

Université de Montréal

Caractérisation et optimisation des paramètres physiques
du Ta_2O_5 affectant le facteur de qualité de miroirs
diélectriques

par

Rosalie Shink

Département de physique
Faculté des arts et des sciences

Mémoire présenté à la Faculté des études supérieures et postdoctorales
en vue de l'obtention du grade de
Maître ès sciences (M.Sc.)
en Physique

26 août 2019

Université de Montréal

Faculté des études supérieures et postdoctorales

Ce mémoire intitulé

**Caractérisation et optimisation des paramètres physiques
du Ta₂O₅ affectant le facteur de qualité de miroirs
diélectriques**

présenté par

Rosalie Shink

a été évalué par un jury composé des personnes suivantes :

Sjoerd Roorda

(président-rapporteur)

François Schiettekatte

(directeur de recherche)

Ludvik Martinu

(co-directeur)

Arthur Yelon

(membre du jury)

Mémoire accepté le :

4 décembre 2019

Sommaire

Ce mémoire présente les efforts effectués pour réduire l'angle de perte de couches de pentoxyde de tantale amorphes telles qu'utilisées pour les miroirs de LIGO. Afin d'améliorer le niveau de relaxation des couches, celles-ci ont été déposées par pulvérisation cathodique magnétron à des températures allant de 50 °C à 480 °C, elles ont subi un recuit thermique rapide, elles ont été implantées par des ions d'oxygène, elles ont été déposées par pulvérisation cathodique magnétron en appliquant une tension de polarisation sur le substrat lors du dépôt allant de 0 V à -450 V et elles ont été déposées par pulvérisation cathodique magnétron pulsée à haute puissance dans le cadre de différentes expériences. L'angle de perte, l'épaisseur, la rugosité, l'indice de réfraction, la composition atomique, la contrainte, l'état de relaxation et le module de Young des couches ont par la suite été trouvés à l'aide de l'ellipsométrie spectralement résolue, la spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford, la détection des reculs élastiques, la spectroscopie Raman, la diffraction de rayons X et la nano-indentation. Il a été trouvé que la température de dépôt améliorerait légèrement le degré de relaxation des couches jusqu'à 250 °C, mais qu'elle avait peu d'impact après recuit. Aussi, lors de dépôt à température de la pièce, une forte tension de polarisation réduit l'angle de perte, mais cet effet est encore une fois perdu suite au recuit. Les autres méthodes mentionnées ci-dessus n'ont pas influencé le degré de relaxation des couches selon l'angle de perte, la spectroscopie Raman et la diffraction de rayons X. Cette recherche a été réalisée avec le support financier du CRSNG et du FRQNT (numéro de dossier 206976).

Mots clés : revêtements diélectriques, pentoxyde de tantale, détection d'ondes gravitationnelles, pulvérisation cathodique magnétron, tension de polarisation, pulvérisation cathodique magnétron pulsée à haute puissance, recuit thermique rapide, implantation, angle de perte

Summary

This master's thesis presents the experiments made to reduce the loss angle of tantala coatings similar to those used in LIGO. To improve the relaxation level of the coatings they were deposited by magnetron sputtering at temperatures varying from 50 °C to 480 °C. They were also subjected to rapid thermal annealing, and oxygen implantation. In another experiment, the coatings were deposited by magnetron sputtering with substrate biasing varying from 0 V to -450 V at room temperature and at 250 °C. Finally, the coatings of tantala were deposited by high power impulse magnetron sputtering. The loss angle, thickness, roughness, refractive index, atomic composition, stress, the relaxation state and Young's modulus of the coatings were characterized using spectroscopic ellipsometry, Rutherford backscattering, elastic recoil detection, Raman spectroscopy, X-ray diffraction and nanoindentation. It was found that the deposition temperature improved the loss angle until it reached 250 °C. However, annealing the coatings had a superior impact and the influence of the deposition temperature was not visible after annealing. When a high bias was applied to the substrate at room temperature, the obtained coating was slightly more relaxed than when a low bias was applied but this effect is, once again, insignificant after annealing. The other methods of deposition mentioned did not improve the loss angle or modify the relaxation state found by Raman spectroscopy and X-ray diffraction of the tantala coatings. This research was made with the financial support of the NSERC and of the FRQNT (file number 206976).

Keywords: dielectric coatings, tantala, gravitational wave detectors, magnetron sputtering, substrate biasing, high power impulse magnetron sputtering, rapid thermal annealing, implantation, loss angle

Table des matières

Sommaire	iii
Summary	v
Table des matières	vii
Liste des tableaux	xi
Table des figures	xiii
Liste des sigles	xxiii
Remerciements	xxv
Chapitre 1. Introduction	3
Chapitre 2. Concepts de bases et aperçu des techniques de synthèse et caractérisation	7
2.1. Théorème fluctuation dissipation	7
2.2. Méthodes de dépôt	8
2.3. Angle de perte	13
2.4. Ellipsométrie spectralement résolue	15
2.5. RBS et ERD	17
2.6. Contrainte	18
2.7. Spectroscopie Raman	18
2.8. XRD	19

2.9. Nano-indentation	20
Chapitre 3. Article.....	21
Premier article. Effect of elevated substrate temperature deposition on the mechanical losses in tantala thin film coatings	23
1. Introduction.....	25
2. Deposition techniques.....	26
2.1. Magnetron sputtering deposition	27
2.2. Ion beam sputtering deposition	28
3. Post-deposition heat treatments.....	30
4. Measurement of mechanical losses.....	31
5. Results	33
6. Structural characterization : measurement techniques	38
6.1. X-ray diffraction.....	38
6.2. Raman spectroscopy	38
7. Structural studies: results.....	39
7.1. X-ray diffraction.....	39
7.2. Medium range order and loss angle	39
7.3. Raman spectroscopy and loss angle	42
8. Discussion of the results	43
Acknowledgements.....	45
Chapitre 4. Expériences supplémentaires	47
4.1. Description des expériences	47
4.2. Méthodologie expérimentale.....	52
4.2.1. Méthode de dépôt	52

4.2.2.	RTA	54
4.2.3.	Implantation d'oxygène	54
4.2.4.	Caractérisation des échantillons	55
4.3.	Résultats	61
4.3.1.	Caractéristiques physiques	61
4.3.2.	Angle de perte	66
4.3.3.	Spectroscopie Raman	71
4.3.4.	XRD	76
4.3.5.	Nano-indentation	80
4.4.	Discussion	82
4.4.1.	Expérience 1 (RTA)	84
4.4.2.	Expérience 2 (Contrainte)	85
4.4.3.	Expérience 3 (ΔV , RT)	85
4.4.4.	Expérience 4 (ΔV , 250 °C)	86
4.4.5.	Expérience 5 (HiPIMS)	87
Chapitre 5.	Conclusion	89
Bibliographie	91
Annexe A.	A-i

Liste des tableaux

3.1	Material parameters used in finite element models.	32
4.1	Identification de l'ensemble des disques sur lesquels un dépôt a été fait, de leur échantillon de référence respectif, de l'expérience pour laquelle le dépôt a été produit et des conditions dans lesquelles le dépôt a été fait. Sauf indication contraire, le vide de base étaient entre 3×10^{-7} Torr et 7×10^{-6} Torr. Lors des dépôts la pression était de 2,5 mTorr, le gaz était constitué à 63 % d'argon et 37 % de dioxygène.	51
4.2	Indice de réfraction, rugosité, épaisseur, composition, ratio O/Ta, temps de dépôt et taux de dépôt des couches de Ta ₂ O ₅ déposées par MS à RT ayant par la suite subi un RTA (Expérience 1). L'un des deux échantillons a également été implanté à l'aide d'ions d'oxygène. Pour du Ta ₂ O ₅ stoechiométrique, le ratio O/Ta attendu est de 2,5.	61
4.3	Indice de réfraction, rugosité, épaisseur, composition, ratio O/Ta, contrainte, temps de dépôt et taux de dépôt des couches de Ta ₂ O ₅ déposées par MS à RT et à 250 °C afin de caractériser la contrainte dans les couches (Expérience 2). Pour du Ta ₂ O ₅ stoechiométrique, le ratio O/Ta attendu est de 2,5.	62
4.4	Indice de réfraction, rugosité, épaisseur, composition, ratio O/Ta, temps de dépôt et taux de dépôt des couches de Ta ₂ O ₅ déposées par MS à RT en variant la tension de polarisation appliquée sur le substrat de -100 à -450V (Expérience 3). Pour du Ta ₂ O ₅ stoechiométrique, le ratio O/Ta attendu est de 2,5.	63
4.5	Indice de réfraction, rugosité, épaisseur, composition, ratio O/Ta, temps de dépôt et taux de dépôt des couches de Ta ₂ O ₅ déposées par MS à 250 °C en variant	

	la tension de polarisation appliquée sur le substrat de -100 à -450 V (Expérience 4). Pour du Ta ₂ O ₅ stoechiométrique, le ratio O/Ta attendu est de 2,5.	64
4.6	Indice de réfraction, rugosité, épaisseur, composition, ratio O/Ta, temps de dépôt et taux de dépôt des couches de Ta ₂ O ₅ déposées par HiPIMS (Expérience 5). Pour du Ta ₂ O ₅ stoechiométrique, le ratio O/Ta attendu est de 2,5.	66
4.7	Module de Young et dureté de couches de Ta ₂ O ₅ des échantillons 520 (Expérience 2 : MS, 250 °C), 567 (Expérience 3 : MS, RT, tension de polarisation de -450 V) et 563 (Expérience 4 : MS, 250 °C, tension de polarisation de -450 V).....	80

Table des figures

1.1	Contribution de chaque source de bruit au bruit total de l'aLIGO en fonction de la fréquence de l'onde gravitationnelle détectée.	4
2.1	Schéma du système utilisé pour former les revêtements de Ta ₂ O ₅ . Le système permet d'effectuer des dépôts par MS ou par HIPIMS selon la source de courant utilisée. La figure a) présente l'ensemble de la chambre dans laquelle un vide partiel est fait. La figure b) illustre une vue transversale du magnétron et de son fonctionnement.	10
2.2	Photo du plasma confiné au-dessus du magnétron du CMS-18 lors du dépôt de Ta ₂ O ₅ par MS, a), et par HiPIMS, b).	12
2.3	Schéma du système de suspension des disques. Un disque d'épaisseur t repose sur une surface sphérique de rayon R . La croix orange indique la position du centre de masse et l'angle θ indique l'inclinaison du disque. La ligne bleue indique la position du centre de masse en fonction de l'inclinaison de manière à prouver que le disque est en équilibre stable. Les dimensions ne sont pas à l'échelle.	13
2.4	Exemple de signal mesuré lors de la désexcitation d'un mode de résonance d'un disque en équilibre stable sur une surface sphérique. La courbe pointillée bleue indique les données expérimentales et la courbe pleine rouge indique la courbe ajustée obtenue.	14
2.5	Schéma indiquant la modification de la polarisation de la lumière lors de l'interaction de celle-ci avec un matériau	16
2.6	Schéma des réflexions multiples lors d'une mesure d'ellipsométrie.	17

