrat de type « aléatoire » (voir Figure 7.4). Par contre, la série 2 présente le même type de structure « aléatoire » sur toute la profondeur (voir Figure 7.5).

⁴ En plus des mesures de surface réalisées dans cadre du projet NGXF (voir résultats). Accès gratuit aux services de l'AMTT obtenu grâce à un programme européen de collaboration dans le secteur spatial.

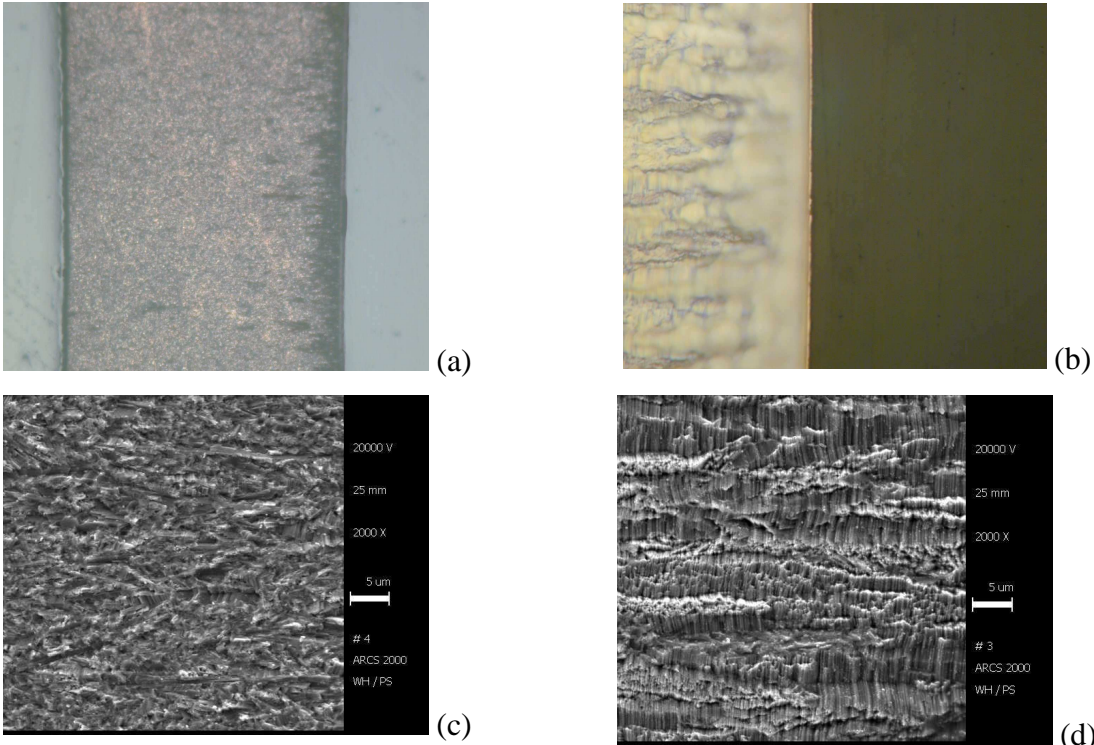


Figure 7.4. Coupe transversale d'un échantillon Au-Ni de la série 1 observé au microscope optique en grossissement (a) X5 et (b) X80 et au SEM (c) dans la zone centrale et (d) dans la zone près de la couche d'or.

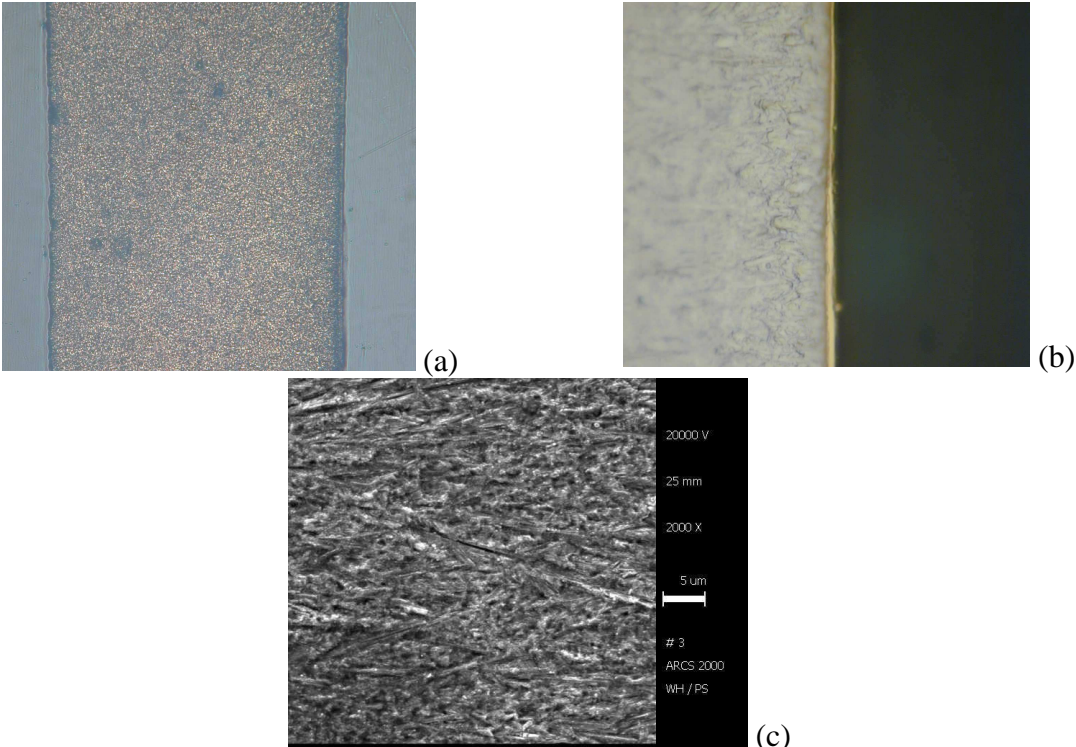


Figure 7.5. Coupe transversale d'un échantillon Au-Ni de la série 2 observé au microscope optique en grossissement (a) X5 et (b) X80 et (c) observé au SEM.

7.3. Procédure expérimentale

L'évolution de l'état de surface de l'or et ensuite du nickel a été étudiée sur 2 séries d'échantillons différentes comme expliqué au paragraphe précédent. Au niveau de la rugosité initiale de l'or, elle était meilleure sur la série 2 (~1 nm rms) que sur la série 1 (~5 nm rms).

Chaque échantillon est mesuré après érosion à l'aide du profilomètre optique. Les mesures sont en général faites avec deux objectifs différents : x10 et x40. Le mode PSI ou VSI a été utilisé en fonction du niveau de rugosité de la surface : PSI pour les surface lisses avec $R_q < 20$ nm et VSI pour les surfaces de rugosité supérieure. Après chaque séquence de pulvérisation, de 5 à 10 mesures sont réalisées sur l'échantillon à différents endroits choisis de manière aléatoire dans la zone d'érosion maximale. Ces différentes mesures servent alors à calculer la moyenne et la déviation standard.

La surface des échantillons pulvérisés a également été observée avec un microscope électronique à balayage (Zeiss DSM 950) à l'AMTT⁵.

7.4. Enlèvement de la couche d'or par érosion ionique

7.4.1. Série 1 : échantillons de rugosité initiale moyenne

7.4.1.1. Introduction

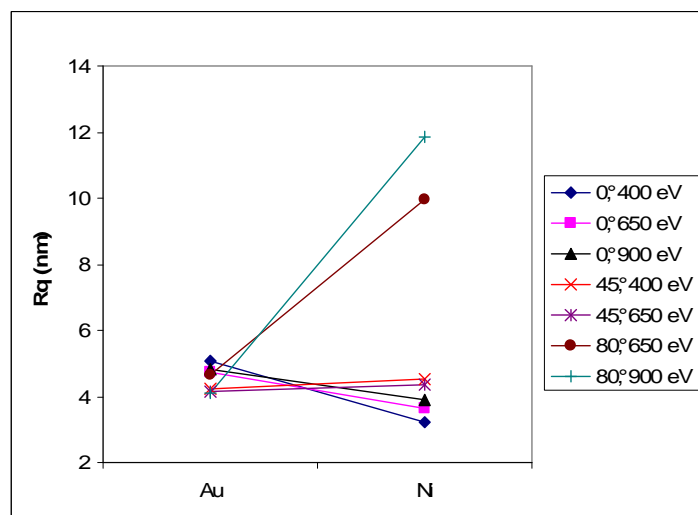


Figure 7.6. Rugosité rms (R_q) mesurée (profilomètre optique, X10) sur les échantillons Au/Ni avant et après enlèvement de la couche d'or ($0.2 \mu\text{m}$) par faisceau d'ions argon pour différents angles d'incidence (0° , 45° et 90°) et énergies (400, 650 et 900 eV).

Le but de cette première série de mesures était de déterminer les meilleures conditions pour l'enlèvement de la couche d'or par un faisceau d'ions. A cette fin, des essais de pulvérisation de la couche d'or ont été réalisés avec différents angles d'incidence du faisceau d'ions par rapport à la surface (0° , 45° et 80°) et énergie des ions (400, 650 et 900 eV). Ces mesures ont été effectuées sur la « série 1 », qui sont des échantillons de rugosité initiale moyenne (~5 nm rms). On constate à la Figure 7.6 que l'évolution de la statistique de rugosité rms après pulvérisation de la couche d'or est très différente en fonction des conditions d'érosion. En résumé, nous constatons une diminution de la rugosité en incidence normale ($\theta=0^\circ$), une

⁵ Austrian Material Technology Testhouse

stagnation (voir légère augmentation) en incidence oblique ($\theta=45^\circ$) et une forte augmentation en incidence rasante ($\theta=80^\circ$). L'influence de l'énergie semble moins évidente. Nous allons examiner plus en détails l'influence de ces deux paramètres (angle d'incidence et énergie des ions) tandis que les raisons des différences mesurées seront discutées plus loin.

7.4.1.2. Influence de l'angle d'incidence

Les échantillons pulvérisés aux différents angles d'incidence ont été observés aux SEM et à l'AFM.

En incidence normale, la structure de la surface est fine (voir Figure 7.7).

En incidence oblique (45°), on constate une structure plus granuleuse (voir Figure 7.8). L'analyse de grains⁶ réalisée sur l'image SEM après enlèvement complet de la couche d'or donne une taille de grain moyenne de $0.26 \mu\text{m}$ (voir Figure 7.10). On observe également que la taille des grains semble augmenter au fur et à mesure de l'érosion, tel que le montre l'analyse de grains réalisée à la Figure 7.11, correspondant à un enlèvement partiel de l'or ($\sim 100 \text{ nm}$), avec une taille de grain moyenne plus petite ($0.23 \mu\text{m}$).

En incidence rasante (80°), on constate l'apparition d'une structure en « stries » (voir Figure 7.9). Ces stries sont orientées selon la direction de la projection de la direction du faisceau d'ions sur la surface. La période a été évaluée en appliquant la fonction d'auto-corrélation à l'aide du logiciel SPIP sur l'image (voir Figure 7.14). L'analyse des écarts entre les pics du profil sur cette figure donne lieu à une période de $0.2\text{-}0.3 \mu\text{m}$.

Ces stries peuvent s'expliquer à partir du modèle de Bradley-Harper (voir chapitre 4) qui explique la formation d'ondulation à l'échelle submicronique en incidence oblique. Nos mesures sont discutées plus en avant au paragraphe 7.4.3.2.

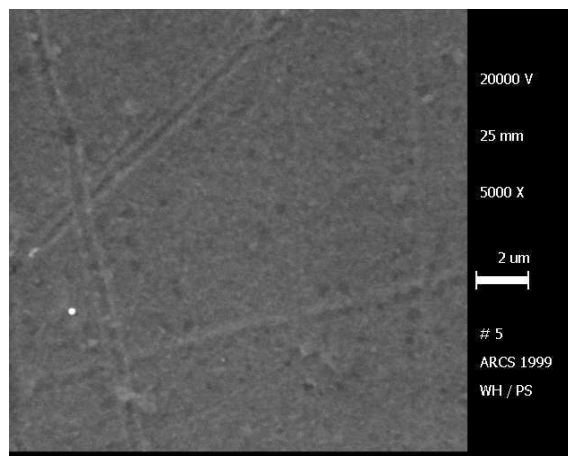
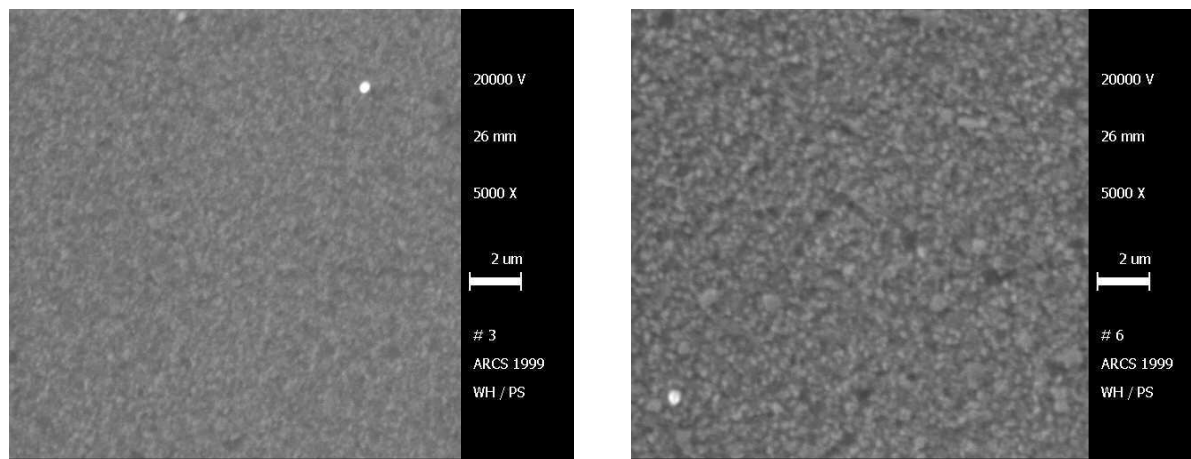


Figure 7.7. Micrographies (SEM, X5000) de la surface Au/Ni après enlèvement complet de la couche d'or pour un angle d'incidence de 0° (650 eV Ar^+).

