

**RÉPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE**  
**MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR ET DE LA RECHERCHE**  
**SCIENTIFIQUE**

## **UNIVERSITÉ IBN-KHALDOUN DE TIARET**

**FACULTÉ DES SCIENCES APPLIQUÉES**  
**DÉPARTEMENT DE GENIE ELECTRIQUE**



# **MEMOIRE DE FIN D'ETUDES**

**Pour l'obtention du diplôme de Master**

**Domaine : Sciences et Technologie**

**Filière : Electronique**

**Spécialité : Electronique des systèmes embarqués**

## **THÈME**

**Déposition des couches minces par pulvérisation  
DC magnétron dans la fabrication des composants  
électroniques**

**Préparé par : Hanane Mebarki**

**Devant le Jury :**

<b>Nom et prénoms</b>	<b>Grade</b>	<b>Etablissement</b>	<b>Qualité</b>
Mr : A.Abdiche	PROF	Univ.Tiaret	Président
Mr : Y.Belhadji	MCB	Univ.Tiaret	Examineur
Mr : A.Bouazza	MCA	Univ.Tiaret	Encadreur

**PROMOTION 2020**

## ***Dédicaces***

*Je dédie ce modeste travail*

**À MES CHERS PARENTS**

*Aucune dédicace ne saurait exprimer mon respect, mon amour  
éternel et ma considération pour les sacrifices que vous avez consenti pour mon  
instruction et mon bien être.*

*Je vous remercie pour tout le soutien et l'amour que vous me portez  
depuis mon enfance et j'espère que votre bénédiction m'accompagne toujours.*

*Que ce modeste travail soit l'exaucement de vos vœux tant  
formulés, le fruit de vos innombrables sacrifices, bien que je ne vous en  
acquitterai jamais assez.*

*Puisse Dieu, le Très Haut, vous accorder santé, bonheur et longue  
vie et faire en sorte que jamais je ne vous déçoive.*

*À Mon frère **Mohamed** et Mes sœurs **Fatima, Saida et Zohra***

*À Mes amis : **Ines , Manel , Abdou , wissem et Ikram .***

*Hanan*

## **Remerciements**

*Je remercie tout d'abord « Allah » de m'avoir donné le courage d'entamer et de finir ce mémoire dans de bonnes conditions.*

*Je remercie vivement mon encadreur, Le Professeur **Abdelkader Bouazza**, d'avoir encadré ce travail avec beaucoup de compétences :*

*Merci pour votre indéfectible disponibilité, votre rigueur scientifique et la confiance que vous m'avez accordée au cours de l'élaboration de ce mémoire ; Merci pour l'acuité de vos critiques et pour vos conseils éclairés.*

*Veillez trouver dans ces pages une infime partie de mon infinie reconnaissance.*

*Je remercie également les membres du jury, Le Professeur **A.Abdiche** et le doctor **Y.Belhadji** d'avoir accepté d'évaluer ce travail*

*Mes remerciements vont également à monsieur **Radouane Othmani** , pour m'aider dans la première étape de ce travail*

# SOMMAIRE

**Table des matières**

<b>Introduction générale</b> .....	<b>1</b>
<b>Chapitre I : Les couches minces et les techniques de dépôt</b>	
<b>I Introduction</b> .....	<b>2</b>
<b>I.1 Notion des couches minces</b> .....	<b>2</b>
<b>I.2 Mécanismes de croissance des couches minces</b> .....	<b>3</b>
I.2.1 La nucléation .....	3
I.2.2 La coalescence .....	3
I.2.3 La croissance .....	4
<b>I.3 Classification des modes de croissance</b> .....	<b>4</b>
I.3.1 La croissance en îlots (mode Volmer-Weber).....	4
I.3.2 La croissance en couches (mode Franck-Van der Merwe).....	4
I.3.3 La croissance mixte (mode Stranski-Krastanov).....	4
<b>I.4 Les étapes pour déposer une couche mince</b> .....	<b>5</b>
I.4.1 La source.....	5
I.4.2 Le transport .....	5
I.4.3 Le dépôt .....	6
I.4.4 L'analyse.....	6
<b>I.5 Méthodes de dépôt des couches minces</b> .....	<b>6</b>
I.5.1 Dépôts physiques en phase vapeur (PVD) .....	7
I.5.1.1 Evaporation.....	7
I.5.1.1.1 Evaporation réactive.....	7
I.5.1.1.2 Evaporation thermique sous vide .....	8
I.5.1.2 La pulvérisation .....	8
I.5.1.2.1 La pulvérisation cathodique.....	8
I.5.1.2.2 La pulvérisation DC .....	9
I.5.1.2.3 La pulvérisation Magnétron.....	9

I.5.1.2.4 Pulvérisation radiofréquence .....	10
I.5.2 Dépôt chimique en phase vapeur (CVD) .....	11
I.5.2.1 Technique de Spray CVD.....	11
I.5.2.2 Principe général du procédé spray.....	11
I.5.2.3 Les solutions de départ (source) .....	12
I.5.2.4 Génération des gouttelettes (transport).....	12
I.5.2.5 Réaction chimique sur le substrat (dépôt).....	12
<b>Conclusion .....</b>	<b>13</b>

## **Chapitre II : Modélisation et simulation de système de pulvérisation cathodique**

<b>II Introduction .....</b>	<b>14</b>
<b>II.1 Les dépôts physiques en phase vapeur « pulvérisation cathodique ».....</b>	<b>14</b>
II.1.1 Ejection de matière de la cible sous bombardement ionique .....	16
II.1.1.1 Les phénomènes d'interaction ion-matière .....	16
II.1.1.2 Mécanisme physique de la pulvérisation cathodique .....	17
II.1.1.3 Energie et distribution angulaire des atomes pulvérisés.....	20
<b>II.2 Modélisation et simulation de système de pulvérisation cathodique .....</b>	<b>21</b>
II.2.1 Méthodes Monte Carlo.....	22
II.2.1.1. Algorithme de Monte Carlo Métropolis.....	22
II.2.1.2. Méthode de Monte Carlo Cinétique .....	23
II.2.2. Logiciels de simulation de la pulvérisation cathodique .....	24
II.2.2.1. Logiciels de simulation de l'éjection de matière de la cible.....	24
<b>Conclusion .....</b>	<b>25</b>

## **Chapitre III : Résultats et discussions**

<b>III. Introduction .....</b>	<b>26</b>
<b>III.1. SRIM.....</b>	<b>26</b>
III.1.1 Principe de fonctionnement.....	26
III.1.2 Le rendement de pulvérisation calculé par SRIM .....	27

<b>III.2 Rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie et des angles d'incidence d'atomes .....</b>	<b>28</b>
<b>III.3 Comparaison entre les semiconducteurs et les alliages semiconducteurs .....</b>	<b>41</b>
<b>Conclusion .....</b>	<b>46</b>
<b>Conclusion Générale.....</b>	<b>47</b>
<b>Références bibliographique</b>	
<b>Résumé</b>	

**Chapitre I :**

Figure I.1 : Techniques de dépôt des couches minces.....7

Figure I.2 : Schéma de la méthode .....9

Figure I.3 : Le système de pulvérisation de type diode. ....9

Figure I.4 : Système de pulvérisation (à gauche DC, à droite DC magnétron)..... 10

**Chapitre II :**

Figure II.1: Principe de la pulvérisation ..... 14

Figure II.2: Configuration de la cathode magnétron..... 16

Figure II.3: Différentes interactions ion-solide..... 17

Figure II.4: (a) Régime de collisions simples, (b) régime de cascade linéaire, (c) régime de cascade non-linéaire..... 18

Figure II.5: schéma de la cascade de collision en fonction de l'angle d'incidence ..... 21

Figure II.6: Représentation schématique de l'algorithme d'un pas de Métropolis..... 23

Tableau II.1: Logiciels de simulation de l'éjection de matière de la cible..... 24

Tableau II.2: Logiciels de simulation du procédé de pulvérisation cathodique. .... 25

**Chapitre III :**

Figure III.1: Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement Xénon en incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour silicium(Si) ..... 28

Figure III.2: Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement Argon en incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour silicium(Si) ..... 29

Figure III.3: Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement Néon en incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour silicium(Si) ..... 30

Figure III.4: Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement Xénon en incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour Germanium(Ge) ..... 31

Figure III.5: Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement Argon en incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour Germanium(Ge) ..... 32

Figure III.6 Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement Néon en incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour Germanium(Ge) ..... 33

Figure III.7: Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement Xénon en incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour Gallium Arsenide (GaAs) ..... 34

Figure III.8: Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement Argon en incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour Gallium Arsenide (GaAs) ..... 35

Figure III.10: Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement Xénon en incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour Dioxyde de silicium (SiO<sub>2</sub>) ..... 37

Figure III.11: Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement Argon en incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour Dioxyde de silicium (SiO<sub>2</sub>) ..... 38

Figure III.12: Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement Néon en incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour Dioxyde de silicium (SiO<sub>2</sub>) ..... 39

Figure III.13 :Différentes zones de pulvérisation dans le cas de particule du silicium bombardée par un faisceau de Xénon aux incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ, 89^\circ$  telles qu'obtenues par des simulations ..... 40

Figure III.14: Rendement de pulvérisation calculé par SRIM en fonction des énergies des ions Xenon à l'angle  $89^\circ$ ; comparaison entre les semiconducteurs (Si, Ge) et les alliages semiconducteurs (GaAs, SiO<sub>2</sub>)..... 42

Figuree III.15: Rendement de pulvérisation calcule par SRIM en fonction des énergies des ions Argon à l'angle  $89^\circ$ ;comparaison entre les semiconducteurs (Si, Ge) et les alliages semiconducteurs (GaAs, SiO<sub>2</sub>)..... 43

Tableau3.1 : Énergies, les angles et le rendement maximal aobtenus par SRIM.....45

**Introduction**

**Générale**

## Introduction générale

Lors de la construction de circuits électroniques, vous travaillerez avec un certain nombre de composants électroniques de base, notamment des résistances, des condensateurs, des diodes, des transistors, des inductances et des circuits intégrés. . . .qui incluent des couches minces dans leurs fabrication, Lorsque l'on évoque l'idée d'utiliser des films minces pour l'électronique vient immédiatement à l'esprit la pulvérisation cathodique. La technique de pulvérisation cathodique est utilisée pour le dépôt de tous les matériaux, qu'ils soient conducteurs, semi-conducteurs ou isolants[1-3] Dans cette technique, nous pouvons utiliser une ou plusieurs cibles qui servent de cathode contenant le matériau ou les composés à déposer. Dans le domaine de la microélectronique, cette technique a fait l'objet de diverses améliorations, comme l'augmentation de la vitesse de dépôt des films ; La nécessité d'un dépôt hautement directionnel et énergétique pour le remplissage des tranchées à fort facteur de forme conduit au développement de procédés à fort taux d'ionisation concernant les espèces pulvérisées. Ainsi, en présence d'un champ électrique, le contrôle de l'énergie et de la trajectoire de ces derniers est alors grandement amélioré. Afin de réduire la durée de ce processus d'optimisation, il est apparu nécessaire de mettre en œuvre une simulation des processus physiques impliqués dans le transport des espèces en présence d'un dépôt afin de prédire les distributions en épaisseur et en composition d'une couche

Dans ce mémoire j'ai choisi de simuler la pulvérisation et de calculer son rendement pour les semiconducteurs (silicium (Si) et Germanium (Ge) ) et pour les alliages semiconducteurs (Gallium Arsenide (GaAs) et dioxyde de silicium (SiO<sub>2</sub>)) soumis à un bombardement par des faisceaux d'ions de gaz nobles très inertes tels que le Xénon (Xe), l'Argon et le Néon (Ne)

L'objectif du travail présenté ici est de faire une simulation avec la méthode de Monte Carlo qui permet de calculer le rendement de pulvérisation dans la décharge en faisant varier les énergies et les angles d'incidence. A la fin de la simulation, nous déduisons l'énergie et l'angle maximum qui représentent la meilleure façon de faire pulvériser un maximum de particules qui assure à la fin un dépôt de film très fin et uniforme que nous souhaitons obtenir

***Chapitre I :***  
**Les couches minces et les techniques  
de dépôt**

## I Introduction

Les couches minces sont utilisées depuis bien longtemps dans des domaines aussi variés que l'optique, la mécanique, l'électronique...etc. [4].

Au milieu du 20<sup>ème</sup> siècle, le développement de l'électronique dévoila de nouveaux horizons et apporta à la technologie des couches minces un intérêt majeur. De là sont apparus les circuits intégrés qui utilisent des matériaux en couches minces au lieu des matériaux habituels à l'état massif ce qui constitua un pas vertigineux vers la minimisation des dispositifs [5].

dans ce chapitre une description des diverses méthodes de dépôt des couches minces , suivie par les mécanismes de croissance.

### I.1 Notion des couches minces

Par principe une couche mince d'un matériau donné est un élément de ce matériau dont l'une des dimensions, qu'on appelle l'épaisseur, a été fortement réduite de telle sorte qu'elle s'exprime en nanomètres et que cette faible distance entre les deux surfaces limites (cette quasi bidimensionnalité) entraîne une perturbation de la majorité des propriétés physiques. La différence essentielle entre le matériau à l'état massif et à l'état de couches minces est en effet liée au fait que dans l'état massif on néglige généralement avec raison le rôle des limites (les surfaces) dans les propriétés, tandis que dans une couche mince ce sont au contraire les effets liés aux surfaces limites qui sont prépondérants. Il est assez évident que plus l'épaisseur sera faible et plus cet effet de bidimensionnalité sera prononcé, et qu'inversement lorsque l'épaisseur d'une couche mince dépassera un certain seuil l'effet d'épaisseur deviendra minime et le matériau retrouvera les propriétés bien connues du matériau massif [6].

La seconde caractéristique essentielle d'une couche mince est quelle que soit la procédure employée pour sa fabrication, une couche mince est toujours solidaire d'un support sur lequel elle est construite (même si, parfois, il arrive que l'on sépare le film mince du dit support). En conséquence il sera impératif de tenir compte de ce fait majeur dans la conception, à savoir que le support influence très fortement les propriétés structurales de la couche qui y est déposée.

Ainsi une couche mince d'un même matériau, de même épaisseur pourra avoir des propriétés physiques sensiblement différentes selon qu'elle sera déposée sur un substrat isolant amorphe tel le verre, ou un substrat monocristallin de silicium par exemple [7].

## **I.2 Mécanismes de croissance des couches minces**

La croissance d'une couche mince s'effectue en plusieurs étapes :

- L'arrivée ou l'adsorption des atomes (ou molécules) sur la surface du substrat.
- La diffusion en surface des atomes.
- L'interaction entre les atomes déposés et/ou ceux du substrat pour la formation de liaisons stables.
- La nucléation de la couche.
- La croissance en volume.
- La diffusion des atomes en volume dans la couche et/ou dans le substrat.

Divers processus physico-chimiques et plusieurs modes de croissance peuvent intervenir lors de ces étapes de croissance. Ils dépendent en particulier des paramètres concernant le procédé d'élaboration de la couche (énergie des espèces, température de dépôt,...) et des matériaux mis en jeu (atomes déposés et substrat).

Il existe différentes approches pour décrire ces mécanismes, selon l'échelle considérée, depuis le macroscopique jusqu'au microscopique, et selon le stade de croissance envisagé [8].

### **I.2.1 La nucléation**

C'est le phénomène qui accompagne les changements d'état de la matière et qui consiste en l'apparition, au sein d'un milieu donné, de points de transformation à partir desquels se développe une nouvelle structure physique ou chimique. Les espèces pulvérisées arrivant sur le substrat perdent leurs composantes normales au substrat de leur vitesse et sont physiquement adsorbées par la surface du substrat. Ces espèces ne sont pas thermodynamiquement en équilibre avec le substrat et se déplacent sur toute la surface de celui-ci. Dans cet état, elles interagissent entre elles et forment ce que l'on appelle de "clusters". Ces "clusters" appelés également nuclei, sont instables et tendent à se désorber. Sous certaines conditions de dépôt, ils entrent en collision avec d'autres espèces adsorbées et commencent à croître. Après avoir atteint une taille critique, ces clusters deviennent thermodynamiquement stables et la barrière de nucléation est franchie.

### **I.2.2 La coalescence**

Les nucleus croissent en taille mais aussi en nombre jusqu'à atteindre une densité maximale de nucléation. Celle-ci ainsi que la taille moyenne de ces nucleus aussi appelés îlots dépendent d'un certain nombre de paramètres tels que l'énergie des espèces pulvérisées, le taux de pulvérisation, l'énergie d'activation, d'adsorption, de désorption, de la diffusion thermique, de la température du substrat, de la topographie et de la nature chimique des substrats.

Un noyau peut croître à la fois parallèlement au substrat par un phénomène de diffusion surfacique des espèces pulvérisées. Il peut également croître perpendiculairement au substrat par apport d'espèces pulvérisées. En général la croissance latérale dans cette étape est beaucoup plus importante que la croissance perpendiculaire .

### **I.2.3 La croissance**

La dernière étape dans le procédé de fabrication du film est l'étape de coalescence dans laquelle les îlots commencent à se regrouper. Cette tendance à former des îlots plus grands possède la terminologie d'agglomération et est améliorée par la croissance de la mobilité de surface des espèces adsorbées. Cette amélioration est obtenue en augmentant la température du substrat.

Ces plus grands îlots croissent encore, en laissant des canaux et des trous sur le substrat. La structure du film dans cette étape change passant d'un type d'îlots discontinus en un type de réseaux poreux. Un film continu est formé en remplissant les canaux et les trous [9].

## **I.3 Classification des modes de croissance**

Dans une approche simple, on classe la croissance de films minces sur un substrat en trois catégories suivants :

### **I.3.1 La croissance en îlots (mode Volmer-Weber)**

Dans ce mode de croissance, de petits amas nucléent directement sur la surface du substrat et croissent en îlots sur celle-ci. Cette croissance aura lieu lorsque les atomes ou molécules qui arrivent sur la surface du substrat ont plus tendance à se lier entre eux qu'avec le substrat. C'est donc une croissance tridimensionnelle; un cas typique de cette croissance est celle des films métalliques sur des substrats isolants.

### **I.3.2 La croissance en couches (mode Franck-Van der Merwe)**

Ce mode de croissance a lieu lorsque l'interaction atome-substrat est très forte. Les premiers atomes qui arrivent sur la surface du substrat se condensent et forment une monocouche recouvrant toute la surface : on a alors une croissance bidimensionnelle de noyaux pour former une couche, puis une croissance couche par couche.

### **I.3.3 La croissance mixte (mode Stranski-Krastanov)**

Ce mode de croissance est un cas intermédiaire : la croissance est d'abord bidimensionnelle pour former le ou les premières couches ; cependant, comme l'énergie

d'interaction d'atome-substrat diminue progressivement, la croissance tend à devenir tridimensionnelle avec la formation d'îlots [10].

## **I.4 Les étapes pour déposer une couche mince**

Tous les procédés de déposition de couches minces contiennent quatre étapes successives.

### **I.4.1 La source**

Qui constitue le matériau de base du film mince à élaborer il peut être un solide, un liquide, une vapeur ou un gaz. Lorsque le matériau est solide son transport vers le substrat s'effectue par vaporisation. Ce qui peut être réalisé par évaporation thermique, canon à électrons, ablation laser ou par des ions positifs "pulvérisation". L'ensemble de ces méthodes est classé sous le nom de dépôt physique en phase vapeur PVD "physical vapor deposition".

La source solide est occasionnellement transformée en vapeur par voie chimique. Dans d'autre cas, le matériau de base est sous forme d'un gaz ou d'un liquide ayant une pression de vapeur suffisante pour qu'il soit transporté à des températures modérées.