3.1	Schematic diagram (left) showing the configuration and geometry of the ion beam sputtering system, with images (right) of the chamber and ion source during operation (inset).....	30
3.2	Summary of all measurements performed on the magnetron sputtered samples. Each panel corresponds to a different sample. The title shows the temperature at which the coating was deposited, while the different traces (if present) in each panel refer to the coating as-deposited or after subsequent annealing treatments. The numbers in the legend are unique identification numbers for each substrate. The error bars at each frequency are 95% confidence intervals computed from the standard deviation of repeated measurements.....	34
3.3	Averaged mechanical loss angle for magnetron sputtered tantalum. The values shown here are obtained by averaging the results shown in Figure 3.2, over all frequencies. The error bars are 95% confidence intervals computed from the standard deviation of the loss angles measured for the different modes for each sample (the uncertainty in the single frequency measurements are negligible). A random horizontal shift of the points have been added to improve the readability of the plot.	35
3.4	Summary of all the measurements performed on ion beam sputtered samples. Each panel corresponds to a different sample. The title shows the temperature at which the coating was deposited, with separate traces to show the mechanical loss as-deposited and post annealing treatment (all at 600°C for 1 hr). The uncertainty for all data points is about 1%, and not visible in the plot.....	36
3.5	Averaged mechanical loss angle for ion beam sputtered tantalum. The values shown here are obtained by averaging the results shown in Figure 3.4 over all frequencies. The error bars show the standard error associated with the spread in the measured mechanical losses. The slight change in deposition temperature between the metal and oxide target sputtered coatings are associated with	

	improvements in the calibration of the temperature readout carried out between these sets of coating runs.....	37
3.6	Left. XRD diffraction patterns for ion beam deposited tantalum pentoxide films, sputtered from an oxide target, before (top) and after (bottom) annealing at 600°C. The temperatures listed in the graph correspond to the different substrate temperature during deposition. XRD scans were carried out using a Siemens D5000 X-ray diffractometer at room temperature with Cu K α radiation ($\lambda = 0.154$ nm) in the range of 2θ between 20° and 80° (2 seconds per scan, step size = 0.02°. Right. X-ray diffraction curves for a selection of the magnetron sputtered samples, before (top) and after (bottom) annealing. In each panel, the curves corresponding to different deposition temperatures have been shifted vertically by an arbitrary amount for readability.....	40
3.7	Left. First sharp diffraction peak (small angle side only) of four magnetron sputtered samples, before annealing. Spectra have been offset vertically for clarity. From top to bottom : deposited at 400°C, 250°C, 150°C, and at room temperature. The solid lines show a gaussian fit to the experimental data. The peak positions determined by the fit are shown as vertical lines across the maximum of each curve, and the peak widths are reported in the legend. The quoted uncertainty corresponds to the 1-sigma increase in chi-squared as determined by the fitting routine. Right. Mechanical loss angle as a function of the FSDP width for magnetron sputtered samples, before (red triangles) and after (blue circles) annealing at 500°C . The solid line is a linear fit to all datapoints, excluding the one deposited at 400° C before annealing.....	41
3.8	Left. Raman spectra of five magnetron sputtered samples, after annealing. From top to bottom: deposited at 480 °C, 400 °C nearly overlapping with the one deposited at 250°C, 150°C, and at room temperature. Right. Loss angle as a function of the full width at half maximum (FWHM) of the main peak of the Raman spectrum, for the magnetron sputtered samples. Open	

	circles correspond to measurements performed on samples as-deposited, while solid squares to measurements performed on samples annealed at 500°C. The substrate temperature during deposition is written next to each data point.	43
4.1	Profil d'implantation de l'échantillon 519 obtenu par simulation. Les courbes verte, turquoise et bleu indiquent respectivement le profil d'implantation d'un faisceau d'oxygène à 30 keV avec une fluence de $0,8 \times 10^{15} \text{ion}/\text{cm}^2$, 100 keV avec une fluence de $1,1 \times 10^{15} \text{ion}/\text{cm}^2$ et 300 keV avec une fluence de $4,2 \times 10^{15} \text{ion}/\text{cm}^2$ dans une couche de Ta ₂ O ₅ . La courbe rouge indique le profil de dommage obtenu. La ligne verticale noire indique la fin de la couche de Ta ₂ O ₅ et le début du substrat de l'échantillon. Figure adaptée.....	55
4.2	Schéma représentant la géométrie utilisée lors des mesures RBS. Les flèches indiquent la direction du faisceau d'ions et des ions rétrodiffusés, et le rectangle gris représente l'échantillon analysé.....	57
4.3	Spectre RBS de l'échantillon 562, en rouge, pris à l'aide d'un faisceau d'hélium à 2 MeV avec un angle incident de 7°, un angle de sortie de 10° et un angle de diffusion de 170°. La courbe en bleu est la simulation faite à l'aide de SIMNRA..	58
4.4	Diagramme de phase du système Ta-O.	65
4.5	Angle de perte en fonction de la fréquence de résonance de l'échantillon des couches de Ta ₂ O ₅ d'environ 1 μm déposées par MS à RT et ayant subi un RTA pendant 10 secondes à 250 °C (Expérience 1). Les angles de perte ont été mesurés avant le RTA. Les points bleus indiquent l'échantillon 519 (S1600519) et les points oranges indiquent l'échantillon 522 (S1600522).	67
4.6	Angle de perte moyen en fonction de l'implantation d'oxygène des couches de Ta ₂ O ₅ d'environ 1 μm déposées par MS à RT et ayant subi un RTA pendant 10 secondes à 250 °C (Expérience 1). Les angles de perte tel que déposé sont ont été mesurés avant le RTA. Le recuit a été fait à 500 °C pendant 10 h. La ligne pointillée indique le meilleur résultat de l'expérience 0 et la ligne tiretée indique l'angle de perte actuel du Ta ₂ O ₅ utilisé pour l'aLIGO.....	68

4.7	Angle de perte moyen en fonction de la température de dépôt de couches de Ta ₂ O ₅ d'environ 2 μm déposées par MS (Expérience 2). Le recuit a été fait à 500 °C pendant 10 h. La ligne pointillée indique le meilleur résultat de l'expérience 0 et la ligne tiretée indique l'angle de perte actuel du Ta ₂ O ₅ utilisé pour l'aLIGO..	69
4.8	Angle de perte moyen en fonction de la tension de polarisation appliquée sur le substrat de couches de Ta ₂ O ₅ d'environ 1 μm déposées par MS à RT (Expérience 3). Le recuit a été fait à 500 °C pendant 10 h. La ligne pointillée indique le meilleur résultat de l'expérience 0 et la ligne tiretée indique l'angle de perte actuel du Ta ₂ O ₅ utilisé pour l'aLIGO.....	69
4.9	Angle de perte moyen en fonction de la tension de polarisation appliquée sur le substrat de couches de Ta ₂ O ₅ d'environ 1 μm déposées par MS à 250 °C (Expérience 4). Le recuit a été fait à 500 °C pendant 10h. La ligne pointillée indique le meilleur résultat de l'expérience 0 et la ligne tiretée indique l'angle de perte actuel du Ta ₂ O ₅ utilisé pour l'aLIGO.....	70
4.10	Angle de perte moyen de couches de Ta ₂ O ₅ d'environ 1 μm déposées par HiPIMS à RT (Expérience 5). Le recuit a été fait à 500 °C pendant 10h. La ligne pointillée indique le meilleur résultat de l'expérience 0 et la ligne tiretée indique l'angle de perte actuel du Ta ₂ O ₅ utilisé pour l'aLIGO.	71
4.11	Spectres Raman des couches d'environ 1μm de Ta ₂ O ₅ déposées sur substrat de silice fondue par MS à RT (Expérience 1) obtenus à l'aide d'un laser à 514 nm. Les échantillons ont également subi un RTA et l'un des deux échantillons a été implanté à l'aide d'oxygène. Les spectres ont été mesurés sur les échantillons avant le recuit à 500 °C pendant 10h. La figure a) montre les spectres moyens sur trois positions des échantillons, soit les spectres bruts, normalisés selon leur épaisseur et celui du substrat normalisé arbitrairement. La figure b) montre les spectres obtenus en soustrayant la contribution du substrat aux spectres bruts. Ceux-ci ont également été normalisés à 1.	72

- 4.12 Spectres Raman des couches d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposées sur substrat de silice fondue par MS à RT obtenus à l'aide d'un laser à 514 nm. Lors des dépôts une tension de polarisation allant de -100 V à -450V a été appliquée sur le substrat (Expérience 3). Les spectres ont été mesurés sur les échantillons avant le recuit. La figure a) montre les spectres moyens sur trois positions des échantillons, soit les spectres bruts, normalisés selon leur épaisseur et celui du substrat normalisé arbitrairement. La figure b) montre les spectres obtenus en soustrayant la contribution du substrat aux spectres bruts. Ceux-ci ont également été normalisés à 1. 73
- 4.13 Spectres Raman des couches d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposées sur substrat de silice fondue par MS à 250 °C obtenus à l'aide d'un laser à 514 nm. Lors des dépôts une tension de polarisation allant de -100 V à -450V a été appliquée sur le substrat (Expérience 4). Les spectres ont été mesurés sur les échantillons avant le recuit. La figure a) montre les spectres moyens sur trois positions des échantillons, soit les spectres bruts, normalisés selon leur épaisseur et celui du substrat normalisé arbitrairement. La figure b) montre les spectres obtenus en soustrayant la contribution du substrat aux spectres bruts. Ceux-ci ont également été normalisés à 1. 74
- 4.14 Spectres Raman des couches d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposées sur substrat de silice fondue par HiPIMS à RT (Expérience 5) obtenus à l'aide d'un laser à 514 nm. Les spectres ont été mesurés sur les échantillons avant le recuit. La figure a) montre les spectres moyens sur trois positions des échantillons, soit les spectres bruts, normalisés selon leur épaisseur et celui du substrat normalisé arbitrairement. La figure b) montre les spectres obtenus en soustrayant la contribution du substrat aux spectres bruts. Ceux-ci ont également été normalisés à 1. 75
- 4.15 Spectres XRD des couches d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposées sur substrat de silice fondue par MS à RT (Expérience 1) . Les échantillons ont également

	subi un RTA et l'un des deux échantillons a été implanté d'oxygène. La figure a) montre les spectres bruts, normalisés selon leur épaisseur et celui du substrat normalisé arbitrairement. La figure b) montre les spectres obtenus en soustrayant la contribution du substrat aux spectres bruts. Ceux-ci ont également été normalisés à 1.	76
4.16	Dérivée des spectres XRD dont la contribution du substrat a été soustraite des échantillons ayant une couche d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposée sur substrat de silice fondue par MS à RT (Expérience 1). Les échantillons ont également subi un RTA et l'un des deux échantillons a été implanté d'oxygène. La figure a) montre la dérivée complète des spectres. La figure b) montre la dérivée aux endroits critiques du spectre XRD en fonction de l'échantillon. La figure c) montre la valeur de la dérivée en $2\theta=30^\circ$, 37° et 47° en fonction de l'angle de perte.....	77
4.17	Spectres XRD des couches d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposées sur substrat de silice fondue par MS à RT. Lors des dépôts une tension de polarisation allant de -100 V à -450V a été appliquée sur le substrat (Expérience 3). La figure a) montre les spectres bruts, normalisés selon leur épaisseur et celui du substrat normalisé arbitrairement. La figure b) montre les spectres obtenus en soustrayant la contribution du substrat aux spectres bruts. Ceux-ci ont également été normalisés à 1.	78
4.18	Dérivée des spectres XRD dont la contribution du substrat a été soustraite des échantillons ayant une couche d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposée sur substrat de silice fondue par MS à RT. Lors des dépôts une tension de polarisation allant de -100 V à -450V a été appliquée sur le substrat (Expérience 3). La figure a) montre la dérivée de l'ensemble des spectres XRD. La figure b) montre la dérivée aux endroits critiques du spectre XRD en fonction de l'échantillon. La figure c) montre la valeur de la dérivée en fonction de l'angle de perte.	79