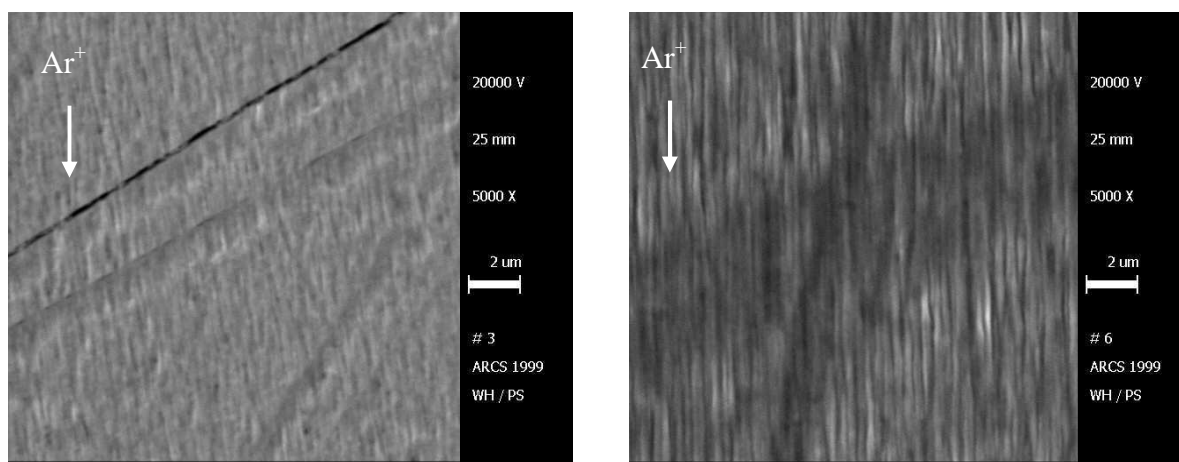
⁶ L'analyse de grains a été réalisée à l'aide du logiciel SPIP en utilisant la méthode dite de « ligne de partage des eaux » (*watershed*). La taille des grains correspond au diamètre du segment défini dans SPIP comme $2 \cdot (\text{surface du segment} / \pi)^{1/2}$



(a)

(b)

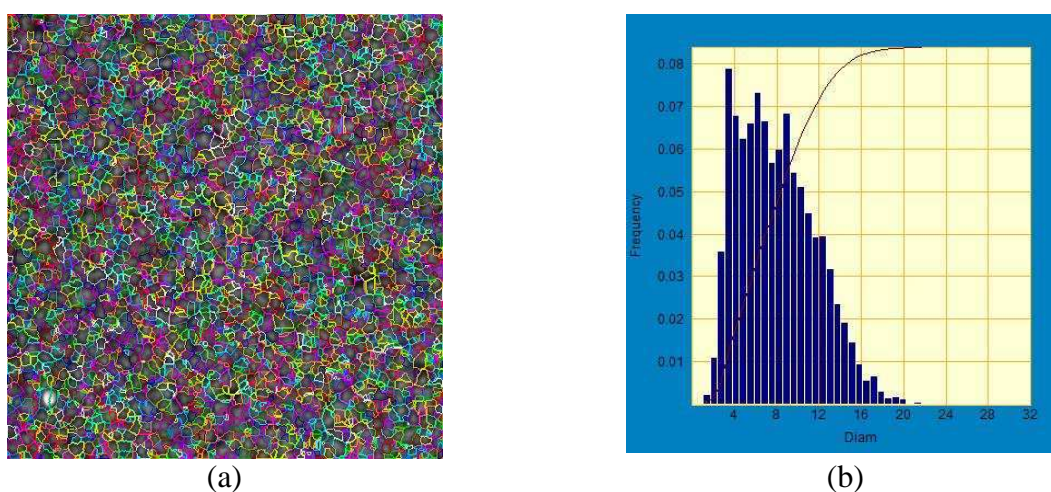
Figure 7.8. Micrographies (SEM, X5000) de la surface Au/Ni après enlèvement (a) partiel (~0.1 μm) et (b) complet (~0.2 μm) de la couche d'or pour un angle d'incidence de 45° (650 eV Ar^+).



(a)

(b)

Figure 7.9 . Micrographies (SEM, X5000) de la surface Au/Ni après enlèvement (a) partiel (~0.1 μm) et (b) complet (~0.2 μm) de la couche d'or pour un angle d'incidence de 80° (900 eV Ar^+). La flèche indique la direction du faisceau.



(a)

(b)

Figure 7.10. Analyse de grains de la Figure 7.8b (après enlèvement complet de la couche d'or): (a) contours et (b) histogramme du diamètre des segments détectés (650eV Ar^+ , à 45° , résolution image: 33 nm/pixel).

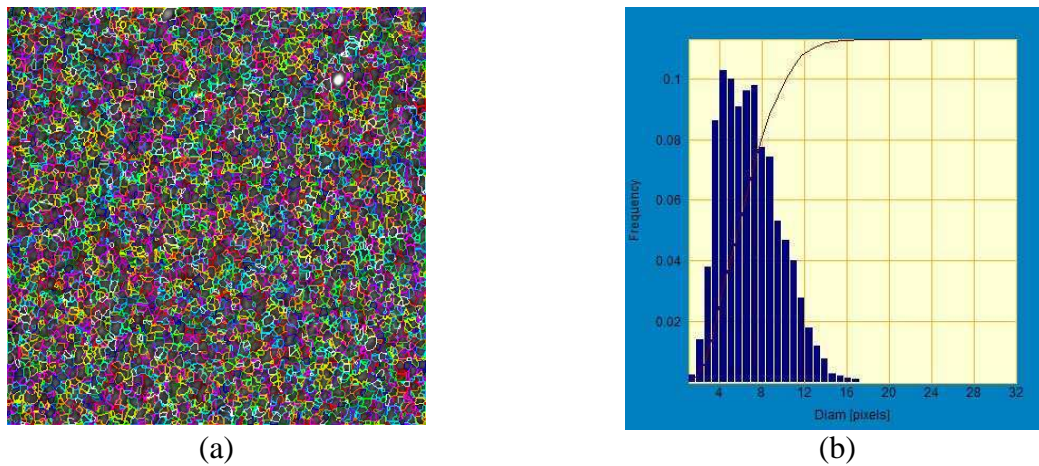


Figure 7.11. Analyse de grains de la Figure 7.8a (après enlèvement partiel de la couche d'or): (a) contours et (b) histogramme du diamètre des segments détectés (650eV Ar⁺, à 45°, résolution image: 33 nm/pixel).

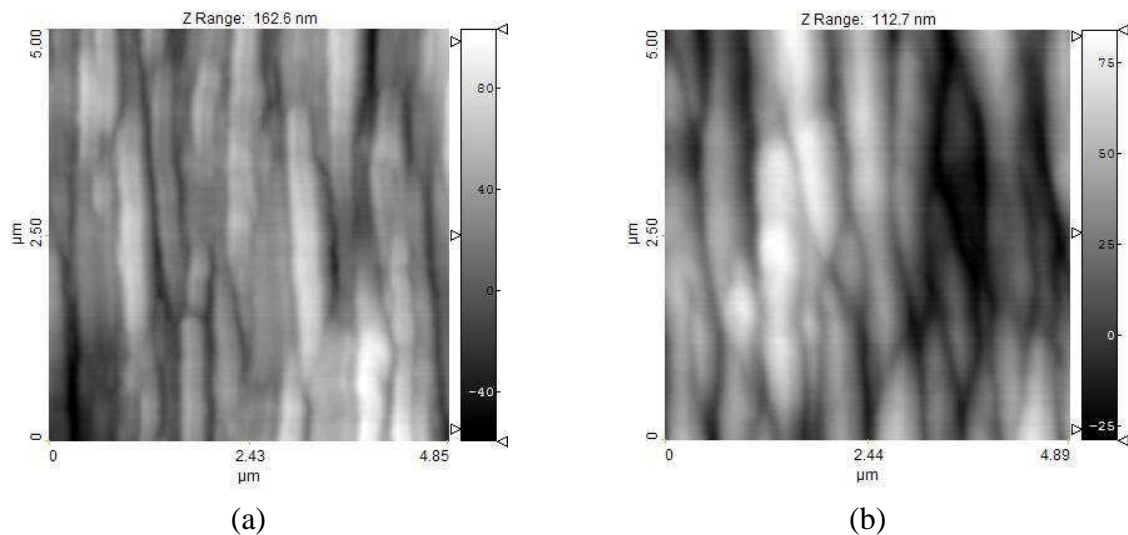


Figure 7.12. Mesures AFM de la surface Au/Ni après érosion (a) partielle (~0.1 μm) et (b) complète (~0.2 μm) de la couche d'or pour un angle d'incidence de 80° (650 eV Ar⁺).

7.4.1.3. Influence de l'énergie en incidence rasante

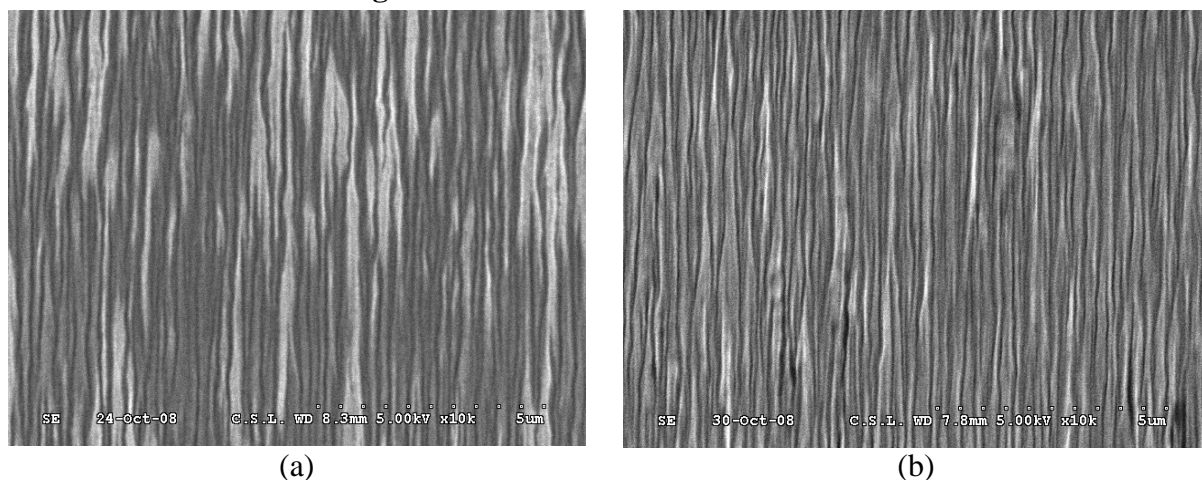


Figure 7.13. Micrographies (SEM, X10K) de la surface Au/Ni après enlèvement de la couche d'or pour un angle d'incidence de 80° (Ar⁺) et 2 énergies différentes : (a) 650 eV et (b) 900 eV.

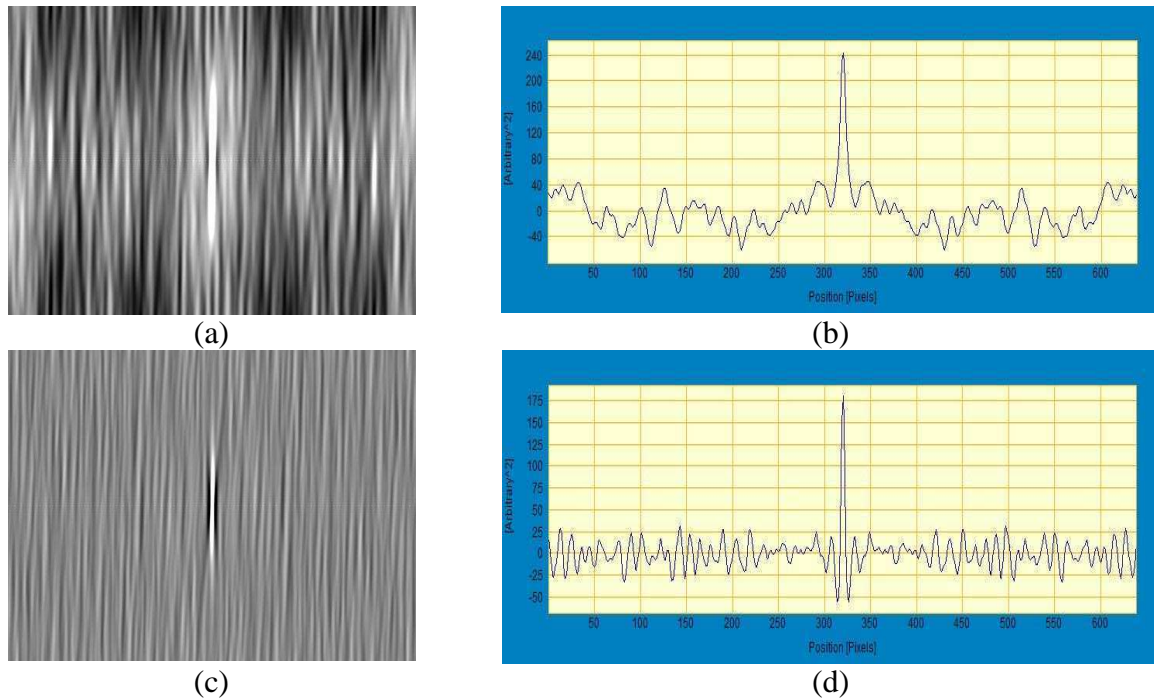


Figure 7.14. Fonction d'auto-corrélation et profil moyen selon X (a-b) de la Figure 7.13a (650 eV) et (c-d) de la Figure 7.13b (900 eV). Echelle : 1 pixel=20 nm.