Les procédés qui utilisent, comme matériau de base, les gaz, les liquides évaporés ou solides évaporés par voie chimique sont connues sous le nom de dépôts chimiques en phase vapeur, CVD "Chemical vapor deposition" [11].

### **I.4.2 Le transport**

Dans l'étape de transport, l'uniformité du flux des espèces qui arrivent sur la surface du substrat est un élément important, plusieurs facteurs peuvent affecter cette uniformité et dépendent du milieu dans lequel s'effectue le transport, un vide poussé ou un fluide «principalement des gaz».

Dans le cas d'un vide poussé, les molécules, provenant de la source et allant vers le substrat, traversent le milieu selon des lignes droites, tandis que dans un milieu fluide elles subissent plusieurs collisions au cours de leurs transports. En conséquence, dans le vide, l'uniformité du flux qui arrive sur le substrat est déterminée par la géométrie de la réaction, tandis que dans un fluide il est déterminé par le débit du gaz et par la diffusion des molécules de la source dans les autres gaz présents.

Souvent, les procédés qui utilisent un vide poussé sont équivalents aux procédés PVD alors que ceux qui utilisent un débit fluide sont des procédés CVD. Cette définition n'est pas toujours confirmée. Il existe plusieurs procédés de dépôt physique en phase vapeur qui opèrent dans un vide poussé, d'autres, comme l'ablation laser et la pulvérisation opèrent souvent à des grandes pressions caractéristiques du fluide.

De la même manière on trouve que la majorité des procédés de dépôts par CVD opèrent à des pressions modérées, l'épitaxie à transmission chimique "chemical beam epitaxy", quant elle, opère dans un vide. Dans cette phase, plusieurs procédés de dépôt de couches minces utilisent un milieu plasma. En effet, la grande quantité d'énergie contenue dans ce milieu permet, à faible température, l'activation de la formation des couches. La pression de travail d'un plasma peut être celle d'un fluide [11].

#### **I.4.3 Le dépôt**

La troisième étape dans les procédés d'élaboration des films minces est le dépôt du film sur la surface du substrat. Cette phase passe par les étapes de nucléation et de coalescence. Le comportement de déposition est déterminé par les facteurs source, transport et aussi par les trois principales conditions de la surface du substrat. Ces dernières sont l'état de surface "Rugosité, niveau de contamination, potentiel chimique avec le matériau qui arrive", la réactivité du matériau arrivant sur cette surface " Coefficient de collage" et l'énergie déposée sur la surface " Température de substrat, Photons, Ions positifs [11].

#### **I.4.4 L'analyse**

La dernière étape dans le processus de fabrication est la nécessité de l'analyse du film obtenu. Le premier niveau de contrôle du matériau consiste à effectuer des mesures directes de ses propriétés importantes. Si les résultats de l'analyse sont insuffisants, il est indispensable de recourir à des expériences particulières qui permettent de lever les éventuelles ambiguïtés d'un processus donné [11].

### **I.5 Méthodes de dépôt des couches minces**

Dans ce chapitre on s'intéresse aux méthodes de préparation des couches minces. On distingue deux grandes catégories de méthodes d'élaboration de couches minces : les méthodes physiques PVD (Physical Vapor Deposition), telles que la pulvérisation ou l'évaporation, et les méthodes chimiques, comme la CVD (Chemical Vapor Deposition).

Les méthodes physiques sont en général utilisées dans la recherche, alors que les méthodes chimiques sont utilisées dans l'industrie, car ces méthodes permettant d'obtenir de films de meilleure qualité et avec une vitesse de dépôt plus grande. Dans ce qui suit nous donnons le principe des techniques utilisées. La classification de méthodes est présentée sur le schéma de la figure suivante :

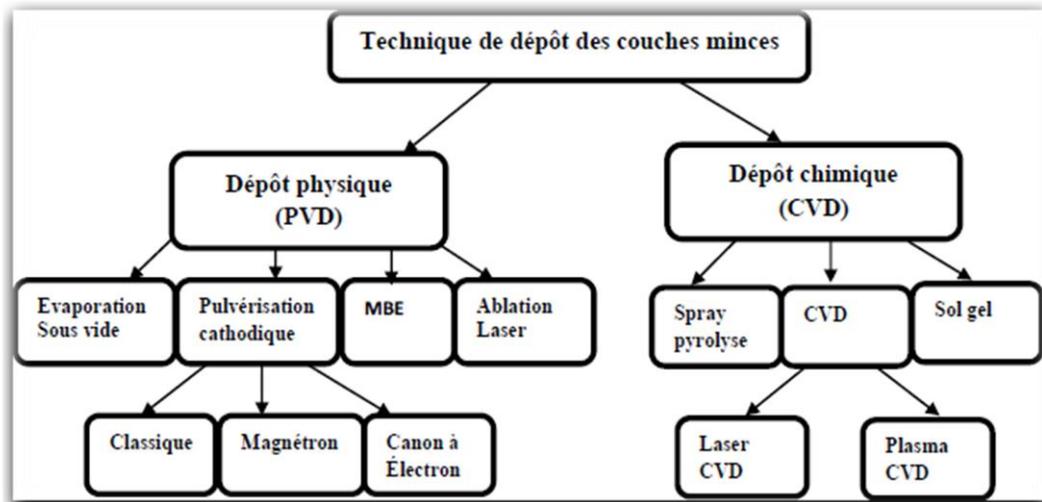


Figure I.1 : Techniques de dépôt des couches minces [12].

### I.5.1 Dépôts physiques en phase vapeur (PVD)

Les procédés par PVD regroupent principalement l'évaporation, et la pulvérisation sous toutes ses formes. Dans la réalisation d'une couche on peut distinguer les trois étapes suivantes :

- La création de la ou des espèces à déposer, sous forme d'atomes, de molécules ou de clusters (groupes d'atomes ou de molécules).
- Le transport de ces espèces en phase vapeur de la source vers le substrat.
- Le dépôt sur le substrat et la croissance de la couche [13].

#### I.5.1.1 Evaporation

##### I.5.1.1.1 Evaporation réactive

Le chauffage de l'évaporation formé du matériau composé à haute température provoque souvent une décomposition partielle ou totale de la molécule. On observe généralement dans la couche déposée une perte de l'élément le plus volatil surtout si celui-ci est un gaz à l'état pur ( $N_2$ ,  $O_2$  ...). Pour conserver la stœchiométrie, on doit composer cette perte par l'évaporation réactive ; on introduisant l'élément déficitaire sous forme de gaz réactif dans l'enceinte d'évaporation. C'est le cas de nombreux Oxydes pour lesquels on peut introduire un flux d'Oxygène dont le débit et la pression doivent être ajustés en réaction d'oxydation qui se produit en général au niveau du substrat. Notons que la température du substrat joue un rôle très important dans le mécanisme de dépôt [13].

### **I.5.1.1.2 Evaporation thermique sous vide**

Cette technique repose sur le principe de l'évaporation d'un matériau source initialement sous forme solide, après son échauffement grâce à un élément chauffant (résistance, faisceaux d'électrons). Cette opération peut être effectuée dans une enceinte sous un vide dans le domaine entre  $10^{-6}$  et  $10^{-4}$  Torr. La différence entre la température des vapeurs du matériau à évaporer et le substrat, permet la condensation des molécules du matériau source sur le substrat et de former par conséquent une couche mince.

### **I.5.1.2 La pulvérisation**

#### **I.5.1.2.1 La pulvérisation cathodique**

La pulvérisation cathodique est l'une des techniques les plus anciennes. Des ions lourds d'un gaz rare, généralement  $\text{Ar}^+$ , sont accélérés sous une forte tension jusqu'à la cathode qui est constituée du matériau cible à déposer. Les atomes de surface vont alors être arrachés et projetés vers le substrat refroidi afin de s'y déposer. L'ionisation des atomes d'argon est réalisée dans une enceinte à vide atteignant  $10^{-6}$  Torr. Une décharge électrique se produit dans l'enceinte après application d'une tension entre deux électrodes planes : une cathode où est installée la cible du matériau à déposer et une anode qui est généralement reliée à la masse qui porte le substrat à recouvrir. Les ions d'argon ( $\text{Ar}^+$ ) créés dans la décharge sont accélérés vers la cathode et acquièrent ainsi l'énergie qu'ils libèrent lors de leur impact à la surface de la cible. Cela peut entraîner l'éjection d'atomes qui viennent de déposer sur le substrat. Un schéma de principe de fonctionnement de la pulvérisation cathodique est présenté sur la figure (I.2). Les mécanismes physiques de la pulvérisation sont traités dans de nombreux ouvrages. Les techniques de pulvérisation sont généralement utilisées pour déposer toutes sortes de matériaux : métaux, matériaux réfractaires, diélectriques, céramiques.

La principale difficulté de la pulvérisation est de maîtriser la composition finale de la couche. En effet, l'énergie des ions d'argon incident est supérieure à l'énergie de liaison des atomes de la cible ce qui fait que les particules expulsées sont sous forme atomique et les taux de pulvérisation varient d'un composé à un autre. La stœchiométrie de la cible n'est donc pas respectée. Bien que ce problème de différence entre les compositions du matériau primaire et de la couche finale existe aussi en sol gel et en MOCVD, il est plus difficile en pulvérisation de refaire une nouvelle cible pour chaque nouvel essai. Malgré ces difficultés, la pulvérisation reste la technique la plus propre et assurant une bonne homogénéité de la couche et une forte adhérence au substrat [12].

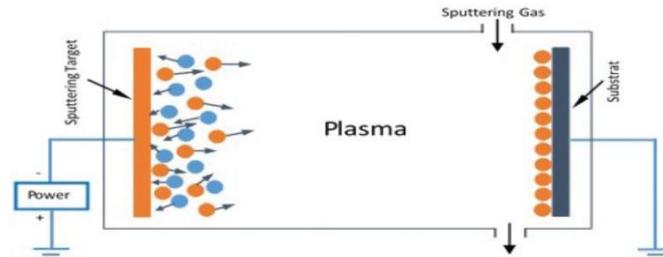


Figure I.2 : Schéma de la méthode [1].

### I.5.1.2.2 La pulvérisation DC

Un dispositif de pulvérisation cathodique diode D.C est décrit sur la figure I.3. La cathode, sur laquelle le matériau à pulvériser est fixé, est reliée au pôle négatif d'un générateur de tension continue de quelques kilovolts. L'anode sur laquelle se trouve le substrat, est reliée à la masse. Cette méthode est généralement utilisée pour des dépôts métalliques ou semi-conducteurs. Au cours du dépôt, la cible se charge positivement sous l'impact des ions positifs, et si cette dernière est isolante, la charge positive qui y apparaît ne peut s'écouler. Par conséquent le plasma s'éteint et le dépôt ne peut se produire [14].

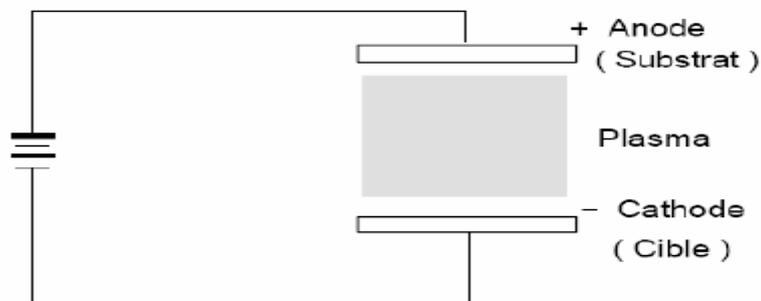
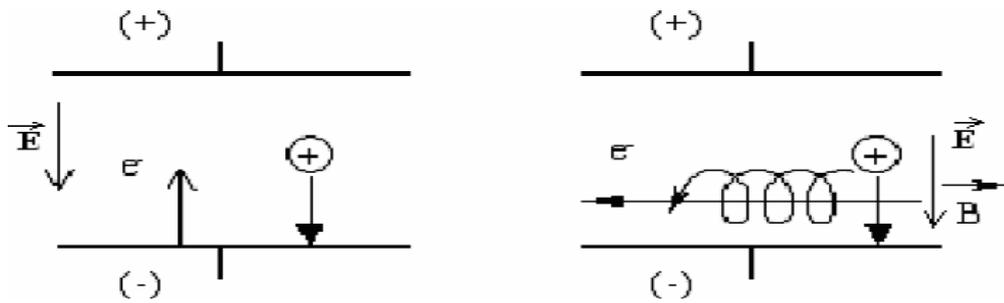


Figure I.3 : Le système de pulvérisation de type diode.

### I.5.1.2.3 La pulvérisation Magnétron

La décharge électrique continue DC est obtenue par application d'une tension continue  $V$  sur l'électrode qui crée un champ électrique (Figure I.4). On superpose perpendiculairement au champ électrique un champ magnétique  $B$ , c'est à dire parallèle à la cathode et très près de celui-ci (en pratique, ceci est réalisé en plaçant des aimants permanents sous la cible) ; La cathode magnétron existe sous deux formes principales planes (rectangulaires ou rondes) et cylindriques.



**Figure 1.4 :** Système de pulvérisation (à gauche DC, à droite DC magnétron).

La combinaison des deux oblige les électrons à se déplacer dans une direction qui à la fois perpendiculaire au champ électrique et au champ magnétique, selon des trajectoires cycloïdaux ou spiroïdaux (Figure 1.4). Ce qui provoque plus de collisions entre les électrons et les molécules d'argon et augmente le taux d'ionisation au voisinage de la cible. Le champ magnétique confine le plasma ce qui a pour conséquence une augmentation de la densité de courant sur la cathode ce qui permet d'obtenir des vitesses de pulvérisation élevées à des pressions assez basses.

La pulvérisation magnétron est une méthode la plus utilisée au niveau industriel car elle permet d'obtenir des vitesses de pulvérisation importantes, une meilleure uniformité des dépôts et une bonne reproductibilité [14].

#### 1.5.1.2.4 Pulvérisation radiofréquence

Dans la pulvérisation radiofréquence on remplace le champ électrique continu par un champ électrique alternatif à haute fréquence (13.56MHz) pour mieux contrôler les phénomènes de polarisation du substrat.

Lors de l'alternance négative de la tension appliquée les ions sont attirés vers la cathode et au cours de l'alternance positive suivante, ce sont les électrons qui vont être attirés à leurs tours vers la cible, neutralisant ainsi sa charge positive. Par conséquent l'intérêt de l'emploi d'une tension 13.56MHz réside dans le fait que grâce à la différence de mobilité entre les ions et les électrons une auto polarisation négative va se développer sur la surface isolante en contact avec le plasma lorsque l'on doit déposer un isolant [14].

De ce fait, on va pouvoir déposer des matériaux isolants sans accumulation de charge sur la surface de la cible. De cette façon on évite le problème rencontré dans le cas d'une cible

isolante en pulvérisation DC. Donc l'avantage essentiel de ce procédé est de permettre la pulvérisation de n'importe quel matériau, qu'il soit conducteur ou isolant [14].

### **I.5.2 Dépôt chimique en phase vapeur (CVD)**

Lorsqu'un substrat est chauffé à des hautes températures (500-2000°C), des réactions chimiques entre le substrat et un gaz activé thermiquement (par effet joule par exemple) peuvent avoir lieu et conduisent à la formation d'un matériau solide en couche mince. Cette technique de dépôts est appelée le dépôt chimique en phase vapeur ou CVD thermique (chemical Vapor Deposition). Un bâti de dépôt par CVD est généralement composé des éléments suivants :

- Un dispositif d'alimentation en gaz.
- Un réacteur de dépôt avec accessoires.
- Un dispositif de récupération des gaz issus des réactions chimiques [15].

#### **I.5.2.1 Technique de Spray CVD**

Le technique "spray" à été proposé pour la première fois par Chamberlin et Skarman en 1963. Elle fut utilisée avec succès pour de films de CdS. Elle à ensuite, été adapté pour l'élaboration de plusieurs matériaux tels que (Cd, Zn) Sn, CuInS<sub>2</sub>, FeS<sub>2</sub>, etc. Ainsi que pour l'obtention de films minces d'oxydes transparents et conducteurs (SnO<sub>2</sub>, ZnO,...) [16]. Cette méthode présente de nombreux avantages :

- La rapidité et la simplicité de mise en œuvre.
- Elle permet de bien contrôler la composition chimique du matériau que l'on veut obtenir.
- On peut utiliser plusieurs produits à la fois, en particulier pour faire le dopage.
- Les couches minces préparées par cette technique sont de bonne qualité.
- C'est une technique très peu coûteuse et économique. Elle est industrialisable.
- On peut effectuer par cette méthode des dépôts sur des surfaces importantes dans les cas des cellules solaires ou d'écrans plats [17].

#### **I.5.2.2 Principe général du procédé spray**

Une solution de différents composés réactifs est vaporisée puis projetée, à l'aide d'un atomiseur, sur un substrat chauffé. La température du substrat permet l'activation de la réaction chimique entre les composés [18]. L'expérience peut être réalisée à l'air et peut être préparée dans une enceinte (ou bien dans une chambre de réaction) sous un vide, environ, de 50Torr [19].

La description de la formation des films par la méthode Spray ultrasonique peut être résumée comme suit :

- Formation des gouttelettes à la sortie du bec.
- Décomposition de la solution des précurseurs sur la surface du substrat chauffé par réaction de pyrolyse [20].

### **1.5.2.3 Les solutions de départ (source)**

La composition de la particule finale est déterminée par les corps dissous ou les réactifs dissous dans le dissolvant (solution de départ) selon le rapport stœchiométrique prédéterminé. Comme précurseurs, on emploie des matériaux, habituellement peu coûteux, tels que les nitrates, les chlorures et les acétates qui sont rangés dans la catégorie des réactives, l'eau distillée ou l'alcool est souvent employé comme dissolvant. Dans la solution de base, il est nécessaire d'éliminer les problèmes de solubilité et de ségrégation de phase, où les différents composants se précipitent à des temps différents. Pour pallier à cela et obtenir des solutions homogènes, nous préconisons d'ajouter, pendant la préparation, une petite quantité d'acide (par exemple, nitrique).

La concentration globale de la solution peut être variée de 0.01 à quelque mole/litre. Notons que ce paramètre a pour effet de changer la taille moyenne des particules fluides éjectées.

D'après la littérature, quelques techniques incluent le préchauffage de la solution. Ce préchauffage peut, quelque fois, être utile et favorise ou accélère la réaction sur le substrat ceci permet d'accroître la vitesse de dépôt et d'améliorer la qualité des films résultants.

### **1.5.2.4 Génération des gouttelettes (transport)**

La taille et l'homogénéité du matériau déposé peuvent être déterminées à partir de la taille des gouttelettes pulvérisées et de la concentration de la solution tandis que sa morphologie peut être également déterminée par la concentration et la vitesse des gouttelettes produite par les atomiseurs. Dans le dispositif de dépôt, la solution de base peut être véhiculée jusqu'au substrat par l'effet de la pression d'un gaz. La conduite par pression de gaz a deux avantages, d'une part, l'écoulement peut être commandé avec beaucoup de sensibilité et d'autre part, les gaz peuvent, également, être employés en tant qu'éléments réactifs entrant dans la composition du matériau à déposer tel qu'O<sub>2</sub> pour ZnO. Cependant, pour la plupart des semi-conducteurs composés, de l'azote(N<sub>2</sub>) ou un gaz inerte est employés pour éviter les réactions chimiques, entre les matériaux composés et /ou le dissolvant, qui mèneraient à l'addition des impuretés. Dans

certains cas, afin d'empêcher l'oxydation des matériaux, un mélange binaire de N<sub>2</sub> et H<sub>2</sub> est employé en tant que gaz porteur [14].