4.19	Angle de perte moyen de couches de Ta ₂ O ₅ déposées dans le cadre des expériences 0 à 5. Chaque couleur est associée une expérience et les échantillons sont présentés dans l'ordre croissant du paramètre étudié. Le recuit a été fait à 500°C pendant 10h. La ligne pointillée indique le meilleur résultat de l'expérience 0 et la ligne tiretée indique l'angle de perte actuel du Ta ₂ O ₅ utilisé pour l'aLIGO. Certaines barres d'erreurs sont supérieures à 12,5.....	82
4.20	Spectres Raman obtenus à l'aide d'un laser à 514 nm des couches d'environ 1µm de Ta ₂ O ₅ déposées sur substrat de silice fondue par diverses méthodes dans le cadre des expériences 0 à 5. Les spectres ont été mesurés sur les échantillons avant le recuit. La figure a) montre les spectres dont la contribution du substrat a été soustraite normalisés à 1. La figure b) montre les mêmes spectres décalés afin de mieux voir les particularités de chaque spectre. Les expériences associées à chaque échantillon sont identifiées ainsi que la direction dans laquelle le paramètre étudié croît. La légende de couleur montrée dans la figure a) est la même que celle utilisée pour la figure b).....	83
A.1	Cartographie de l'épaisseur en Å des échantillons de l'expérience 0 (ΔT) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), d), e), f), g), h), i) et j) correspondent respectivement aux échantillons 453, 447, 448, 491, 461, 489, ,459, 458, 456, 457. Le cercle en noir représente le disque.....	A-i
A.2	Cartographie de la rugosité en Å des échantillons de l'expérience 0 (ΔT) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), d), e), f), g), h), i) et j) correspondent respectivement aux échantillons 453, 447, 448, 491, 461, 489, ,459, 458, 456, 457. Le cercle en noir représente le disque.....	A-ii
A.3	Cartographie de l'épaisseur en Å des échantillons de l'expérience 1 (RTA) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a) et b) correspondent respectivement aux échantillons 519 et 522. Le cercle en noir représente le disque.	A-iii

- A.4 Cartographie de la rugosité en \AA des échantillons de l'expérience 1 (RTA) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a) et b) correspondent respectivement aux échantillons 519 et 522. Le cercle en noir représente le disque..... A-iii
- A.5 Cartographie de l'épaisseur en \AA des échantillons de l'expérience 2 (Contrainte) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), et d) correspondent respectivement aux échantillons 523, 520, 521, 524. Le cercle en noir représente le disque. A-iv
- A.6 Cartographie de la rugosité en \AA des échantillons de l'expérience 2 (Contrainte) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), et d) correspondent respectivement aux échantillons 523, 520, 521, 524. Le cercle en noir représente le disque. A-v
- A.7 Cartographie de l'épaisseur en \AA des échantillons de l'expérience 3 (ΔV , RT) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), d), et e) correspondent respectivement aux échantillons 565, 566, 567, 568, 569. Le cercle en noir représente le disque. A-vi
- A.8 Cartographie de la rugosité en \AA des échantillons de l'expérience 3 (ΔV , RT) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), d), et e) correspondent respectivement aux échantillons 565, 566, 567, 568, 569. Le cercle en noir représente le disque. A-vii
- A.9 Cartographie de l'épaisseur en \AA des échantillons de l'expérience 4 (ΔV , 250 °C) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), d), et e) correspondent respectivement aux échantillons 562, 563, 564, 571, 572. Le cercle en noir représente le disque. A-viii
- A.10 Cartographie de la rugosité en \AA des échantillons de l'expérience 4 (ΔV , 250 °C) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), d), et e) correspondent respectivement aux échantillons 562, 563, 564, 571, 572. Le cercle en noir représente le disque. A-ix

- A.11 Cartographie de l'épaisseur en Å des échantillons de l'expérience 5 (HiPIMS) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a) et b) correspondent respectivement aux échantillons 541 et 657. Le cercle en noir représente le disque. Pour l'échantillon 657, un nouvel ensemble de point a été sélectionnés pour faire la cartographie suite à une mise à jour de l'ellipsomètre. Notons que les spectres en $[1.75,-2.25]$, $[2.25,-1.75]$, $[2.25,-1.25]$ et $[3.25,0]$ n'étaient pas valides et donc l'interpolation dans cette zone est incorrecte.....A-x
- A.12 Cartographie de la rugosité en Å des échantillons de l'expérience 5 (HiPIMS) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a) et b) correspondent respectivement aux échantillons 541 et 657. Le cercle en noir représente le disque. Pour l'échantillon 657, un nouvel ensemble de point a été sélectionnés pour faire la cartographie suite à une mise à jour de l'ellipsomètre. Notons que les spectres en $[1.75,-2.25]$, $[2.25,-1.75]$, $[2.25,-1.25]$ et $[3.25,0]$ n'étaient pas valides et donc l'interpolation dans cette zone est incorrecte.....A-xi

Liste des sigles

LIGO	Laser Interferometer Gravitational-Wave Observatory
aLIGO	advanced LIGO
DIBS	Dual ion beam sputtering
IBS	Ion beam sputtering
MS	Magnetron sputtering
HiPIMS	High-power impulse magnetron sputtering
RBS	Rutherford back scattering
ERD	Elastic recoil detection
XRD	X-ray diffraction
IBS	Ion beam sputtering
RT	Room temperature
RTA	Rapid thermal annealing

Remerciements

Bien que seul mon nom se retrouve sur la couverture de ce mémoire, ce document est le fruit du travail d'une multitude de personnes que je tiens à remercier.

Tout d'abord, merci à mes directeurs de recherche François Schiettekatte et Ludvik Martinu de m'avoir donné l'opportunité de travailler sur un projet aussi formidable au sein d'une merveilleuse collaboration internationale. Votre aide et vos conseils m'ont été précieux tout au long de ma recherche.

Merci également à Ludvik de m'avoir ouvert les portes de son laboratoire et à son équipe de m'avoir si bien accueillie. Merci à Francis Turcot pour son support technique, à Simon Loquai et Oleg Zaboida pour votre aide. Merci à Étienne Bousser et Thomas Schmitt pour les mesures de nano-indentation. Un merci particulier à Bill Baloukas pour les longues heures passées à mes côtés pour m'introduire au fonctionnement d'une foule d'appareils. Du côté de l'Université de Montréal, merci à Sjoerd Roorda pour ses conseils, à Martin Chicoine de m'avoir guidé lors de l'analyse RBS et Louis Goudbout d'être venu à ma rescousse lorsqu'une pompe turbo, une jauge à pression ou le tandetron faisait des chichis. Merci aux stagiaires, Louis Godbout, Carl Lévesque, Romane Asselin, Alexandre Lussier et Marianne Ward d'avoir contribué à faire avancer ce projet. Merci à Samir Elouatik pour le support lors de mesures de spectroscopie Raman.

Merci grandement à nos collaborateurs de LIGO, particulièrement à Gabriele Vajente, Alena Ananyeva, Ricardo Bassiri, Ashot Markosyan, Stuart Reid et Éric Gustafson. Merci infiniment à Gabriele Vajente et Stuart Reid de m'avoir permis de visiter vos laboratoires et de m'avoir transmis tant de connaissances.

Un immense merci aux personnes autour de moi m'ayant permis de rester humaine et qui m'ont soutenues au cours des deux dernières années. Vous m'avez rappelé que le succès

académique était important, mais que ma santé mentale et physique l'était aussi et je vous en suis reconnaissante.

Merci à ma mère, Thérèse, et ma soeur, Anne-Marie, pour votre amour, votre écoute et vos conseils m'ayant permis de surmonter les obstacles que j'ai rencontrés les uns après les autres. Je vous aime plus fort que je ne pourrai jamais vous le dire.

Merci à Annabelle d'avoir compris mes frustrations et mes colères, et d'avoir partagé chacune de mes victoires comme si c'était les siennes.

Merci à Camille de m'avoir rappelé qu'il existe une vie à l'extérieure de l'Université. De m'avoir montré tout ce qu'une femme forte comme elle peut accomplir et d'avoir mis du bonheur dans mon coeur.

Finalement, merci à mes collègues de bureau, Gabriel, Émile et Samuel de m'avoir permis de ventiler et de m'avoir offert de la perspective lorsque nécessaire. Merci aussi d'avoir réussi l'impossible en mettant du soleil dans le bunker.

À ma mère, mon phare.

Chapitre 1

Introduction

Le pentoxyde de tantale est un matériau grandement étudié pour une grande variété de domaines d'application depuis plus de 50 ans.[1] Comme il s'agit d'un diélectrique à haute valeur de constante diélectrique, il est utilisé pour créer des circuits intégrés miniaturisés dans les appareils électroniques.[1, 2] Il est également utilisé pour des filtres optiques de haute qualité puisqu'il est très stable environnementalement et chimiquement. [1] Ce matériau est transparent dans le visible, tout en ayant un indice de réfraction élevé.[3] Le TiO_2 pourrait aussi être un matériau intéressant dans ce domaine d'application puisque son indice de réfraction est plus élevé que celui du Ta_2O_5 , mais le Ta_2O_5 a l'avantage significatif de cristalliser moins facilement. C'est entre autres pour ces raisons que le «L'advanced Laser Interferometer Gravitational-Wave Observatory» (aLIGO) utilise le Ta_2O_5 amorphe dopé au TiO_2 comme composante ayant un indice de réfraction élevé de ses miroirs diélectriques.

LIGO est un observatoire d'ondes gravitationnelles basé aux États-Unis. Il est formé de deux interféromètres ayant des bras longs de 4 km dans lesquels se situe une cavité Frabry-Perrot. Cet instrument permet de détecter des déformations de l'espace-temps de l'ordre de 10^{-18} m. Pour atteindre un tel niveau de sensibilité, les sources de bruits doivent être réduites au maximum. Les principales sources de bruit de l'advanced LIGO (aLIGO), la version actuelle de l'observatoire, se trouvent à la figure 1.1. Celle-ci montre que deux sources de bruit limitent actuellement la sensibilité du détecteur. La première est le bruit quantique créé à cause de la fluctuation du nombre de photons. Cette source de bruit est à sa limite théorique et donc ne peut pas être diminuée de manière considérable (il est possible de diminuer légèrement le bruit en compressant les états quantiques du vide et du faisceau laser). L'autre source de bruit importante est due au bruit Brownian du revêtement («coating

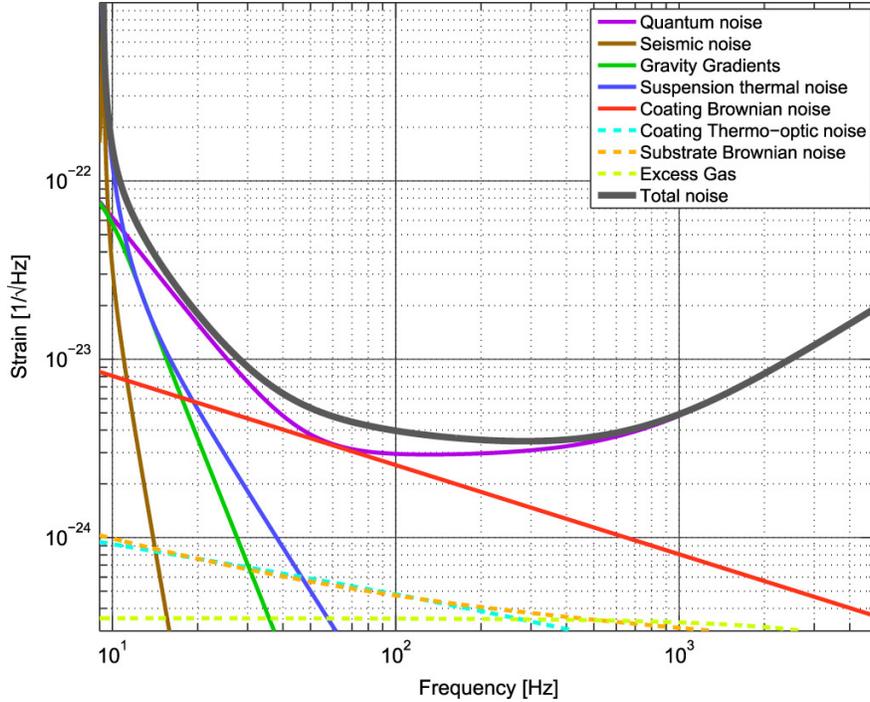


FIGURE 1.1 Contribution de chaque source de bruit au bruit total de l'aLIGO en fonction de la fréquence de l'onde gravitationnelle détectée. [4]

