

IV.1. Introduction :

Nous allons maintenant nous intéresser aux principaux résultats de simulations obtenus dans le domaine de la pulvérisation ionique, qui rappelle le phénomène d'éjection des atomes cible par le bombardement des ions projectile. Ce phénomène joue un rôle important dans un certain nombre de technologies et d'industries modernes, et dans les techniques pour la modification et l'analyse de matériaux [1].

Ces résultats étaient réalisés sur la ligne "Kalypso" dans sa version 2.1. [2]

À cet effet, on montrera :

$Y(E)$: l'évolution de Y en fonction de l'énergie des atomes incidents à incidence normale.

$Y(\theta)$: l'évolution de Y en fonction de l'angle d'attaque des atomes incidents à énergie d'incidence fixée.

Les distributions énergétique, et angulaire des atomes de cuivre pulvérisés.

Aussi, nous avons examiné l'influence des autres paramètres comme: plan cristallographique de la cible, la masse des ions incidents: Xe, Kr et Ne, la température de la cible, ainsi que le potentiels interatomique.

IV-2. Paramètres d'initialisation :

Le "Spider" gère des bases de données, dans lequel stocke les fichiers des données, incluant les paramètres d'entrés; cette situation est illustrée sur la figure (IV.1).

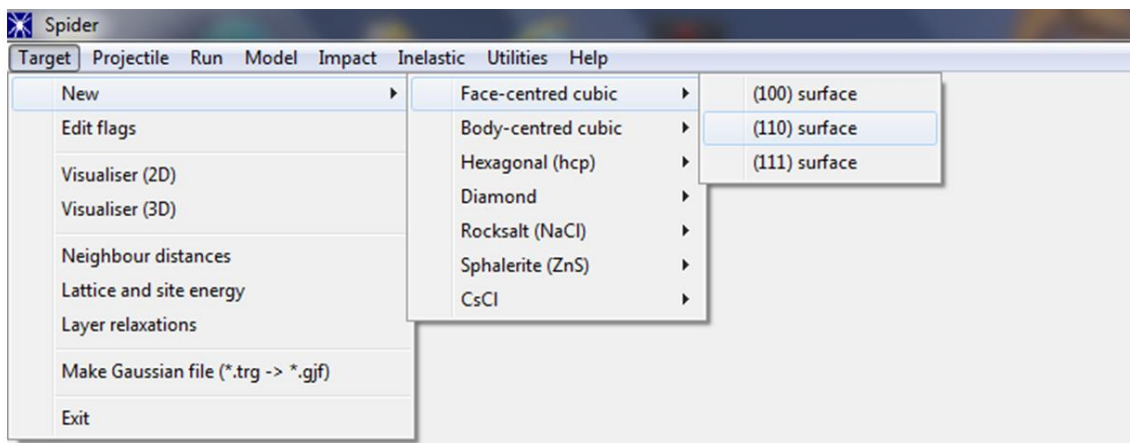


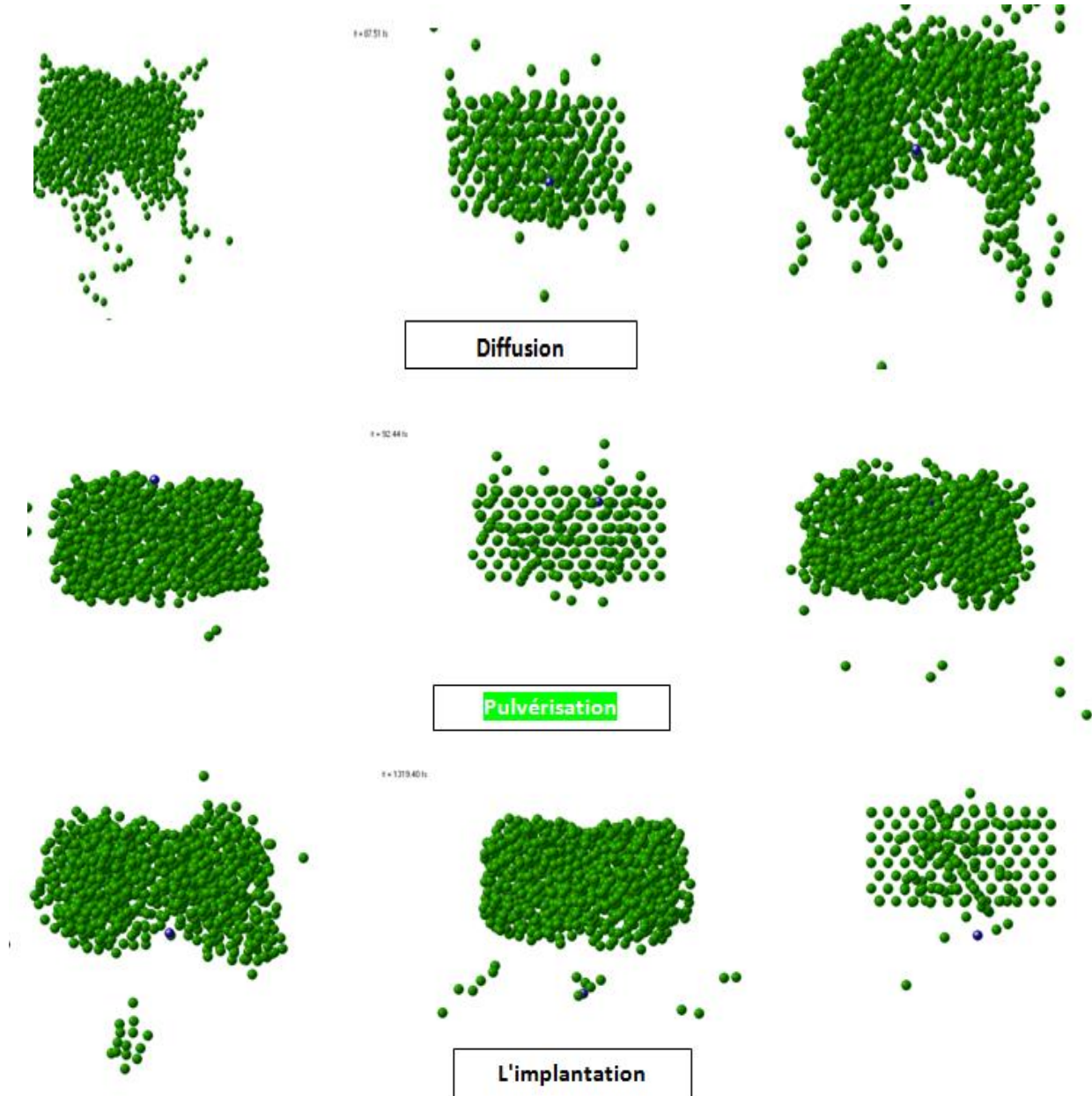
Figure IV.1: Stockage des fichiers.