#### **I.5.2.5 Réaction chimique sur le substrat (dépôt)**

Quand les gouttelettes d'aérosol s'approchent de la surface du substrat chauffé (200-600°C), dans les conditions expérimentales appropriées, la vapeur formée autour de la gouttelette empêche le contact direct entre la phase liquide et la surface du substrat [21]. Cette évaporation des gouttelettes permet un renouvellement continu de la vapeur, donc les gouttelettes subissent la décomposition thermique et donnent lieu à la formation de films fortement adhérents. On note que la réaction de décomposition en phase gazeuse, se produisant sur la surface du substrat, est une réaction endothermique qui exige des températures de substrat relativement élevées pour provoquer la décomposition des gouttelettes et activer la croissance de la couche [22].

### **Conclusion**

Les couches minces sont réalisées en utilisant une grande variété de Techniques dues à la diversité des applications de matériau. Elles peuvent être obtenues en Opérant en phase liquide ou en phase vapeur, et par des procédés physiques« PVD » ou chimiques« CVD ».

## ***Chapitre II :***

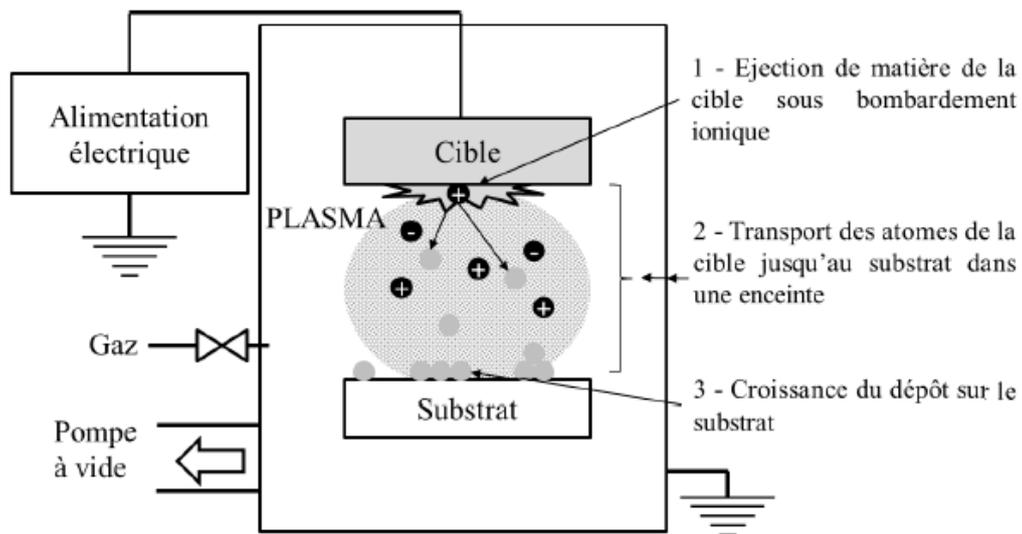
# **Modélisation et simulation de système de pulvérisation cathodique**

## II Introduction

Cependant, avec le développement des outils informatiques, il devient possible d'entamer une méthodologie ascendante qui part des propriétés voulues pour aboutir aux conditions de travail. Pour maîtriser le lien entre procédés de traitement et propriétés de la couche mince, la combinaison entre la simulation et l'expérimentation est nécessaire. La simulation du procédé de dépôt complet permettrait de faire le lien entre les conditions opératoires et les propriétés du dépôt. Elle permet d'examiner et de répondre au problème dans le temps et avec une précision raisonnable.

### II.1 Les dépôts physiques en phase vapeur « pulvérisation cathodique »

Le dépôt physique en phase vapeur (Physical Vapor Deposition : PVD) regroupe un ensemble de méthodes de dépôt sous vide de films minces. A titre d'exemple, nous pouvons citer : l'évaporation sous vide, la pulvérisation cathodique, l'ablation laser pulsé, ou le dépôt par arc-électrique. Dans ce travail, le dépôt par pulvérisation cathodique, qui reste l'un des procédés PVD largement utilisé pour élaborer des revêtements minces, est utilisé. Par définition, la pulvérisation cathodique consiste à bombarder une surface solide par des particules énergétiques, en général des ions argon (figurell.1) pour générer mécaniquement la vapeur.



Figurell.1 : Principe de la pulvérisation

Une différence de potentiel est appliquée entre la cible (cathode) et le substrat (anode) dans une chambre (enceinte sous vide) contenant un gaz plasmagène. Cette différence de

potentiel initie un plasma entre la cathode et l'anode qui sera ensuite auto-entretenu. Sous l'effet du champ électrique, les ions positifs créés sont accélérés et attirés par la cathode (cible), polarisée négativement, et entrent en collision avec cette dernière. La matière pulvérisée (sous forme atomique) est transportée en phase gazeuse et vient se condenser sur le substrat (notamment) placé en vis-à-vis.

Afin d'augmenter la vitesse de pulvérisation, le plasma est confiné aux abords de la cible grâce au procédé Magnétron. En plaçant en face arrière de la cible des aimants permanents, on obtient en face avant une zone où le champ magnétique est pratiquement parallèle à la cible, c'est-à-dire perpendiculaire au champ électrique. Les électrons sont alors soumis à la force de Lorentz :

$$\vec{F} = m \frac{d\vec{v}}{dt} = e (\vec{E} + \vec{v} \wedge \vec{B}) \quad (I-1)$$

Où 'e' et 'm' sont la charge et la masse de l'électron et 'v' leur vitesse. Notons bien que si  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  sont parallèles, le second terme s'annule. Si  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  sont perpendiculaires, la trajectoire est circulaire. Si  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  ne sont pas strictement perpendiculaires, la trajectoire est hélicoïdale, s'enroulant autour de la direction des lignes du champ magnétique  $\vec{B}$  (figure II.2). De façon générale, les électrons s'enroulent autour des lignes du champ magnétique, augmentant considérablement les probabilités d'ioniser une molécule de gaz ce qui permet d'accroître le taux d'ionisation du gaz. Il permet également de provoquer l'ionisation du gaz à une pression plus basse ce qui améliore la pureté des revêtements.

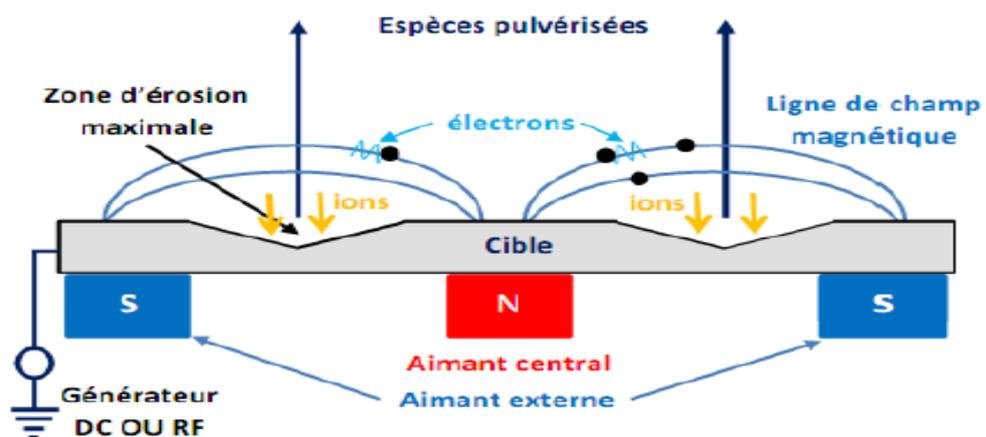


Figure II.2 : Configuration de la cathode magnétron

On voit sur la figure II.2, une région nommée zone d'érosion où les lignes du champ  $\vec{B}$  sont strictement parallèles à la surface. Les électrons se déplacent alors à haute vitesse, et ionisent

efficacement le gaz. En conséquence, la pulvérisation sera plus intense dans cette région, ce qui entraîne un profil d'érosion de la cible localisé et caractéristique.

Indépendamment des configurations magnétron ou réactive, la synthèse d'un revêtement par pulvérisation cathodique se déroule donc en trois grandes étapes [84] :

- la création d'une vapeur métallique à partir d'une source solide,
- le transfert de la vapeur vers le substrat au sein de l'atmosphère raréfiée,
- la condensation au niveau du substrat, conduisant à la formation d'un film par germination et croissance.

La qualité des films obtenus est influencée par plusieurs paramètres, notamment le vide limite de l'enceinte, l'énergie des espèces présentes dans le plasma (ions, électrons, atomes, etc.), l'angle d'incidence des particules de bombardement, la composition chimique des gaz employés, la densité de courant, la géométrie de l'ensemble du système de dépôt et la présence ou non de champs magnétiques. Une meilleure compréhension et le contrôle des procédés de dépôt sont obligatoires du point de vue de la science fondamentale et également pour les applications futures [24]. Une attention a été accordée au processus de pulvérisation comme outil pour déposer des films minces et à l'étude de l'interaction entre les propriétés des films et les paramètres de dépôt [25]. Dans ce qui suit, nous décrivons en détails les phénomènes et paramètres physiques qui interviennent dans la première étape de pulvérisation cathodique.

### **II.1.1 Ejection de matière de la cible sous bombardement ionique**

Dans ce paragraphe, nous allons nous concentrer plus particulièrement sur les points suivants : les phénomènes d'interaction ion-matière, le mécanisme physique de la pulvérisation cathodique, le rendement de pulvérisation, l'énergie et les distributions angulaires des particules pulvérisées.

#### **II.1.1.1 Les phénomènes d'interaction ion-matière**

Les interactions entre un ion et le solide bombardé puis entre les atomes au sein du solide se composent de mécanismes relativement simples. Néanmoins, leurs additions et le plus souvent un grand nombre d'événements successifs forment un système complexe [26]. Généralement, on distingue quatre phénomènes concernant les modifications de solides bombardés (figure II.3) :

1. La pulvérisation de particules de la surface (atomes, ions, etc.),
2. L'implantation d'ions primaires,

3. Des modifications dans la structure de la matière,

4. Des effets chimiques tels que la rupture et la création de défauts (lacunes, interstitiels) [27].

La probabilité d'apparition de chacun de ces phénomènes dépend essentiellement des caractéristiques des deux partenaires concernés (ion, solide), notamment la masse ( $M_1$ ), la charge ( $Z_1$ ), l'énergie ( $E_1$ ) et l'angle d'incidence ( $\theta_i$ ) de l'ion projectile, mais aussi la masse atomique ( $M_2$ ), ainsi que la charge ( $Z_2$ ) de la cible. En pulvérisation cathodique, on tiendra compte surtout parmi les produits de réaction de **l'émission d'électrons secondaires**, nécessaire à l'entretien de la décharge, et des **atomes éjectés (pulvérisés)**, dont une partie en se condensant sur le substrat, constituera le film mince [23].

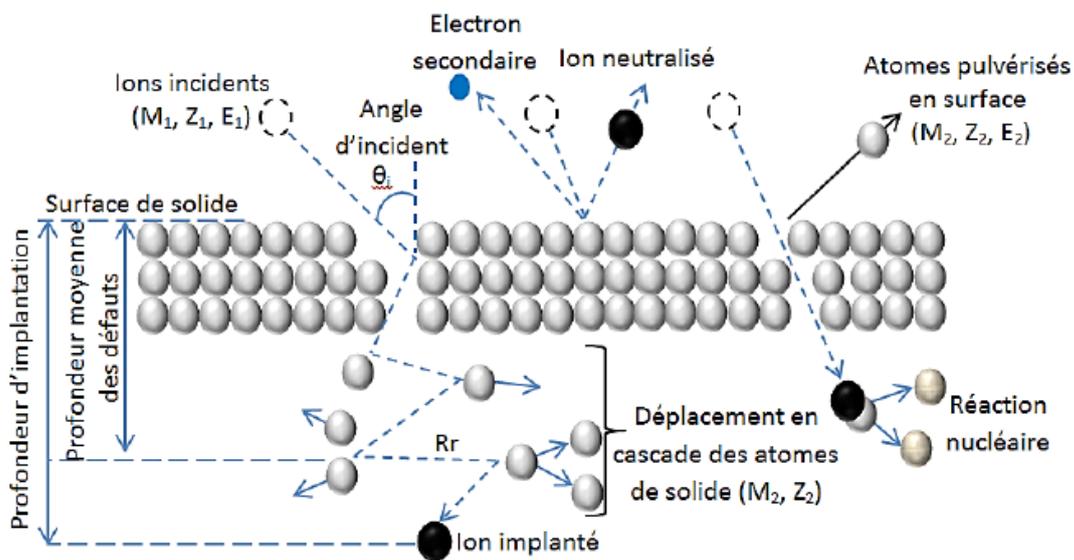
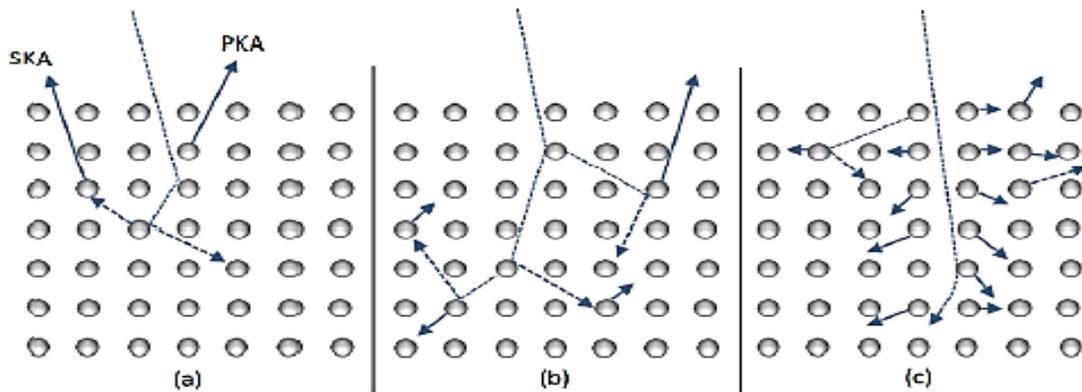


Figure II.3 : Différentes interactions ion-solide [28].

Lorsqu'un ion incident pénètre dans la matière, il subit de nombreuses interactions avec les atomes de la cible, et perd ainsi graduellement son énergie dans la matière jusqu'à son arrêt à une certaine profondeur.

### II.1.1.2 Mécanisme physique de la pulvérisation cathodique

La pulvérisation est la conséquence de l'interaction entre des particules et une surface. Elle désigne l'ensemble des phénomènes par lesquels des atomes quittent la surface d'un solide, suite au bombardement par un faisceau de particules énergétiques [29]. Un transfert d'une partie de l'énergie entre la particule et l'atome de cible lors de la première collision (primary knock on atom, PKA) a lieu. En conséquence, cet atome issu de la première collision peut lui aussi entrer en collision avec d'autres atomes de la cible (second knock on atom, SKA). Trois régimes de collisions schématisés sur la figure II.4 peuvent être distingués [30].



**Figure II.4 :** (a) Régime de collisions simples, (b) régime de cascade linéaire, (c) régime de cascade non-linéaire [30].

Dans le cas de régime de collisions simples, l'énergie des projectiles est de quelques centaines d'électron-volt. L'énergie transférée au PKA et SKA est faible et elle ne permet pas de mettre les atomes en mouvement. Ce régime de pulvérisation est appelé régime de collisions simples.

Dans le cas où l'énergie transférée lors des premières collisions est élevée, les atomes cibles ont acquis suffisamment d'énergie pour engendrer des sous-cascades avec les autres atomes du matériau, on dit que la cascade est linéaire.

Les collisions non-linéaires ou de pointes thermiques 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).

Pour caractériser le ralentissement total d'un ion, la notion de pouvoir d'arrêt est introduite. Elle est définie comme étant la perte d'énergie par unité de longueur [31] [32]. Le pouvoir d'arrêt total  $S(E)$  est donné par l'équation (I-2) :

$$S(E) = -\frac{dE}{dX} = \lim_{\Delta x \rightarrow 0} \left( \frac{\Delta E}{\Delta x} \right) \quad (I-2)$$

où  $\Delta E$  est la perte d'énergie moyenne du projectile traversant une tranche de matériau d'épaisseur  $\Delta x$ . Le pouvoir d'arrêt s'exprime souvent en MeV/ $\mu\text{m}$ .

La perte totale de l'énergie dans le solide est la somme des contributions nucléaire  $S_n(E)$  et électronique  $S_e(E)$  [33] [34] [35]. Le pouvoir d'arrêt nucléaire, met en jeu une collision directe entre les ions et les noyaux atomiques de la cible pulvérisée. Le pouvoir d'arrêt électronique est dû à un couplage entre les ions et le cortège électronique des atomes de la cible [23] [36]. Les deux composants de pouvoir de freinage sont fonction de l'énergie du projectile ( $E$ ).

$$S(E) = S_e(E) + S_n(E) \quad (I-3)$$

La pulvérisation d'un matériau est principalement caractérisée par le rendement de pulvérisation  $Y$  (yield). Il correspond au rapport entre le nombre de particules émises ( $N_e$ ) et le nombre de projectiles ( $N_i$ ) [37] [38] [39] :

$$Y = \frac{\text{nombre d'atomes éjectés (} N_e \text{)}}{\text{nombre de particules incidentes (} N_i \text{)}} \quad (\text{atome/ion}) \quad (I-4)$$

Dans le cas du régime de cascade linéaire, dans l'hypothèse d'une cible amorphe et de collisions élastiques, la formulation de Sigmund [40] permet d'exprimer le rendement de pulvérisation par la relation (I-5) :

$$S(E) = \frac{4M_1M_2 \alpha E}{(M_1 + M_2) 4\pi^2 U_0} \quad (I-5)$$

avec :

- $\alpha$  : grandeur sans dimension, dépendant du rapport des masses  $M_1/M_2$ ,
- $M_1$  : masse de l'ion incident (g),
- $M_2$  : masse de l'atome pulvérisé (g),
- $E$  : énergie de l'ion incident (eV),
- $U_0$  : énergie de liaison des atomes à la surface du solide (eV).

Il est à noter que les valeurs de rendement obtenues par pulvérisation cathodique par différentes méthodes dépendent fortement du modèle utilisé. Par conséquent, il est souvent souhaitable de vérifier expérimentalement le rendement de pulvérisation cathodique qui dépend de nombreux paramètres. Cela se fait par pulvérisation d'une cible pendant une certaine durée à une tension de décharge constante. D'après Czekał *et al.* [41], le taux de pulvérisation expérimental peut être donné par la relation (I-6) :

$$Sp(E) = \frac{\Delta m N_A}{M} \left( \frac{\sum_{i=0}^N I_d(t_i) \Delta t}{e(1+\gamma_e)} \right)^{-1} \quad (I-6)$$

avec :

- $E$  : énergie des ions incidents (eV) ;
- $\Delta m = m(t_0) - m(t_N)$  : masse de la cible avant et après pulvérisation (g) ;
- $N_A = 6.023 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$  : nombre d'Avogadro ;
- $M$  : masse molaire du matériau de la cible (g.mol<sup>-1</sup>) ;
- $I_d = I_{ion} + I_{e-}$  : le courant de décharge (C.s<sup>-1</sup>) ;
- $e^- = 1,602 \times 10^{-19}$  : la charge d'un électron (C) ;
- $\gamma_e = I_{e-}/I_{ion}$  : coefficient d'émission d'électrons secondaires ;

- $\Delta t = t_0 - t_N$  : temps de pulvérisation cathodique (s) ;  $t_i$  : temps de mesure (s).

Ce rendement ( $S_p$ ) ou ( $Y$ ) va dépendre de nombreux paramètres comme la nature de la cible (matériau, état de surface), du type et de l'énergie des ions incidents, ainsi que 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 la surface. Le rendement croît donc avec l'angle d'incidence des ions de la surface [40]. En effet, l'augmentation du taux de pulvérisation entraîne une grande vitesse de dépôt et l'amélioration de l'adhérence et de la densité des couches déposées.