Brownian noise») soit à l'absorption par les excitations de basses énergies principalement dans les revêtements de pentoxyde de tantale du miroir. Les miroirs de l'aLIGO sont des miroirs diélectriques optimisés pour un faisceau laser à 1064 nm formés par des couches de SiO_2 et de Ta_2O_5 dopé au TiO_2 . En raison de mécanismes encore mal compris à ce jour, les excitations à basses énergies entraînent des mécanismes de perte dans les couches de Ta_2O_5 . Ce mécanisme de dissipation transforme les modes résonnants des miroirs en lorentziennes larges produisant de longues queues dans le domaine de fréquence le plus sensible de aLIGO, soit d'environ 3×10^1 à 1×10^3 Hz. Comme nous le verrons à la section suivante, cette source de bruit est proportionnelle à

$$\frac{Td\phi}{\omega^2} \quad (1.0.1)$$

où T est la température, d est l'épaisseur des couches, ϕ est un paramètre associé au mécanisme de dissipation mentionné ci-dessus qu'on appellera l'angle de perte et ω est la largeur du faisceau.[3] L'angle de perte correspond à l'élargissement des pics de résonance d'un matériau. Plus l'angle de perte est faible plus les pics sont étroits. Ainsi, une plus

grande partie du signal est utilisable lorsque l'angle de perte est faible puisque les pics de résonance affectent une moins grande partie de la plage de fréquence mesurée. Pour le SiO_2 l'angle de perte est de 4×10^{-5} rad et pour le Ta_2O_5 dopé au TiO_2 il est de $2,4 \times 10^{-4}$ rad. [5, 6] Il est donc clair que les couches Ta_2O_5 dopé au TiO_2 sont la source principale de bruit. Ainsi, pour diminuer le bruit associé aux miroirs, quatre approches peuvent être prises. La première consiste à diminuer la température des miroirs. La deuxième à augmenter la différence entre les indices de réfraction des deux matériaux utilisés pour réduire le nombre et l'épaisseur des couches nécessaires afin d'obtenir la même réflectivité. La troisième est d'augmenter la taille du faisceau. La quatrième et dernière approche est de réduire l'angle de perte, décrit plus tôt, du Ta_2O_5 . C'est cette dernière approche qui a été utilisée dans le cadre de la recherche présentée dans ce mémoire, car elle n'implique aucune modification de aLIGO autre que le remplacement des miroirs. Un résumé détaillé de l'état de la recherche pour diminuer le bruit associé aux miroirs dans le cadre de la détection d'ondes gravitationnelles se trouve à la référence [3]. Celle-ci présente également les efforts faits pour améliorer la sensibilité de l'aLIGO selon les trois autres approches mentionnées ci-dessus.

Pour diminuer l'angle de perte du Ta_2O_5 , plusieurs stratégies ont été explorées. Tout d'abord, il a été trouvé dans la littérature que, pour le silicium amorphe, augmenter la température du substrat lors du dépôt permettait d'obtenir des couches plus relaxées. [7] Ainsi, des couches de Ta_2O_5 ont été déposées par pulvérisation cathodique magnétron à haute température. Par la suite, il est possible que les traitements appliqués aux couches de Ta_2O_5 permettent seulement à celles-ci de s'organiser dans un minimum local de configuration énergétique. Pour sortir de ce minimum local, des échantillons ont subi un recuit thermique rapide afin de fournir une grande quantité d'énergie au matériau sur une courte période de temps. Toujours dans l'idée de sortir d'un minimum local, un échantillon a été traité par implantation d'oxygène pour placer celui-ci dans un état de déséquilibre. Pour poursuivre, pour favoriser la formation d'une couche plus dense et pour mettre le système dans un état de déséquilibre, des dépôts par pulvérisation magnétron avec application d'une tension de polarisation sur le substrat à température de la pièce et 250°C ont été effectués. Finalement, la littérature suggère que des dépôts effectués par pulvérisation cathodique

magnétron pulsée à haute puissance (HiPIMS) permettait d'obtenir des couches d'une qualité supérieure, plus denses et plus relaxées. [8] En effet, cette méthode permet de déposer des ions plus énergétiques sur le substrat ce qui peut favoriser une réorganisation du dépôt dans une configuration énergétique plus basse. Les ions plus énergétiques permettent également de densifier la couche lorsqu'ils entrent en collision avec cette dernière. Cette technique de dépôt a donc été explorée.

Ce mémoire présentera donc, au chapitre 2 une courte introduction à la théorie associée aux méthodes de dépôts et des méthodes de caractérisation des matériaux utilisées pour cette recherche. Le troisième chapitre est constitué d'un article publié [9] détaillant l'influence de la température de dépôt sur les couches de Ta₂O₅. Par la suite, la méthodologie et les résultats des expériences supplémentaires qui ont été réalisées sont décrits. Lors des expériences supplémentaires, le recuit thermique rapide (RTA), la contrainte, la tension de polarisation du substrat et le HiPIMS ont été étudiés. Une discussion sur l'ensemble des résultats est faite afin de comparer l'influence de chaque paramètre modifié sur la qualité de couche déposée. Finalement, une conclusion est des perceptives de recherche sont présentés.

Chapitre 2

Concepts de bases et aperçu des techniques de synthèse et caractérisation

2.1. Théorème fluctuation dissipation

Il est observé que des particules dans un système à l'équilibre thermique ont un déplacement aléatoire (fluctuations) qu'on nomme mouvement brownien. Dans le cas spécifique de particules, les mêmes molécules qui donnent lieu à ces fluctuations, par collision, donnent lieu au ralentissement des particules qui ont acquis une certaine vitesse (dissipation) [10]. En d'autres termes, les fluctuations et la dissipation ont la même origine et sont donc intrinsèquement liées comme démontré par le théorème de fluctuation-dissipation [11]. Celui-ci décrit une relation entre les fluctuations et la dissipation interne au système. S'il y a de la dissipation, il y aura nécessairement des fluctuations associées. D'ici tire sa source le bruit thermique dans LIGO : la dissipation mécanique interne présente dans les matériaux qui constituent ses miroirs se traduit nécessairement en fluctuations mécaniques de leur surface. La relation est caractérisée par la partie réelle de l'impédance du système [10]. Dans le cadre des miroirs de LIGO perturbés par le faisceau laser cette relation s'exprime comme

$$S_x(f) = \frac{k_B T}{\pi^2 f^2} [Re[Y(f)]] \quad (2.1.1)$$

où S_x est la densité spectrale des fluctuations selon la fréquence f , k_B est la constante de Boltzman, T est la température et Y est l'admittance complexe soit l'inverse de l'impédance complexe.[12] Considérons le terme $Re[Y(f)]$. Celui-ci peut être exprimé comme relation entre la puissance dissipée dans le matériau, W_{diss} , et l'amplitude de la force oscillatoire appliquée à la surface, F_0 selon l'équation [12]

$$Re[Y(f)] = \frac{2W_{diss}}{F_0^2}. \quad (2.1.2)$$

Il faut maintenant caractériser la puissance dissipée. Pour faire cela, on introduit le concept de module de Young complexe tel que

$$E = E_0[1 + i\phi(F)] \quad (2.1.3)$$

où E est le module de Young complexe, E_0 est le module de Young réel et ϕ est l'angle de perte. Ce dernier caractérise l'ensemble de la friction dans un matériau provenant d'une atténuation homogène en fonction de la fréquence de celle-ci. [12] Sachant cela, on a que

$$W_{diss} = 2\pi f U_{max} \phi(f) \quad (2.1.4)$$

où U_{max} est l'énergie élastique de déformation maximale du matériau. En remplaçant dans l'équation 2.1.1 on a donc que [12]

$$S_x(f) = \frac{k_B T}{\pi^2 f^2} \times \frac{4\pi f U_{max} \phi(f)}{F_0^2}. \quad (2.1.5)$$

Le lien entre l'angle de perte et l'énergie dissipée dans le matériau est mis en évidence par cette équation. Ainsi, si l'angle de perte est réduit, la densité spectrale des fluctuations, $S_x(f)$, sera réduite d'autant, en vertu du théorème de fluctuation-dissipation.

2.2. Méthodes de dépôt

Lors de la conception de ce projet, il avait été décidé que les dépôts seraient faits par pulvérisation par double faisceau d'ions (Dual Ion Beam Sputtering (DIBS)). Cette méthode permet de pulvériser une cible à l'aide d'un faisceau d'ions qui éjecte des atomes ayant une grande énergie sur un substrat et de bombarder le dépôt avec un faisceau de dioxygène et d'argon pour obtenir une couche dense, pleinement oxygénée et relaxée. Il s'agit donc d'une méthode de dépôt très prometteuse pour obtenir des couches de pentoxyde de tantale ayant un faible angle de perte. Cette méthode de dépôt concorde également avec les intérêts de recherche de la collaboration de l'aLIGO puisque celle-ci utilisait principalement de la pulvérisation par faisceau d'ions (Ion Beam Sputtering (IBS)) pour faire ses couches de pentoxyde de tantale. Le DIBS serait donc une méthode favorable pour la collaboration puisqu'elle utilise le même principe que le IBS, mais en ajoutant un faisceau d'ions secondaire (dioxygène)

et donc plus d'énergie au système qui pourrait ainsi mieux se relaxer. Toutefois, l'appareil pouvant effectuer des dépôts DIBS devait être déménagé à la Polytechnique de Montréal avant de pouvoir être utilisé. Lors du déménagement, un bris du système d'exploitation de l'appareil a rendu l'utilisation de ce dernier impossible. Puisque des fonds très importants ainsi qu'une longue période de réparation seraient nécessaires pour que cet appareil soit utilisé à nouveau il n'a pas été possible de faire les dépôts par DIBS. Pour effectuer les dépôts nécessaires, plusieurs autres appareils ont été considérés. Pour être sélectionnée, l'installation doit permettre de faire des dépôts à haute température puisqu'il s'agit de l'objectif principal de cette recherche et doit produire des dépôts de bonne qualité denses et compactes, donc typiquement par pulvérisation plutôt que par évaporation, par exemple. Ainsi le système de dépôt CMS-18 appartenant au groupe de recherche de Ludvik Martinu à l'École Polytechnique de Montréal a été sélectionné pour ce projet puisqu'il répondait à ces critères. Ce système permet de faire des dépôts par pulvérisation cathodique magnétron (MS) et par pulvérisation cathodique magnétron pulsée à haute puissance (HiPIMS). En outre, une recherche précédente de ce groupe montrait que HiPIMS donnait des couches de meilleure qualité que IBS ou DIBS. [13] Pour le MS et le HiPIMS, ces méthodes utilisent un plasma confiné autour d'une cible de l'élément ou du composé que l'on souhaite déposer. Le plasma permet de pulvériser la cible et ainsi d'éjecter des ions ou des atomes de ce que l'on souhaite déposer. Ces particules sont projetées sur le substrat sur lequel elles se déposent. Considérons plus en détail ces méthodes qui ont été utilisées pour déposer des couches de Ta_2O_5 . Un schéma du système utilisé se trouve à la figure 2.1.