Le "Spider" permet de visualiser et de structurer ces données.

Notre méthode de calcul considéré une cible de Cuivre constituée de 968 atomes, a une température ambiante (300 K). Ensuite, nous étudierons la variation de $Y(E=5 \text{ keV}, \theta=0^\circ)$ pour différentes valeurs de T .

Quelques vues de Kalypso

Après la pénétration du projectile dans la cible de Cuivre, on remarque trois phénomènes fondamentaux :



IV-3. La correspondance entre le rendement de pulvérisation et les différentes grandeurs :

IV-3-1. Le rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie d'incidence :

Les projectiles d'Ar approchent à impact normale en tenant des energies rampant de 0 keV à 10keV. les objectif de Cu maintenue à $T= 0 \text{ k}$, est conduite selon le plan (111)

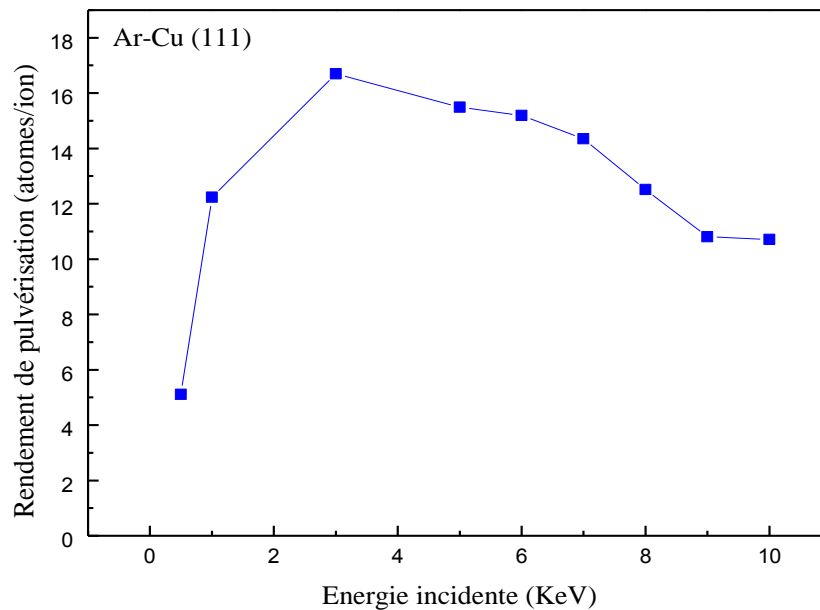


Figure IV-2 : Évolution du coefficient de pulvérisation de (Cu) en fonction de l'énergie incidente.

En fonction de l'énergie des ions impactant la cible, on peut remarquer que le rendement de pulvérisation passe par trois régions principales :

Entre 0 et 0.5 keV , les ions sont simplement rebond et retour à l'état d'atome gazeux, sans délaissement d'influence sur la surface ,parce qu'ils ne possèdent pas l'énergie suffisante pour rompre les liaisons du solide, ainsi que l'énergie qu'ils ne peuvent pas pénétrer un barrière de potentiel répulsive de la surface énergie de surface.

Dans cette région, le coefficient de la pulvérisation de (Cu) est nul, comme le montre dans la figure (IV-2) .

Afin d'augmenter encore l'énergie, on remarque une deuxième région très importante où la plage de fonctionnement se situe pratiquement entre 0.5keVet 3keV. Dans cette gamme d'énergie, le phénomène de la pulvérisation devient conséquent et sa variation soit harmonique

telle qu'elle croit graduellement avec l'énergie jusqu'à la valeur de 3keV. Toutefois, seuls les atomes situés proches de " la zone d'impact" sont sujet à la pulvérisation, et ça macroscopiquement revenant à l'expulsion d'un atome de la cible ayant subit de multiples collisions internes. Celle ci résulte de la collision entre un ion Ar^+ et la cible (Cu). De surcroît, l'ionisation des atomes d'argon dans une zone proche et localisation de la cible de Cuivre .A ces énergie, la concentration d'atomes métalliques sera réduite .[3]

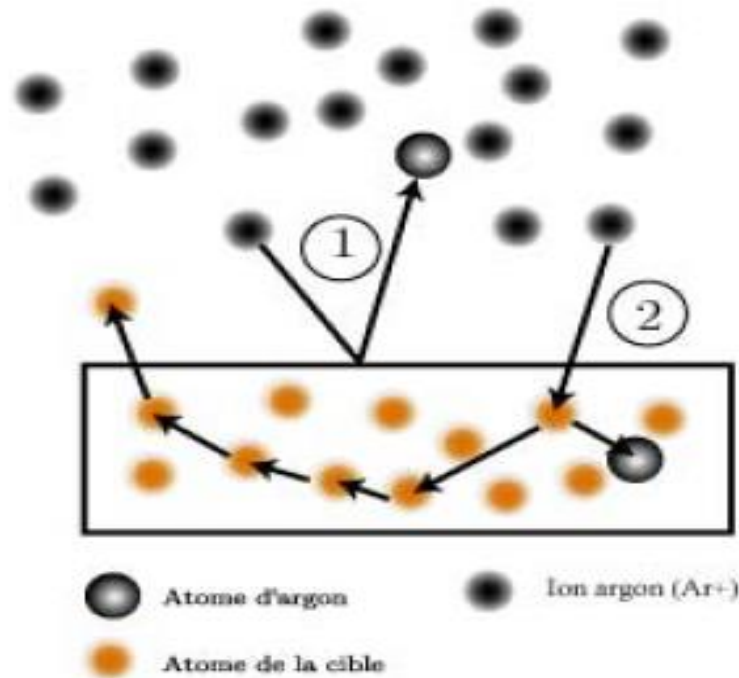


Figure IV-3 : Principe de pulvérisation[4].

Pour des énergie supérieur au 3keV, les ions induisent lors de leur impact des cascades de collisions denses dans le volume de la cible [4]. Toutes les liaisons atomiques environnant l'impact sont défoncées. Cet intervalle qui ne concerne pas notre étude peut être traité de manière statistique.

De plus, à ces énergies, le phénomène d'implantation devient conséquent. Les ions très énergétiques pénètrent profondément sous la surface. Ils peuvent induire des modifications structurales du réseau cristallin mais sont peu efficaces pour l'éjection d'atomes.

Nos résultats de calculs confirment bien les études expérimentales réalisées sur le bombardement avec des ions [5,6]

IV-3-2. Le rendement de pulvérisation en fonction de l'angle d'incidence :

Maintenant si on fait varier l'angle d'incidence des particules chargés à deux valeurs énergétiques 2keV et 5keV, on constate dans la figure(IV-4) que les pénétrations être faibles à incidence rasante et varient respectivement entre 12,4 et 15,1(atome/ ion) entre 2keV et 5keV jusqu'à 29° tel qu'elle augmente ensuite rapidement et prend le à un incidence maximale $\theta_m=50^\circ$ la valeur de $Y(\theta^\circ)$ sera 27,8 (atome/ion).