### II.1.1.3 Energie et distribution angulaire des atomes pulvérisés

L'énergie émergente et les angles d'éjection des atomes pulvérisés régissent le processus de collision avec les atomes d'argon en se déplaçant dans la chambre à vide. Par conséquent, elles influent sur la vitesse de dépôt, l'énergie des particules qui arrivent et jouent un rôle clé dans la microstructure et les propriétés du film déposé [42]. Dans la cascade de collisions, les ions entrant dissipent la plupart de leur énergie dans la cible, ce qui provoque son échauffement. Seule une petite fraction de l'énergie initiale des ions est transmise à l'énergie cinétique des particules pulvérisées. La distribution en énergie des atomes pulvérisés varie de quelques eV à quelques dizaines d'eV. D'après le modèle développé par Thompson [43] [44], la distribution d'énergie des atomes pulvérisés,  $N(E)$ , peut être présentée par la formule simplifiée :

$$N(E) \sim \frac{E}{(E+U_0)^3} \quad (I-7)$$

où :

- $E$  : énergie d'une particule pulvérisée ;
- $U_0$  : énergie de liaison en surface des atomes de la cible.

La distribution angulaire des atomes pulvérisés joue un rôle important pour définir une direction préférentielle d'éjection [45] [46]. La direction de l'ion incident peut avoir un impact sur la dynamique de l'émission. Cependant, dans le processus de pulvérisation par plasma, les ions frappent la surface de la cible à une incidence normale (tous les ions sont accélérés à  $90^\circ$  jusqu'à la surface de la cible), causée par le champ électrique. Malheureusement, l'inclinaison de la cible vers les ions incidents est la cause de la réduction de la densité de courant des ions [1] [3]

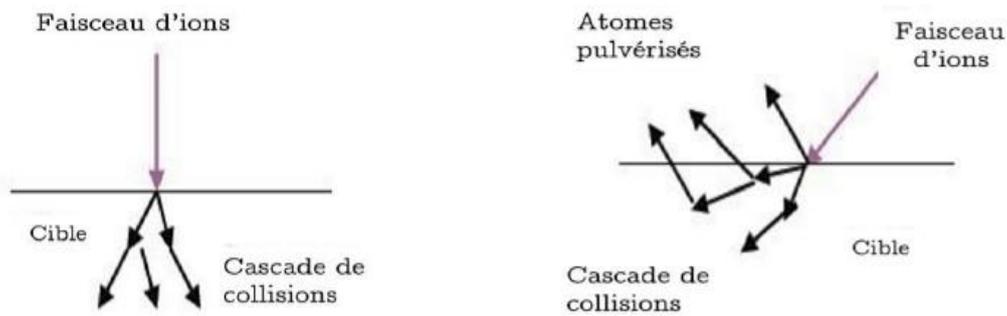


Figure II.5: schéma de la cascade de collision en fonction de l'angle d'incidence [1].

Le premier intérêt de la mesure des distributions angulaires est de donner **la direction préférentielle d'éjection des particules pulvérisées**, qui est une des données prédites par les différents modèles théoriques. Cependant, cette direction préférentielle d'éjection des particules pulvérisées sera fortement modifiée par la dispersion due aux chocs subis par les atomes lors de leur transport [44].

## II.2 Modélisation et simulation de système de pulvérisation cathodique

Certains processus d'évolution de la microstructure peuvent être directement étudiés expérimentalement, tandis que d'autres restent inaccessibles par les techniques disponibles. Les simulations informatiques peuvent souvent compléter les informations obtenues à partir d'expériences [47]. Les phénomènes induits par pulvérisation cathodique sont provoqués par un grand nombre de particules et sont donc difficiles à déduire par un simple calcul. De ce fait les simulations sont particulièrement bien adaptées pour les étudier. Avec le développement des outils informatiques, il devient possible de simuler le procédé de dépôt complet (éjection de matière de la cible, transport jusqu'au substrat et croissance des couches minces). Ces trois étapes de la pulvérisation, qui ont été définies précédemment, peuvent être simulées avec différents logiciels. En général, les simulations de type Monte-Carlo sont très rapides et rendent ainsi possible une analyse statistique sur un grand nombre d'événements. Dans ce qui suit, nous étudions cette méthode. Puis, nous présenterons tous les logiciels développés selon les trois étapes de la pulvérisation et nous introduirons plus particulièrement le logiciels qui a été choisit pour ce travail de thèse.

### II.2.1 Méthodes Monte Carlo

La méthode Monte Carlo est une méthode numérique qui utilise des tirages aléatoires (techniques probabilistes) pour réaliser le calcul d'une quantité déterministe [24]. Le nom Monte

Carlo a été mis en exergue durant le projet Manhattan lors de la seconde guerre mondiale à cause des similitudes entre les simulations statistiques mises au point à cette occasion et les jeux de hasard dont la ville de Monte Carlo était la capitale à cette époque [48]. La problématique de base du Monte Carlo est d'explorer parmi un très grand nombre de configurations celles qui sont physiquement importantes. Le tri entre telle ou telle configuration est effectué à partir de l'énergie  $E_c$  selon une répartition de Boltzmann :

$$p = k. \exp\left(\frac{-E_c}{k_B T}\right) \quad (I-8)$$

$k$  est un paramètre constant. Plus  $p$  est grand, plus la configuration correspondante a de chance d'apparaître durant une simulation Monte Carlo. Il est important de noter que dans une simulation Monte Carlo la température intervient dans le calcul de la loi de répartition [49]. Il existe plusieurs variantes des méthodes de Monte Carlo, selon le domaine d'application. On peut citer parmi les techniques les plus utilisées dans le domaine de la simulation de la croissance de couches minces : Monte Carlo Métropolis et Monte Carlo Cinétique.

### II.2.1.1. Algorithme de Monte Carlo Métropolis

La méthode de Monte Carlo (MC) Métropolis a été introduite en physique de la matière condensée par Métropolis en 1953 [50]. Le pas élémentaire dans une simulation de Monte Carlo classique consiste à passer d'une configuration à une autre avec un critère sur la variation d'énergie, comme expliqué sur la figure II.6

La forme de la probabilité  $p$  ( $p = \min(1, \exp(-\Delta E/k_B T))$ ) signifie qu'un échange qui abaisse l'énergie est toujours accepté, alors qu'un échange qui augmente l'énergie pourra être rejeté. Le rejet sera d'autant plus important que la variation  $\Delta E$  est grande devant l'énergie thermique  $k_B T$  [49].

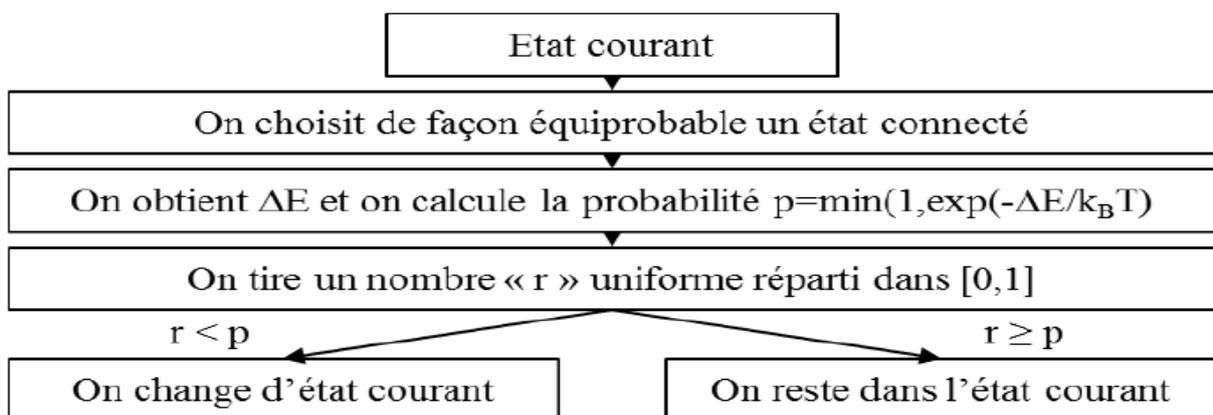


Figure II.6 : Représentation schématique de l'algorithme d'un pas de Métropolis [49]

### II.2.1.2. Méthode de Monte Carlo Cinétique

La méthode de Monte Carlo Cinétique (MCC ou KMC) est une méthode de Monte Carlo permettant de simuler l'évolution d'un système qui est le siège de processus se produisant à des vitesses connues [51]. Elle permet de gérer un temps MCC qui peut être relié au temps expérimental, permettant ainsi une comparaison avec les cinétiques expérimentales. Contrairement à la méthode de Métropolis dans laquelle les évolutions sont liées à des variations aléatoires des positions qui n'ont pas nécessairement de sens physique précis, la KMC est basée sur le recensement des processus physiques élémentaires pouvant se produire dans le système. Chacun de ces processus  $i$  est associé à une énergie d'activation  $E_i$  et une vitesse  $v_i$  donnée par

$$v_i = v_0 \exp\left(\frac{-E_i}{K_B T}\right) \quad (\text{I-9})$$

Tout comme dans l'algorithme de Métropolis, nous avons une équation maitresse :

$$\frac{d\rho(C,t)}{dt} = \sum [\rho(C',t)WC' \rightarrow C - \rho(C,t)WC' \rightarrow C] \quad (\text{I-10})$$

où  $\rho(C,t)$  est défini comme la probabilité d'observer le système dans la configuration  $C$  à l'instant  $t$  connaissant la distribution des probabilités à l'instant initial et comme la probabilité de passer de la configuration  $C$  à  $C'$  par unité de temps [24] [52] [53]. La probabilité d'une transition est obtenue par le rapport entre la vitesse du processus associé à cette transition et la somme des vitesses des processus de toutes les transitions possibles de la configuration :

$$P_i = \frac{v_i \exp\left(\frac{-E_i}{K_B T}\right)}{\sum_{j=1}^n v_j \exp\left(\frac{-E_j}{K_B T}\right)} = \frac{v_i}{\sum_{j=1}^N v_j} \quad (\text{I-11})$$

En général, les processus élémentaires et les probabilités associées sont recensés dans un catalogue. Ce dernier est traité par un algorithme qui déterminera la transition à réaliser.

## II.2.2. Logiciels de simulation de la pulvérisation cathodique

### II.2.2.1. Logiciels de simulation de l'éjection de matière de la cible

Dans ce travail de thèse, nous nous sommes intéressés uniquement à des logiciels basés sur l'algorithme de Monte-Carlo (MC), réalisés dans l'approximation des collisions binaires (ACB), puisque cette méthode convient pour étudier les phénomènes physiques de la pulvérisation.

Parmi les logiciels de calcul développés, citons-les plus connus (Tableau II.1) :

Programme	Matériau de la cible	Gamme d'énergie	Grandeurs calculées	Références
SRIM (TRIM)	Amorphe	10 eV-2 GeV	Pulvérisation, profondeur de pénétration moyenne, déplacements	[54][55]
TRIDYN	Amorphe	0.1 keV-1 MeV	Pulvérisation, changement de composition	[56]
MARLOWE	Amorphe, cristallin	> 1 keV	Pulvérisation, diffusion ionique	[57]

**Tableau II.1** : Logiciels de simulation de l'éjection de matière de la cible.

Dans ce travail, nous utiliserons le logiciel SRIM, qui utilise la méthode de cascades de collisions pour déterminer la distribution angulaire et en énergie des particules éjectées. Puis, les fichiers enregistrés seront utilisés pour alimenter le logiciel de la simulation de transport des atomes jusqu'au substrat. Le fonctionnement et les paramètres d'entrée de SRIM seront exposés dans le chapitre III. Le tableau II.2 résume les paramètres physiques qui influent sur chaque étape de pulvérisation cathodique ainsi que les logiciels de simulation correspondants utilisés.

Phénomènes physiques	Paramètres physiques	Logiciels de simulation
Ejection de matière de la cible sous bombardement ionique	La cible : matériau, masse atomique Le gaz : nature, énergie, angle d'incidence, nombre d'ions et masse atomique.	SRIM
Transport des atomes jusqu'au substrat	La géométrie de la chambre, la pression de travail, la température, la nature du gaz, les distributions angulaire et en énergie, la cible (nature, géométrie, forme d'érosion, position), le nombre de particules, la position, la géométrie et l'angle d'inclinaison du substrat par rapport à la cible.	SIMTRA
Croissance du dépôt sur le substrat	Volume de la couche à simuler, coordonnées des particules, état de la surface du substrat et tests de diffusion	Simul3D

**Tableau II.2** : Logiciels de simulation du procédé de pulvérisation cathodique.

## **Conclusion**

Les outils de simulation numérique permettent de couvrir les trois étapes du dépôt par pulvérisation et de prendre en compte les particularités de l'enceinte et des substrats utilisés. Cela permet donc de faire le lien entre les conditions opératoires et les propriétés du dépôt. De plus les mécanismes du processus atomique se produisant au cours du dépôt peuvent être analysés en détail.

***Chapitre III :***  
**Résultats Et discusion**

### III. Introduction

Ainsi qu'il a été montré dans le chapitre II, les outils de simulation numérique permettent d'avoir accès à des informations que des mesures ou un modèle simple n'expliquent pas. Le travail de simulation du procédé de pulvérisation cathodique s'est donc appuyé sur les trois grandes étapes :

- La création de vapeur métallique lors du bombardement ionique par un gaz non réactif (par exemple l'argon),
- Le transport des espèces pulvérisées depuis la cible jusqu'à la surface du substrat dans une atmosphère résiduelle ou réactive,
- La croissance du dépôt sur le substrat.

Notre étude n'est liée que de l'éjection de matière de la cible suite à l'impact avec un ion, donc ce chapitre s'attache à décrire la méthodologie numérique utilisée. Le logiciel SRIM et Les résultats de pulvérisation des quatre matériaux utilisés

#### III.1. SRIM

SRIM [54] [55], Stopping and Range of Ions in Matter, est une collection de logiciels informatiques qui simulent l'interaction des ions incidents avec la matière. Toutes les collisions ion/atome sont traitées par la mécanique quantique. L'arrêt et la distribution des ions dans le solide peuvent être calculés, en principe, dans la gamme d'énergie 10 eV – 2 GeV/uma. Les programmes ont été développés par James F. Ziegler et Jochen P. Biersack dans les années 80. Depuis son introduction en 1985, des améliorations et des corrections importantes sont faites tous les six ans sur la base de nouvelles données expérimentales. Actuellement, plus de 700 citations scientifiques sont faites en relation avec SRIM chaque année. Le programme permet un calcul rapide de l'implantation et de la pulvérisation. Les informations accessibles sont le profil d'implantation de l'ion incident, le rendement de pulvérisation des différentes espèces chimiques et l'échange d'énergie par choc nucléaire et par diffusion inélastique.

##### III.1.1 Principe de fonctionnement

Les simulations sont réalisées par la méthode de Monte Carlo dans les limites des cascades binaires dans une cible amorphe [58].

Les utilisateurs peuvent définir les paramètres initiaux de la cible (matériau, composition, densité) et des ions primaires (nature, énergie et angle d'incidence). Le choix du nombre de

particules incidentes permet de définir la qualité statistique de la simulation. Comme pour toute simulation, l'augmentation de cette dernière a pour conséquence l'augmentation du temps de calcul.

Les collisions sont toutes traitées comme des systèmes à deux corps (approximation dite BCA : Binard Collision Approximation) ; c'est-à-dire que les différents chocs ne sont pas corrélés entre eux. Après un choc, les atomes peuvent subir d'autres collisions. Ce modèle suppose implicitement qu'aucune énergie n'est donnée aux électrons, et plus généralement il ignore toutes les diffusions inélastiques.

Le calcul SRIM repose sur plusieurs hypothèses simplificatrices. Tout d'abord, le matériau est considéré comme amorphe, même si la distance moyenne entre les atomes correspond à la distance interatomique du matériau cristallin. SRIM est donc incapable de prendre en compte un quelconque effet de canalisation, ce qui réduit de deux ordres de grandeur la probabilité d'avoir des chocs atomiques. De plus, les atomes sont considérés comme immobiles (le matériau est à 0 K) ce qui met de côté les phénomènes de recombinaison entre, par exemple, un atome déplacé et une lacune. Le taux calculé doit donc être vu comme une borne supérieure de l'endommagement possible causé par le faisceau d'analyse. Cependant les études basées sur des calculs SRIM ont montré de bonnes corrélations entre les rendements de pulvérisation calculés et ceux mesurés ainsi que la distribution angulaire des atomes pulvérisés. Généralement, il est performant quand il s'agit d'étudier l'influence relative d'une quantité expérimentale sur le système.

Dans le cas de notre étude, nous avons utilisé le logiciel TRIM (TRansport des Ions dans la Matière), c'est le programme le plus complet inclus dans la version SRIM-2013. TRIM accepte des cibles complexes en matériaux composites avec jusqu'à huit couches toutes de différents matériaux. Il va calculer à la fois la distribution 3D finale des ions ainsi que tous les phénomènes cinétiques associés à la perte d'énergie de l'ion : endommagement de la cible, la pulvérisation, l'ionisation et la production de phonons.