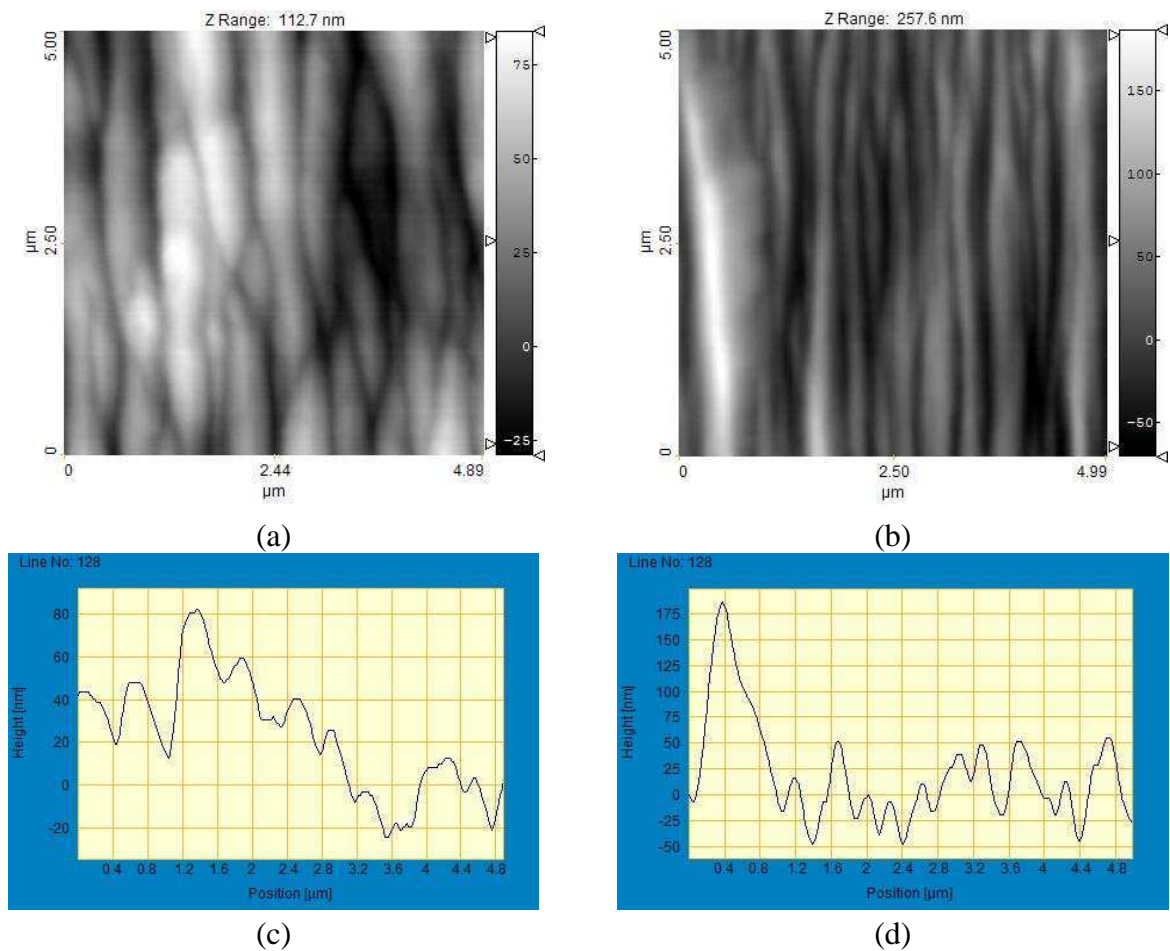


Figure 7.15. Mesures AFM et profils de la surface Au/Ni après enlèvement de la couche d'or pour un angle d'incidence de 80° (Ar^+) et 2 énergies différentes: (a-c) 650 eV et (b, d) 900 eV.

Pour compléter l'analyse des structures en stries apparues en incidence rasante (80°), des mesures SEM (voir Figure 7.13) et AFM (voir Figure 7.15) sont également comparées sur des échantillons traités avec des énergies différentes (650 eV et 900 eV). Pour les mesures SEM, la longueur d'onde spatiale est évaluée à $0.29 \mu\text{m}$ à 650 eV et $0.22 \mu\text{m}$ à 900 eV au moyen de la fonction d'auto-corrélation (voir Figure 7.14). Pour les mesures AFM, la longueur d'onde spatiale est évaluée à $0.41 \mu\text{m}$ à 650 eV et à $0.30 \mu\text{m}$ à 900 eV. On observe donc que la longueur d'onde spatiale des stries est plus petite à énergie plus élevée.

7.4.1.4. Influence de l'énergie en incidence normale

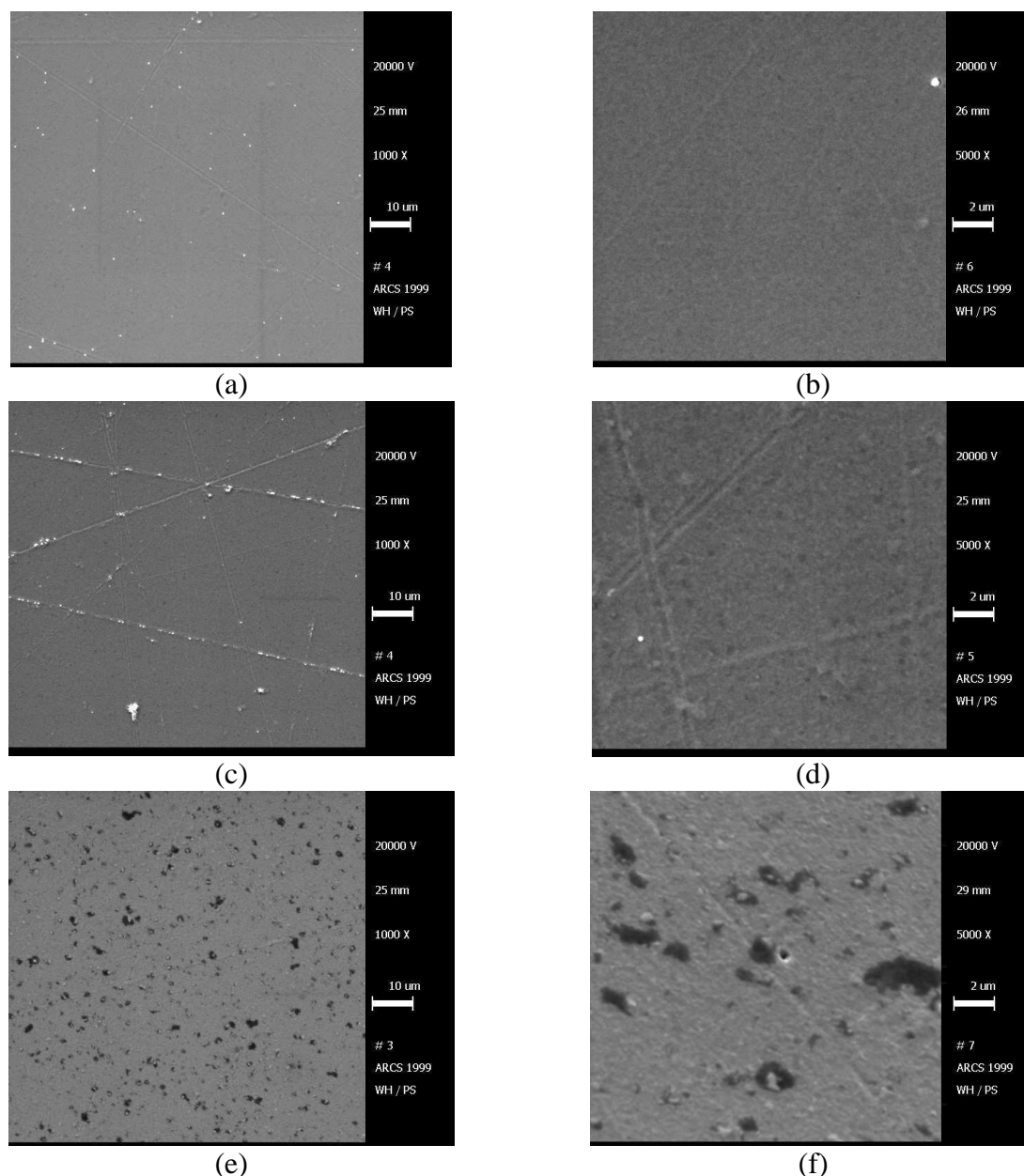


Figure 7.16 Micrographies SEM (a, c, e: X1000 et b, d, f: X5000) de la surface Au/Ni après enlèvement de la couche d'or en incidence normale (Ar^+) pour différentes énergies : (a, b) 400 eV, (c, d) 650 eV et (e, f) 900 eV.

Les 3 échantillons Au/Ni pulvérisés en incidence normale avec des énergies différentes (400, 650 et 900 eV) indiquent une diminution significative de la rugosité rms mesurées au

profilomètre optique. On constate une diminution plus forte pour l'échantillon pulvérisé à 400 eV qu'à 650 et 900 eV, mais cette différence n'est toutefois pas significative au regard de l'écart-type des valeurs.

Par contre, des différences significatives se marquent lorsqu'on observe les images prises au SEM (Figure 7.16) :

Aux plus faibles énergies (400 et 650 eV), la tendance générale est que la structure de la surface sur le nickel (après enlèvement de l'or) est fine et propre, hormis la présence de particules d'or (voir Figure 7.16 (a) et (c)). Comme on peut le constater sur ces images, les traces d'or sont souvent concentrées près de défauts topographiques de la surface initiale comme les griffes. Ces traces disparaissent néanmoins lorsque la pulvérisation se poursuit dans le nickel

A plus haute énergie (900 eV), on constate l'apparition quasi généralisée sur la surface de « zones noires » voir Figure 7.16 (e). Ces zones ne sont pas des particularités topographiques (trous ou protubérances) car l'image fournie par le SEM dans ce cas est différente. Les bords d'un trou par exemple sont plus brillants, comme on peut le voir sur le « vrai trou » au centre de la Figure 7.16 (f) entouré de « zones noires ». Ces zones pourraient être liées à la contamination carbone par la source ionique (le carbone étant indétectable sur le système SEM-EDX utilisé). Hormis ces « zones noires », la structure de la surface semble également un peu moins fine. Par contre, on ne détecte plus de traces d'or comme c'était le cas à plus faible énergie.

7.4.2. Série 2 : échantillons de rugosité initiale faible

Une seconde série (« série 2 ») de mesures ont été réalisées en incidence normale sur des échantillons avec un meilleur état de surface initial (~ 1 nm rms).

7.4.2.1. Influence de l'énergie

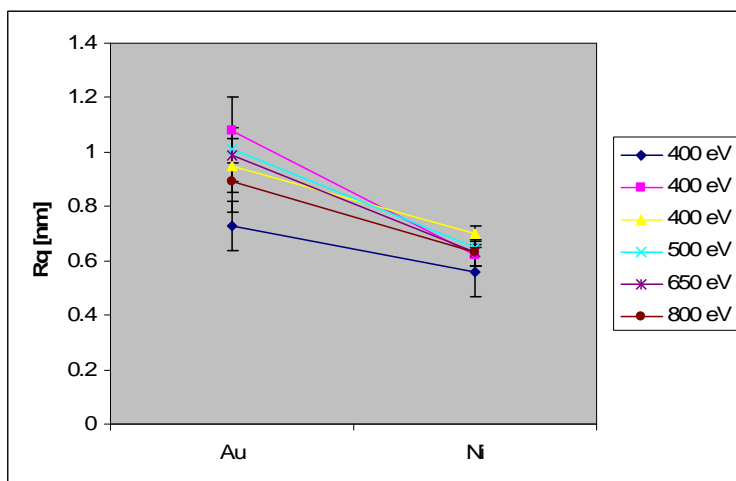


Figure 7.17. Rugosité rms (R_q) mesurée (profilomètre optique, X10) sur les échantillons Au/Ni avant et après enlèvement de la couche d'or de 200 nm en incidence normale ($\theta=0^\circ$) pour différentes énergies : 400 eV (3 échantillons), 500 eV, 650 eV et 800 eV (Ar^+).

L'influence potentielle de l'énergie des ions sur la qualité de la surface pulvérisée est ici à nouveau investiguée avec des énergies comprises entre 400 et 800 eV. A la Figure 7.17, on constate sur les 6 échantillons testés une diminution de la rugosité après enlèvement de la couche d'or, et ce quel que soit l'énergie. Sur les images SEM (Figure 7.18), la structure de la surface est clairement plus fine après pulvérisation de la couche d'or quel que soit l'énergie. Les mêmes observations que pour les échantillons de la série 1 peuvent être faites, même si

les différences sont plus légères ici: quasi absence de résidus d'or à 400 eV et de tâches noires à 800 eV.

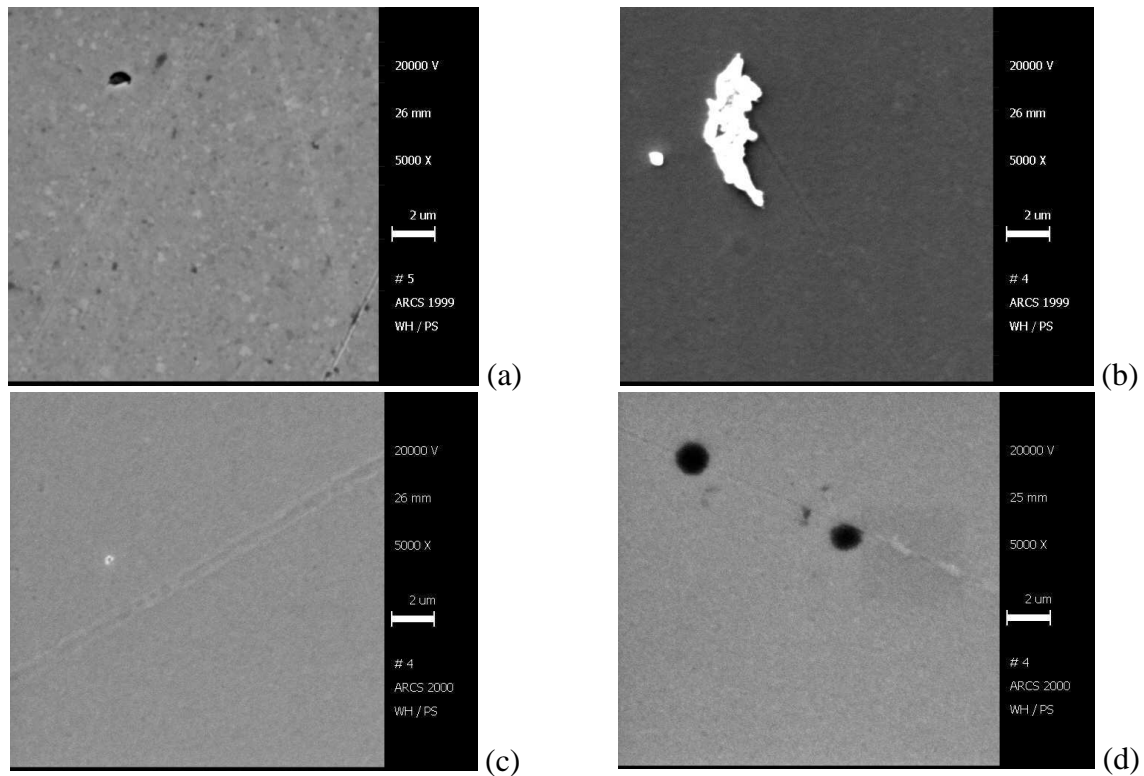


Figure 7.18. Micrographies (SEM, x5000) de la surface Au/Ni initiale (a) et après enlèvement de la couche d'or en incidence normale (Ar^+) pour différentes énergies : (b) 400 eV, (c) 650 eV et (d) 800 eV.