Au de là, l'intensité de pulvérisation chute doucement jusqu'à une incidence oblique de 80° où les ions sont réfléchies sans transfert de quantité de mouvement à la cible, et s'annuler totalement à 90°[7],ce qui implique que la cascade de collision se rapproche de plus en plus de la surface si l'angle d'incidence augmente[8].

De façon générale, on peut voir que 65% des atomes de Cuivre érodés ont d'une angle d'incidence inférieure de 50°.Donc, on comprend aisément que le coefficient de pulvérisation $Y(\theta^\circ)$ dépend fortement de la direction étudiée, et plus l'incidence est rasante plus la déviation minimale pour que le collision acquière un mouvement vers l'extérieur de la cible.

De plus en augmentant l'angle d'incidence, on augmente la probabilité d'interaction (chocs) avec la cible avant même que la collision n'ait pénétré la cible. Ces interactions lui transfèrent toujours une quantité de mouvement vers l'extérieur. Ainsi, la probabilité pour qu'une collision acquière une énergie cinétique normale à la cible supérieure à l'énergie de surface croît avec l'angle d'incidence [9].

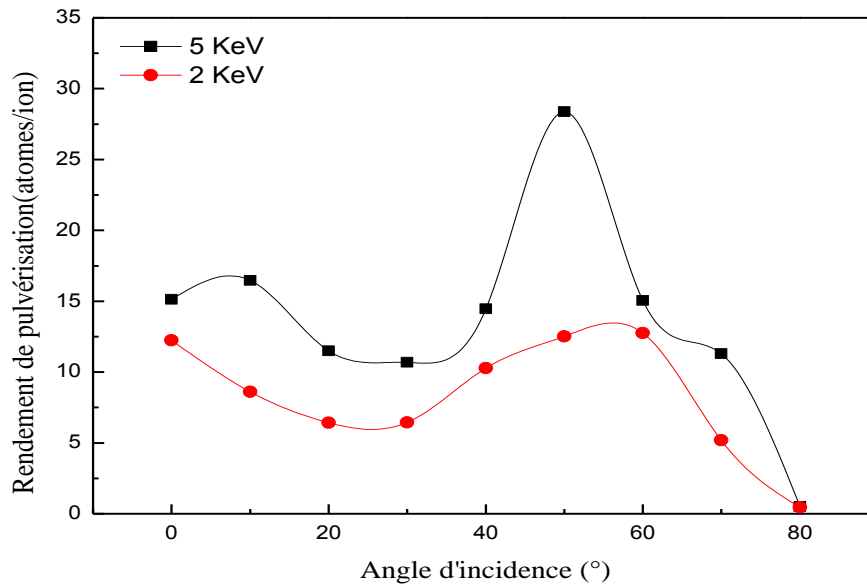


Figure IV-4 : Variation de rendement de pulvérisation en fonction de l'angle incidence pour le plan (111).

IV-3-3. Le rendement de pulvérisation en fonction de des plans Cristallographiques :

La figure type de variation de rendement de pulvérisation en fonction des plans cristallographiques accessibles par cette simulation est représentée ci-dessous.

Comme le résultat est similaire, on était observé une superposition entre deux courbes correspondent aux orientations (111) et (100) avec laquelle où l'intensité est moins importante quand on augmente l'énergie, la pression totale et la température de dépôt. En générale, dans les matériaux monoatomique, et lorsqu'il s'agit d'un self bombardement, les atomes pulvérisés ont tendance à être éjectés dans des directions de taux de compacité élevés [6].

On observe également une troisième courbe plus intense qui est autour de 3,8 et correspond au plan (110), ce qui suggère le phénomène de canalisation [10].

A vu comparative, on constate que $Y(110) > Y(100) > Y(111)$ due à l'existence de différence entre les chaînes d'atome, tel qu'on a un impact très fort au plan(111) qui conduit a la rétrogradation des atomes cible et donc le $Y(111) \ll$. Le même raisonnement pour le plan (100) où on à une chaîne linéaire .

Par contre, l'atome dans le plan(110) qui reçoit l'énergie la transmet à ses plus proches voisins. Ce seront donc ces plus proches voisins qui seront concernés par les échanges énergétiques, donc on a pas le phénomène d'accumulation, mais on a une pulvérisation.

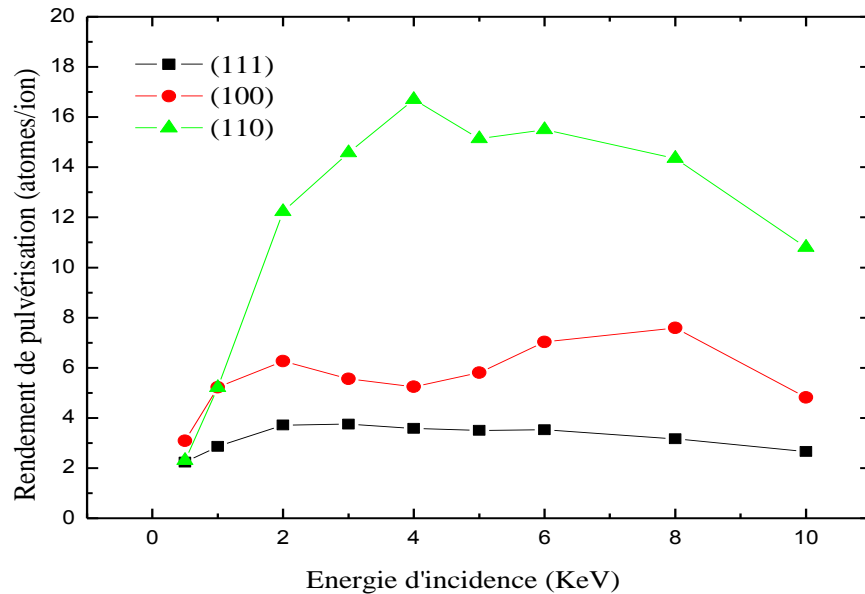


Figure IV-5 : Rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie incidente pour les trois plans Cristallographiques du Cuivre.

IV-3-4. Le rendement de pulvérisation en fonction de la température:

La possibilité de dépôt d'un matériau dépend de son aptitude à s'évaporer pour une température donnée. Les plus part des matériaux (Al, Pb, Cr...) peuvent être évaporés.