La figure 2.1 a) présente le système dans son ensemble. La chambre est initialement à basse pression de manière éviter de contaminer les dépôts et est augmentée lors des dépôts de manière à pouvoir entretenir le plasma. L'échantillon se trouve dans la partie supérieure de la chambre sur un porte-échantillon pouvant tourner sur lui-même. Cela permet d'améliorer l'uniformité angulaire, mais pas radiale. Un obturateur se situe devant l'échantillon et un autre se trouve devant le magnétron. Ceux-ci peuvent être glissés latéralement pour cacher l'échantillon lorsque l'on veut allumer le plasma sans effectuer de dépôt (lors d'une période de stabilisation par exemple). La chambre utilisée possède 4 magnétrons au fond de la chambre, mais seul un magnétron a été utilisé dans le cadre de ce projet. Le magnétron permet

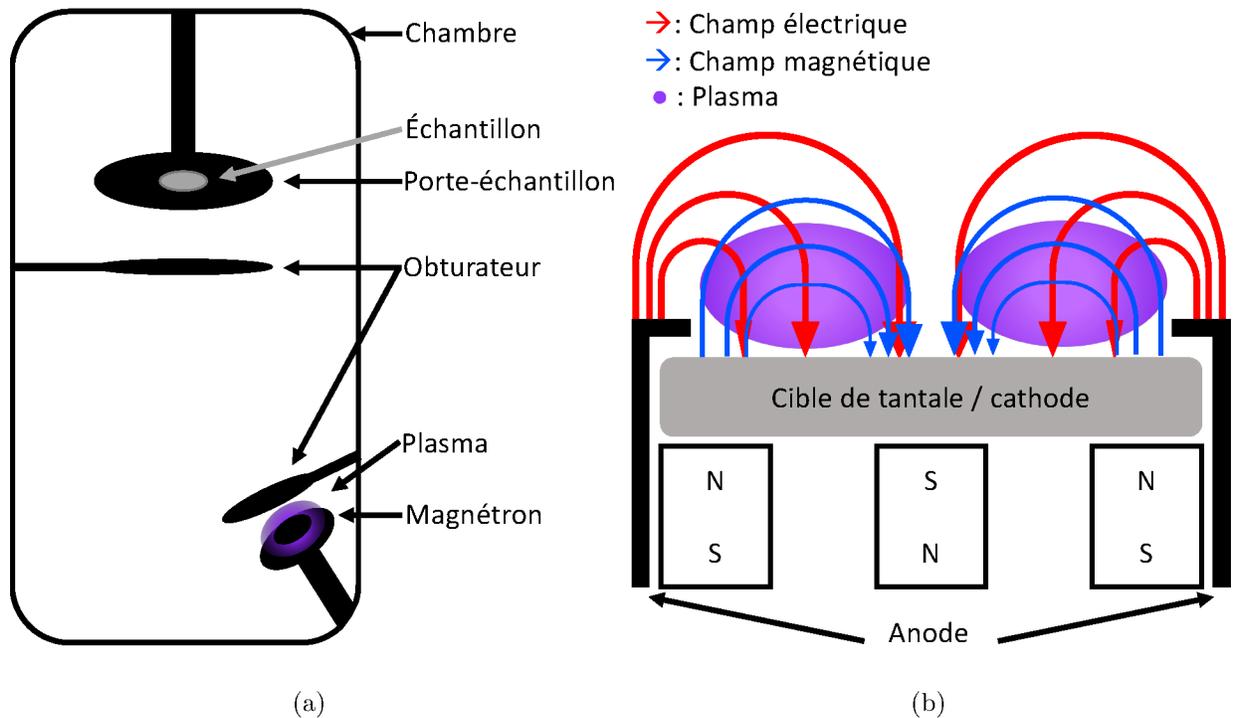


FIGURE 2.1 Schéma du système utilisé pour former les revêtements de Ta₂O₅. Le système permet d'effectuer des dépôts par MS ou par HIPIMS selon la source de courant utilisée. La figure a) présente l'ensemble de la chambre dans laquelle un vide partiel est fait. La figure b) illustre une vue transversale du magnétron et de son fonctionnement.

d'allumer et de confiner le plasma. Pour ce faire, deux parties sont essentielles. Premièrement, l'extérieur du magnétron agit comme anode et la cible, de tantale dans ce cas-ci, agit comme cathode lors de l'utilisation d'une source ayant un courant continu tel que décrite plus loin. Puisque ces deux électrodes ne sont pas en contact, lorsqu'une source de tension supérieure à la tension de claquage est appliquée sur celles-ci une décharge se forme si la pression dans la chambre est suffisamment élevée. De la décharge s'en suit une ionisation des atomes présents dans l'atmosphère de la chambre et un plasma se crée. Celui-ci est par la suite entretenu par la source de tension entre les électrodes qui forme maintenant un circuit fermé avec le plasma. Les lignes de champ électrique associées à ce système sont représentées par les flèches rouges sur la figure 2.1 b). La deuxième partie essentielle du magnétron est formé par deux aimants permanents concentriques se trouvant sous la cible. Ceux-ci ont des polarisations en alternance de manière à former un champ magnétique permanent représenté par les flèches bleues sur la figure 2.1 b). Notons ici que la figure présente une coupe transversale du

magnétron. Le champ magnétique complet a donc une forme toroïdal. Ce champ magnétique permet de confiner le plasma formé d'ions et d'électrons autour du magnétron. La surface négativement chargée de la cible attire les ions positifs qui pulvérisent celle-ci. Lors de la pulvérisation de la cible, des atomes de celle-ci sont éjectés et projetés sur l'ensemble de la chambre. Le flux d'atomes pulvérisés perpendiculairement à la surface, qui est par ailleurs orientée n'est toutefois pas uniforme et est plus importante vers l'échantillon pour maximiser le taux de dépôt. Dans le cadre de ce projet, un plasma d'oxygène et d'argon a été utilisé. De cette façon, les atomes de tantale éjectés de la cible peuvent se combiner à des ions d'oxygène dans le plasma ou à des molécules l'oxygène dans le gaz du reste de la chambre lorsqu'ils traversent ceux-ci avant de se déposer sur l'échantillon. Cela permet donc de déposer un oxyde de tantale en utilisant une cible de tantale pure. Des photos des plasmas confinés au-dessus du magnétron lors des dépôts de Ta_2O_5 se trouvent à la figure 2.2. Les figures a) et b) montrent respectivement des plasmas typiques pour des dépôts par MS et par HiPIMS. La différence de couleur entre les plasmas est due à une variation du ratio oxygène-argon dans la chambre pour les deux méthodes de dépôts et au fait que des ions de tantale sont présents dans le plasma lors de dépôt par HiPIMS. De plus, la figure b) illustre bien le tore formé par le champ magnétique décrit plus tôt qui se traduit en un anneau de plasma bleu.

Indépendamment du type de source utilisée, le plasma réactif est créé juste au-dessus de la cible lors d'un dépôt. Les ions positifs se trouvant dans le plasma sont attirés par la charge négative de la cible et percutent la cible de tantale. Le champ magnétique du magnétron quant à lui permet de confiner les électrons autour de la cible pour augmenter le taux de pulvérisation et donc également le taux de dépôt.

Considérons maintenant les différents types de sources de courant qui peuvent être appliqués entre l'anode et la cathode pour allumer et maintenir la décharge plasma dans la chambre. La première est en mode de courant continu (DC). Elle permet d'appliquer un champ électrique continu et fonctionne sur les cibles métalliques [14]. La deuxième est en mode de courant alternatif (RF). Cette source applique un champ électrique de polarisation alternante. Cela permet d'obtenir des électrons suffisamment énergétiques dans le plasma pour engendrer l'ionisation d'atomes et entretenir le plasma à une pression plus faible que lors de l'utilisation d'une source DC.[14] Aussi, les sources RF supérieures à 50 MHz ont

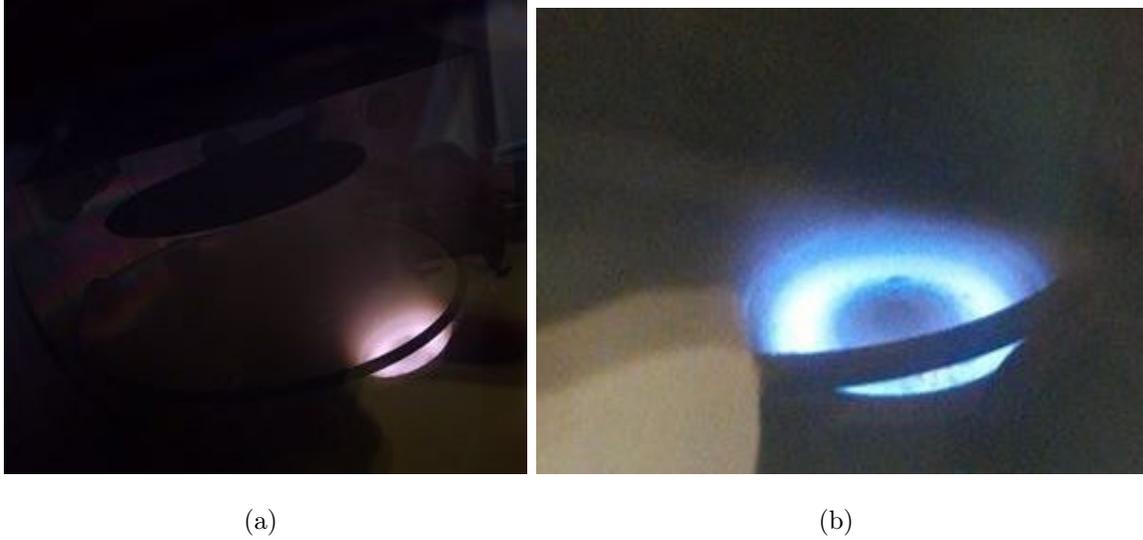


FIGURE 2.2 Photo du plasma confiné au-dessus du magnétron du CMS-18 lors du dépôt de Ta_2O_5 par MS, a), et par HiPIMS, b).

la particularité de pouvoir être couplées. Cela permet donc d'utiliser des cibles sans égard à leur conductivité électrique. [14] Dans le cadre de cette recherche, une source RF a été utilisée puisqu'elle permet de maintenir plus facilement la décharge pour les dépôts réactifs pour lesquelles la cible s'empoisonne (i.e. s'oxyde en surface et devient isolante en raison du bombardement d'oxygène présent dans la décharge). Aussi, il a été observé que pour une puissance constante appliquée par la source, le courant mesuré varie selon l'état de la cible du magnétron. Lors des expériences effectuées pour ce projet, une diminution de la tension supérieure à environ 20% indiquait que la cible était parsemée de débris ou dégradée par une utilisation prolongée et qu'elle devrait être nettoyée ou changée.

Il est également possible d'appliquer une tension de polarisation négative sur le porte-échantillon afin d'attirer les ions d'argon positifs vers celle-ci. Les ions d'argons peuvent alors transférer une partie de leur énergie aux atomes de la couche pour qu'ils se réorganisent. Cependant, si trop d'énergie est transmises aux ions d'argon, ceux-ci peuvent créer des défauts dans la couche ou pulvériser celle-ci, ce qui nuirait à la qualité du dépôt.

De plus, une source DC pulsée peut être utilisée pour faire de la pulvérisation cathodique magnétron pulsée à haute puissance (HiPIMS). Cette technique est caractérisée par de très courtes impulsions de tension de l'ordre de quelques centaines de microsecondes appliquées à une puissance moyenne de quelques centaines de watts sur la cible ce qui permet d'éjecter

de celle-ci un plus grand pourcentage de particules ionisées ayant une grande énergie et celles-ci peuvent même être ionisées plus d'une fois. Des particules plus énergétiques peuvent permettre d'obtenir un dépôt plus dense. Par contre, il peut être ardu de maintenir un plasma stable en milieu réactif en utilisant ce type d'impulsion puisqu'une couche d'oxyde peut se former sur la cible. Dans cette situation, la forte tension ne peut pas être maintenue et des arcs électriques se forment à la surface de la cible. Il est également fréquent d'observer la formation d'arcs électriques lorsque des débris tombent sur la cible. Lors de la formation d'arcs électriques, le courant mesuré sur la cible augmente de manière importante.

Une explication complète de la MS en milieu réactif se trouve aux références [14] et [15].