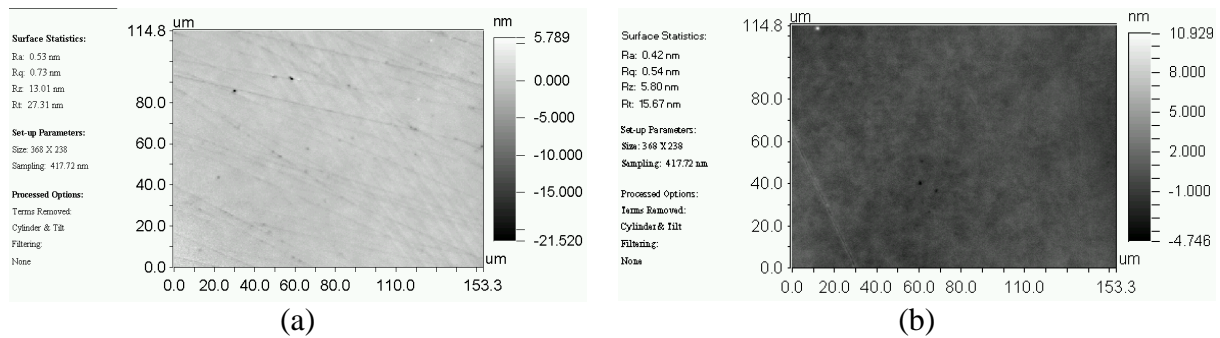


Figure 7.19. Micrographies (profilomètre optique, X40) de la surface (a) or initiale, (b) nickel après enlèvement de la couche d'or en incidence normale (650 eV Ar^+).

7.4.2.2. Evolution en fonction de la profondeur d'or érodée

La rugosité de l'or diminue progressivement avec la profondeur d'érosion comme le montrent les images SEM de Figure 7.20.

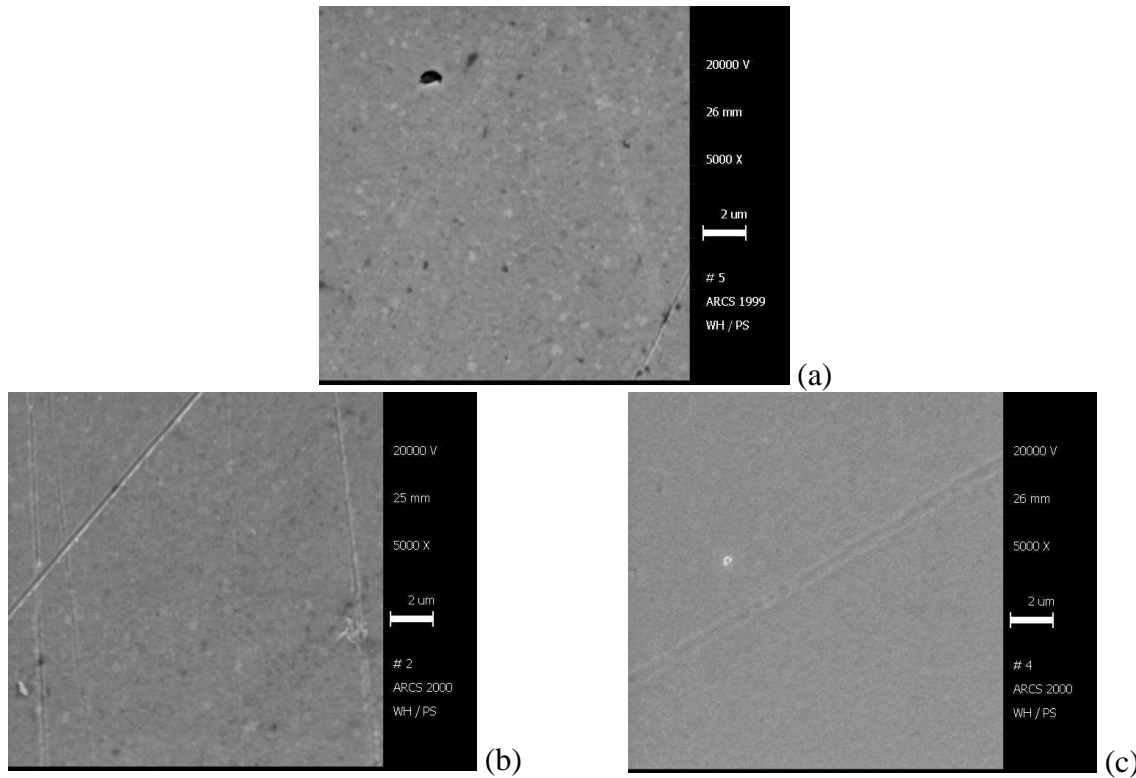


Figure 7.20. Micrographies (SEM, X5000) de la surface Au/Ni (a) initiale et après érosion (650 eV Ar⁺) de la couche d'or en incidence normale : (b) enlèvement partiel (~100 nm), (c) enlèvement complet (~250 nm).

7.4.2.3. Influence de la masse de l'ion incident

Nous avons également pulvérisé la couche d'or avec des ions plus lourd (Xe) afin de vérifier l'hypothèse discutée plus loin au chapitre 7.4.3. Nous avons pulvérisé la couche d'or avec un faisceau Xe⁺ de 500 eV et nous n'avons pas constaté une diminution de la rugosité rms, comme dans le cas du faisceau Ar⁺ de 500 eV, mais plutôt une stabilisation et pas de changement notable au niveau de la texture de la surface (voir Figure 7.21 et Figure 7.22).

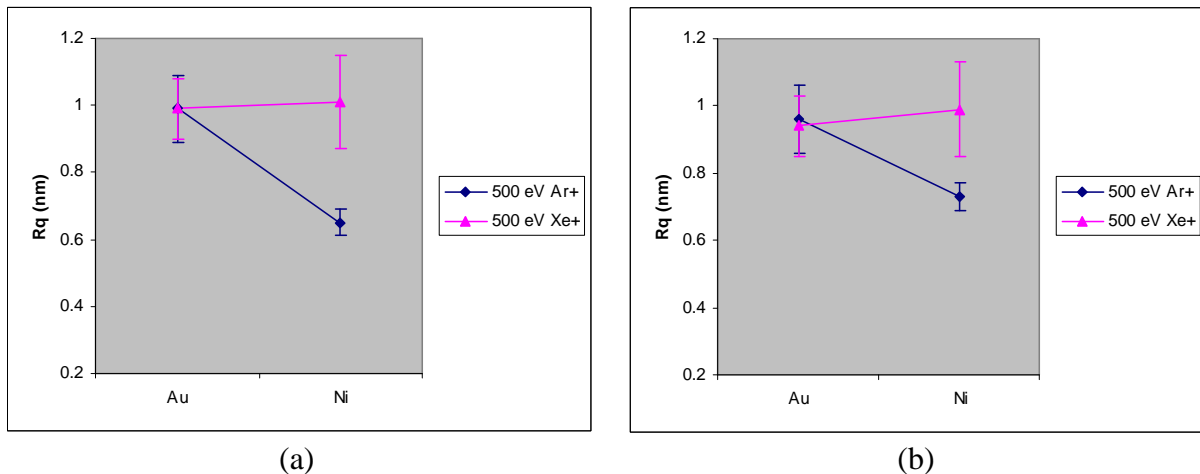


Figure 7.21. Rugosité rms (Rq) mesurée sur les échantillons Au/Ni avant et après enlèvement de la couche d'or par un faisceau d'ions argon de 500 eV et par un faisceau d'ions xénon de 500 eV en incidence normale ($\theta=0^\circ$). Mesures au profilomètre optique avec objectifs (a) X10 et (b) X40.

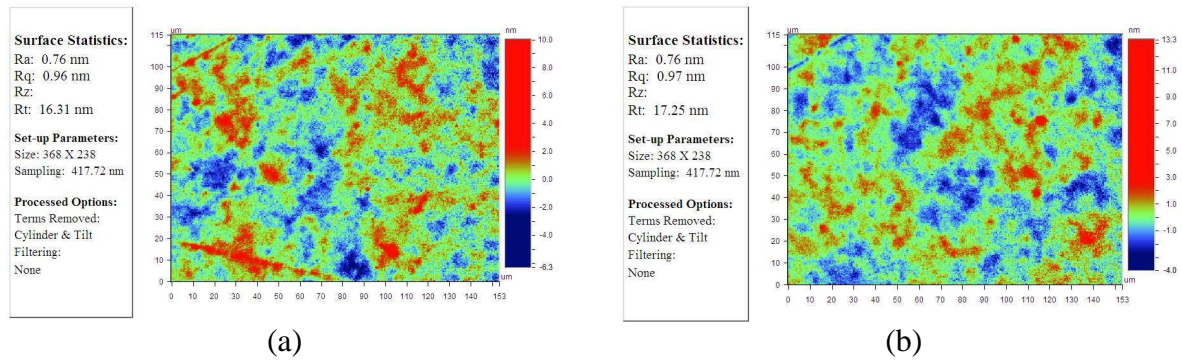


Figure 7.22. Micrographies (profilomètre optique, X40) de la surface Au/Ni (a) avant et (b) après la pulvérisation de la couche d'or par un faisceau d'ions xénon de 500 eV en incidence normale.

7.4.3. Discussion

7.4.3.1. En incidence normale

Nos mesures ont montré une diminution significative de la rugosité de la surface de la couche d'or érodé par un faisceau d'ions argon en incidence normale. Cette diminution a été constatée sur les 9 échantillons testés, qu'ils aient une surface initiale de rugosité moyenne (~5 nm rms) ou faible (~1 nm rms), et pour les différentes énergies d'ions testées (de 400 à 900 eV). Nous n'avons pas observé de différence significative dans l'amplitude de cette diminution en fonction de l'énergie des ions au niveau des statistiques de rugosité. Néanmoins, les mesures au SEM ont montré des différences notables en fonction de l'énergie utilisée. Dans le cas des énergies plus élevées (800 et surtout 900 eV), nous avons observé la présence de « dégâts » plus importants sur la surface. En particulier, nous avons observé une densité importante de « zones noires ». Ces zones ne sont pas des accidents topographiques (trous ou protubérances). L'analyse en rétrodiffusion (*Backscattering analysis*) n'a révélé aucune différence en composition. Néanmoins, le détecteur utilisé sur le SEM (EDAX) ne pouvait pas détecter les éléments légers (comme le carbone). En fait, nous soupçonnons ces zones noires d'être une contamination de carbone étant donné que la source ionique utilisée utilise de grilles de carbone. En effet ces zones noires ont été observées en fait sur quasiment tous les échantillons Ni/Au et également sur d'autres matériaux (verre, ...) érodés par faisceau d'ions. Mais leur concentration était bien plus faible que pour l'enlèvement de l'or à 800 et 900 eV.

La stabilité de la rugosité de dépôt or érodés par faisceau d'ions argon a été constatée par Egert (mais pas la diminution comme dans nos mesures) lorsqu'il a étudié l'évolution de la rugosité sur des dépôts métalliques (voir chapitre 4). Pour tenter d'expliquer ce comportement, Egert a considéré l'effet de la dépendance angulaire de la vitesse d'érosion sur l'évolution de la microstructure des films métalliques. L'idée est que si la vitesse d'érosion dépend fortement de l'angle d'incidence, les microstructures présentent au départ sur le matériau seront amplifiées par l'érosion ionique, ce qui conduira à une augmentation de la rugosité. Si au contraire cette dépendance est quasi nulle, l'évolution de la microstructure sera faible et la rugosité restera stable.

Reprenons l'équation 2.8 du chapitre 2 exprimant la dépendance de la vitesse de pulvérisation avec l'angle d'incidence :

$$V_e = \frac{dz}{dt} = 62,2 J \frac{M_2}{\rho} \frac{Y_0}{\cos^{\beta-1}(\theta)} \quad (7.1)$$

La dépendance de la vitesse de pulvérisation avec l'angle suit donc selon ce modèle une loi en $\cos^{1-f}(\theta)$, le facteur f dépendant lui du rapport de masse atomique (M_2/M_1) entre l'atome pulvérisé M_2 et l'ion incident (M_1). Pour $M_2/M_1 < 3$, f vaut $\sim 5/3$, tandis que pour $M_2/M_1 > 5$, f vaut ~ 1 (voir chapitre 2). Selon ce modèle, la vitesse de pulvérisation devient donc presque indépendante de l'angle d'incidence dans ce second cas. C'est le cas pour l'or pulvérisé par un faisceau argon où le rapport M_2/M_1 vaut 4.9 et donc $f \sim 1$. Egert explique de la même façon l'augmentation de la rugosité de film aluminium ($M_2/M_1 = 0.67$). Nous avons repris au tableau Tableau 7.1 le rapport de masse M_2/M_1 pour le cas qui nous intéresse ici (Ar^+ sur Au) et quelques autres.

Atome cible	Ion incident			
	Ne (20.18)	Ar (39.95)	Kr (83.80)	Xe (131.29)
Au (196.97)	9.85	4.92	2.35	1.50
Ni (58.69)	2.91	1.47	0.70	0.45
Al (26.98)	1.33	0.67	0.32	0.21

Tableau 7.1. Rapport M_2/M_1 pour différentes masses atomiques d'ion incident (gaz rare) et de matériau métallique pulvérisé. Les masses atomiques sont données entre parenthèses.

Afin de confronter ce modèle, nous avons utilisé des ions plus lourds (Xe^+) pour enlever la couche d'or. Le rapport $M_{\text{Au}}/M_{\text{Xe}}$ vaut ici 1.5 et le modèle prévoit donc une évolution moins favorable de la rugosité que dans le cas de l'argon. Nous avons pulvérisé la couche d'or avec un faisceau Xe^+ de 500 eV et nous n'avons pas constaté de diminution de la rugosité rms, comme dans le cas du faisceau Ar^+ de 500 eV, mais plutôt une stabilisation (voir Figure 7.21). Cette expérience semble donc renforcer l'idée que le rapport de masse M_2/M_1 a une influence déterminante sur l'évolution de la rugosité.