La contribution de température dans le processus de la pulvérisation ionique est presque négligeable.[11], tel que ce dernier qui est forcément lié à la quantité de mouvement cédée au moment du choc, ainsi que distingué par le mode de création de particules est décrit dans

La figure qui suit décrit la variation de $Y(E=5 \text{ keV}, \theta=0^\circ)$ pour différentes valeurs de T . A partir de ce graphe, on remarque clairement une croissance de nos films de Cuivre monocristallins à l'intervalle $[0,600 \text{ k}]$ tel que lorsque les ions d'argon diffusés créent beaucoup de désordre (contraction, et l'agglomération) de création de défauts et des vibrations cristallines(phonons) aussi, un ensemble de déplacement atomiques (défauts+remplacement) et des échanges thermiques (dilatation), ce qui conduira à l'ionisation et l'accélération de ces atomes ionisés vers l'extérieur. Dans ce cas, la pulvérisation va être probable.

Après tous ces effets, les atomes de Cuivre sont ralentis et le réseau sera caractérisé par un phénomène de "relaxation", comme le montre dans la figure où nous observons nettement une stabilité et une constance d' $Y(T)$.

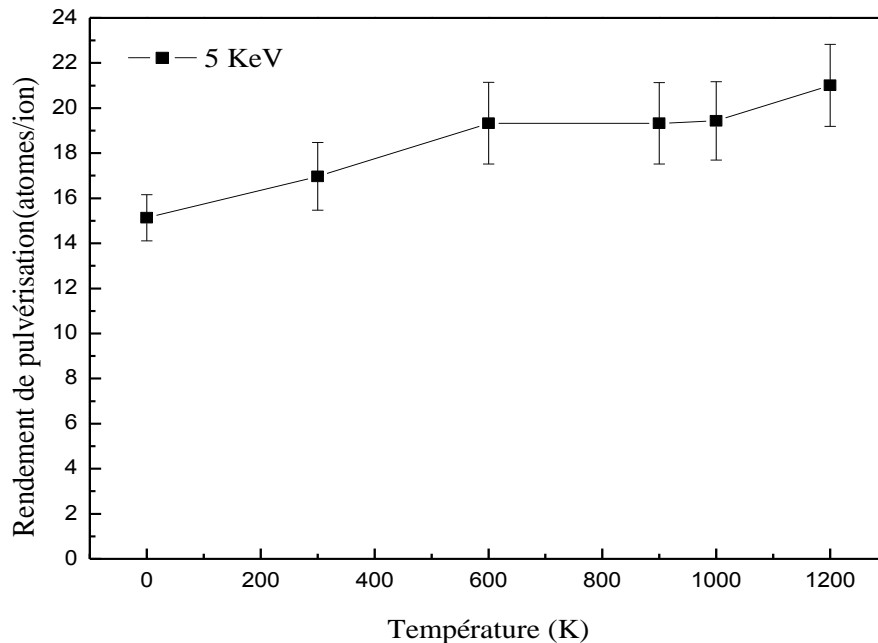


Figure IV-6 : Variation du rendement de pulvérisation en fonction de température.

IV-3-5. Le rendement de pulvérisation en fonction de la masse:

Comme nous l'avons cité dans le deuxième chapitre, les ions énergétiques pénétrant dans la matière perdent leurs énergies essentiellement par des chocs inélastiques qui conduisent à l'excitation ou l'ionisation du milieu traversé, et par les chocs élastiques avec les noyaux qui produisent des déplacements atomiques (création des défauts) et des phonons (vibrations cristallines). [8]. Ça c'est l'effet de l'énergie; mais si on fait une étude caractéristique sur la masse de ces ions, quel est l'influence donc de cette paramètre à l'intensité d'ionisation $Y(M \text{ ion})$?

L'allure qui suit donne une analyse quantitative des différents types des ions incidents (Ar : argon, Ne: néon, Xe: xéon et Kr: krypton) sur le monocristal (Cu) variés à deux valeurs d'énergie 2 keV et 5 keV.

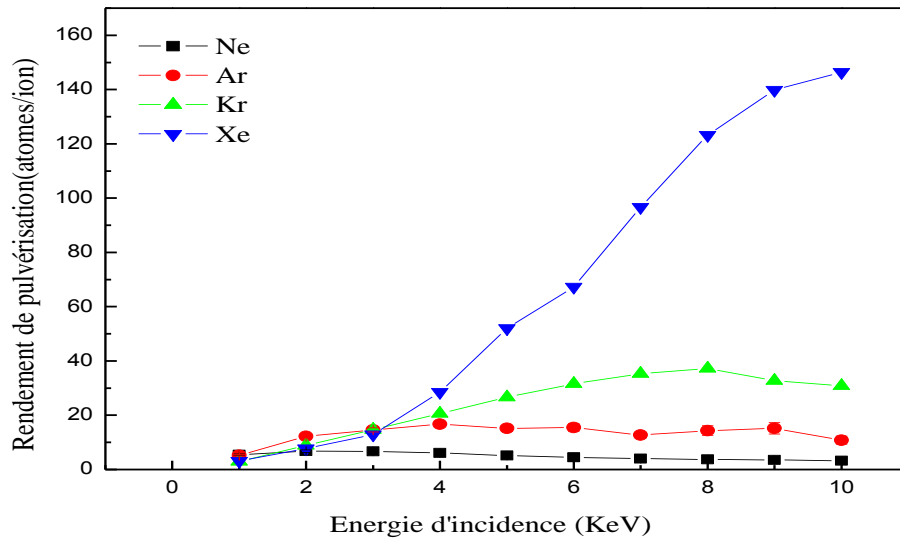


Figure IV-7 : Variation du rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie incidente pour les différentes masses.

Les pénétrations dans(Cu) Sont relativement faibles et croient avec l'énergie incidente. Ainsi lors de la pulvérisation, les atomes sont éjectés de manière physique périodique sous l'action de diverses grandeurs (masse atomique, densité volumique (rayon) et le numéro atomique Z). Si on fait le bilan des différents phénomènes :

- Dans la cascade de collision, l'atome cible crée d'avantages de phonons et de défauts que les ions incidents. [12, 13, 14]

- La probabilité d'interaction de Kr et Xe est grand que les deux autres éléments Ar et Ne parce que la section efficace de Kr et Xe est plus grand.

Donc concernant les éléments de Xe et Kr qui on peut considérer comme des éléments "lourd" de masses respectivement (131,34 amu) et (83,80 amu), on remarque que les atomes pulvérisés présentent une distribution plus large que ceux produit par les autres éléments (Ar (39,948 amu), Ne (20,379 amu) qui sont également légers.