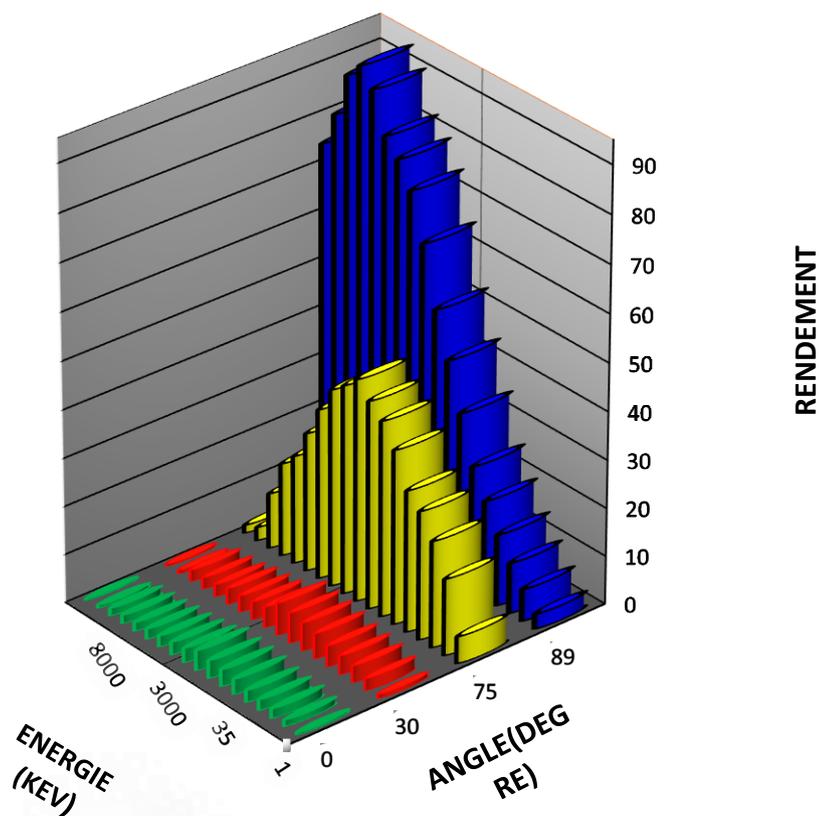
### **III.1.2 Le rendement de pulvérisation calculé par SRIM**

Les ions bombardant la cathode proviennent l'émission d'électrons secondaires, nécessaires à l'auto entretien de la décharge, ces ions incidents sont aussi à l'origine de la pulvérisation, si leur énergie est supérieure à l'énergie de seuil de la pulvérisation, alors des atomes du matériau cathodique peuvent être arrachés, la pulvérisation est caractérisée par un rendement qui dépend des conditions et plus particulièrement de l'énergie des ions incidents a la cathode [1] [2] [3]

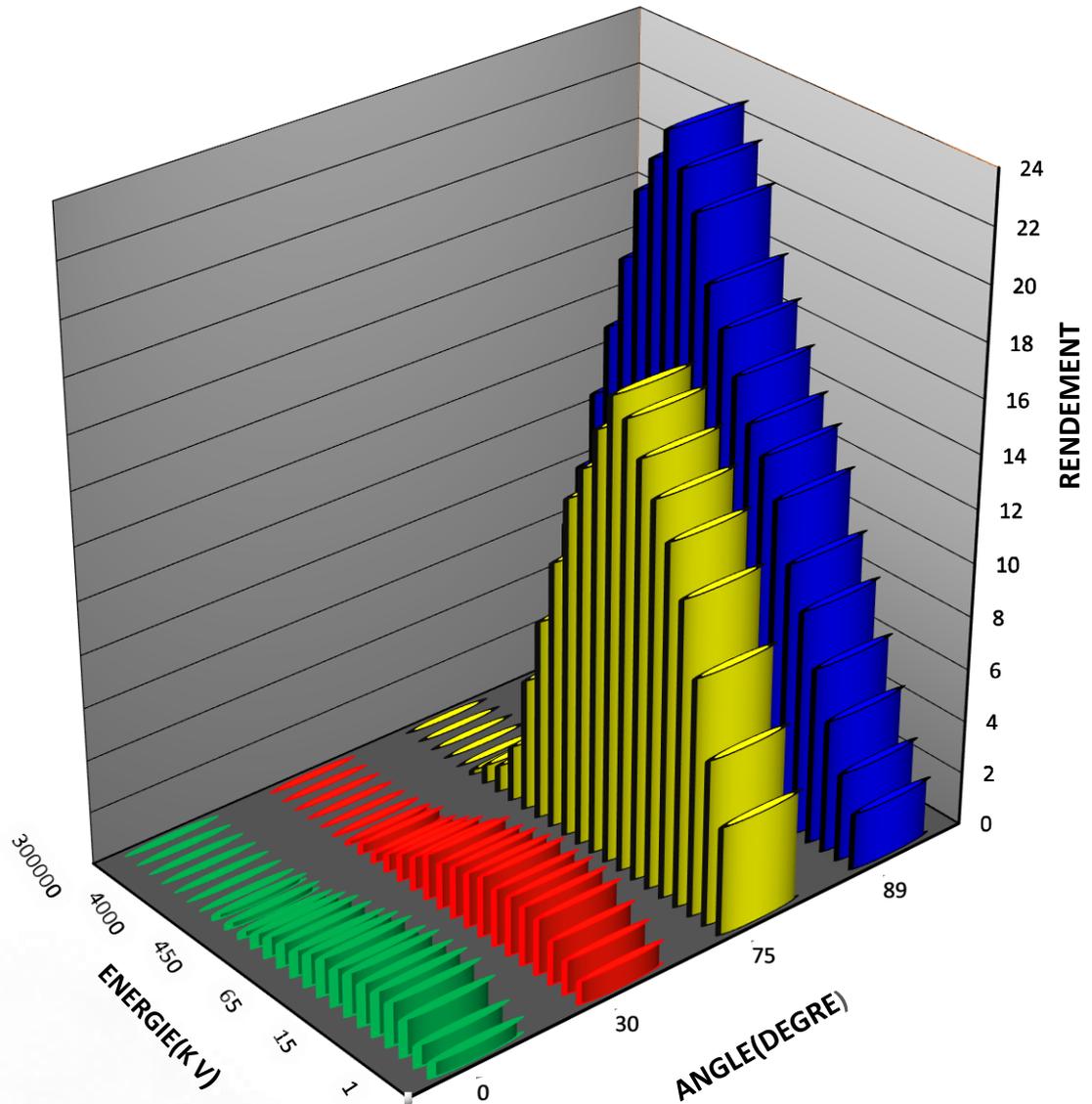
le phénomène d'auto pulvérisation est réalisé par Les particules qui présentes dans la d'échange peuvent donc être ionisée, si ces ions atteignent la gaine, ils vont alors être accélérés dans le champ électrique et provoquer à leur tour la pulvérisation du matériau cathodique[2] [3]

### III.2 Rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie et des angles d'incidence d'atomes

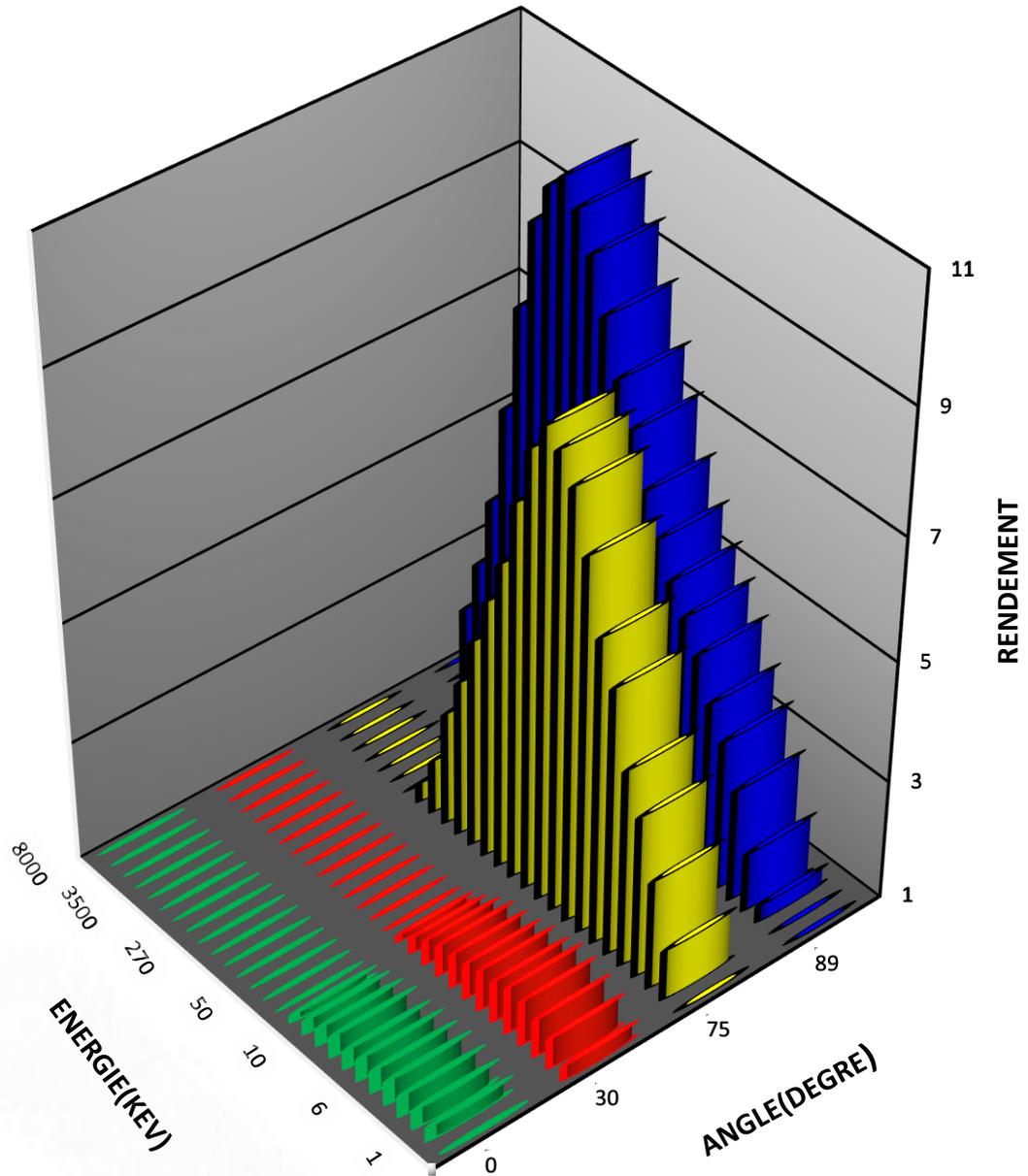
L'étude des rendements de pulvérisation a été imposée par la nécessité de contrôler la quantité de matière déposée[24]. Dans les figures cidessous, nous présentons les résultats des calculs de rendement de pulvérisation obtenus par simulation MC pour différents matériaux en fonction de l'énergie d'impact aux incidences  $\theta = [0,30,75,89]$  Chaque rendement de pulvérisation a été déterminé par la simulation de  $10^5$  impacts. Nous avons présenté, dans les chiffres, les résultats obtenus par la simulation de Monte Carlo. Les cibles choisies sont des semiconducteurs (silicium (Si), germanium (Ge) et arséniure de gallium (GaAs)) et comme diélectrique (dioxyde de silicium ( $\text{SiO}_2$ )) : elles sont soumises au bombardement des particules de xénon (Xe), d'argon (Ar) et de néon (Ne).



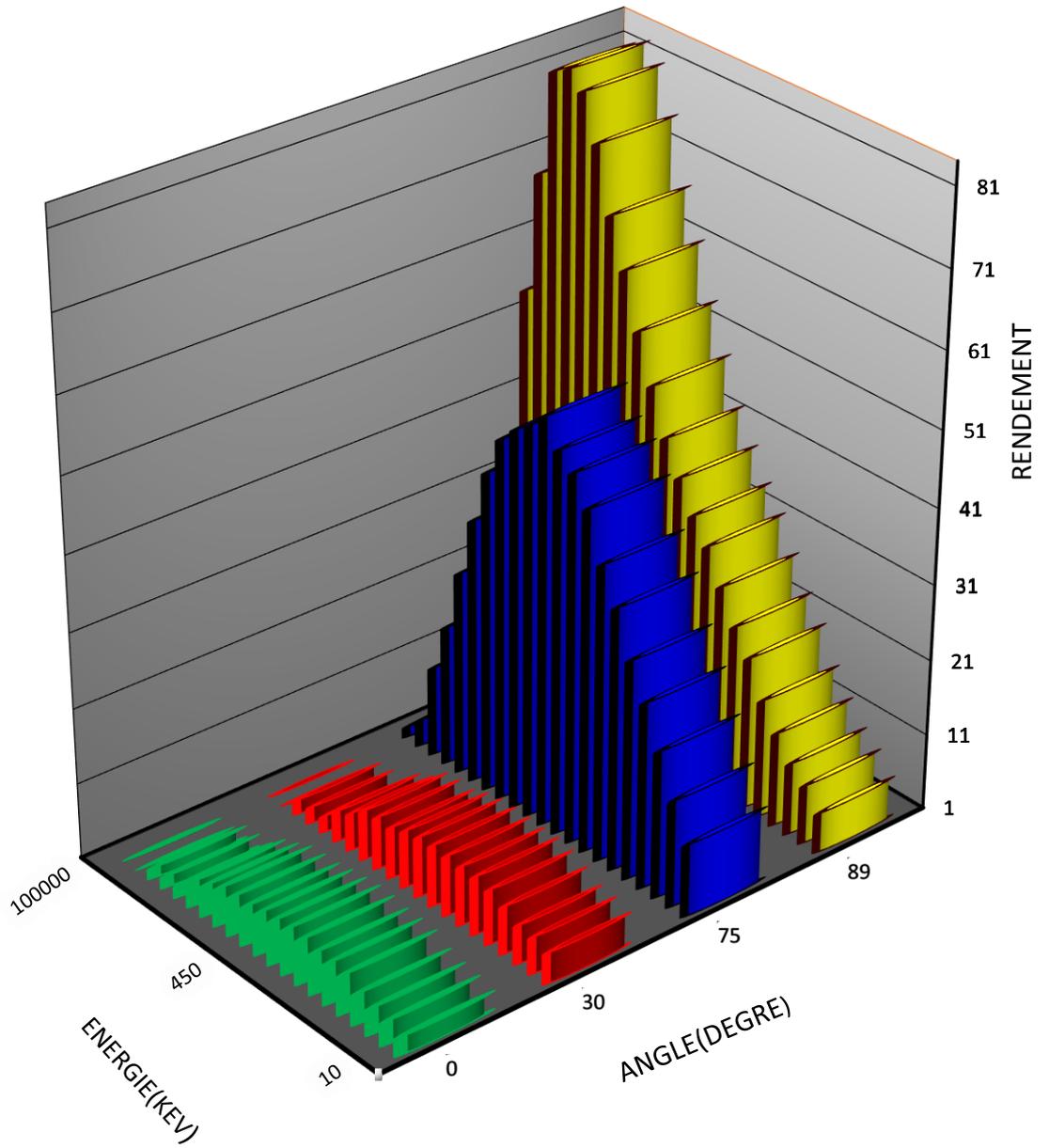
**Figur III.1** Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement **Xénon** en incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour silicium(Si) .



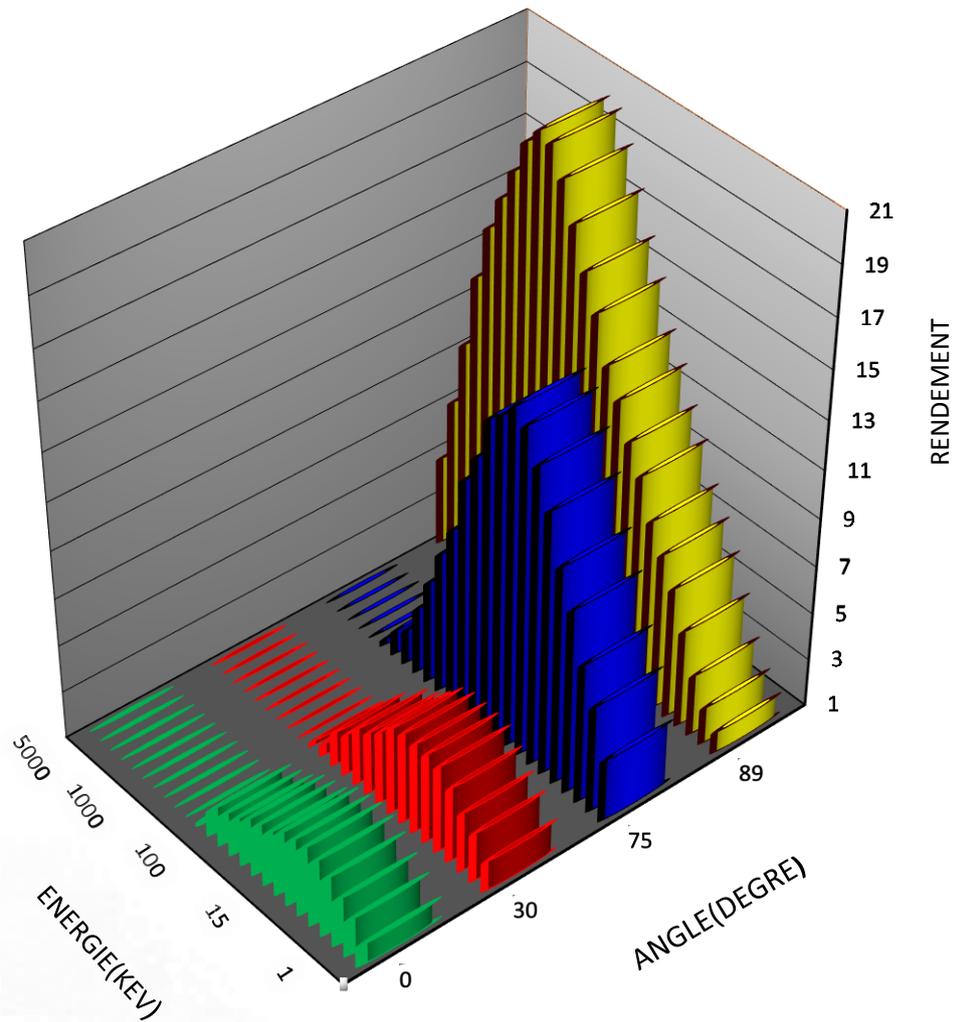
**Figur III.2** Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement **Argon** en incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour silicium(Si) .



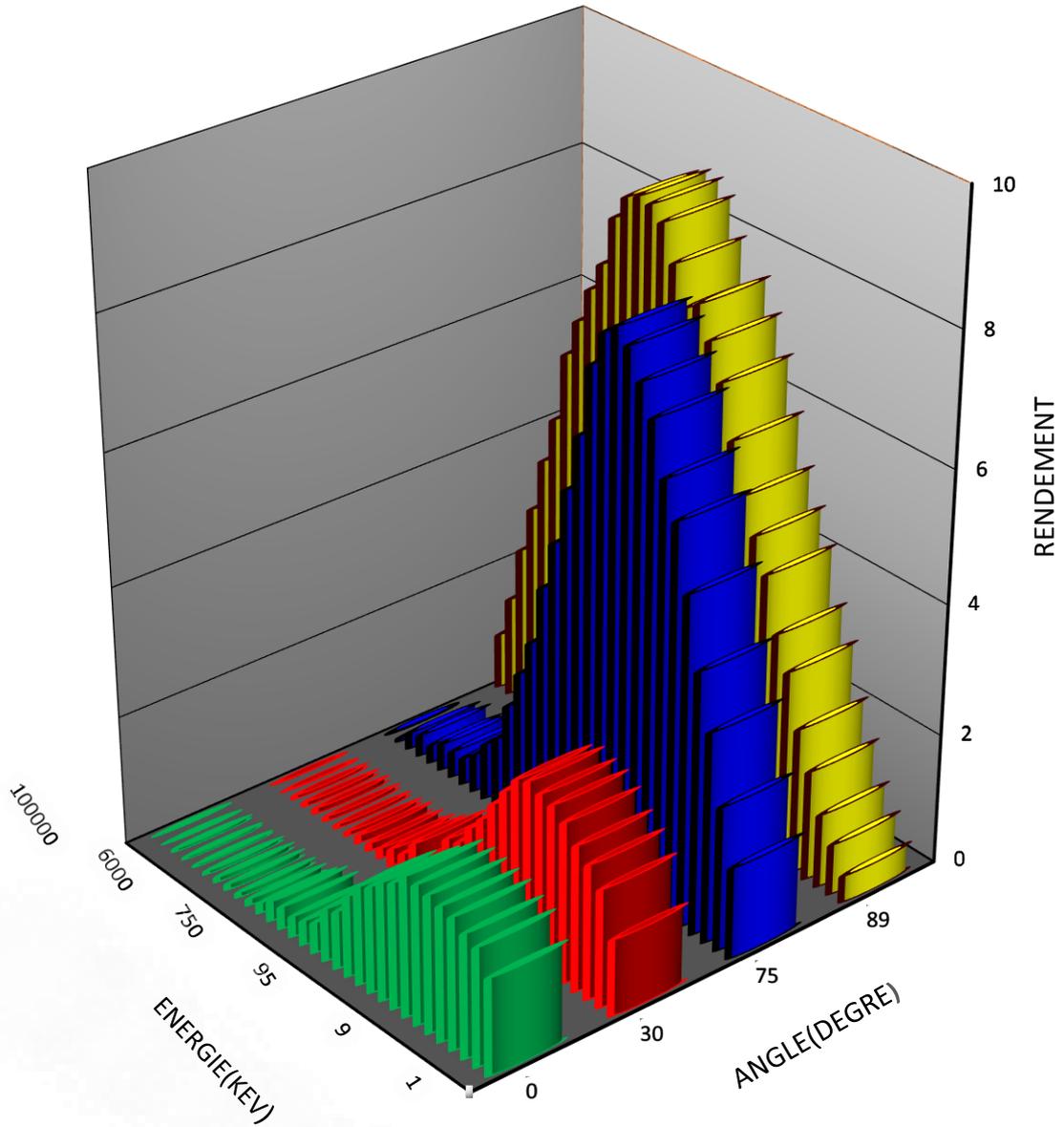
**Figur III.3** Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement **Néon** en incidences 0°,30°,75°et 89° calculé par SRIM pour silicium(Si) .