7.4.3.2. En incidence oblique

Les stries ou ondulations observées en incidence rasante (80°) à la Figure 7.9 peuvent s'expliquer à partir du modèle de Bradley-Harper (voir chapitre 4) qui explique la formation d'ondulation à l'échelle submicronique en incidence oblique. L'orientation des ondulations est parallèle à la direction du faisceau d'ions (vecteur d'onde perpendiculaire) comme le prévoit le modèle de Bradley-Harper au-delà d'un angle critique (en général observé entre 70 et 80° dans la littérature [4.8]).

De plus, la théorie linéaire de Makeev et al. [4.25] indique que la dépendance de la longueur d'onde spatiale (λ) à l'énergie des ions (E) peut être utilisée pour distinguer 2 mécanismes de relaxation:

- Pour la diffusion thermique (haute température), la longueur d'onde diminue avec l'énergie: $\lambda \sim E^{-1/2}$
- Pour la diffusion induite par les ions (basse température), la longueur d'onde augmente avec l'énergie: $\lambda \sim E^{2m}$, m correspondant au paramètre mentionné au paragraphe 2.2.2.2. A basse énergie ($E < 1\text{keV}$), $m \sim 1/3$ et donc $\lambda \sim E^{2/3}$.

La diminution de la longueur d'onde spatiale des stries mesurées à 900 eV ($\lambda \sim 220$ nm) par rapport à 650 eV ($\lambda \sim 290$ nm) indiquerait dans ce cas la dominance du mécanisme de diffusion thermique.

Enfin, nous avons utilisé l'équation (4.20) du chapitre 4, exprimant la longueur d'onde spatiale des stries, sur base des conditions expérimentales utilisées pour essayer d'estimer la longueur d'onde théorique selon le modèle de Bradley-Harper (voir détails du calcul en annexe). Cependant certains paramètres liés à la diffusion sont très difficiles à estimer,

notamment la concentration d'espèces mobiles. C'est pourquoi nous nous sommes résolus à utiliser la longueur d'onde spatiale mesurée ($0.22 \mu\text{m}$ pour 900eV Ar^+) sur la couche d'or pour estimer la diffusivité thermique. Cette valeur estimée pour la diffusivité ($\sim 3 \times 10^{-36} \text{ cm}^4/\text{s}$) est légèrement supérieure, mais du même ordre, que celle estimée de manière similaire pour des ondulations de 0.2 à $0.3 \mu\text{m}$ observées sur film aluminium ($\sim 10^{-36} \text{ cm}^4/\text{s}$) soumis à un bombardement ionique O_2^+ et O^+ [7.6].

Pour des ions argon de 650 eV , en considérant la diffusivité thermique identique à celle à 900 eV et le flux d'ions réel, on obtient une longueur d'onde de $0.30 \mu\text{m}$, ce qui est proche de la valeur expérimentale ($0.29 \mu\text{m}$) et suit la même tendance (diminution de la longueur d'onde observée lorsque l'énergie augmente).

D'autre part, il est intéressant d'observer que selon les calculs simplifiés réalisés en annexe, les stries sur l'or pour nos conditions de pulvérisation seraient toujours orientés parallèlement (vecteur d'onde perpendiculaire) au faisceau d'ions, quel que soit l'angle d'incidence.

7.5. Pulvérisation du nickel électrolytique

7.5.1. Evolution de la rugosité

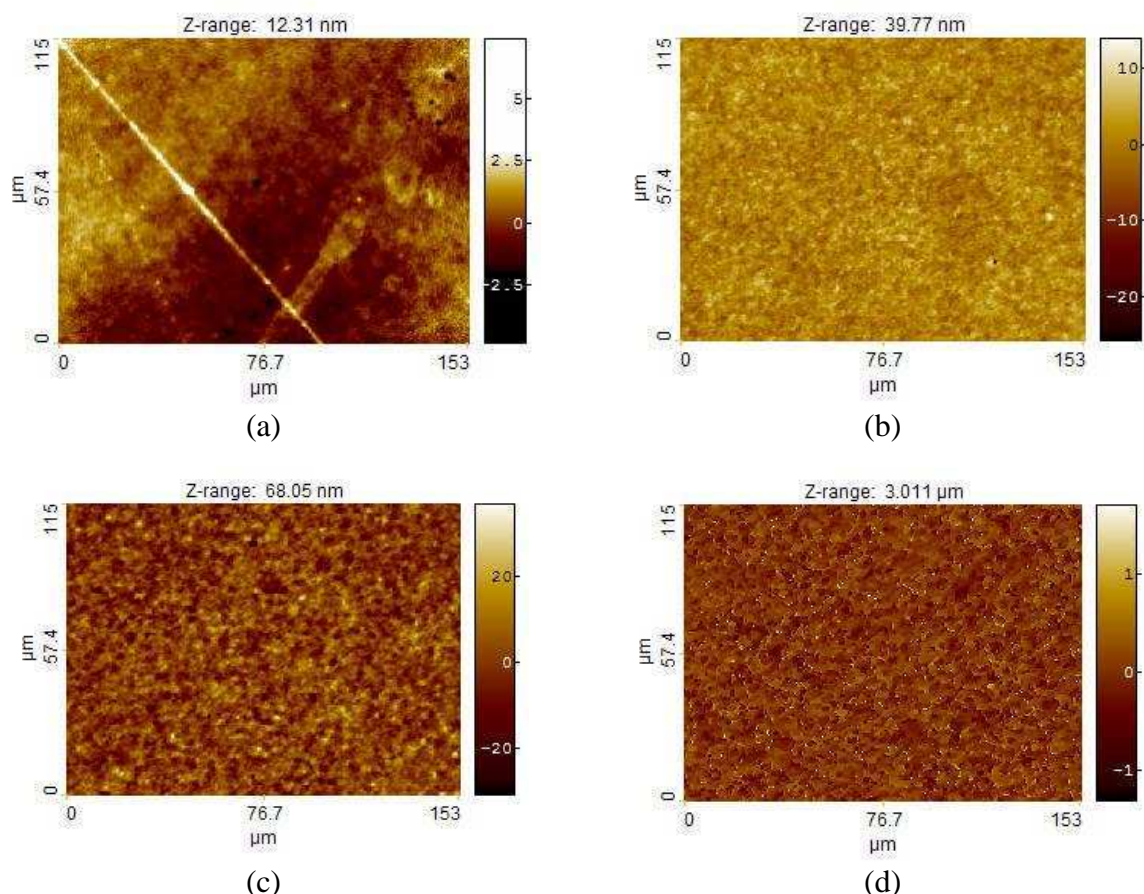


Figure 7.23. Micrographies (profilomètre optique, X40) de la surface de nickel électrolytique après érosion par un faisceau d'ions argon de 650 eV à différentes profondeurs : (a) Ni après enlèvement de la couche d'or, (b) $0.5 \mu\text{m}$ de Ni érodé, (c) $1 \mu\text{m}$ de Ni érodé et (d) $5 \mu\text{m}$ de Ni érodés.

Quatre échantillons de la « série 2 » (rugosité initiale $\sim 1 \text{ nm}$), dont la couche d'or fut enlevée comme décrit dans les paragraphes précédents, furent érodés plus profondément dans la

couche de nickel à différentes énergies entre 400 et 800 eV jusqu'à une profondeur de 5 microns (voir Annexe C pour l'ensemble des mesures et combinaison d'énergies pour la pulvérisation de l'or et du nickel).

La surface du nickel électrolytique devient rapidement rugueuse. L'évolution des structures après 0.5, 1 et 5 microns pulvérisés est illustrée à la Figure 7.23 pour les mesures au profilomètre optique et à la Figure 7.24 pour les mesures SEM. On peut y constater l'augmentation de la taille (latérale et verticale) des « structures » avec la profondeur érodée. La texturation de la surface est ici attribuée à la structure du nickel électrolytique en raison des différences de rendement de pulvérisation selon l'orientation des grains.

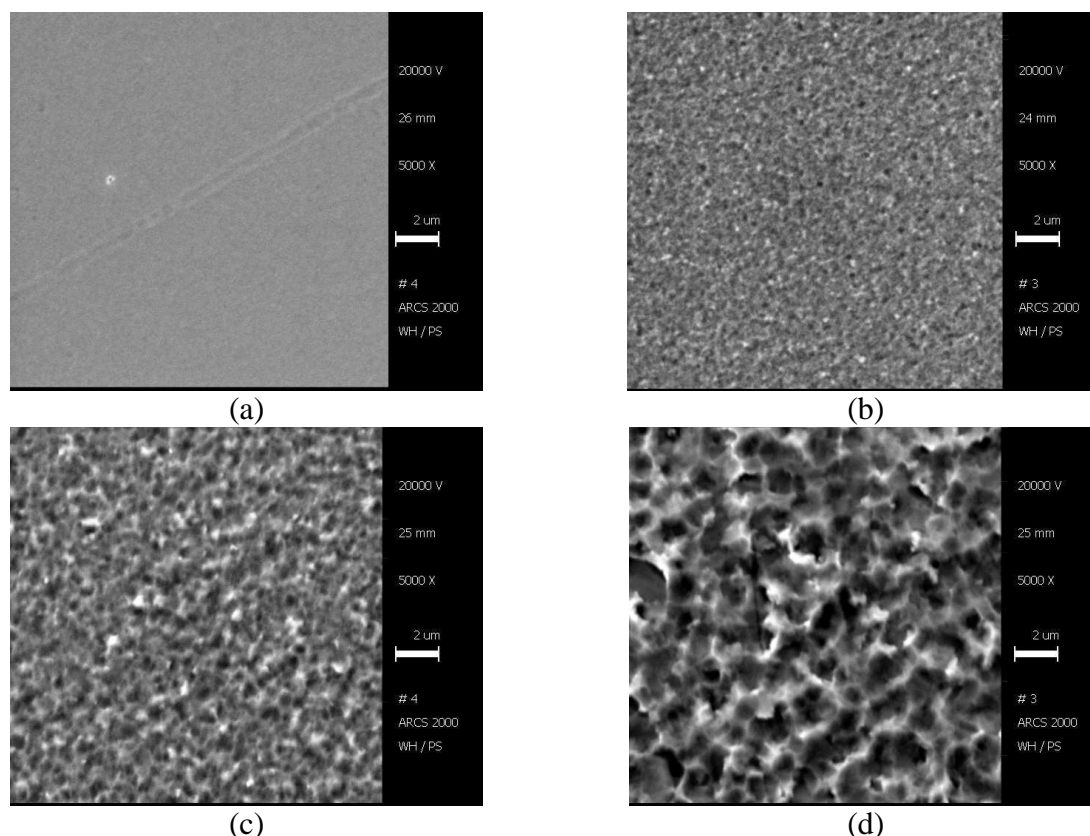


Figure 7.24. Micrographies (SEM, x5000) de la surface de nickel électrolytique après érosion (650 eV Ar⁺) à différentes profondeurs : (a) Ni après enlèvement de la couche d'or, (b) 0.5 μm de Ni érodé, (c) 1 μm de Ni érodé et (d) 5 μm de Ni érodés.

L'évolution de la rugosité rms mesurée au profilomètre optique est tracée à la Figure 7.25 (objectif X10) et à la Figure 7.26 (objectif X40). La rugosité rms du nickel électrolytique augmente fortement: elle est supérieure à 10 nm rms après 2 μm érodé. Etant donné la petite taille des structures, il est logique que l'augmentation de la rugosité soit plus rapide (supérieure à profondeur érodée équivalente) avec l'objectif de meilleure résolution latérale (X40). Au-delà d'une rugosité de 10 à 20 nm rms, le mode VSI du profilomètre optique est mieux adapté que le PSI; les mesures au-delà de 2 μm (800 eV) ou 3 μm d'érosion ont donc été réalisées en mode VSI (voir Figure 7.25). Néanmoins, la rugosité mesurée en PSI après 2 et surtout 3 μm pulvérisés semble sous-estimée sur ces graphiques au regard des valeurs très élevées mesurées en VSI. Enfin, on constate une saturation de la rugosité entre 3 et 5 μm de profondeur pulvérisée, cette valeur variant en fonction de l'objectif du profilomètre optique et de l'énergie des ions.

En ce qui concerne l'influence de l'énergie des ions sur l'évolution de la rugosité du nickel électrolytique, on peut constater que l'évolution est assez similaire pour les différentes

énergies testées (400 eV, 500 eV, 650 eV, 800 eV), avec néanmoins une augmentation qui semble plus rapide à 800 eV.

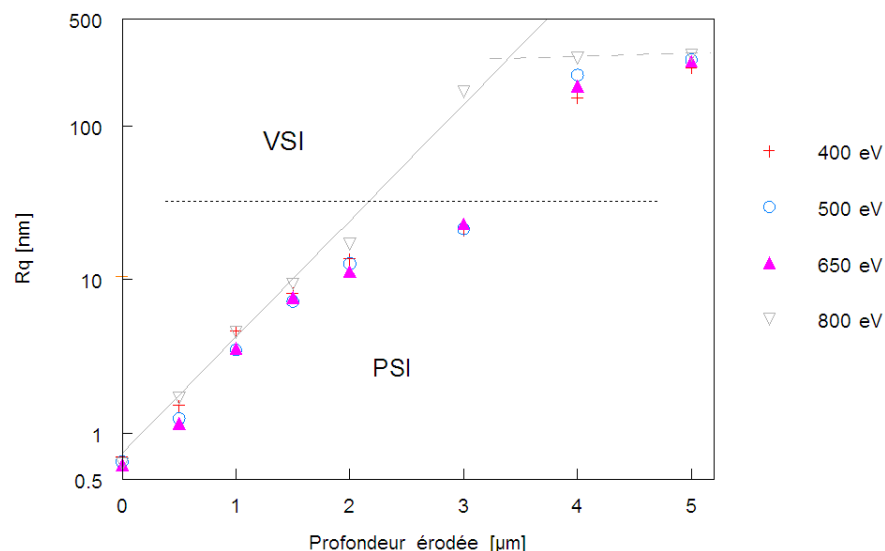


Figure 7.25. Evolution de la rugosité rms (profilomètre optique, X10, mode PSI en bas de la ligne pointillée et VSI en haut) de la surface de nickel électrolytique après érosion à différentes énergies : 400 eV, 500 eV, 650 eV et 800 eV (Ar^+). Les barres d'erreurs verticales sont égales ou inférieures à la taille des symboles. Courbe continue grise: modélisation des points mesurés à 800 eV par une fonction exponentielle $0.74e^{1.75x}$. Courbe interrompue grise: saturation de la rugosité.