Alors, on conclus que le rendement de pulvérisation augmente lorsque la masse de projectile augmente.[15]

IV-3-6. Le rendement de pulvérisation en fonction de potentiel d'interaction :

Pour avoir l'influence de potentiel d'interaction sur le taux de pulvérisation, nous avons repris le même travail de la section IV.3.2, mais en changeant le potentiel V_{ZBL} par le potentiel $V_{MOLIERE}$, nous obtenons les résultats ci-dessous :

Pour un angle d'incidence inférieur à 30° le calcul du rendement donne à peu près le même résultat pourtant, au delà de 30° le potentiel ZBL attribue un rendement plus important que MOLIER. [16, 17, 18]

Donc avec l'allure globale qui reste semblable, $V_{MOLIERE}$ sous-estime le rendement de pulvérisation par rapport à V_{ZBL} .

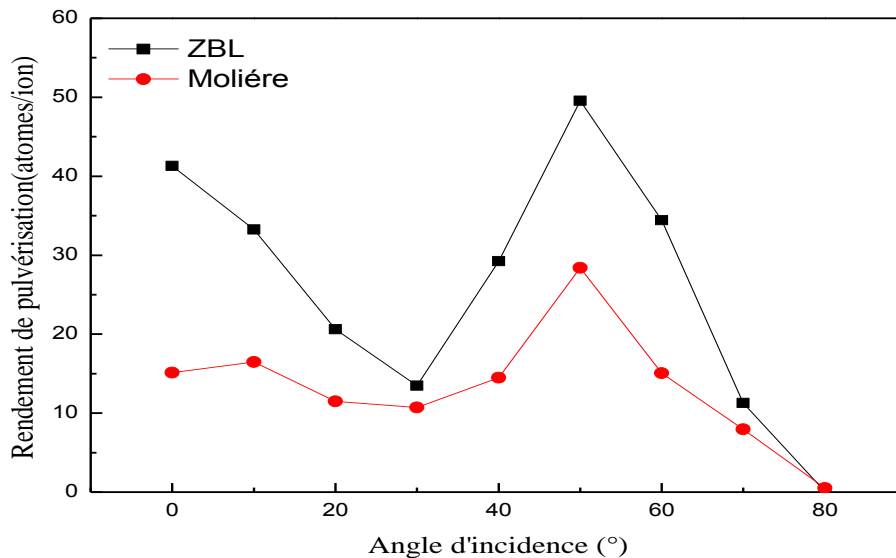


Figure IV-8 : Influence du potentiel d'interaction sur le rendement de pulvérisation.

IV-3-7. Le rendement de pulvérisation en fonction de nombre d'impact :

Au contraire expliquer l'influence de nombre de projectile sur le rendement de pulvérisation on a réalisé subir aux projectiles (ions d'argon, accélérées avec une énergie de 5keV), sur la cible de Cuivre on dépend les résultats ci-dessous.

On remarque que lorsque ce nombre élève, rendement de pulvérisation diminue légèrement [19], mais reste assez stable dans les limites des barres d'erreurs.

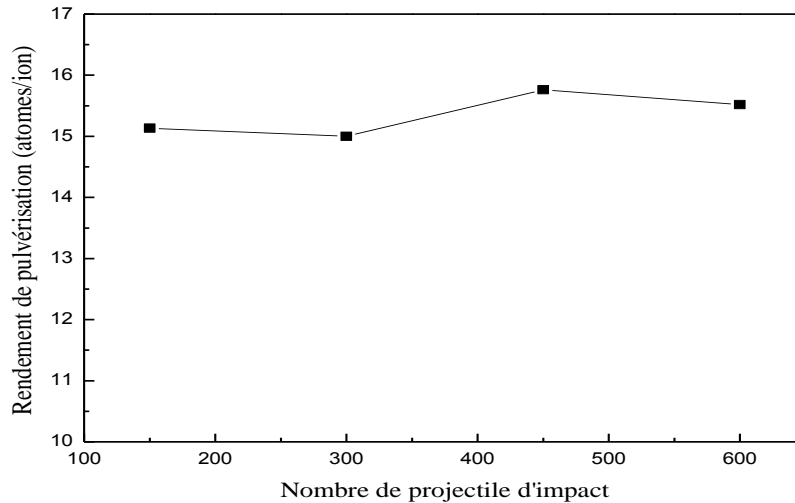


Figure IV-9 : Variation de taux de pulvérisation en fonction du nombre d'impact.

IV-4. La distribution énergétique et angulaire :

Après savoir l'étude de l'influence de différents grandeurs sur le phénomène de pulvérisation ionique, on détecté maintenant l'énergie cinétique des atomes pulvérisés d'une cible de Cu, sous l'effet d'un bombardement ionique d'argon à incidence normale. Ces atomes pulvérisés sont émis spontanément par l'argon, avec un savoir et l'étude de l'influence énergie de l'ordre de quelques 10 eV. Cette approche de calcul nous permet de calculer les distributions énergétiques voir figure (4.10), même il nous donne les distributions angulaires.

IV-4-1. Distribution énergétique :

La simulation se fait pour les trois plans cristallographiques(100), (110) et (111), ainsi que pour différentes valeurs de l'énergie cinétique d'Ar choisie arbitrairement. A vu optique, on constate clairement que les trois courbes ont une même structure où on a une distribution conique dans l'intervalle [0,10] eV.

Typiquement, des atomes de cuivre pulvérisés sous 0.5 keV d'Ar+ présentent une énergie moyenne lors de leurs éjection de l'ordre de 10eV,[20],avec un maximum de l'énergie d'impact des particules de Cuivre pulvérisées situe dans la gamme de 2 à 3eV [21];une décroissance a partir de 10eV jusqu'à 30eV et se réalise finalement par une droite infinitésimal telque l'histoire de la particule se termine lorsque son énergie est inférieur à une valeur spécifiée au préalable ou bien lorsque sa position située hors de la cible. [22]

On note ici que le maximum de ces courbes est lié globalement à la cible, tel que sa potentialité (l'énergie de liaison surfacique) joue un rôle de filtrer les conséquences d'un cascade collisionnelle, Donc, tous les atomes qui ont une énergie supérieur à l'énergie de surface de Cuivre qui égal à 2,4eV [22] avaient la chance de ressortir hors la cible sous forme un "adatome" et selon le phénomène de " l'adsorption".