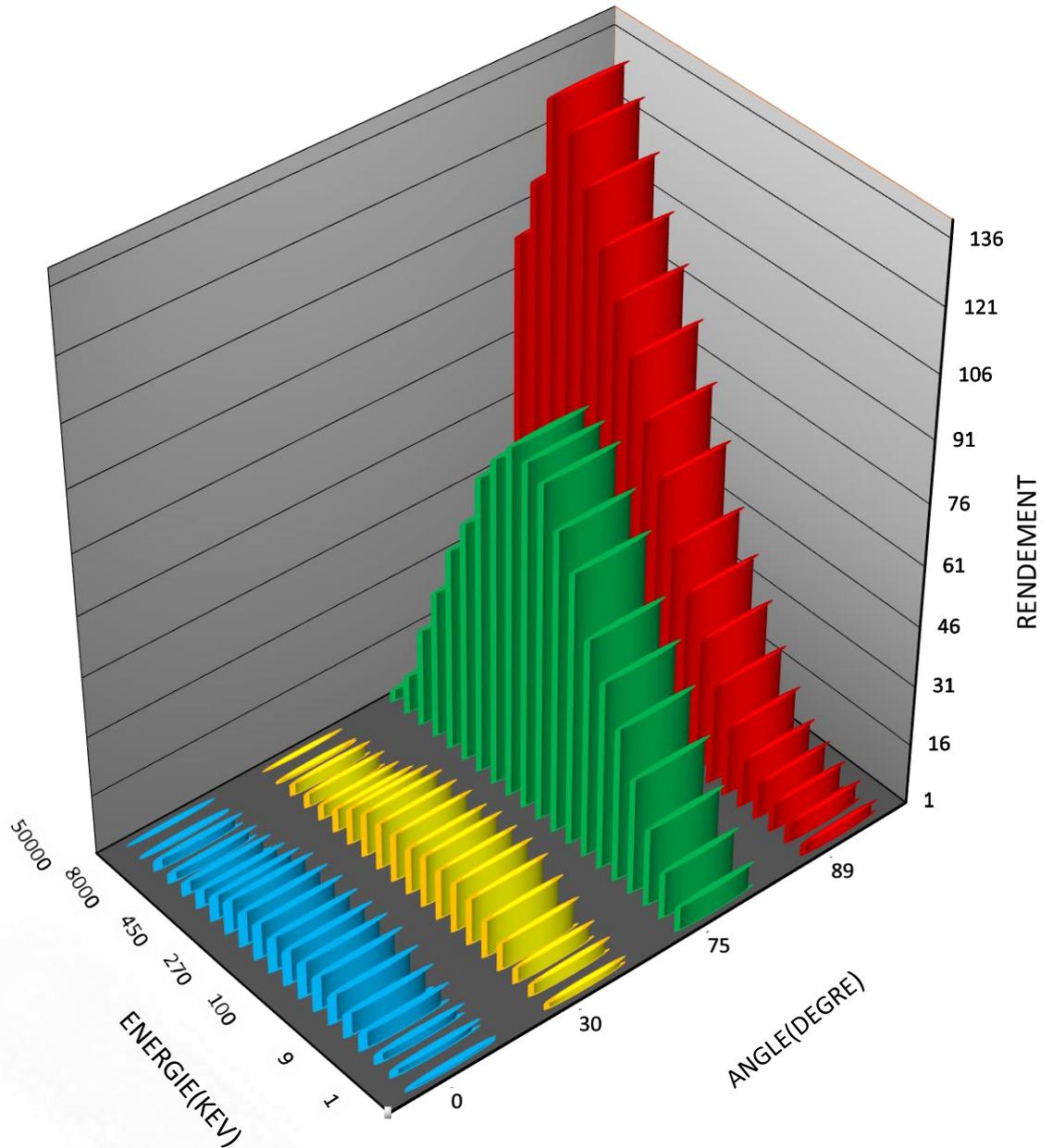
**Figur III.4** Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement **Xénon** en incidences  $0^{\circ}$ ,  $30^{\circ}$ ,  $75^{\circ}$  et  $89^{\circ}$  calculé par SRIM pour Germanium(Ge) .



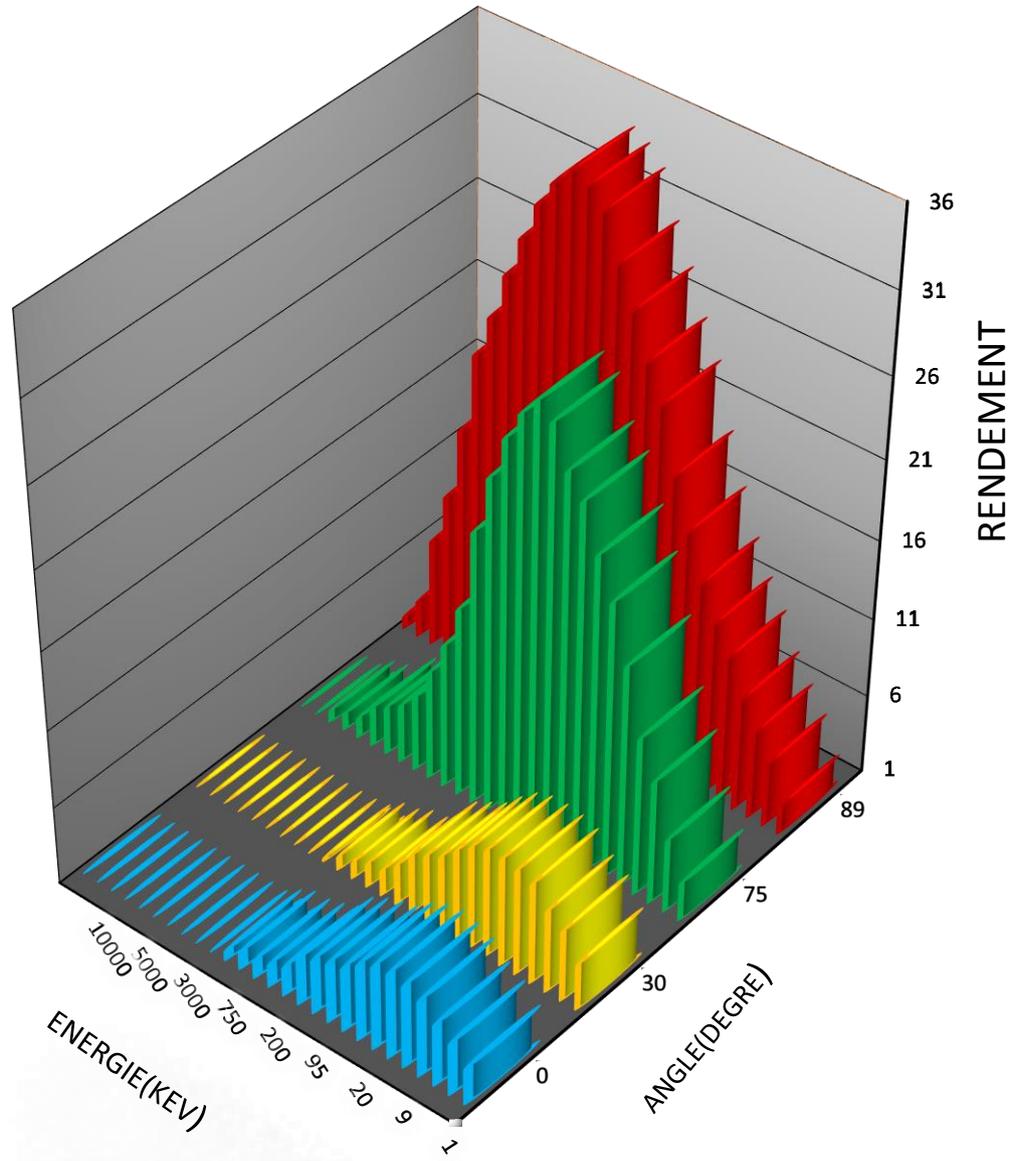
**Figur III.5** Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement **Argon** en incidences 0°,30°,75° et 89° calculé par SRIM pour Germanium(Ge) .



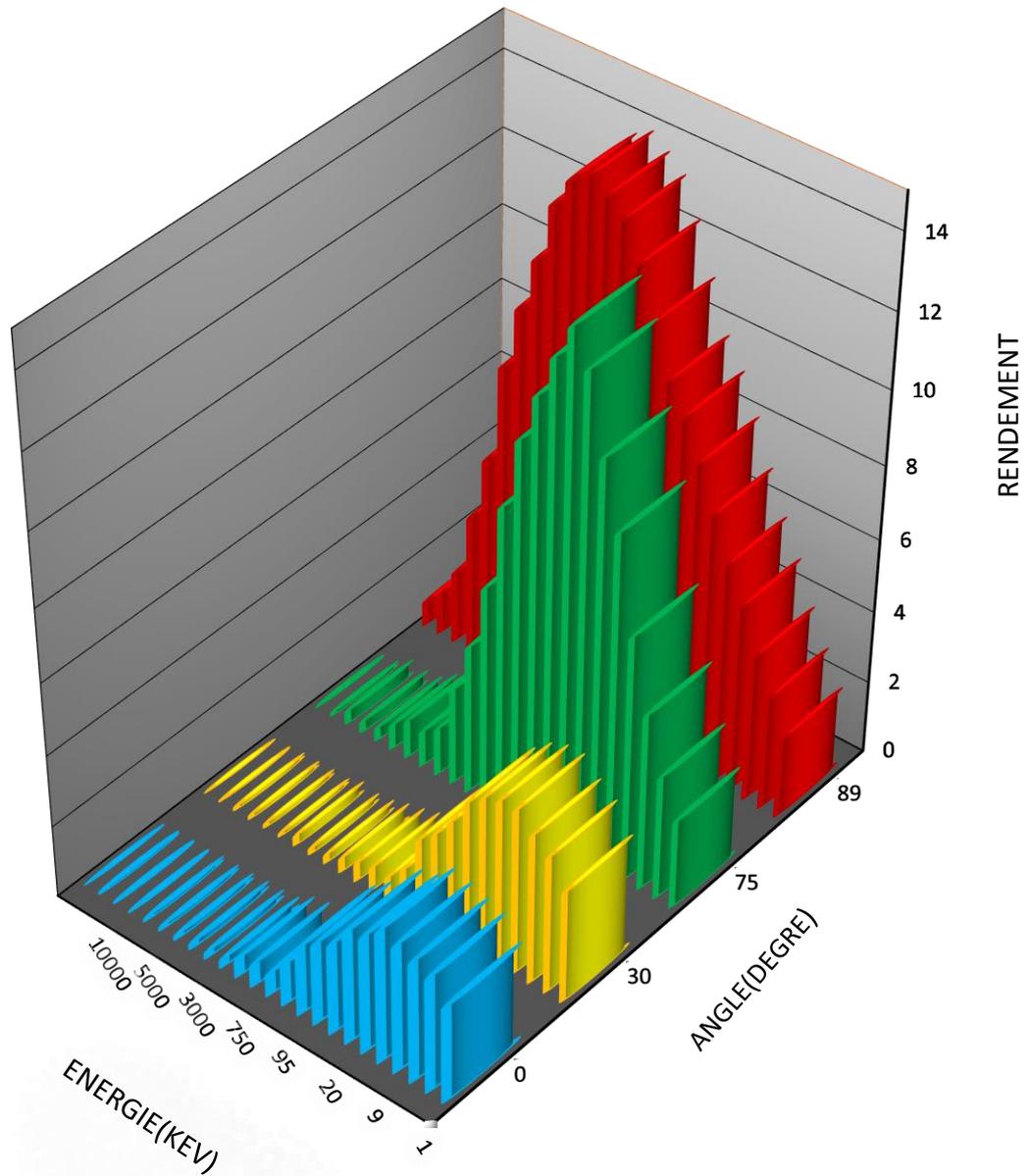
**Figur III.6** Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement **Néon** en incidences 0°,30°,75°et 89° calculé par SRIM pour Germanium(Ge) .



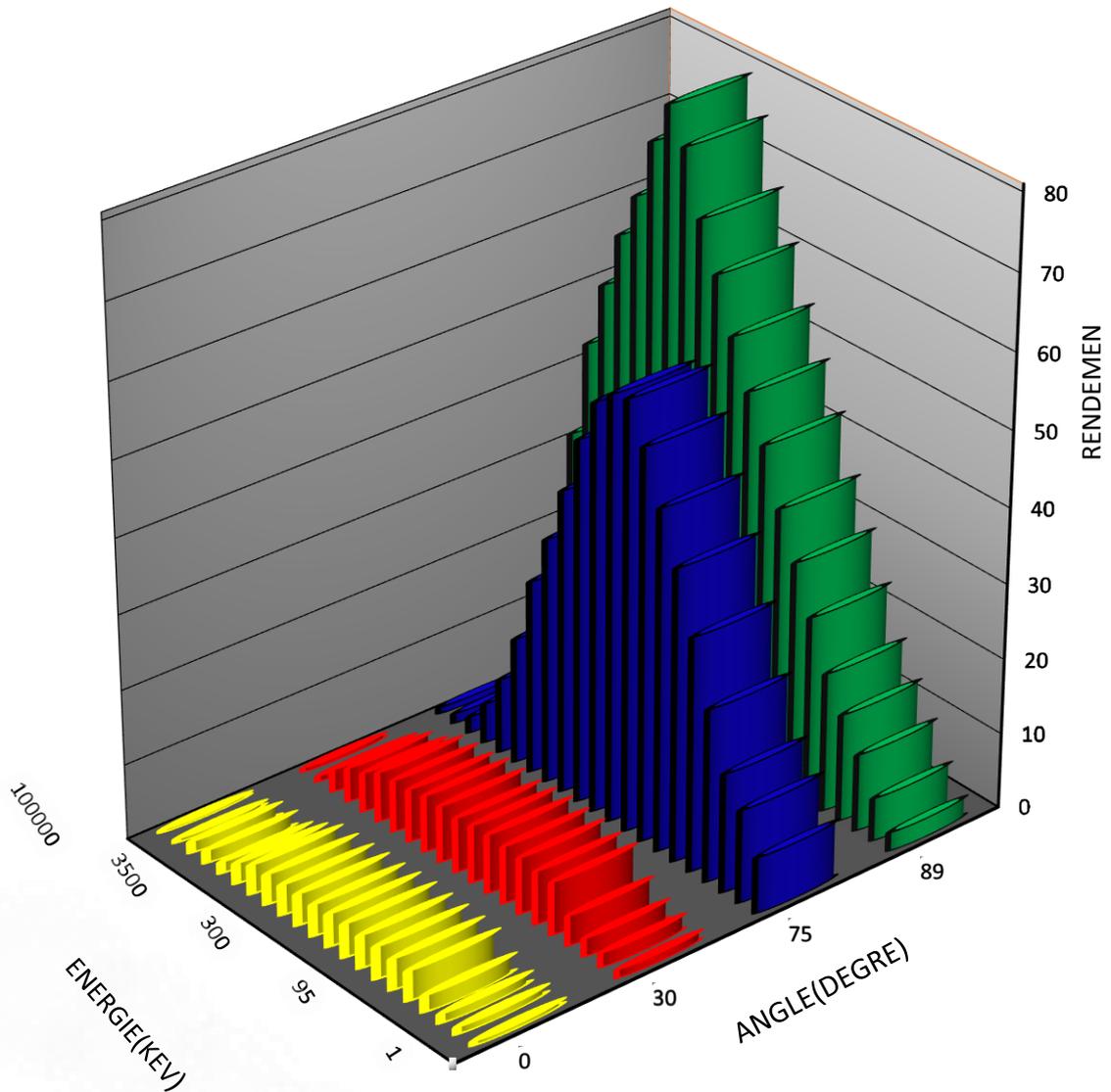
**Figur III.7** Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement **Xénon** en incidences  $0^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour Gallium Arsenide (GaAs) .



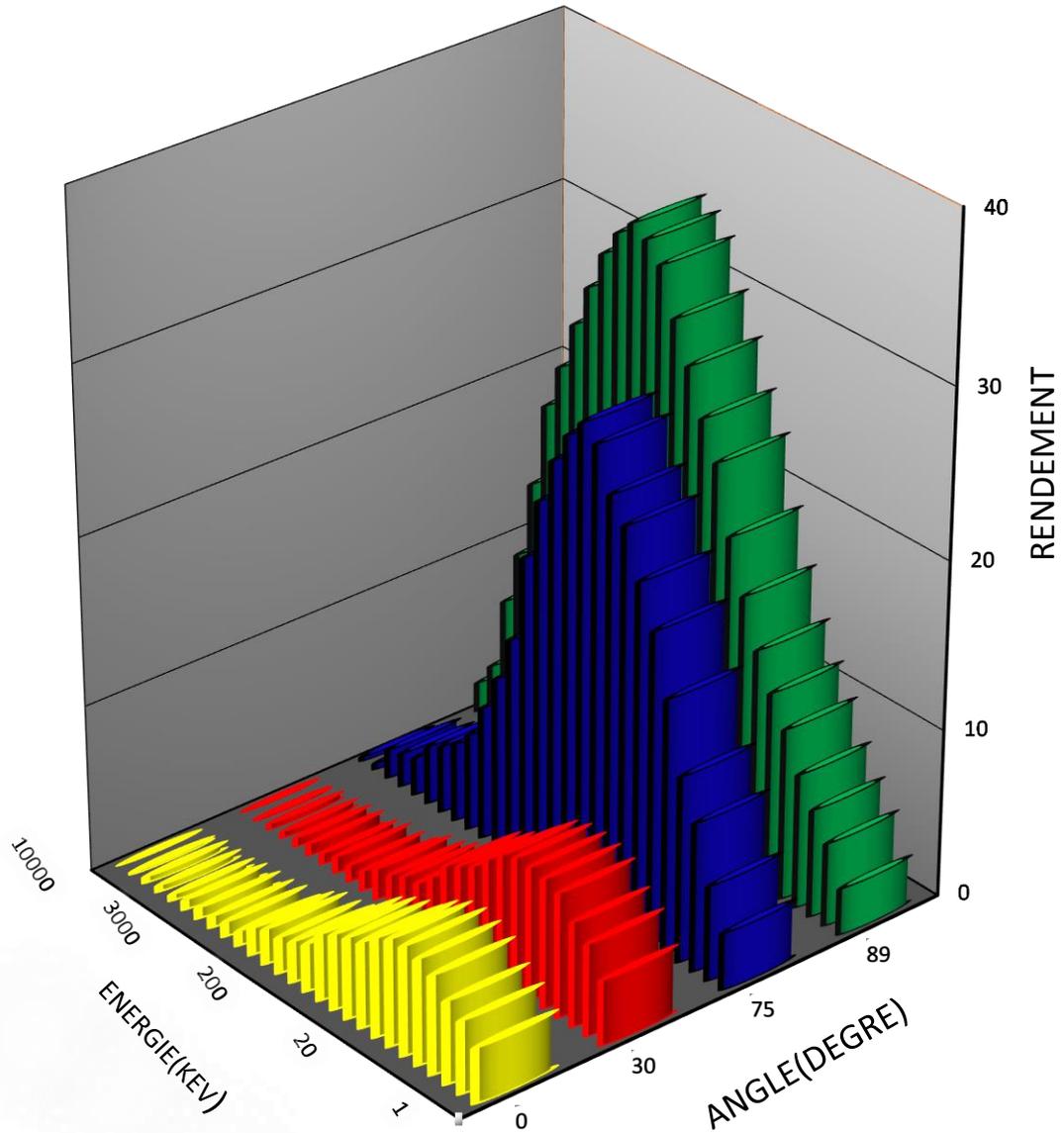
**Figur III.8** Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement **Argon** en incidences  $0^\circ, 30^\circ, 75^\circ$  et  $89^\circ$  calculé par SRIM pour Gallium Arsenide (GaAs) .