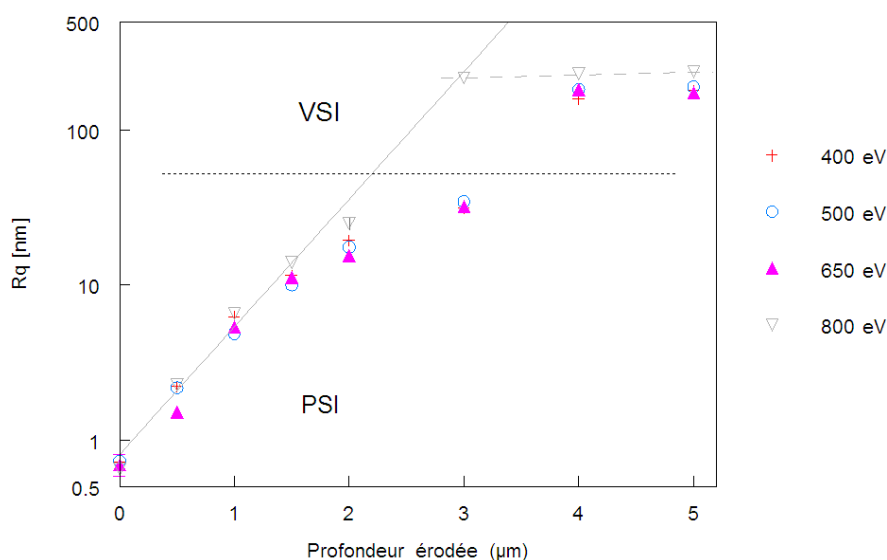


Figure 7.26. Evolution de la rugosité rms (profilomètre optique, X40, mode PSI en bas de la ligne pointillée et VSI en haut) de la surface de nickel électrolytique après érosion à différentes énergies : 400 eV, 500 eV, 650 eV et 800 eV (Ar^+). Les barres d'erreurs verticales sont égales ou inférieures à la taille des symboles. Courbe continue grise: modélisation par une fonction exponentielle $0.8 e^{1.9x}$ (800eV). Courbe interrompue grise: saturation de la rugosité.

Notons également que des premières mesures effectuées sur les échantillons de la série 1 avaient montré une augmentation moins forte de la rugosité, malgré que cette série ait une rugosité plus importante au départ. Les différences observées entre les deux séries peuvent se comprendre à la lumière de la structure différente dans la croissance du nickel à partir de la

surface d'or. La structure colonnaire de la série 1 (voir Figure 7.4) semble mieux limiter l'augmentation de la rugosité par rapport à la structure aléatoire de la série 2 (voir Figure 7.5).

7.5.2. Comparaison aux lois d'invariance d'échelle

Tout d'abord, on observe la saturation de la rugosité, ce qui correspond au modèle des lois d'échelle. Pour analyser la croissance de la rugosité, on porte les données de la Figure 7.26 sur un graphique log-log (voir Figure 7.27 pour mesures en X40). On constate un décalage important entre les valeurs mesurées à faible profondeur érodée (en mode PSI) et celles au-delà de 2 μm (en mode VSI). Les premières devraient être beaucoup plus importantes pour s'accorder avec les deuxièmes, ce qui semble rendre difficile l'analyse de correspondance avec les lois d'invariance d'échelle. Néanmoins, on observe que les mesures en mode PSI, y compris celles à 3 μm en PSI qui nous paraissaient largement sous évaluées, suivent une fonction de puissance. Finalement, on trouve un exposant de croissance β augmentant de 1.40 à 1.93 avec l'énergie (de 400 à 800 eV). Pour être complet, notons que le même exercice réalisé avec les mesures au profilomètre optique avec l'objectif X10 donnent des coefficients β très similaires⁷. Ces valeurs traduisent d'une part la forte augmentation de la rugosité sur le nickel électroformé, d'autre part la croissance plus rapide de la rugosité à plus grande énergie.

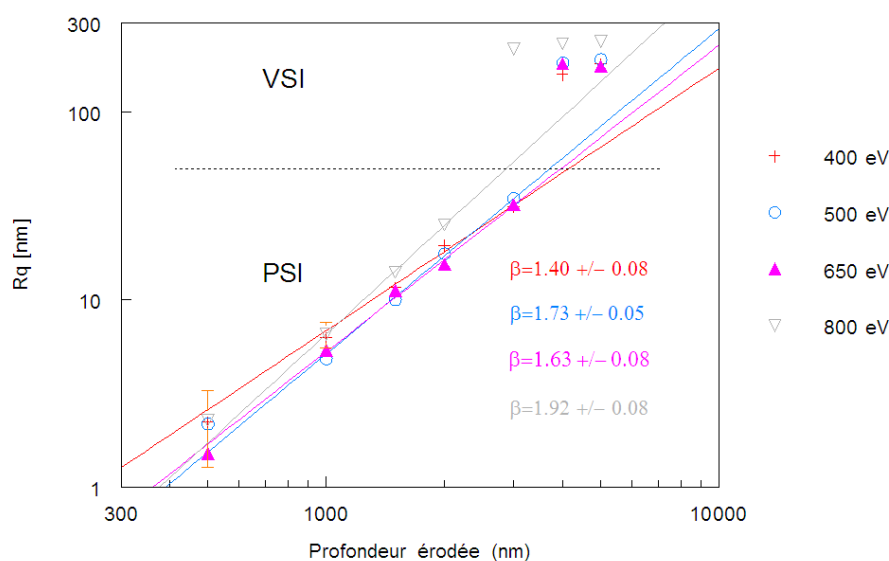


Figure 7.27. Graphique log-log de la Figure 7.26 (profilomètre optique, X40). Courbes continues: pour chaque énergie, modélisation par une fonction de puissance des points mesurés en PSI. La valeur de β est donnée dans le graphique.

Cette expérience met en lumière la difficulté d'analyser ensemble des mesures réalisées au profilomètre optique en PSI et en VSI. Afin de tenter de réconcilier les 2 types de mesures, nous avons fait l'exercice de mesurer à posteriori des échantillons de nickel pulvérisés de différentes rugosités et de prendre chaque mesure dans les deux modes (voir Annexe C). Cela nous permet d'extrapoler la valeur qu'aurait R_q en mode VSI au départ d'une mesure en PSI par une simple relation linéaire. Ces valeurs de R_q extrapolées sont reprises sur le graphique log-log de la Figure 7.28 et semblent se combiner harmonieusement avec les mesures prises en VSI. Les coefficients de croissance β aux différentes énergies restent quasi identiques, ce

⁷ $\beta=1.47, 1.69, 1.69$ et 1.92 pour les pulvérisations à 400, 500, 650 et 800 eV respectivement.

qui n'est pas surprenant puisque nous avons en réalité simplement mis à l'échelle les valeurs mesurées en PSI (le facteur multiplicatif appliqué correspondant à une constante à l'échelle logarithmique).

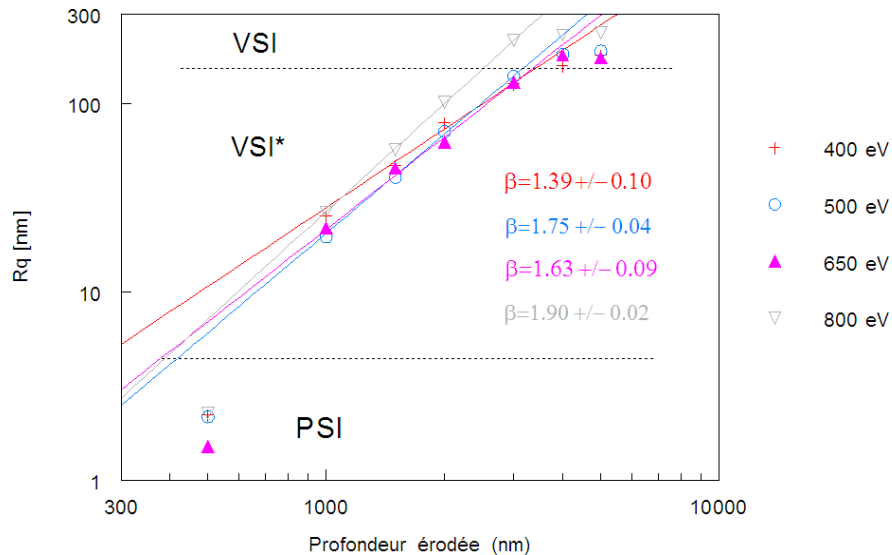


Figure 7.28. Equivalent de la Figure 7.27 où les points mesurés en PSI avec $R_q > 5$ nm ont été remplacés par leur valeur extrapolée en VSI (noté VSI^*) suivant la relation $R_q(VSI^*) = 4.04 * R_q(PSI)$. Courbes continues: pour chaque énergie, modélisation par une fonction de puissance des points mesurés jusqu'à saturation de R_q . La valeur de β est donnée dans le graphique.

Concernant le coefficient de rugosité α , nous l'avons calculé⁸ à partir de la fonction de corrélation hauteur-hauteur (voir chapitre 4 et Figure 7.29) sur base des images mesurées au profilomètre optique (X40) à différentes profondeurs pulvérisées (800 eV Ar^+).

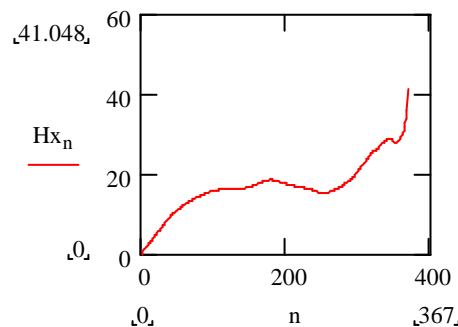


Figure 7.29. Fonction de corrélation hauteur-hauteur calculée sur la mesure au profilomètre optique de la surface de nickel après enlèvement de la couche d'or (1 pixel=0.4 μ m)

Alors que α vaut 0.3 sur la surface nickel juste après la pulvérisation de l'or (voir Figure 7.30), il diminue avec la profondeur érodée (0.09 après 0.5 μ m érodés) et tend vers 0.01 au-delà de 2 μ m. Néanmoins, nous pourrions distinguer 2 zones différentes comme au chapitre 6 pour les mesures sur la surface SiC-CVD : une première pour les petites dimensions latérales jusqu'à 2 μ m (α_1) et une deuxième pour les dimensions latérales supérieures (α_2). Néanmoins, la fonction de corrélation hauteur-hauteur serait calculée sur quelques

⁸ Fichier mathcad reprenant les données en format texte du profilomètre optique Wyko ou exporté par SPIP

points seulement dans la première zone, les mesures au profilomètre optique étant mieux adaptées à l'évaluation de la deuxième zone.

Une première distance de corrélation est donc ici atteinte rapidement sur la surface, qui correspond à la taille des structures générées par la pulvérisation ($\sim 2 \mu\text{m}$ de dimension latérale). Aux plus grandes distances, il y a une faible corrélation des structures (nature non fractale) à l'échelle de la mesure.

En résumé, nous trouvons un comportement correspondant aux lois d'invariance d'échelle pour l'augmentation de la rugosité du nickel électrolytique. Cependant les coefficients α et β sont très éloignés de ceux du modèle KPZ ($\alpha \approx 0.38$ et $\beta \approx 0.25$) vu au chapitre 4. Il est cependant fréquent dans la littérature de trouver des coefficients qui s'écartent fortement des valeurs de ce modèle théorique [4.25].

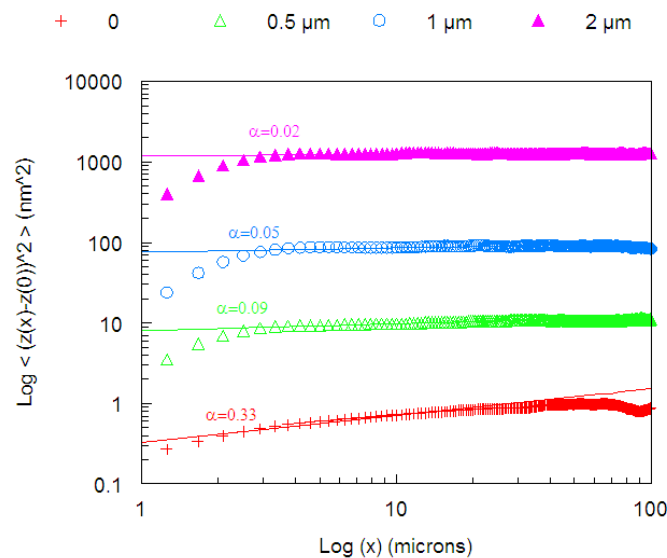


Figure 7.30. Graphique log-log de la fonction de corrélation hauteur-hauteur de la surface de nickel initiale et érodée à différentes profondeurs (800eV Ar^+).

7.6. Conclusions

L'étude des meilleures conditions pour pulvériser la couche mince d'or ($0.2 \mu\text{m}$) nous a permis de mettre en évidence plusieurs points intéressants :

- La rugosité de l'or diminue en incidence normale (typiquement de 1.0 à 0.6 nm rms). Ceci peut s'expliquer par la théorie de Sigmund et le rapport de masse entre l'ion incident et l'atome pulvérisé. Les résultats obtenus en utilisant des ions plus lourds (Xe^+) confirment cette hypothèse.
- Une structure en grains se forme en incidence oblique (45°)
- Des sillons parallèles à la direction du faisceau d'ions se forment en incidence rasante (80°), comme prévu par le modèle de Bradley-Harper (B-H). La longueur d'onde de l'ondulation semble diminuer (de 290 à 220 nm) à énergie plus élevée (de 650 à 900 eV), ce qui est consistant avec nos estimations (simplifiées) des paramètres de l'équation de B-H. Notre simulation indiquerait également que les sillons sur l'or, pour nos conditions de pulvérisation, seraient toujours orientés parallèlement au faisceau d'ions, quel que soit l'angle d'incidence. Cet aspect fera l'objet de mesures et d'analyses complémentaires au chapitre 8.

Concernant le nickel électrolytique, sa rugosité augmente fortement et rapidement en raison de la microstructure de ce matériau (grains d'orientation variables). Cette augmentation de la rugosité semble correspondre aux lois d'invariance d'échelle. Les coefficients de croissance β trouvés (1.4→1.9) augmentent avec l'énergie ionique (400 à 800 eV Ar⁺). Cependant ces valeurs sont très éloignées de celle du modèle KPZ ($\beta \approx 0.25$).