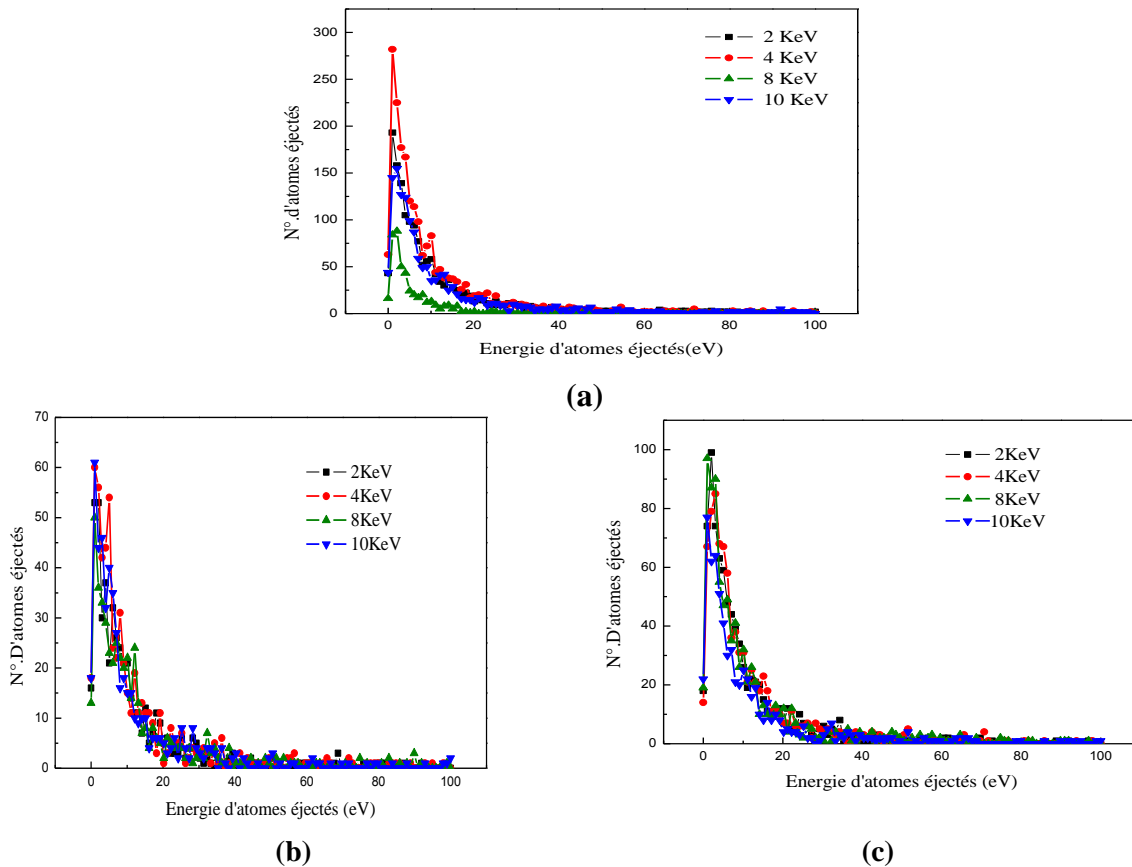


Figure IV-11 : Distribution énergétique des atomes pulvérisés de Cuivre à différents plans

(a) Plan (111), (b) Plan (110), (c) Plan (100).

IV-4-2. Distribution angulaire :

Lors de la pulvérisation d'une cible, les atomes sont éjectés de manière physique sous l'impact d'ions dans toutes les directions.

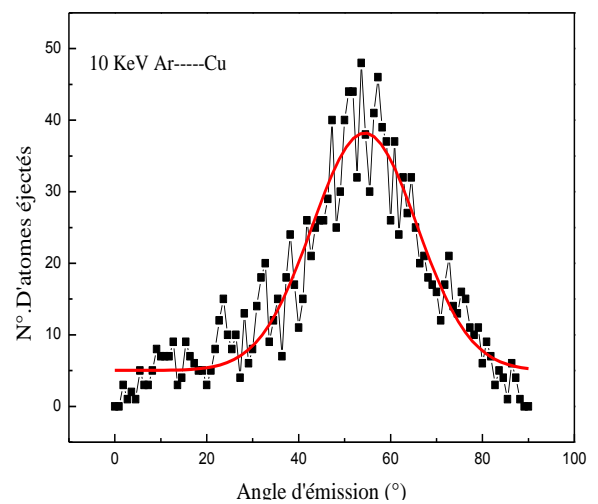
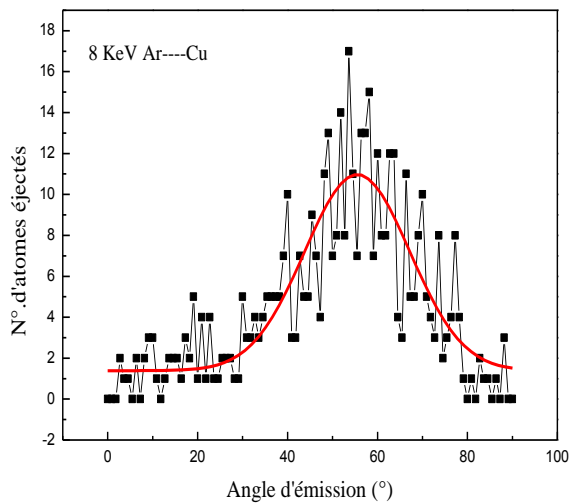
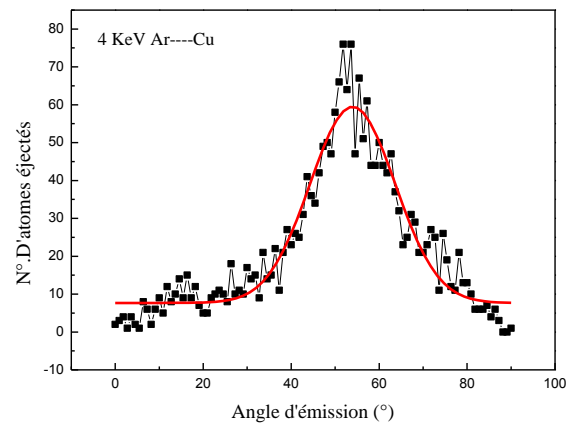
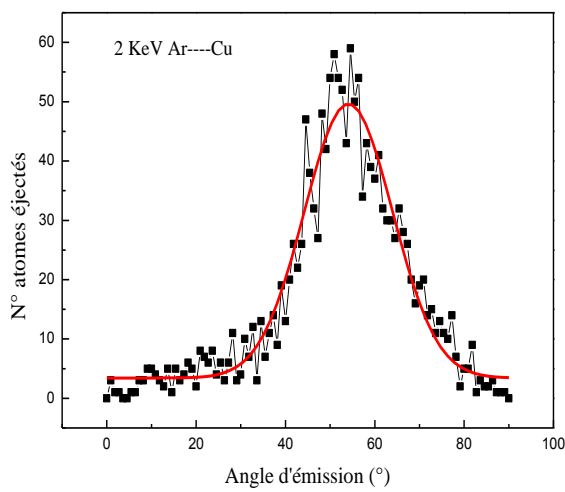
La figure (IV.12) est représentée le nombre d'atomes pulvérisés en fonction de l'angle d'émission pour quatre valeurs énergétiques.