2.3. Angle de perte

L'angle de perte caractérise la dissipation mécanique et le bruit brownien comme nous l'avons vu à la section 2.1. De par ce fait, on peut le voir comme l'inverse du facteur de qualité d'un système résonnant et il décrit l'élargissement des pics de résonance d'un matériau, qu'on pense être relié à son état de relaxation. Pour mesurer l'angle de perte de disques de silice fondue sur lesquels le Ta_2O_5 est déposé, ceux-ci sont placés en équilibre stable sur une demi-sphère comme schématisée à la figure 2.3.

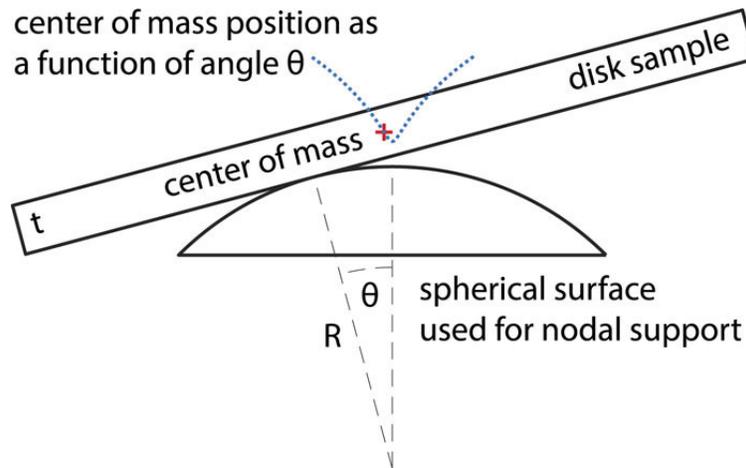


FIGURE 2.3 Schéma du système de suspension des disques. Un disque d'épaisseur t repose sur une surface sphérique de rayon R . La croix orange indique la position du centre de masse et l'angle θ indique l'inclinaison du disque. La ligne bleue indique la position du centre de masse en fonction de l'inclinaison de manière à prouver que le disque est en équilibre stable. Les dimensions ne sont pas à l'échelle. [16]

Un laser est réfléchi à la surface de celui-ci et les modes de résonance du disque sont excités à l'aide d'un dispositif d'entraînement électrostatique sans contact (une antenne). À l'aide de la réflexion du laser, l'amplitude de la désexcitation est mesurée en fonction du temps. Un exemple de la courbe obtenue se trouve à la figure 2.4.

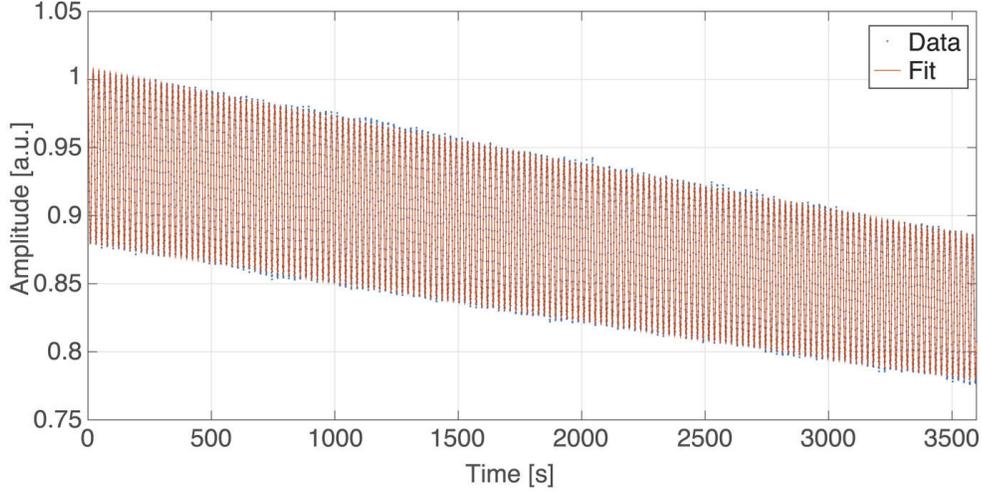


FIGURE 2.4 Exemple de signal mesuré lors de la désexcitation d'un mode de résonance d'un disque en équilibre stable sur une surface sphérique. La courbe pointillée bleue indique les données expérimentales et la courbe pleine rouge indique la courbe ajustée obtenue. [16]

Grâce à cette courbe d'amplitude, l'angle de perte total de l'échantillon peut être trouvé à l'aide de l'équation

$$A(t) = A(0)e^{-t\pi f\phi_{total}} \quad (2.3.1)$$

où $A(t)$ est l'amplitude au temps t , f est la fréquence et ϕ_{total} est l'angle de perte total de l'échantillon. On remarque que puisque l'angle de perte, lié à la dissipation, est le même pour toutes les fréquences, l'amplitude des modes à plus haute fréquence diminue plus rapidement. On se sert de cela pour vérifier si les mesures de ϕ_{total} sont bonnes. Pour isoler la contribution du revêtement, on utilise l'équation

$$\phi_{total}^{(i)} = D^{(i)}\phi_{revetement}^{(i)} + (1 - D^{(i)})\phi_{substrat}^{(i)} \quad (2.3.2)$$

où i réfère aux valeurs propres à chaque fréquence de résonance et D est le facteur de dilution de l'échantillon. Le facteur de dilution permet de caractériser l'énergie élastique absorbée dans le revêtement par rapport à celle entreposée dans le substrat et est défini comme

$$D = \frac{K_{\text{revetement}}}{K_{\text{revetement}} + K_{\text{substrat}}} \quad (2.3.3)$$

où K est l'énergie élastique. Ce facteur peut être déterminé par analyse d'éléments finis. Grâce à cela, il est possible de déterminer que dans le cadre de ce projet le facteur de dilution s'exprime comme

$$D = \frac{E_{\text{substrat}} \times t_{\text{substrat}}}{3E_{\text{revetement}} \times t_{\text{revetement}}} \quad (2.3.4)$$

où E est le module de Young et t l'épaisseur.

Ainsi, comme le montre l'équation 2.3.2, il faut connaître l'angle de perte du substrat pour pouvoir extraire l'angle de perte du revêtement. Pour cette raison, tous les substrats sont caractérisés avant le dépôt.

Une description plus détaillée de l'angle de perte et de la façon dont celui-ci est mesuré se retrouve à la référence [3].

2.4. Ellipsométrie spectralement résolue

Cette méthode de caractérisation des matériaux utilise la polarisation de la lumière pour trouver l'indice de réfraction, le coefficient d'extinction et l'épaisseur d'un échantillon. Concrètement, un faisceau de lumière polychromatique ayant une polarisation connue est envoyé sur l'échantillon. Cette caractéristique est modifiée suite à leur interaction avec le matériau et la variation du ratio d'amplitude, Ψ , et la différence de phase, Δ , entre la polarisation p et s du faisceau sont mesurées suite à la réflexion sur l'échantillon comme le montre la figure 2.5.

À partir de ces informations, on peut extraire le rapport d'intensité du faisceau

$$\tan(\Psi(\lambda))e^{i\Delta(\lambda)} = \frac{\widetilde{R}_p(\lambda)}{\widetilde{R}_s(\lambda)} = \rho(\lambda) \quad (2.4.1)$$

où Ψ , est la variation du ratio d'amplitude des polarisation p et s, Δ est la différence de phase entre les polarisation p et s, \widetilde{R}_p est l'intensité du faisceau dans le plan perpendiculaire à l'échantillon, \widetilde{R}_s dans le plan parallèle, ρ est le rapport d'intensité et l'ensemble de ces

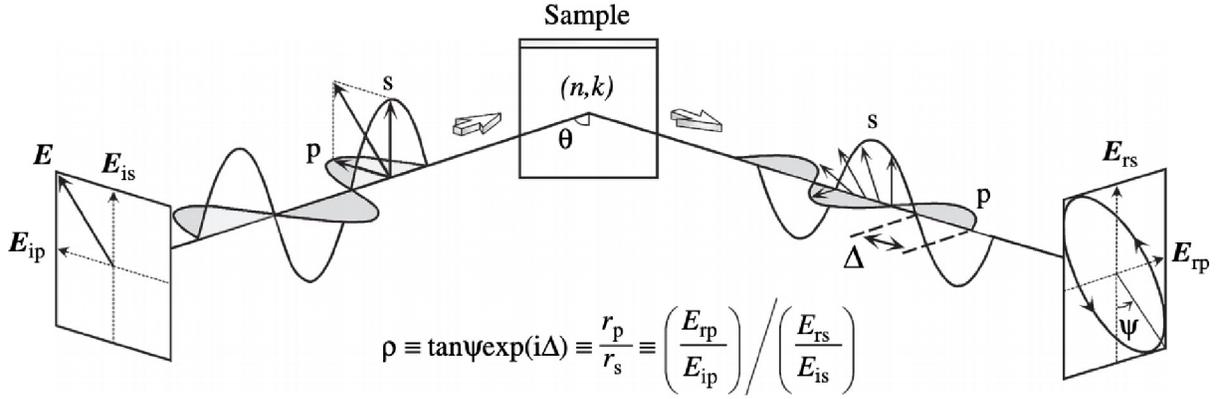


FIGURE 2.5 Schéma indiquant la modification de la polarisation de la lumière lors de l'interaction de celle-ci avec un matériau. La lumière a initialement une polarisation linéaire (gauche) elle a donc des composantes égales dans les plan s et p. Par la suite, le faisceau de lumière est réfléchi sur l'échantillon sur lequel un revêtement ayant un indice de réfraction n et un coefficient d'absorption k est déposé. Le parcours de la lumière dans l'échantillon dépend de l'indice de réfraction complexe et de l'épaisseur de ce dernier. Ainsi, la variation de distance parcourus par la lumière dans l'échantillon engendre une modification de la polarisation de la lumière qui devient elliptique (droite). [17]

paramètres dépendent de la longueur d'onde λ . Il est utile de connaître le rapport d'intensité puisque celui-ci permet de trouver l'indice de réfraction complexe. Pour un revêtement sur un substrat semi-infini,

$$\frac{\tilde{n}_1(\lambda)}{\tilde{n}_0(\lambda)} = \sin(\theta) \left[1 + \left(\frac{1 - \rho(\lambda)}{1 + \rho(\lambda)} \right)^2 \tan^2 \theta \right]^{\frac{1}{2}} \quad (2.4.2)$$

où \tilde{n}_1 et \tilde{n}_0 sont respectivement les indices de réfraction complexes du substrat et du revêtement et θ est l'angle entre la source et la normale de l'échantillon. Ainsi, un modèle optique des indices de réfraction complexes est construit et ajusté de manière à reproduire les courbes expérimentales de Ψ et Δ en utilisant les équations 2.4.1 et 2.4.2. Notons que pour obtenir une meilleure précision sur le coefficient d'extinction, une mesure de transmission peut également être effectuée. Pour trouver l'épaisseur du revêtement, on utilise l'interférence créée par la différence de parcours des réflexions du faisceau aux différentes interfaces comme le montre la figure 2.6.

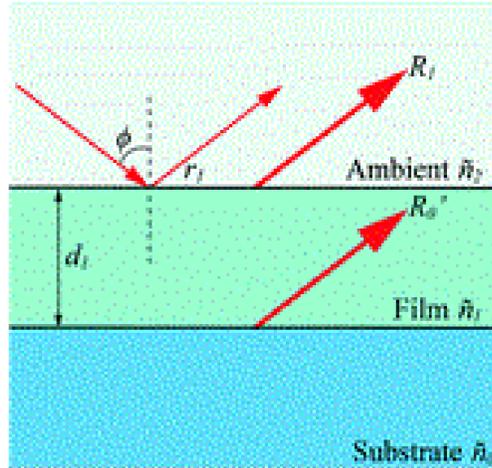


FIGURE 2.6 Schéma des réflexions multiples lors d'une mesure d'ellipsométrie [18]

Dans les faits, puisque l'épaisseur de la couche ne dépend pas de la fréquence, il est possible d'isoler ce paramètre lors de la construction du modèle. Si un faisceau monochromatique avait été utilisé, on n'aurait pu déterminer que le modulo de l'épaisseur, car des couches présentant un chemin optique plus long d'un nombre entier de longueurs d'onde donnent le même signal. Pour plus d'informations sur cette technique, les sources [18] chapitre 100 et [17] peuvent être consultées.