7.7. Bibliographie

[7.1] C. Francois, *Etude de l'évolution de la microrugosité d'échantillons de miroirs X sous bombardement ionique*, Travail de fin d'étude, Gramme, Liège (2000).

[7.2] P. Gailly, D. de Chambure, J.P. Collette, C. Jamar, R. Lainé, E. Mazy, P. Médart, Y. Stockman, *New process for X-ray mirror image quality improvement*, Proc. SPIE 4782, (2002) 46.

[7.3] E. Semerad, J. Casta, J. Zbiral & P. Scholze, *Assessment of gold-vapour deposits*, Metallurgy report No. 2045, ESTEC (1994).

[7.4] F. Durut, P. Benaben, *Techniques de l'ingénieur, Nickelage électrolytique. Caractéristiques*, Réf. M1610 (2002).

[7.5] H. Göbel, R von Blanckenhagen, *A study of surface diffusion on gold with an atomic force microscope*, Surface Science 331-333 (1995) 885.

[7.6] P. Mishra, D. Ghose, *The energy dependence of sputtering induced ripple topography in Al film*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 266 (2008) 1635.

Annexe A. Calcul de l'ondulation pour l'or pulvérisé à 80° d'incidence

Les paramètres de l'équation de Bradley-Harper exprimant la longueur d'onde spatiale de l'ondulation (voir annexe B du chapitre 4) ont été estimés pour nos conditions expérimentales (650 eV et 900 eV $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Au}$) aux différents angles d'incidence de 0 à 80°. Le détail des valeurs utilisées pour le calcul à 80° d'incidence est repris au Tableau 7.2.

Afin d'estimer les paramètres liés à la pulvérisation (Y_0 , a , σ et μ), nous avons utilisé le logiciel SRIM. Le rendement de pulvérisation en fonction de l'angle d'incidence est donné à la Figure 7.31a. Dans un premier temps, les paramètres a , σ et μ ont été approximés (de manière très simpliste) par les statistiques sur le parcours moyen R des ions calculés dans SRIM ($a \sim R$ selon [4.25]) :

- $a \rightarrow$ parcours projeté moyen R (*Longitudinal range*)
- $\sigma \rightarrow$ écart-type de la distribution de R dans la direction longitudinale (*Longitudinal straggling*)
- $\mu \rightarrow$ estimation de σ multipliée par le parcours radial moyen (*Radial range*) et divisée par le parcours projeté moyen R (*Longitudinal range*)

Etant donné la définition des statistiques du *range* dans SRIM, le calcul en incidence oblique de la distribution dans la direction radiale (approximation de μ) ne convient pas et c'est la valeur obtenue en incidence normale qui a été considérée pour tous les angles.

Les valeurs ainsi obtenues pour les paramètres de tensions de surface Γ_x et Γ_y (900 eV Ar^+) en fonction de l'angle d'incidence sont illustrées à la Figure 7.31b.

Concernant les paramètres liés à la diffusion, certains peuvent se trouver dans la littérature. Ainsi, on trouve pour l'or [7.5] que l'énergie libre de surface vaut 1.36 J/m^2 et la diffusivité de surface D_s est exprimé en fonction de la température par une relation de type Arrhenius :

$$D_s(T) = 5 \cdot 10^{-12} \cdot \exp(-0.4 \text{ eV} / kT) \quad \text{m}^2 / \text{s} \quad (7.2)$$

D'autres paramètres sont très difficiles à estimer, notamment la concentration d'espèces mobiles (notée C , en rouge dans le tableau). C'est pourquoi nous nous sommes résolus à utiliser l'équation non pas pour calculer une longueur d'onde spatiale théorique, mais pour évaluer la diffusion de surface ($7 \times 10^{-36} \text{ m}^4/\text{s}$) de manière à obtenir une ondulation ($\sim 220 \text{ nm}$) conforme à celle observée pour un angle d'incidence de 80° (900 eV Ar^+). La température réelle n'ayant pas été mesurée lors de cette série d'expérience, elle a été estimée à 343 K (en bleu dans le tableau) sur base d'autres expériences, ce qui donne alors une concentration de surface d'espèces mobiles C de $\sim 10^{15} \text{ atomes} / \text{cm}^2$. Néanmoins, a est significativement plus faible que R aux faibles énergies ($< 1 \text{ keV}$) utilisées dans ce travail. Nous verrons au chapitre 8 qu'avec une meilleure approximation de la profondeur d'énergie déposée a , nous trouvons une valeur C de $\sim 5 \times 10^{14} \text{ atomes} / \text{cm}^2$ et une diffusion de surface de $\sim 3 \times 10^{-36} \text{ m}^4/\text{s}$ pour les ondulations générées sur ces couches minces d'or.

Si on fait le même exercice pour les paramètres d'érosion pour des ions argon de 650 eV et qu'on considère que les paramètres thermiques et le flux ionique sont identiques à ceux utilisés à 900 eV, on obtient une longueur d'onde de $0.27 \mu\text{m}$, ce qui n'est pas très éloigné de la valeur expérimentale ($0.29 \mu\text{m}$) et confirme la diminution de la longueur d'onde lorsque l'énergie augmente. Si on considère la densité de courant réelle du faisceau utilisé lors de l'expérience à 650 eV (0.8 mA/cm^2 au lieu de 1 mA/cm^2 au Tableau 7.2), la longueur d'onde estimée est alors de $0.30 \mu\text{m}$.

La longueur d'onde spatiale (Figure 7.32) peut également être estimée pour différents angles d'incidence si on suppose que les paramètres de diffusion, dont la densité d'espèces mobiles C et la température, restent constants (ce qui n'est certainement pas le cas). Ceci constitue une première approche de l'évolution possible de la longueur d'onde avec l'angle d'incidence (diminution aux plus petits angles).

D'autre part on peut également observer que Γ_y est toujours plus petit que Γ_x , ce qui impliquerait que le vecteur d'onde de l'ondulation serait toujours orienté selon y (perpendiculaire à la direction du faisceau d'ions) quel que soit l'angle d'incidence.

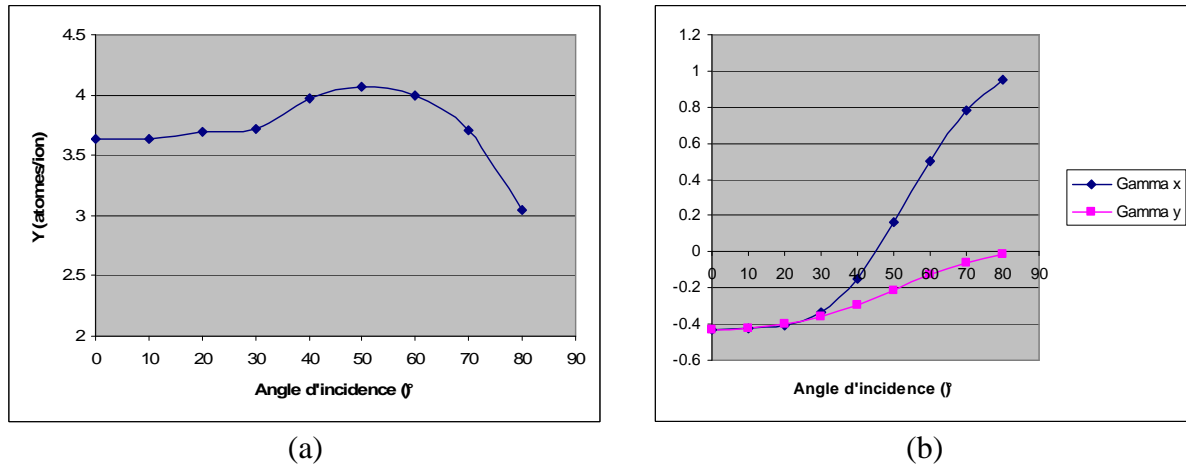


Figure 7.31. (a) Rendement de pulvérisation (Y) et (b) facteurs de tension de surface Γ_x et Γ_y calculés à partir des simulations SRIM ($900 \text{ eV Ar}^+ \rightarrow \text{Au}$) en fonction de l'angle d'incidence des ions. La fonction d'énergie déposée (calcul Γ_x et Γ_y) a été estimée selon l'approximation $a \sim R$ ($a=0.9 \cdot R$ ici).

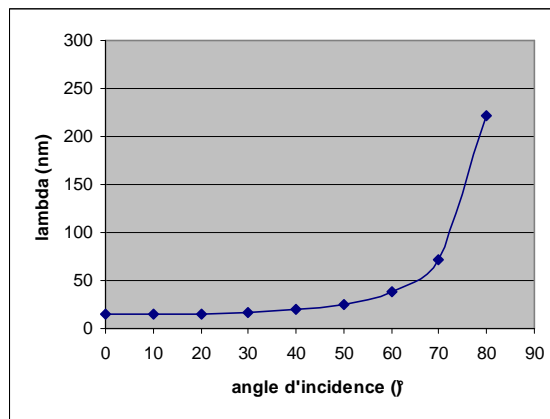


Figure 7.32. Longueur d'onde spatiale des ondulations en fonction de l'angle d'incidence ($900 \text{ eV Ar}^+ \rightarrow \text{Au}$) en utilisant un coefficient de diffusion thermique identique à tous les angles (approximation $a \sim R$).

Paramètres		Unité	Ar	Ar	Référence/ modèle
Faisceau d'ions:					
	Gaz		Ar	Ar	
E	Energie	eV	900	650	
θ	Angle d'incidence	°	80	80	
J	Densité de courant ($\theta=0^\circ$)	mA/cm ²	1	1	
Diffusion:					
Ds	diffusivité de surface	m ² /s	6.76E-18	6.76E-18	[7.5]
g	énergie libre de surface	J/m ²	1.36E+00	1.36E+00	[7.5]
C	densité de surface d'espèces mobiles	atomes/cm ²	1.2E+15	1.2E+15	
d	densité matériau	g/cm ³	1.93E+01	1.93E+01	
NA	nombre d'Avogadro	atomes/mol	6.02E+23	6.02E+23	
MA	masse atomique	g/mol	1.97E+02	1.97E+02	
n	densité atomique	atomes/cm ³	5.90E+22	5.90E+22	
k	constance de Boltzman	J/K	1.38E-23	1.38E-23	
T	température	K	343	343	
B	coefficient de diffusion	m⁴/s	6.75E-36	6.75E-36	
Erosion:					
q	charge de Coulomb	C	1.60E-19	1.60E-19	
f	flux d'ions (θ)	ions/cm ² /s	1.09E+15	1.09E+15	
Y0	rendement de pulvérisation (θ)	atomes/ion	3.04	2.37	SRIM
V	vitesse de pulvérisation	nm/min	3.35E+01	2.61E+01	Kaufman
a	profondeur moy de distribution d'énergie	nm	1.30	1.13	SRIM (a~R)
σ	largeur distribution dir. // faisceau	nm	0.77	0.68	SRIM (a~R)
μ	largeur distribution dir. \perp faisceau	nm	0.90	0.78	SRIM (a~R)
a/ σ			1.68	1.66	
σ/μ			0.86	0.87	
θ_{rad}	Angle d'incidence	radians	1.40	1.40	
A	coef. B-H		2.7657	2.7254	B-H
B1	coef. B-H		2.7868	2.7466	B-H
B2	coef. B-H		0.4877	0.4806	B-H
C	coef. B-H		-0.0610	-0.0592	B-H
D	coef. B-H		0.2433	0.2412	B-H
Γ_x	coef. B-H		0.9421	0.9421	B-H
Γ_y	coef. B-H		-0.0152	-0.0152	B-H
Γ	Γ dominant= $\min(\Gamma_x, \Gamma_y)$		-0.0152	-0.0152	B-H
Ondulation:					
λ	Longueur d'onde de l'ondulation	nm	2.20E+02	2.67E+02	B-H

Tableau 7.2. Feuille de calcul pour l'évaluation (approximation a~R) de la longueur d'onde spatiale pour nos paramètres expérimentaux (900 eV Ar⁺ → Au) et $\theta=80^\circ$. Comme la température de l'échantillon pulvérisé à 900 eV n'a pas été mesurée, la température mesurée (343 K) par la suite sur d'autres échantillons pulvérisés dans des conditions similaires a été considérée. La valeur de C (**en rouge**) est ici l'inconnue, λ étant fixé à la valeur expérimentale.

Annexe B. Mesures de rugosité du nickel électrolytique

Echantillon		1	2	3	4	5	6
Initial	Moy.	0.73	1.08	0.95	1.01	0.99	0.89
	Dév. Std.	0.09	0.12	0.1	0.41	0.1	0.11
Erosion or		400 eV	400 eV	400 eV	500 eV	650 eV	800 eV
0.2 µm	Moy.	0.56	0.62	0.7	0.65	0.63	0.63
	Dév. Std.	0.09	0.04	0.03	0.04	0.05	0.05
Erosion nickel (µm)		650 eV	650 eV	400 eV	500 eV		800 eV
0.5	Moy.	1.1	1.15	1.51	1.24	-	1.69
	Dév. Std.	0.11	0.09	0.08	0.07	-	0.2
1	Moy.	3.48	3.56	4.63	3.48	-	4.54
	Dév. Std.	0.32	0.27	0.2	0.4	-	0.58
1.5	Moy.	-	7.65	8.15	7.17	-	9.35
	Dév. Std.	-	0.55	0.45	0.46	-	0.83
2	Moy.	15.0	11.2	13.6	12.7	-	17.1
	Dév. Std.	1.52	1.31	0.9	1.24	-	1.45
3	Moy.	-	23.1	21.0	21.4	-	168*
	Dév. Std.	-	1.63	0.89	0.71	-	14.1*
4	Moy.	-	182*	153*	215*	-	276*
	Dév. Std.	-	6.85*	2.12*	2.74*	-	3.3*
5	Moy.	-	263*	239*	271*	-	290*
	Dév. Std.	-	1.97*	5.01*	1.26*	-	9.82*

Figure 7.33. Mesures de rugosité rms en nm (profilomètre optique, X10, PSI ou *VSI) de la surface des échantillons or/nickel érodés jusqu'à 5 µm dans le nickel avec différentes énergies : 400 eV, 500 eV, 650 eV et 800 eV (Ar⁺).