Les résultats de ces simulations indiquent que la probabilité de trouver des atomes pulvérisés est moins important lorsque la déviation hors la cible est minimal, et la distribution

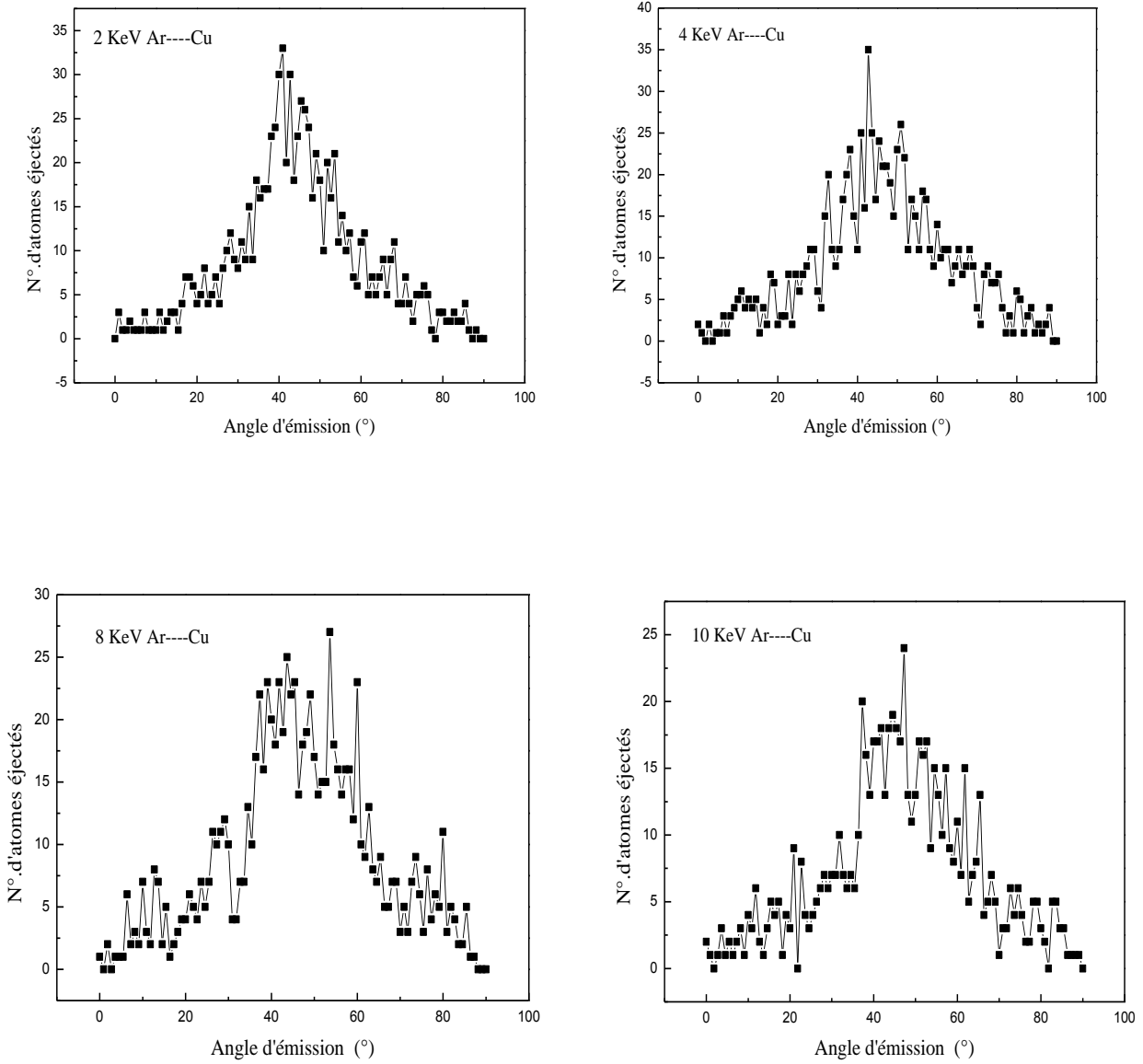
angulaire sera augmentée de façon linéaire avec la pression d'argon [23], la nature structural de la cible et les liaisons chimiques.

Le maximum de ces atomes pulvérisés est atteint pour des angles polaires d'émission compris entre 40° et 50° , l'allure de la distribution angulaire reste quasiment identique pour les deux plans(100) et (111) et plus perturbé pour n'importe quelle valeur d'énergie incident.

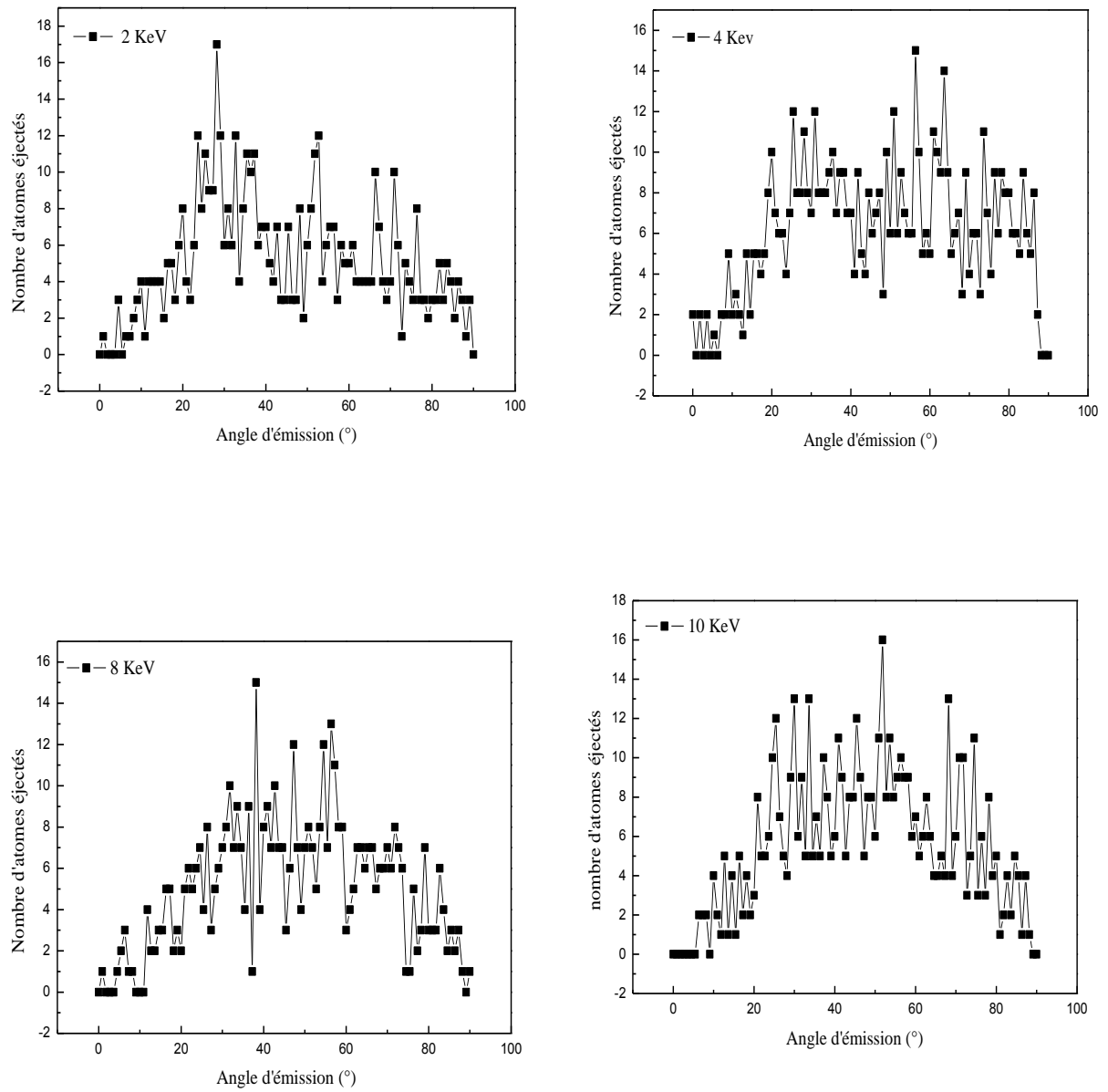
Pour le plan(110), l'allure que montre figure IV.12. (C) est différente, l'anisotropie du matériau (de la cible) en est peut être responsable.