2.5. RBS et ERD

La spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford (RBS) est une méthode utilisée pour déterminer la composition et la densité surfacique en atomes/cm² d'un échantillon. Pour ce faire, un accélérateur de particules est utilisé pour générer un faisceau d'ions, typiquement de ${}^4\text{He}^+$, de quelques MeV. Ce faisceau est dirigé vers l'échantillon étudié et les ions accélérés entrent en collision élastique avec les atomes de l'échantillon. Puisque les ions d'hélium sont très légers, ils sont rétrodiffusés lors de la collision. Dans ce système les collisions sont élastiques, ainsi l'énergie de la particule rétrodiffusée dépend de la masse de l'atome impliqué lors de la collision. De plus, les ions ralentissent par collisions inélastiques (ionisations) à un taux connu, ce qui permet de déterminer à quelle profondeur ont eu lieu les collisions. Ainsi, sachant l'angle auquel l'ion est rétrodiffusé il est possible de retrouver la masse de l'atome percuté selon la profondeur dans l'échantillon. En accumulant une grande quantité de collisions, il est alors possible de reconstruire la composition de l'échantillon par couche

et la densité surfacique de chacune de celles-ci. Toutefois, cette technique ne permet pas de détecter l'hydrogène puisque cet élément est plus léger que l'hélium. Pour établir la concentration en hydrogène dans un matériau, on utilise plutôt la détection des reculs élastiques (ERD). Cette technique utilise le même principe que le RBS, mais cette fois-ci, le faisceau d'ions d'hélium est envoyé à angle rasant sur l'échantillon. Lors d'une collision entre un ion d'hélium et un atome d'hydrogène, l'atome d'hydrogène peut être éjecté du matériau et mesuré directement par le détecteur. De cette façon, il est possible de trouver la concentration en hydrogène dans le matériau. Notons que lors de cette mesure il est essentiel de mettre des couches de Mylar devant le détecteur pour bloquer les ions d'hélium rétrodiffusés. Si cela n'est pas fait, le signal de l'hydrogène sera trop faible comparativement à celui de l'hélium pour être mesuré. Une description plus détaillée de ces méthodes se trouve aux références [19] et [18] chapitres 12 et 87.

2.6. Contrainte

Pour déterminer la contrainte dans les couches déposées, un profilomètre optique est utilisé. Cet instrument utilise un laser séparé en deux faisceaux. La première composante balaye la surface de l'échantillon avant d'être recombinaée à la deuxième composante pour former un patron d'interférence. À partir de celui-ci il est possible d'extraire la variation de distance parcourue par les faisceaux en chaque point et donc la courbure de l'échantillon. Cette mesure est effectuée sur les échantillons avant et après le dépôt de la couche. Par la suite, en utilisant l'équation de Stoney présentée à l'équation

$$\sigma = \frac{E_s}{6(1 - \nu_s)} \frac{h_s^2}{h_f} \left(\frac{1}{R} - \frac{1}{R_0} \right) \quad (2.6.1)$$

où E_s , ν_s et h_s sont respectivement le module de Young, le coefficient de Poisson et l'épaisseur du substrat, h_f est l'épaisseur du dépôt, R_0 est le rayon de courbure de l'échantillon avant le dépôt et R est le rayon de courbure après le dépôt, il est facile de déterminer la contrainte dans la couche. Cette méthode est présentée plus exhaustivement à la référence [20].

2.7. Spectroscopie Raman

La spectroscopie Raman est utilisée pour déterminer le degré de relaxation des matériaux. Mentionnons que pour un matériau cristallin donc avec une grande symétrie, les règles de

sélection d'excitation des modes sont très strictes et les modes d'excitation sont délocalisés. Inversement, pour un matériau amorphe, puisque les distances et angles interatomiques varient, il n'est plus possible d'avoir un comportement collectif et les modes d'excitation sont localisés dans le matériau. Les règles de sélection d'excitation sont donc beaucoup plus relâchées, et donnent lieu à des pics Raman beaucoup plus larges. Aussi, plus un matériau est loin de son état relaxé, plus les distorsions d'angles et de distances interatomiques mèneront à une brisure des règles de symétrie et à un élargissement des pics Raman. La dilatation des raies est donc reliée au niveau de désordre dans le matériau et par le fait même à son niveau de relaxation. C'est, par exemple, le cas pour le silicium amorphe. [21, 22] Pour mesurer la largeur des pics Raman et donc le degré de relaxation, un faisceau laser est envoyé sur l'échantillon étudié et les photons diffusés sont détectés. Lors du processus de diffusion, les photons modifient le nuage électronique des atomes et polarisent celui-ci. Cette polarisation permet de créer des états instables qui se désexcitent rapidement. Lors de la désexcitation un photon est émis. Lors d'une diffusion Raman, cette collision est inélastique ce qui signifie que le photon incident et celui émis n'ont pas la même énergie. Deux situations sont possibles. Pour la première, une partie de l'énergie du photon incident est transférée à un phonon du matériau et donc l'énergie finale du photon est inférieure à l'énergie initiale. Dans ce cas, une raie Stokes apparaît. Pour la deuxième situation, grâce aux vibrations thermiques, le phonon du matériau est déjà excité et transfère une partie de son énergie vibrationnelle au photon final. Ce dernier a donc une énergie supérieure au photon initial et une raie anti-Stokes est observée. Pour une description détaillée de cette méthode les références [23] et [24] peuvent être consultées.

2.8. XRD

La diffraction de rayons X (XRD) permet de caractériser la structure atomique d'un matériau. Considérons d'abord le cas d'un cristal. Pour ce type de matériau, les atomes sont parfaitement ordonnés et forment des plans. Lorsqu'un faisceau de rayons X est envoyé sur le matériau, il est diffracté par les atomes. La lumière réfléchiée forme un patron de diffraction ayant des pics étroits suivant la loi de Bragg : $2d \sin \theta = n\lambda$ où d est la distance interplanaire du matériau, θ est l'angle de réflexion par rapport à la surface, n est l'ordre de réflexion et λ est la longueur d'onde du faisceau. Typiquement lors d'une mesure XRD,

l'intensité de la lumière réfléchi est mesurée en fonction de l'angle de diffraction soit 2θ . Puisque l'intensité du spectre mesurée est nulle sauf lorsque la loi de Bragg est respectée, il est possible de trouver la distance interplanaire et ainsi de caractériser la structure du matériau étudié. Dans le cas d'un matériau amorphe, puisque la distance interplanaire n'est pas constante, les pics de diffraction sont élargis. Il est donc possible de décrire le degré de relaxation du matériau selon la largeur des pics. Ainsi, pour le Ta_2O_5 amorphe étudié ici, le XRD permet de déterminer le degré d'ordre du matériau à l'échelle de quelques angstroms. Pour une introduction plus complète à cette technique, les références [25] et [26] peuvent être consultées.

2.9. Nano-indentation

La nano-indentation est une technique permettant d'obtenir des propriétés mécaniques de couches minces telles que la dureté et le module de Young car c'est un paramètre important pour la détermination de l'angle de perte. Ici, nous porterons notre attention sur le module de Young. Pour mesurer celui-ci, une pointe de diamant de géométrie Berkovich est utilisée. Celle-ci est appuyée sur l'échantillon et applique une force de l'ordre du milinewton pour créer un trou ayant une profondeur de l'ordre du μm . Tout au long de l'application de la force, la profondeur de pénétration est mesurée. Lors du chargement de la force, une déformation élastique est d'abord créée puis une déformation plastique s'en suit. Par la suite, lors du relâchement graduel de la force seule le déplacement causé par une déformation élastique est retiré de la profondeur de pénétration. La courbe utile est celle de la profondeur de pénétration de la pointe en fonction de la force appliquée lors du déchargement qui rend compte du comportement élastique du matériau. La pente de la partie supérieure de celle-ci est inversement proportionnelle au module de Young de l'échantillon. Les équations exactes permettant d'extraire le module de Young à partir de la pente et plus d'information quant à la nano-indentation se retrouvent aux références [27] et [28]

Chapitre 3

Article

Cet article présente les résultats d'une étude portant sur l'impact de la température du substrat lors d'un dépôt de pentoxyde de tantale. Plus précisément, l'objectif était de déterminer si, tout comme pour le silicium amorphe,[7] une température de dépôt élevée permettait d'obtenir des revêtements dans une configuration d'énergie plus basse et donc ayant un meilleur facteur de qualité. [7]

Pour ce faire, des couches de pentoxyde de tantale ont été déposées par MS et pulvérisation par faisceau d'ions (IBS) respectivement sur des disques et sur des porte-à-faux de silice fondue. Les substrats étaient à des températures allant de 50 °C à 500 °C lors des dépôts. Une fois que ces derniers ont été complétés, les échantillons ont subi une succession de recuits à haute température. La composition des échantillons a été établie par RBS ce qui a permis de savoir que tous les dépôts étaient stoechiométriques et que des faibles concentrations d'argon et d'hydrogène étaient présentes. L'indice de réfraction et l'épaisseur ont été obtenus par ellipsométrie. Le facteur de qualité des couches de pentoxyde de tantale a été caractérisé en mesurant l'angle de perte. Pour les échantillons déposés par MS et par IBS, il a été observé que l'angle de perte diminue en fonction de la température de dépôt jusqu'à ce que cette dernière atteigne 250 °C. Cependant, cette amélioration n'est pas conservée après le recuit des échantillons. Effectivement, l'angle de perte n'est plus dépendant de la température de dépôt dans ces conditions. Il est cependant important de noter que l'échantillon déposé à 200 °C présente un angle de perte particulièrement bas après recuit. Cela pourrait être dû au fait que le taux de dépôt était très bas pour cet

échantillon et il serait intéressant d'explorer cette avenue plus rigoureusement.

Finalement, pour caractériser la structure atomique de l'ordre de 0.5 à 5 nm du matériau des analyses par spectroscopie Raman et par XRD ont été réalisées. Grâce à cela, il a été montré qu'il n'existe qu'une faible corrélation entre la largeur et la position du pic principal associé au Ta_2O_5 de ces deux techniques de mesure et la température de dépôt. Par contre, il a été établi que les pics associés au pentoxyde de tantale pour chaque spectre devenaient plus étroits après le recuit des échantillons. Somme toute, cet article conclut que la température de dépôt n'a pas d'impact important sur le facteur de qualité des couches de pentoxyde de tantale après que ces dernières aient été recuites. De par ce fait, bien que des dépôts à 250 °C pourraient favoriser la relaxation du matériau, d'autres avenues doivent être explorées pour que l'angle de perte des couches de pentoxyde de tantale devienne inférieur à 1×10^{-4} rad tel que désiré.

Mon travail ne représente qu'une partie des résultats présentés dans l'article. Ainsi, dans le cadre de ma contribution, j'ai effectué les dépôts par MS, j'ai procédé à la mesure des spectres Raman et fait l'analyse de ceux-ci avec l'aide de Louis Godbout. De plus, j'ai obtenu et analysé les données d'ellipsométrie spectrale pour tous les échantillons déposés par MS ce qui a permis d'établir l'indice de réfraction et l'épaisseur de ces échantillons. Finalement, j'ai caractérisé la composition et la densité des échantillons par RBS en collaboration avec Romane Asselin. L'article en question, publié dans *Classical and Quantum Gravity* le 28 février 2018, est présenté ci-dessous.

Premier article.