Echantillon		1	2	3	4	5	6
Initial	Moy.	0.72	1.03	0.93	1.13	0.96	0.77
	Dév. Std.	0.08	0.05	0.08	0.3	0.13	0.13
Erosion or		400 eV	400 eV	400 eV	500 eV	650 eV	800 eV
0.2 µm	Moy.	0.54	0.69	0.72	0.73	0.64	0.65
	Dév. Std.	0.04	0.11	0.05	0.03	0.04	0.05
Erosion nickel (µm)		650 eV	650 eV	400 eV	500 eV		800 eV
0.5	Moy.	1.44	1.51	2.22	2.17	-	2.28
	Dév. Std.	0.11	0.05	0.13	0.11	-	0.11
1	Moy.	4.9	5.37	6.25	4.83	-	6.55
	Dév. Std.	0.52	0.33	0.21	0.26	-	0.47
1.5	Moy.	-	11.2	11.6	9.98	-	14.0
	Dév. Std.	-	0.48	0.45	0.42	-	0.90
2	Moy.	23.64	15.4	19.5	17.5	-	25.1
	Dév. Std.	-	1.14	0.94	0.57	-	1.41
3	Moy.	-	32.0	31.4	34.5	-	216*
	Dév. Std.	-	1.38	0.91	1.25	-	10.8
4	Moy.	-	181*	159*	183*	-	231*
	Dév. Std.	-	1.7*	4.34*	0.87*	-	5.67*
5	Moy.	-	175*	180*	190*	-	238*
	Dév. Std.	-	0.97*	2.43*	1.28*	-	3.14*

Figure 7.34. Mesures de rugosité rms en nm (profilomètre optique, X40, PSI ou *VSI) de la surface des échantillons or/nickel électrolytique érodés jusqu'à 5 µm dans le nickel avec différentes énergies : 400 eV, 500 eV, 650 eV et 800 eV (Ar⁺).

Annexe C. Comparaison de mesures de rugosité en mode PSI et VSI

Afin de comparer les mesures réalisées au profilomètre optique en mode PSI et VSI, des mesures (X40) sur des échantillons de nickel électrolytique de différentes rugosités (pulvérisés à différentes profondeurs) ont été réalisées (Figure 7.35). Les mesures dans les 2 modes sont réalisées l'une à la suite de l'autre, au même endroit (sans bouger l'échantillon). Pour des surfaces très lisses (~ 1 nm rms en PSI), la valeur mesurée en VSI (~ 6 nm rms) se rapproche de la résolution du mode VSI (3nm rms spécifié par le constructeur).

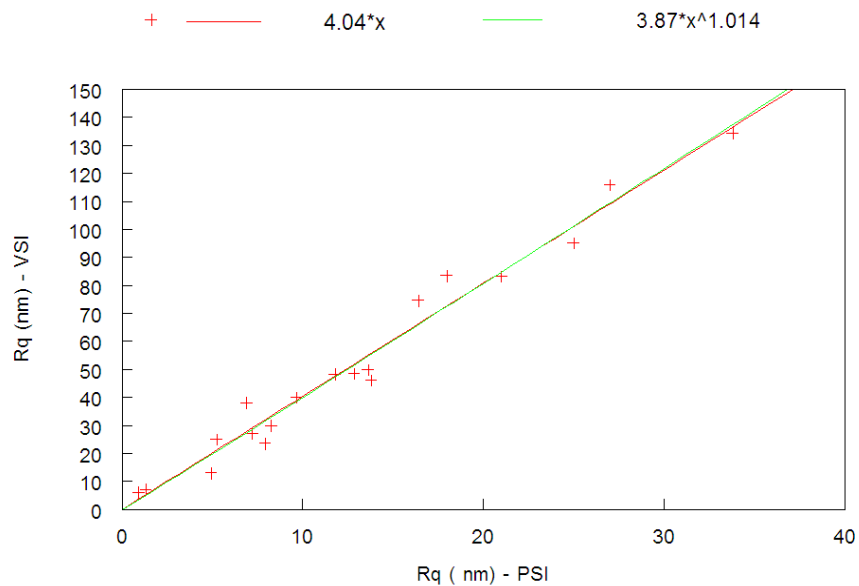


Figure 7.35. Valeurs R_q mesurées en mode PSI (en abscisse) et VSI (en ordonnée) au même endroit (X40). Courbe continue : modélisation par une droite (en rouge) et une fonction de puissance (en vert).

Chapitre 8

Réalisation de structures spontanées nanométriques

Table des matières

8 Réalisation de structures spontanées nanométriques

8.1	Introduction.....	
8.2	Texturation de couches minces d'or.....	
8.2.1	Introduction.....	
8.2.2	Procédure expérimentale.....	
8.2.3	Estimation des ondulations selon le modèle de Bradley-Harper.....	
8.2.4	Influence de l'angle d'incidence.....	
8.2.4.1	Pulvérisation de l'or.....	
8.2.4.2	Pulvérisation du nickel.....	
8.2.4.3	Discussion.....	
8.2.5	Influence de l'énergie des ions.....	
8.2.5.1	Pulvérisation de la couche d'or.....	
8.2.5.2	Discussion.....	
8.2.6	Texturation d'une couche mince d'or sur titane.....	
8.3	Texturation de couches minces d'argent.....	
8.3.1	Caractéristiques de la couche mince d'argent.....	
8.3.2	Procédure expérimentale.....	
8.3.3	Influence de l'angle d'incidence.....	
8.3.4	Influence de l'énergie des ions.....	
8.3.5	Influence du flux ionique.....	
8.4	Texturation de CdS.....	
8.5	Discussion sur l'influence des matériaux.....	
8.6	Conclusions et perspectives.....	
8.7	Bibliographie.....	
Annexe A.	Méthodes et paramètres pour le calcul de l'ondulation selon le modèle de Bradley-Harper.....	

A PUBLIER

Chapitre 9

Conclusions et perspectives

L'évolution de l'état de surface de différents matériaux optiques pulvérisés par faisceau d'ions faiblement énergétique (≤ 1 keV) a été étudiée expérimentalement. Ces matériaux (massif ou dépôt en couche mince) sont notamment utilisés pour la fabrication des miroirs d'instruments scientifiques (terrestres ou spatiaux) ou pour d'autres applications optiques.

Du point de vue de l'usinage ionique, l'évolution de la rugosité de nombreux matériaux optiques a été caractérisée (au profilomètre optique et parfois au microscope à force atomique) avec précision en fonction de la profondeur érodée, jusqu'à 5 μm au maximum. Les pulvérisations ont été réalisées en incidence normale, pour des ions argon mais aussi krypton et xénon sur certains matériaux (carbure de silicium CVD) des densités de courant de l'ordre de 1 mA/cm^2 et pour des énergies comprises entre 200 et 1000 eV. Bon nombre des matériaux pulvérisés (verre, carbure de silicium CVD, silicium, dépôt PVD de nickel et or, dépôt chimique de nickel...) préservent leur rugosité (du moins pour des profondeurs modérées), voir l'améliorent (or), d'autres non (placage de nickel, aluminium). Le travail donne donc une information utile sur le niveau de rugosité attendu sur une série de matériau en fonction de la profondeur érodée.

Un point original et d'importance pour les applications industrielles d'usinage ionique qui a été mis en évidence dans ce travail est l'évolution différente de la rugosité du carbure de silicium CVD en fonction de l'énergie des ions. Une augmentation plus rapide à basse énergie (≤ 500 eV) qu'à plus haute énergie (650-1000 eV) a été observée, même si cette augmentation est relativement modeste, passant de ~ 0.4 nm à ~ 0.5 nm rms à haute énergie et à ~ 0.7 nm à basse énergie après 3 μm pulvérisé. Nous avons émis l'hypothèse que la différence d'évolution de la rugosité observée s'explique par une amorphisation plus importante de la surface à plus haute énergie qu'à basse énergie. L'évaluation numérique des défauts engendrés aux différentes énergies à l'aide du logiciel SRIM, ainsi que des premières mesures ellipsométriques évaluant la perturbation des phonons, vont dans ce sens. Néanmoins ceci mériterait confirmation avec d'autres méthodes expérimentales. Les simulations pourraient être réalisées à l'aide d'un autre logiciel comme TRYDIN.

L'influence de la masse des ions utilisés a également été illustrée sur le carbure de silicium (CVD) et sur des couches minces d'or sur substrat nickel, où l'utilisation de gaz noble plus lourd que l'argon (xénon ou krypton) est défavorable du point de vue de l'augmentation de la rugosité. Mais le rôle d'autres paramètres du faisceau ionique comme sa dispersion en énergie ou sa divergence sur l'évolution de la rugosité, notamment sur le carbure de silicium CVD, mériterait d'être approfondi.

Nous avons également comparé nos mesures de rugosité aux lois d'invariance d'échelle. Des coefficients de croissance β divers ont été trouvés en fonction des matériaux et des conditions de pulvérisation, parfois assez éloignées de celui prédit par l'équation KPZ ($\beta \cong 0.25$). Cette dernière est considérée comme décrivant au mieux l'évolution cinématique de la rugosité des surfaces soumises à la pulvérisation ionique en incidence normale, comme le prédit le modèle global de Makeev et al. On retrouve les tendances évoquées plus haut, le coefficient de croissance β est très élevé pour les placages électrolytique d'aluminium ou de nickel (β passe de 1.4 à 1.9 de 400 à 800 eV Ar^+). Le coefficient β vaut 0.24 à basse énergie (200 eV), ce qui est équivalent à la valeur du modèle KPZ ($\beta \cong 0.25$), et diminue progressivement jusqu'à 0.10 avec l'augmentation de l'énergie jusqu'à 1000 eV. Il est clair que des mesures complémentaires aux échelles submicroniques (AFM, STM) sur les matériaux étudiés seraient nécessaires pour une meilleure estimation du coefficient de rugosité α .

De manière plus générale, ce travail s'est attaché à faire le lien entre l'application industrielle d'«usinage ionique» et les théories liées à la pulvérisation ionique. Il rassemble

une série d'information pour mieux orienter le choix de conditions de pulvérisation ionique en fonction du matériau traité.

Les mesures sur l'évolution de la rugosité et de la topographie des couches minces or (0.2 μm) sur substrat de nickel électroformé ont montré des évolutions très diverses en fonction de l'angle d'incidence: diminution en incidence normale, augmentation en incidence légèrement oblique et apparition d'ondulations en incidence très oblique ($>50^\circ$). L'orientation et les dimensions des sillons mesurés ont été comparées au modèle théorique de Bradley-Harper. Nous avons utilisé le logiciel SRIM pour estimer la distribution d'énergie déposée. La distribution d'énergie déposée a été évaluée de 2 manières différentes : premièrement en l'approximant à celle de la profondeur moyenne de pénétration, deuxièmement en l'approximant à celle des déplacements d'atomes. D'autre part, comme certains paramètres intervenant au niveau de la diffusion thermique dans le modèle de Bradley-Harper sont difficiles à évaluer, nous avons utilisé la valeur expérimentale des sillons réalisés (0.22 μm à 900 eV et $\sim 1 \text{ mA/cm}^2$) pour estimer la concentration d'espèce mobile sur la couche mince d'or ($\sim 5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$).

Ces premiers résultats nous ont amenés à étudier plus en avant l'influence des paramètres de pulvérisation (angle d'incidence entre 0 et 80° , énergie entre 400 et 1200 eV, flux entre 0.2 et 2 mA/cm^2) sur les dimensions de ces structures spontanées (sillons) sur principalement des couches minces métalliques d'or et d'argent, mais aussi de manière plus concise sur le nickel et le CdS. Les résultats de ces expériences sur les couches minces d'or et d'argent pour nos conditions de pulvérisation peuvent être résumés ainsi :

- La longueur d'onde moyenne λ des ondulations varie entre 130 et 290 nm pour l'or et entre 180 et 240 nm pour l'argent en fonction des conditions de pulvérisations.
- L'évolution de l'orientation et de la période des ondulations en fonction du matériau, de l'angle et de l'énergie et du flux peuvent s'expliquer en bonne partie par la théorie (B-H et Makeev) :
 - Le vecteur d'onde des ondulations étaient toujours perpendiculaires à la direction du faisceau d'ions, pour tous les angles d'incidence. Bien que la rotation des ondulations au-delà d'un angle critique soit en général la règle pour les expériences rapportées dans la littérature, notre observation différente est cependant conforme au modèle de Bradley-Harper et Makeev, et à notre estimation des coefficients de tension de surface.
 - la diminution de la période des ondulations avec l'augmentation de l'énergie s'explique par la dominance de la diffusion thermique comme mécanisme de relaxation.
 - l'observation de changements de régime en fonction de l'angle d'incidence pour l'évolution des structures et de la rugosité. 3 zones semblent se distinguer, comme prédit par le modèle de Makeev. Néanmoins, l'angle où les sillons apparaissent (limite de la zone III du modèle de Makeev) est plus petit pour l'or ($\sim 50^\circ$) que pour l'argent (entre 60 et 70°), ce qui n'est pas expliqué de manière satisfaisante par nos estimations sur base de SRIM et du modèle de Makeev.

La nano-structuration spontanée de surfaces par faisceau d'ions offre des applications très intéressantes notamment pour modifier les propriétés optiques des matériaux. Si l'on veut

augmenter notre capacité à estimer les périodes des ondulations selon les théories de Bradley-Harper et Makeev, plusieurs thèmes pourraient être poursuivis dans le futur :

- Une meilleure estimation de la distribution d'énergie déposée pour les énergies inférieures à 1 keV. Ceci passerait par l'utilisation d'un logiciel de simulation mieux adapté que SRIM comme certains modèles de dynamique moléculaire. Du point de vue théorique, le modèle de Makeev est basé sur celui de Sigmund qui connaît certaines limites aux basses énergies (notamment la forme gaussienne de la distribution d'énergie déposée). La poursuite des recherches théoriques vers un modèle plus performant aux basses énergies est donc nécessaire.
- L'amélioration de la précision dans le contrôle et la mesure de la température de la surface pulvérisée (par une mesure thermographique) est un autre élément clé. Le refroidissement des échantillons à température ambiante ou inférieure devrait permettre de réaliser des ondulations de période plus petite (<100 nm) sur des couches minces, même si dans ce cas l'augmentation relative de la diffusion induite par les ions limitera la diminution des périodes. A contrario, l'étude des dimensions des ondulations et l'évaluation correcte de la composante due à la diffusivité thermique dans la formation des ondulations peut permettre d'estimer certaines propriétés thermiques des couches minces (diffusivité de surface, concentration d'espèces mobiles).