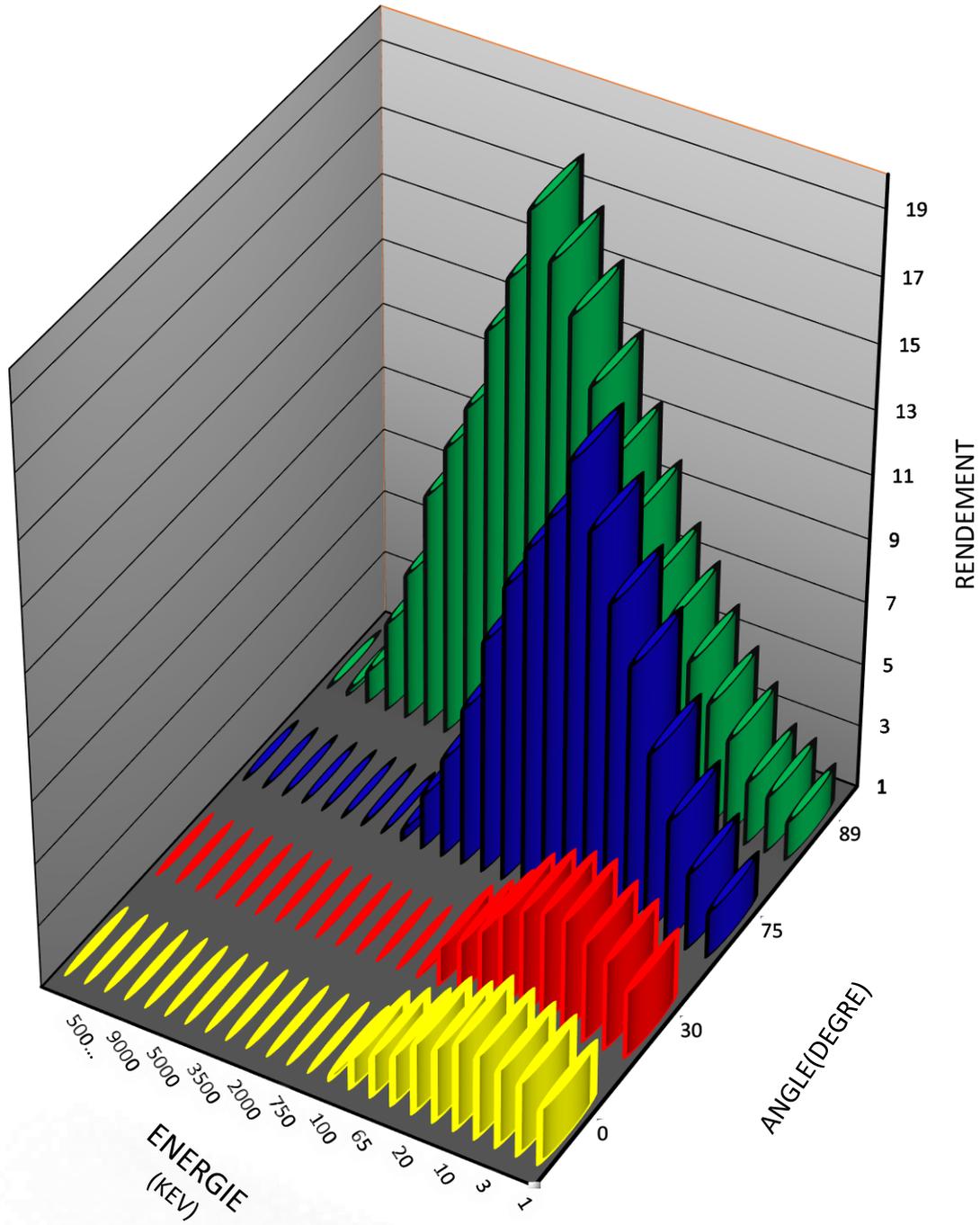
**Figur III.9** Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement **Néon** en incidences 0°,30°,75°et 89° calculé par SRIM pour Gallium Arsenide (GaAs) .



**Figur III.10** Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement **Xénon** en incidences 0°,30°,75°et 89° calculé par SRIM pour Dioxyde de silicium (SiO<sub>2</sub>) .

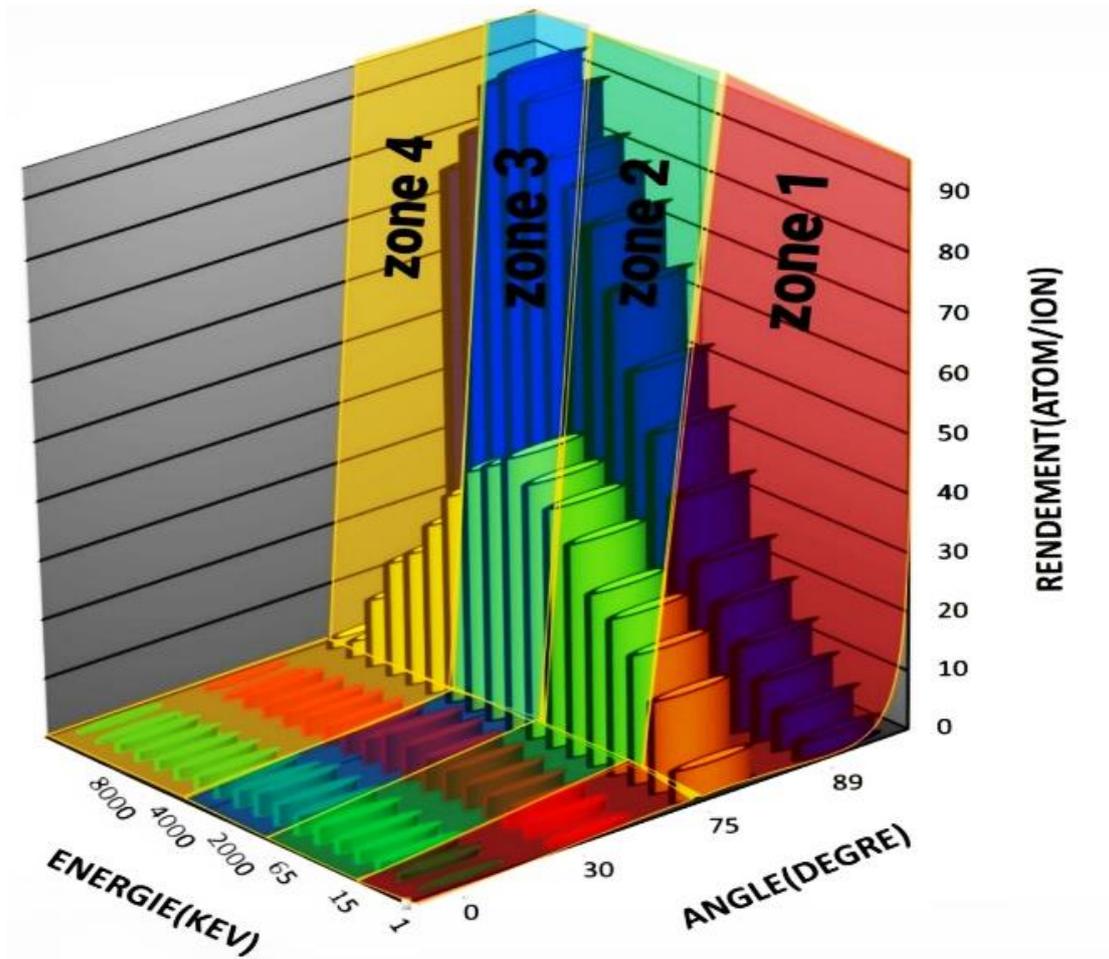


**Figur III.11** Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement **Argon** en incidences 0°, 30°, 75° et 89° calculé par SRIM pour Dioxyde de silicium (SiO<sub>2</sub>) .



**Figur III.12** Rendement de pulvérisation de l'énergie des ions de bombardement Néon en incidences 0°,30°,75°et 89° calculé par SRIM pour Dioxyde de silicium (SiO<sub>2</sub>) .

Les figures (III.1 \_\_\_\_ III.12) represent respectivement le nombre d'atomes pulvérisés des semiconducteurs (silicium (si), Germanium (Ge)) et les alliages semiconducteurs (Gallium Arsenide (GaAs) et dioxyde de silicium (SiO<sub>2</sub>)) en fonction de leurs énergies et l'angle d'incidence. Les particules sont éjectées si elles ont suffisamment d'énergie pour dépasser celles de la liaison de la cible. on distingue 4 zones qui représentent les variations du rendement Y de la pulvérisation en fonction de l'énergie et de l'angle d'incidence:



**Figure III.13** Différentes zones de pulvérisation dans le cas de particule du silicium bombardée par un faisceau de Xénon aux incidences 0°,30°,75°,89° telles qu'obtenues par des simulations

**1ère zone:** Les particules incidentes ont suffisamment d'énergie pour que les atomes puissent rompre les liens qui les lient à la surface donc la pulvérisation devient possible.

**2ème zone:** le coefficient augmente linéairement avec l'énergie des particules incidentes, il augmente rapidement pour une petite variation d'énergie.

**3ème zone:** les particules incidentes pénètrent plus profondément dans la cible à mesure que leur énergie augmente et les atomes de recul seront créés en plus grande quantité, la valeur de coefficient atteint au maximum

**4ème zone:** la profondeur de pénétration des particules incidentes est suffisamment grande pour provoquer la diminution du rendement de la pulvérisation. Les particules incidentes pénètrent si profondément dans la cible que les atomes de recul ne peuvent pas s'en échapper.

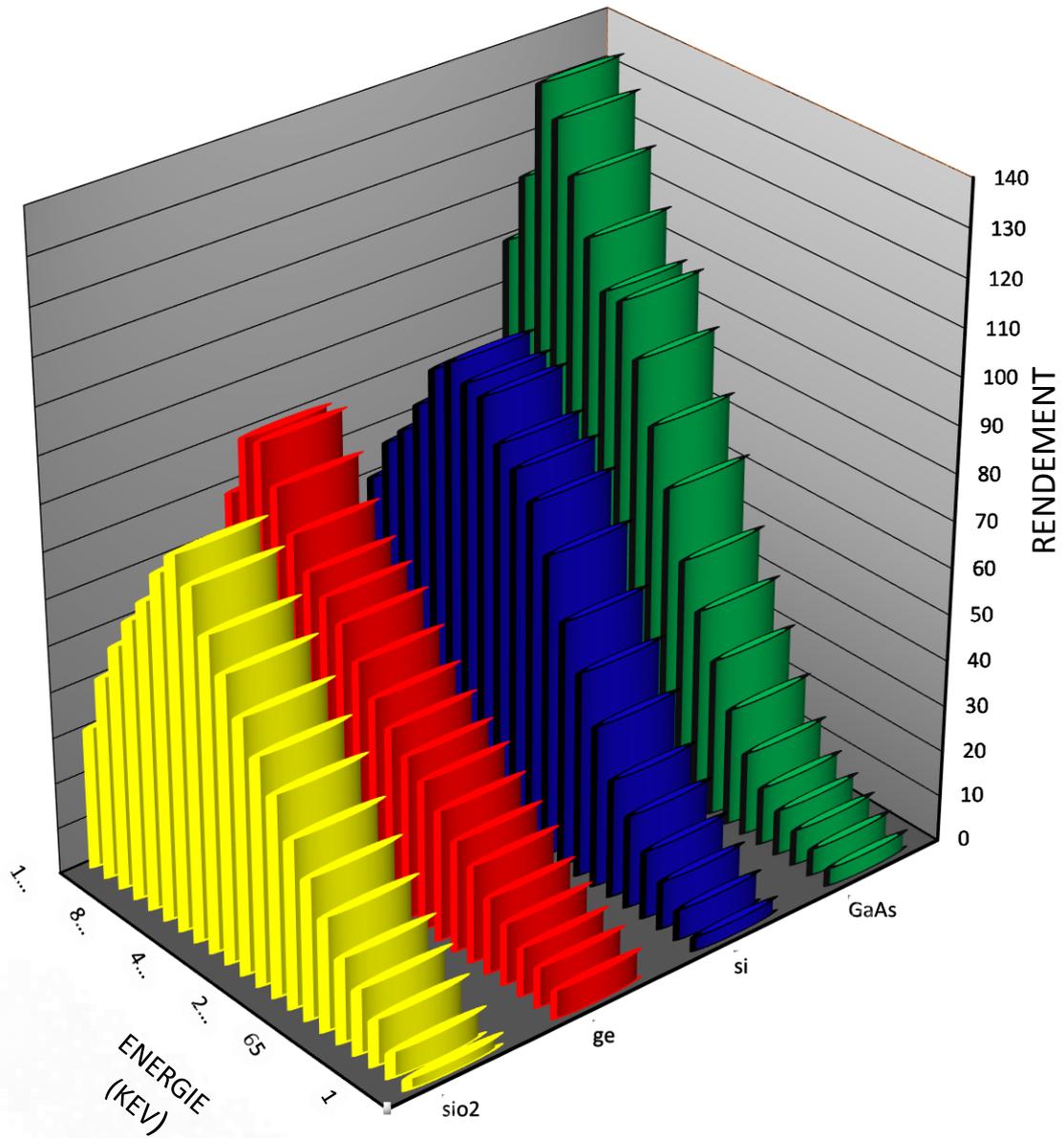
Tous les graphes présentés dans les figures précédentes montrent que le rendement maximale est atteint pour une incidence  $89^\circ$  pour les différentes énergies des ions.

En diminuant l'angle d'incidence à  $0^\circ$ , les atomes de métaux perdent leur énergie, l'augmentation du coefficient de pulvérisation pour des angles supérieurs aux  $0^\circ$  et  $30^\circ$  résulte de l'augmentation de la probabilité pour la cascade collisionnelle de se propager vers la surface de la cathode.

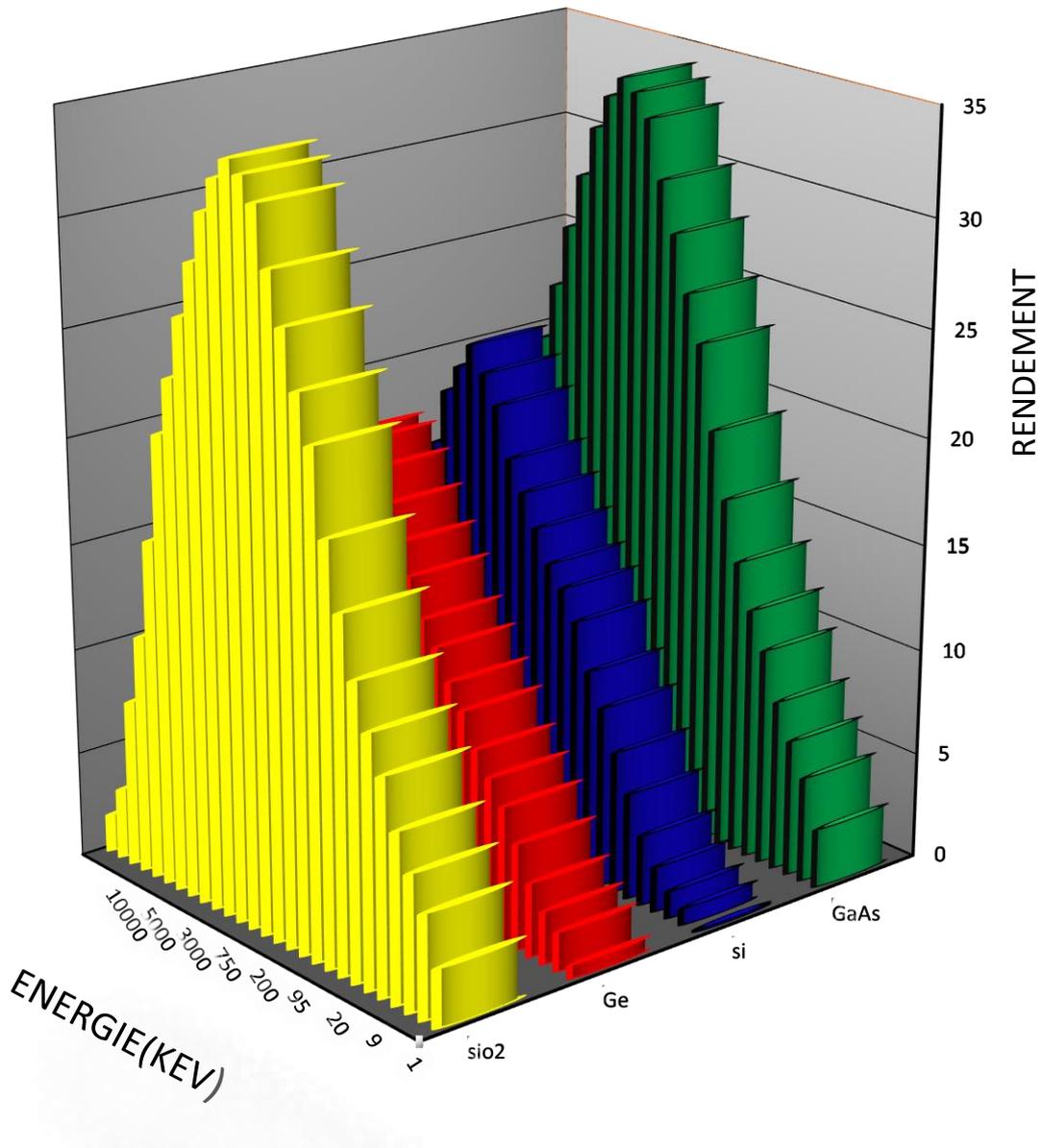
Alors en conclure que Les courbes montrent généralement une même forme et le rendement diminue avec les baisses de l'angle d'incidence

### III.3 Comparaison entre les semiconducteurs et les alliages semiconducteurs

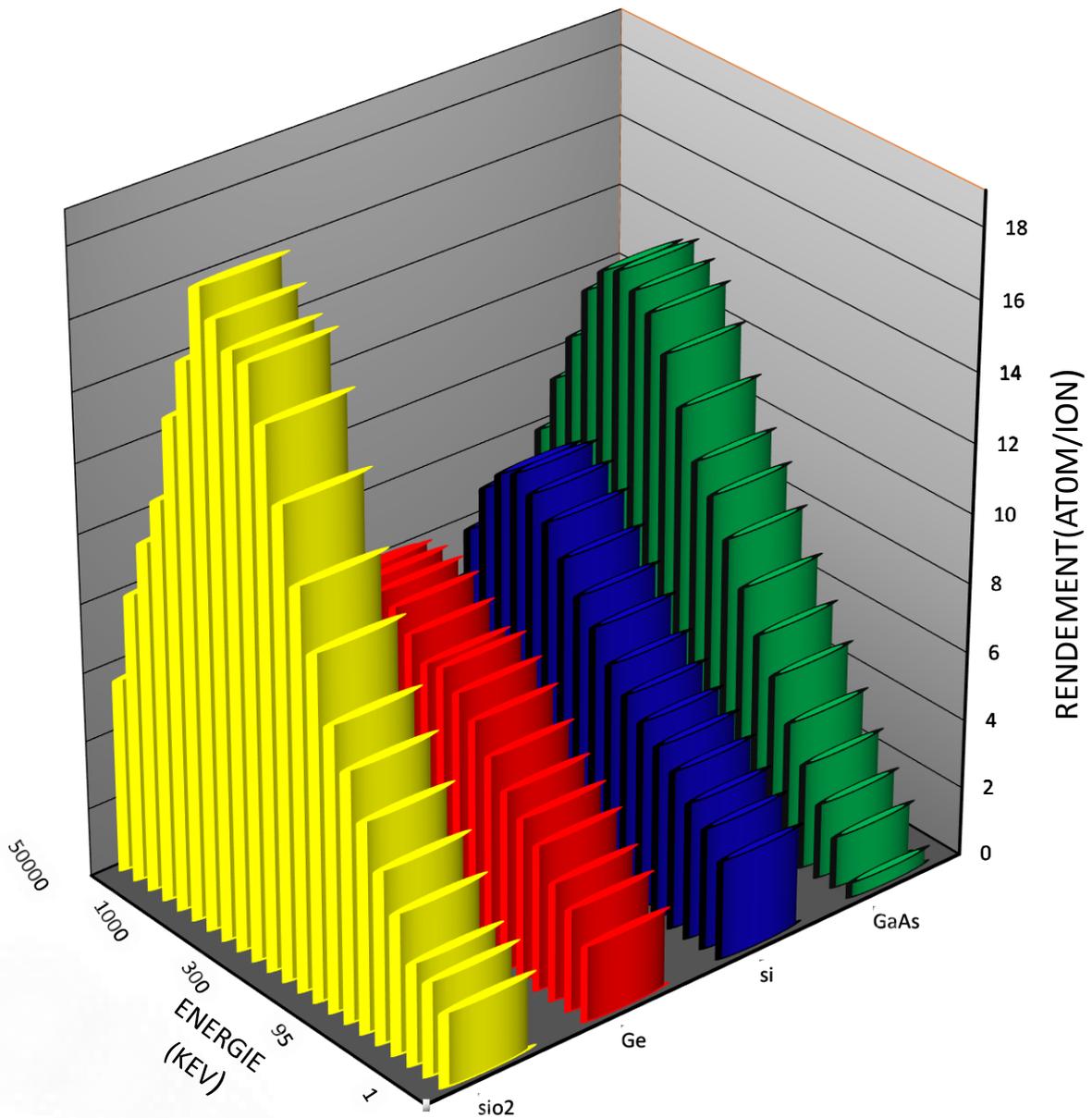
Les figures ci-dessus présentent une comparaison entre les résultats obtenues pour les différents semiconducteurs et les alliages, cela nous permet de comparer les rendements de pulvérisation afin de connaître l'influence des énergies et les angles d'incidence sur le phénomène de la pulvérisation et par suite sur les caractéristiques et la morphologie des films déposés