(a)



(b)



(c)

Figure IV-13 : Distribution angulaire des atomes pulvérisée de Cuivre à différents plans (a) Plan (111), (b) Plan (100), (c) Plan (110).

Référence:

- [1] R. Behrisch (Ed.), *Sputtering by Particle Bombardment*, Vol. I, Springer, Heidelberg, 1981.
- [2]. M.A. Karolewski, *Nucl. Instr. and Meth. B* 230 (2005) 402.
- [3] Depla, D., J. Haemers, and R. De Gryse, Discharge voltage measurements during reactive sputtering of oxides. *Thin Solid Films*, 2006. 515(2): p. 468-471.
- [4] A. O. Florio, R. A. Baragiola, M. M. Jakas, E. V. Alonso, and J. Ferron. 'Noble-gas ion sputtering yield of gold and copper: dependence on the energy and angle of incidence of the projectiles'. *Phys. Review B*. Vol 35, N5, (1987).
- [5] I. GUESMI Thèse doctorat Dépôt de couches minces de cuivre sur substrats polymère de formes complexes par pulvérisation cathodique magnétron avec ionisation de la vapeur 2012 L'Université PARIS SUD – XI.
- [6] M. Rabah Mémoire magister Simulation numérique des observables de sputtering dans les collisions ion surface 2009 L'Université des Sciences et de la Technologie Mohamed Boudiaf –Oran.
- [7] Balanzat E., Bouffard., *Solid State Phenomena*, 31-32 (1993) 7.
- [8] H. LADJEL Mémoire magistère Modélisation de l'implantation ionique dans les matériaux Pérovskites (SrTiO_3 , CaTiO_3) par la Théorie de Transport 2005. Université des sciences et de la technologie d'Oran 'Mohamed Boudiaf'.
- [9] T. TONDU Thèse doctorat Étude de la pulvérisation ionique Applications aux effets de jet de la propulsion plasmique 2005 École Doctorale : Matériaux -Structures- Mécanique de l'ONERA -centre de Toulouse, page(101).
- [10] J.D. Kress, D.E. Hanson, A. F. Voter, C. L. Liu, D.G. Coronell 'Molecular dynamics simulation of Cu and Ar ion sputtering of Cu (111) surfaces' *J. Vac. Sci. techno* 17(5) sep/oct 1999.
- [11] C.E. Cariston, G.D. Magnuson, A. Comeaux, P. Mahadevan, *Phys. Rev* (138), 3A, 1965.
- [12] F. Z. Benkenfoud, S. Hiadsi, A. Zanoun, A. Belaidi. Study of Evolution the Thermal Phasat at Low Energy un Stainless Steel. *Phy. Chim. New* 17(2004) 85-92.
- [13] S. Hiadsi, L. Halles, A. Mokedem, A. Allali. Les mécanismes lies aux cascades de collisions dans le fer. *SIPE7 CUBechar* Oct 2004.

- [14] S. Hiadsi, G. Mar est, J. Tous set, p. Guiraldenq, Nguyen Du. Implantation ionique d'azote en surface dans des rubans métalliques amorphe types Fe-CR-P-C en vue d'améliorer leurs résistances à l'usure. 12eme Congrès Mondial des traitements de surface octobre 1988.
- [15] D. Rosenberg, G. K. Wehner, J. Appl. Phy. Vol 33.N°5 (1961).
- [16] M.H. Shapiro, Ping Lu 'the influence of the ion-atom potential on molecular dynamics simulations of sputtering', Nucl. Instr .Meth, B 215 (2004) 326-336.
- [17] M.A. Karolewski. 'Repulsive interatomic potentials for noble gas bombardment of Cu and Ni' Nucl. Instr .Meth, B 243 (2006) 43-50
- [18] M.A. Karolewski, 'Repulsive potentials for low energy projectiles incident on copper surfaces' Nucl. Instr .Meth, B 256(2007) 354-358.
- [19] M.A. Karolewski, 'Classical dynamics simulation of the fluence dependence of sputtering properties for the 2 keV Cu-Cu (1 00) system', Nucl. Instr. .Meth, B 225 (2004) 217-230.
- [20]Ball, L.T., et al., AN INTERFEROMETRIC INVESTIGATION OF THE THERMALIZATION OF COPPER ATOMS IN A MAGNETRON SPUTTERING DISCHARGE. Journal of Applied Physics, 1986. 59(3): p. 720-724.
- [21] T. Ono, Y. Aoki, T. Kawamura, T. Kenmotsu, Y. Yamamura, 'An extended formula for the energy spectrum of sputtered atoms from a material irradiated by light ions', Jour. Nucl. Mater. 337-339 (2005) 975-979.
- [22]R.BAGHDAD Thèse doctorat Optimisation des propriétés structurales et optoélectroniques du silicium nanocristallin déposé par pulvérisation cathodique radiofréquence assistée d'un magnétron en vue de son utilisation pour la conversion photovoltaïque de l'énergie solaire 2007 L'Université d'Oran ES-SENIA.
- [23]V.I. Shulga, 'Angular distribution of atoms sputtered from amorphous and polycrystalline targets', Nucl. Instr and Meth B 164±165 (2000) 733-747.