**Figure III.14** Rendement de pulvérisation calculé par SRIM en fonction des énergies des ions Xenon à l'angle 89°; comparaison entre les semiconducteurs (Si, Ge) et les alliages semiconducteurs (GaAs, SiO<sub>2</sub>)



**Figure III.15** Rendement de pulvérisation calculé par SRIM en fonction des énergies des ions Argon à l'angle 89°; comparaison entre les semiconducteurs (Si, Ge) et les alliages semiconducteurs (GaAs, SiO<sub>2</sub>)



**Figure III.16** Rendement de pulvérisation calculé par SRIM en fonction des énergies des ions Neon à l'angle 89°; comparaison entre les semiconducteurs (Si, Ge) et les alliages semiconducteurs (GaAs, SiO<sub>2</sub>)

Les figures(III.14 , III.15 , III16) représente une comparaison au niveau de rendement de pulvérisation entre les semiconducteurs et les alliages semiconducteurs en fonction des énergies d'ions des gaz de bombardement (Xe, Ar et Ne) avec l'angle d'incidence fixe 89 degrés. L'alliage Gallium Arsenide se présente en industrie de cette forme GaAs donc une mixture de quantités égaux 50% de Ga et 50% de As, par contre l'alliage dioxyde de silicium SiO<sub>2</sub> utilise aussi de cette forme donc une mixture de quantité qui contient a peu près 32% d'oxygène et 78% de silicium.

En constate que la différence de quantité influe sur le rendement de pulvérisation puisque la figure. Montre que les alliages semiconducteurs (GaAs et SiO<sub>2</sub>) donnent un rendement plus élevé que les semiconducteurs (si et Ge), pour des bombardements des ions d'argon et de néon, mais pour le xénon, le rendement compris entre Si et GaAs ( plus élevé que si), et toujours passe par un maximum et affaiblie après la consommation de la quantité totale.

Le tableau suivant représente le rendement, les énergies et les angles maximaux calculés par la simulation SRIM pour les semiconducteurs et les alliages semiconducteurs soumis des bombardment par des faisceau d'ions de différents gaz.

		Si	Ge	GaAS	SiO <sub>2</sub>
Xe	E <sub>max</sub> (kEv)	7000	10000	10000	750
	Θ <sub>max</sub> (degre)	89°	89°	89°	89°
	Y <sub>max</sub>	94.48	83.76	136.16	80,60
Ar	E <sub>max</sub> (kEv)	2000	2000	750	750
	Θ <sub>max</sub> (degre)	89°	89°	89°	89°
	Y <sub>max</sub>	23.17	20.57	34.49	34,49
Ne	E <sub>max</sub> (kEv)	650	750	1000	1000
	Θ <sub>max</sub> (degre)	89°	89°	89°	89°
	Y <sub>max</sub>	10.48	8.75	14.23	18.23

**Tableau III.1** Énergies, les angles et le rendement maximal aobtenus par SRIM

Ces résultats montrent que l'efficacité de pulvérisation des ions xénon (Xe) est assez élevée par rapport à celle des ions argon (Ar) et néon (Ne).

## Conclusion

Les résultats obtenus par la simulation SRIM le montrent :

1. Le xénon (Xe) donne des rendements très élevés par rapport à l'argon (Ar) et au néon (Ne) ; cela a du sens quand on sait que ce gaz est très inerte, facile et rapide à exciter. Malgré ses avantages, les recherches montrent que Ar est le plus utilisé en termes de coût et de disponibilité sur le marché.
2. Dans le cas des semiconducteurs, le silicium (Si) donne de bons rendements par rapport au germanium (Ge), De la même manière pour les alliages semi-conducteurs, le gallium Arsenide (GaAs) donne de bons rendements par rapport au dioxyde de silicium (SiO<sub>2</sub>) étant étroitement lié au nombre d'atomes dans la couche extérieure et à leur liaison.
3. Le rendement maximum de pulvérisation ( $Y_{max}$ ) pour les énergies ( $E_{max}$ ) a été atteint autour de 10000 Kev pour Xe, 2000 Kev pour Ar et 1000Kev pour Ne
4. L'angle d'incidence ( $\theta_{max}$ ) est 89°, Ces facteurs ( $E_{max}$  et  $\theta_{max}$ ) correspondent au nombre maximum de particules pulvérisées.

**Conclusion**

**Générale**

## Conclusion générale

Dès les années 1960, le besoin d'intégrer les fonctions électroniques a conduit à utiliser la technologie des films minces pour la réalisation des tout premiers circuits intégrés. Les microstructures de ces films sont l'objet de notre intérêt pour servir à l'industrie en tenant compte des différents paramètres qui influencent la morphologie de ces films tels que les énergies et les angles d'incidence qui deviennent l'objet de notre étude. Notre travail consistait à étudier et à étudier le dépôt de couches minces par pulvérisation cathodique des semiconducteurs (silicium et germanium) et d'alliages semi-conducteurs, tels que (gallium Arsenide et dioxyde de silicium). Pour étudier le phénomène dès le début, des simulations avec la méthode de Monte Carlo ont été utilisées pour calculer le rendement  $Y$  de la pulvérisation cathodique en fonction de la nature des gaz et des matériaux utilisés ainsi que des énergies et des angles d'incidence appliqués, des paramètres très importants pour optimiser le rendement des couches minces déposées.

# **Références Bibliographiques**

- [1] A.Bouazza et A.Settaouti , Understanding the contribution of energy and angular distribution in the morphology of thin films using monte carlo simulation, doi: 10.1515/Monte carlo methods and applications -2018-0019
- [2] A.Bouazza et A.Settaouti , Study and simulation of the sputtering process of material layers in plasma, DOI: 10.1515/ Monte carlo methods and applications -2016-0106
- [3] A.Bouazza et A.Settaouti , Etude et simulation de l'influence de divers parametres sur le processus de pulverisation d'atoms dans un plazma,univ-usto oran 2017
- [4] N. Bouhssira, Elaboration et caractérisation des couches minces d'oxyde de zinc par evaporation , mémoire de magister, université constantine, 2005.
- [5] H. Benelmadjat, Elaboration et caractérisation de matériaux cristallins ou amorphes purs et dopés , thèse de doctorat, université Constantine, 2011.
- [6] T. Ait Ahcene, Elaboration et caractérisation des couches minces de sulfure de zinc Diffusion de l'argent et de manganèse , mémoire de magister, université de Constantine, 1992.
- [7] A. Mosbah, Elaboration et caractérisation de couche mince d'oxyde de zinc , thèse de doctorat, université Constantine, 2001.
- [8] J. Tranchant, Etude de couches minces déposées par pulvérisation magnétron post-ionisée pour l'ingénierie de contraintes – cas du mocr et de nano-canaux de carbone , thèse de doctorat, université de Nantes, 2007.
- [9] S. Abed, Elaboration et Caractérisation de Couches minces d'oxyde de zinc obtenues par Spray Pyrolyse , mémoire de magister, université Constantine , 2008.
- [10] M. Gaidi, Films minces de SnO<sub>2</sub> dopés au platine ou au palladium et utilisés pour la détection des gaz polluants : analyses *in-situ* des corrélations entre la réponse électrique et le comportement des agrégats métalliques , thèse de doctorat, 1999.  
Zinc par Evaporation , mémoire de magister, université Constantine, 2005.
- [11] S. Guitouni, Corrélation entre les propriétés thermophysiques des gouttelettes et les propriétés des couches minces déposées par le procédé spray , mémoire de magister, université Constantine, 2005.
- [12] S. Menakh, Contribution à l'étude des propriétés de films ZnO , mémoire de magister, université Stif , 2010.
- [13] M. Othmane, dépôt et caractérisation des couches minces d'oxyde de zinc par spray pyrolyse ultrasonique , mémoire de magister, université Biskra, 2010.

- [14] L. Baghriche, Elaboration et caractérisation des couches minces d'oxyde de Zinc obtenues par pulvérisation réactive et spray ultrasonique , mémoire de magister, université Constantine, 2006.
- [15] M. Kihel, Caractérisation de films minces déposés par plasma PECVD à partir de vapeurs de TMS , mémoire de magister, université Constantine, 2010.
- [16] M. Khammar, Etude d'un jet en spray d'une solution chimique sur un substrat chaud destiné à l'élaboration des couches minces , mémoire de magister, université Constantine, 2010.
- [17] H. Labidi, Elaboration par pulvérisation pyrolytique et caractérisation de couches minces semi-conductrices et transparentes d'oxyde de zinc : perfectionnement du système de dépôt. , Mémoire de magistère, Université d'Oum El-Bouaghi, 2007.
- [18] I.Wuled Lengooro, Y. Chan Kang, T. Komiya, K. Okuyama .N. Tohge, Jpn. J. Appl. Phys.(1998) pp. L 288-L290.
- [19] C. Mazon, J. Muci, A. Sa-Neto, A. Ortiz-Conde and F.J. Garcia, CH2953-8/91/10000-1156.IEEE (1991).
- [20] A. Hafdallah, Étude du Dopage des Couches Minces de ZnO Elaborées par Spray Ultrasonique , Mémoire de magister, université Constantine, 2007.
- [21] B. Correa-Lozano, CH. Comninellis, A. De Battisti, Journal Of Applied Electrochemistry, 26 (1996) 83-89.
- [22] A. Taabouche, Contribution à l'étude structurale et microstructurale d films ZnO obtenus par ablation laser , mémoire de magister, université Constantine, 2010.
- [23] V. Edon, Dépôt d'oxyde de grille par pulvérisation cathodique magnétron : corrélation entre les propriétés du plasma et celles des films déposés, thèse de doctorat, Université Paris-Sud, France (2007).
- [24] T.E. Karakasidis, C.A. Charitidis, Multiscale modeling in nanomaterials science, Materials Science and Engineering, C 27 (2007) 1082-1089.
- [25] S. Mahieu, G. Buyle, D. Depla, S. Heirwegh, P. Ghekiere, R.De Gryse, Monte Carlo simulation of the transport of atoms in DC magnetron sputtering, Nucl. Instrum. Methods B 243 (2006) 313-319.
- [26] C. Verdeil, Etude de la pulvérisation de l'émission de la matière sous bombardement Cs+, Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, France (2008).
- [27] P. Gailly, Etude de l'évolution de l'état de surface de matériaux optiques sous bombardement ionique à faible énergie, thèse de doctorat, Université de Liège, France (2001).

- [28] L. Ottaviani, Réalisation de jonction pn dans le carbure de silicium 6H par implantation ionique d'aluminium, thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliquées, France (1999).
- [29] J. Dudognon, Étude des modifications structurales induites par implantation ionique dans les aciers austénitiques, thèse de doctorat, Université d'Orléans, France (2006).
- [30] P. Sigmund, Sputtering by Ion Bombardment: Theoretical Concepts, *Topics in Applied Physics* 47 (1981) 9-71.
- [31] M. Pavlovič, Transport of Ion Beams in Matter: Part II, *AIP Conference Proceedings* (2010) 30-37.
- [32] A. Lyoussi, Détection de rayonnements et instrumentation nucléaire, EDP sciences (2010), ISBN 978-2-7598-0018-6.
- [33] J. Lindhard, V. Nielsen, M. Scharff, P.V. Thomsen, Integral equations governing radiation effects, *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.* 33 (10) (1963) 4-41.
- [34] J. Lindhard, M. Scharff, H.E. Schiott, Range concepts and heavy ion ranges, *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.* 33 (14) (1963) 3-42.
- [35] F. Besenbacher, J. Bottiger, O. Graversen, J. L. Hansen, H. Sorensen, Stopping power of solid argon for Helium ions, *Nuclear Instruments and Methods* 188 (1981) 657-667.
- [36] G. Pookat, T. Hysen, S.H. Al-Harhi, I.A. Al-Omari, R. Lisha, D.K. Avasthi, M.R. Anantharaman, Magnetic and topographical modifications of amorphous Co-Fe thin films induced by high energy Ag<sup>7+</sup> ion irradiation, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 310 (2013) 81-86.
- [37] M.P. Seah, T.S. Nunney, Sputtering yields of compounds using argon ions, *Journal of Physics D: Applied Physics* 43 (2010) 1-13.
- [38] Y. Yamamura, H. Tawara, Energy dependence of ion-induced sputtering yields from monatomic solids at normal incidence, *Atomic Data and Nuclear Data Tables* 62 (1996) 149-253.
- [39] D. Depla, J. Mahieu. *Reactive Sputter Deposition*, Springer Berlin Heidelberg New-York (2008), ISBN: 978-3-540-76662-9.
- [40] P. Sigmund, Theory of sputtering. I. Sputtering Yield of amorphous and polycrystalline targets, *Physical Review* 184 (1969) 383-416.
- [41] D. Czekaj, B. Goranchev, E.K. Hollmann, V.A. Volpyas, A.G. Zaytsev, Incident ion energy spectrum and target sputtering rate in dc planar magnetron, *Vacuum* 42(1-2) (1991) 43-45.

- [42] F. Boydens, Key aspects of sputtering illustrated by the use of multi-element powder mixtures, thèse de doctorat, Université de Gent, Belgique (2013).
- [43] M.W. Thompson, Atomic collision cascades in solids, *Vacuum* 66 (2002) 99-114.
- [44] P. Ghekiere, Structure Evolution of Biaxially Aligned Thin Films Deposited by Sputtering, thèse de doctorat, Université de Gent, Belgique (2007).
- [45] T. Okutani, M. Shikata, S. Ichimura, R. Shimizu, Angular distribution of Si atoms sputtered by keV Ar<sup>+</sup> ions, *J. Appl. Phys.* 51 (1980) 2884-2887.
- [46] H. Tsuge, S. Esho, Angular distribution of sputtered atoms from polycrystalline metal targets, *J. Appl. Phys.* 52 (1981) 4391-4395.
- [47] H. Huang, G.H. Gilmer, Multi-lattice Monte Carlo model of thin films, *Journal of Computer-Aided Materials Design* 6(2) (1999) 117-127.
- [48] D.P. Landau, K. Binder, A guide to Monte Carlo simulation in statistical physics, Cambridge university press, Cambridge (2000) ISBN: 0-511-01026-5.
- [49] D. Caliste, Simulations multiéchelles de la diffusion des défauts dans les semi-conducteurs Si et SiGe, thèse de doctorat, Université Joseph FOURIER, France (2005).
- [50] N. Metropolis, A.W. Rosenbluth, M.N. Rosenbluth, A.H. Teller, Equation of State Calculations by Fast Computing Machines, *The Journal of Chemical Physics* 21(6) (1953) 1087-1092.
- [51] A.B. Bortz, M.H. Kalos, J.L. Lebowitz, A New Algorithm for Monte Carlo Simulation of Ising Spin Systems, *Journal of Computational Physics* 17 (1975) 10-18.
- [52] H. Khachab, Modélisation de la croissance épitaxiale par jets moléculaires (MBE) avec la méthode de Monte Carlo Cinétique (KMC), thèse de doctorat, Université Abou-Berk Belkaid, Algérie (2010).
- [53] H. Khachab, Y. Abdelkafi, A. Belghachi, M. Brahmi, Simulation in situ par RHEED et photoémission de la reconstruction  $\alpha_2$  (2x4) de InAs (001) avec la méthode de Monte Carlo cinétique, *Annales des Sciences et Technologies* 4 (2) (2012) 121-128.
- [54] J.F. Ziegler, The Stopping of Energetic Light Ions in Elemental Matter, *J. Appl. Phys.* 85 (1999) 1249-1272.
- [55] J.F. Ziegler, SRIM-2003, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 219-220(1-4) (2004) 1027-1036.
- [56] W. Möller, M. Posselt, tridyn fzr User Manual, Forschungszentrum Rossendorf, Report FZR-317 2001.

[57] R.D. Young, D.C. Schubert, Condensation of tungsten on tungsten in atomic detail - Monte Carlo and statistical calculations vs experiment, *Journal of Chemical Physics* 42 (1965) 3943-3950.

[58] Y. Kudriavtsev, A. Villegas, A. Godines, R. Asomoza, Calculation of the surface binding energy for ion sputtered particles, *Applied Surface Science* 239 (2005) 273-278.

## **Résumé**

*Les couches minces occupent une place prépondérante dans la réalisation des composants électroniques et la pulvérisation cathodique est l'une des méthodes de fabrication de ces couches minces. L'énergie et la distribution angulaire des atomes sont considérées comme les deux paramètres les plus influents dans l'optimisation de la pulvérisation cathodique et, par conséquent, sur le dépôt. Nos recherches peuvent être considérées comme une première étape pour calculer le rendement de pulvérisation cathodique de deux semiconducteurs : le silicium et le germanium et de deux alliages semi-conducteurs : Gallium Arsenide et dioxyde de silicium : collision avec des ions xénon, argon et néon à l'aide d'un logiciel très développé appelé SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter) avec des angles variés.*

## **Abstract**

*Thin films play a major role in the production of electronic components and sputtering is one of the methods used to produce these thin films. The energy and angular distribution of the atoms are considered the two most influential parameters in the optimization of sputtering and, consequently, deposition. Our research can be considered as a first step to calculate the sputtering efficiency of two semiconductors: silocon and germanium and of two semiconductor alloys: Gallium Arsenide and Silicon Dioxide: collision with xenon, argon and neon ions using a highly developed software called SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter) with various angles.*

## **الملخص**

تلعب الأغشية الرقيقة دورًا رئيسيًا في إنتاج المكونات الإلكترونية ، وتقنية الرش المهبطي هي أحد الأساليب المستخدمة لإنتاج هذه الأغشية الرقيقة. تعتبر الطاقة والتوزيع الزاوي للذرات أكثر المعلمتين تأثيرًا في تحسين الرش وبالتالي الترسيب. يمكن اعتبار بحثنا كخطوة أولى لحساب كفاءة التبخير لاثنتين من أشباه الموصلات : السيليسيوم و الجرمانيوم واثنتين من سبائك اشباه الموصلات : الغاليوم ارسنيد و أكسيد السيليسيوم بالتصادم مع ايونات غاز: غزنيون ، الأرجون وأيون النيون باستخدام المحاكي

"SRIM"