Effect of elevated substrate temperature deposition on the mechanical losses in tantala thin film coatings

par

G. Vajente¹, R. Birney^{2,3}, A. Ananyeva¹, S. Angelova^{2,3}, R. Asselin⁷, B. Baloukas⁴, R. Bassiri⁵, G. Billingsley¹, M. M. Fejer⁵, D. Gibson³, L. J. Godbout⁷, E. Gustafson¹, A. Heptonstall¹, J. Hough⁸, S. MacFoy^{2,3}, A. Markosyan⁵, I. W. Martin⁸, L. Martinu⁴, P. G. Murray⁸, S. Penn⁶, S. Roorda⁷, S. Rowan⁸, F. Schiettekatte⁷, R. Shink⁷, C. Torrie¹, D. Vine³, S. Reid^{2,3}, R. X. Adhikari¹¹

- (¹) LIGO Laboratory, California Institute of Technology, Pasadena (CA) USA
- (²) SUPA, Department of Biomedical Engineering, University of Strathclyde, UK
- (³) SUPA, Institute of Thin Films, Sensors and Imaging, University of the West of Scotland, Paisley, UK
- (⁴) École Polytechnique de Montréal, Montréal, Quebec, Canada
- (⁵) Stanford University, Stanford (CA) USA
- (⁶) Hobart and William Smith Colleges, Geneva (NY) USA
- (⁷) Université de Montréal, Montréal, Quebec, Canada
- (⁸) SUPA, Institute for Gravitational Research, University of Glasgow, Glasgow, UK.

Cet article a été publié dans la revue Classical and Quantum Gravity.

RÉSUMÉ. La sensibilité des détecteurs d'ondes gravitationnelles actuels et futurs est limitée par le bruit thermique brownien des revêtements multicouches diélectriques. Dans cette étude, nous explorons la possibilité d'améliorer les pertes mécaniques du pentoxyde de tantale, souvent utilisé comme le matériau ayant un indice de réfraction élevé, en le déposant sur un substrat maintenu à haute température. Dans le passé, cette technique a permis d'obtenir des résultats prometteurs pour le silicium amorphe. Dans cet article, nous montrons que la déposition de pentoxyde de tantale sur un substrat à haute température permet de réduire les pertes mécaniques des revêtements. Toutefois, les traitements thermiques effectués après la déposition ont une influence plus importante et réduisent les pertes mécaniques au niveau précédemment reporté dans la littérature. À l'aide de la diffraction de rayons X et de la spectroscopie Raman, nous montrons également que la réduction des pertes mécaniques est corrélée à l'augmentation de l'ordre dans la structure atomique à une échelle moyenne. Finalement, une discussion des résultats est incluse. Celle-ci montre que la déposition à haute température des revêtements de pentoxyde de tantale ne semble pas réduire les pertes mécaniques comme rapporté dans la littérature pour le silicium amorphe. Nous suggérons également des avenues de recherche pour le futur.

Mots clés : revêtements diélectriques, pentoxyde de tantale, détecteur d'ondes gravitationnelles, bruit thermique, pulvérisation par faisceau d'ions, pulvérisation cathodique magnétron

ABSTRACT. Brownian thermal noise in dielectric multilayer coatings limits the sensitivity of current and future interferometric gravitational wave detectors. In this work we explore the possibility of improving the mechanical losses of tantala, often used as the high refractive index material, by depositing it on a substrate held at elevated temperature. Promising results have been previously obtained with this technique when applied to amorphous silicon. We show that depositing tantala on a hot substrate reduced the mechanical losses of the as-deposited coating, but subsequent thermal treatments had a larger impact, as it reduced the losses to levels previously reported in literature. We also show that the reduction in mechanical loss correlates with increased medium range order in the atomic structure of the coatings using x-ray diffraction and Raman spectroscopy.

Finally, a discussion is included on our results, which shows that the elevated temperature deposition of pure tantala coatings does not appear to reduce mechanical loss in a similar way to that reported in the literature for amorphous silicon; and we suggest possible future research directions.

Keywords: dielectric coatings, tantala, gravitational wave detectors, thermal noise, ion-beam sputtering, magnetron sputtering

1. Introduction

The recent detections of gravitational wave signals from the coalescence of black holes [29, 30, 31, 32] and neutron stars [33] opened a new era in astronomy, and renewed the interest in the design and development of techniques to improve the sensitivity of the present generation of gravitational wave detectors such as Advanced LIGO [34], Advanced Virgo [35] and KAGRA [36].

The design sensitivity of Advanced LIGO is limited, in its most sensitive frequency range (20-300 Hz), by an equal contribution of quantum noise and thermal noise [34]. The dominant contribution to thermal noise is due to Brownian motion of the highly reflective, multilayer dielectric coatings deposited on the surfaces of the interferometer test masses [5]. Therefore, to further improve the sensitivity of the detectors in the present facilities, it is necessary to reduce the coating Brownian noise [37].

The Advanced LIGO high reflectivity multilayer coatings use alternating layers of silica (SiO_2) and titania-doped tantala ($\text{TiO}_2\text{-Ta}_2\text{O}_5$) [38, 6], where silica is the low refractive index material and titania-doped-tantala is the high refractive index material. The dominant contribution to the coating thermal noise comes from Brownian motion, which is directly related to the internal mechanical losses of the two materials [39, 40, 41]. In the state-of-the-art ion-beam-sputtered coatings used today, the measured mechanical loss angle for silica is 4×10^{-5} radians [42, 6], while for doped tantala it is 2.4×10^{-4} radians [38, 43]. Thus, the titania-doped-tantala layers are the dominant source of thermal noise.

There are many approaches under development to reduce the coating thermal noise: crystalline coatings [44], employing different materials and doping [45], or using different deposition and heat treatment techniques [46]. The goal for a medium term upgrade of Advanced LIGO (called Advanced LIGO+ [37]) is to improve the sensitivity by a factor of about two. This corresponds to a reduction of mechanical loss in the coating by a factor of four. For coatings of the dimensions needed for the Advanced LIGO core optics, no single approach has, as of today, provided a viable method to reduce mechanical losses by this factor.

In this work we discuss the exploration of one promising technique to deposit low loss coatings, by heating the substrate during the deposition process. It has been known for some time that post-deposition annealing reduces mechanical losses [46]. Recently, experimental

studies performed with amorphous silicon [7] showed a reduction of 2-3 orders of magnitude in the mechanical losses, by depositing the thin film on a substrate heated to about 85% of the glass transition temperature. Similar results were obtained with different deposition techniques and materials [47]. Keeping the substrate at an elevated temperature increases the mobility of the atoms incident on the surface, which results in a more stable glass [48] and a reduced density of two-level tunnelling states [49, 50]; factors which have been shown to be correlated with mechanical losses in amorphous thin films. We should note here that post-deposition annealing at high temperature also allows an exploration of the energy landscape and a reduction of the mechanical losses. However, both theoretical arguments and experimental results indicate that an elevated temperature during deposition allow a larger set of degrees of freedom to be explored by each atom that hits the surface, before being buried by the following layers.

We focused our first experimental efforts on the study of thin films made of un-doped tantalum pentoxide (tantala). The lowest mechanical loss angle measured on thin films of this material after a post-deposition heat treatment is in the range 2.6×10^{-4} to 4.7×10^{-4} radians, depending on the deposition conditions [43, 51, 52, 53, 54, 55]. In this work we explored elevated temperature deposition using two different techniques that were readily available to us: magnetron sputtering and ion-beam sputtering [56].

Section 2 describes in detail both deposition techniques, as well as the substrates that were used. Section 3 describes the post-deposition heat treatment which was performed (annealing). Section 4 briefly describes the techniques used to measure the mechanical losses. Section 5 discusses the results of the measurements and Section 7 describes the structural studies that were carried out to try to understand the evolution of the coatings' microscopic structure.

2. Deposition techniques

We deposited undoped tantalum pentoxide thin films using two different techniques and substrates.

2.1. Magnetron sputtering deposition

A first set of depositions consisted of 1- μ m-thick layers of tantalum, deposited using magnetron sputtering (MS) [56], on a fused silica disk (Corning 7980), 75 mm in diameter and 1-mm-thick. The depositions were carried out at the École Polytechnique de Montréal and the Université de Montréal. The surfaces of the disk were polished, while the edge of the disk was simply ground. It has been shown that mechanical losses in fused silica substrates are limited by the surfaces that are not polished [57]. The disks have two flat cuts on opposite sides, to break the degeneracy of the resonant modes. The measurable vibrational modes of the disks had frequencies between 1.1 kHz and 30 KHz. The substrates were heat treated for 9 hours at 900°C in air before deposition. This step ensures that all the substrates have an equivalent low mechanical loss angle, and that residual stresses due to the machining process are reduced [58].

A total of 12 disk samples were coated using magnetron sputtering: four at room temperature (in reality approximately 50°C, due to the substrate heating up from the deposition process), and two disks at each of the following temperatures: 150°C, 250°C, 400°C and 480°C.

The magnetron-sputtered tantalum pentoxide films were deposited in a high vacuum CMS-18 process chamber built by Kurt J. Lesker Co. Ltd, equipped with a 7.62 cm diameter tantalum target of 99.95% purity located \sim 25 cm beneath the substrate holder. Prior to deposition, the base pressure was below 10^{-7} Torr.

The 1-mm-thick fused-silica substrates were installed one at a time on a 15-cm-diameter rotating stainless steel holder, designed with a 7.62-cm-diameter hole in the middle, and supported at the edges by a 1-mm ledge. A 3-mm-thick Macor[®] puck of the same diameter as the substrate was placed on its backside and thus directly exposed to the halogen heating lamps positioned above the substrate holder. The high emissivity of Macor[®] (0.93 according to [59]) helped increase mid-infrared radiation in order to reach the highest temperature of 480°C. The surface temperature of the substrates was pre-calibrated by installing a thermocouple in direct contact with a substrate's surface before the deposition. The thermocouple was not installed during the actual deposition.

Each deposition run began by setting the desired temperature, increasing it at a rate of 5°C/min and allowing it to stabilize for 30 minutes once reached. The sample was then

subjected to a radio-frequency plasma cleaning procedure for 10 minutes in an Ar and O₂ gas mixture (2:1 Ar to O₂ ratio) at a pressure of 8 mTorr and a bias voltage between 90 and 100 V (the discharge power was maintained between 6 and 8 W). The tantalum target was then precleaned for 3 minutes in a pure Ar plasma at a discharge power of 440 W. Oxygen was then introduced into the chamber (60% O₂:Ar ratio at a pressure of 2 mTorr) and the discharge allowed to stabilize for 20 minutes to ensure steady-state conditions (bias cathode voltage of approximately -210 V). The main shutter was then opened and the film deposition started. It is important to note that the process itself typically heats the sample by 30 to 40°C when depositing at room temperature; this temperature increase is expected to be smaller for samples heated to higher temperatures. The deposition time was kept constant for all samples and the deposition rate was seen to decrease from 2.27 Å/s to 2.07 Å/s as the temperature was increased. Following the deposition, the samples were cooled down to room temperature at a rate of 10°C/min.

Rutherford backscattering spectrometry (RBS) confirms the expected stoichiometry of the films, and reveals the presence of Ar and H impurities at levels of 3% and 1.5% respectively. By combining RBS and ellipsometry measurements, we found the average density of the layers produced by MS to be $(7.5 \pm 0.3) \times 10^{22}$ atoms/cm³. The combined uncertainty on the RBS and ellipsometry measurements did not allow us to find a correlation between the density and the loss angle or X-ray diffraction peak width (see also Section 7). The refractive index of the tantala layer has also been measured. For all samples, except the one deposited at the highest temperature (480°C), the refractive index is 2.14 ± 0.01 . The sample deposited at 480°C instead has a refractive index of 2.24 ± 0.01 , however this sample showed signs of crystallization (see also Section 7).

2.2. Ion beam sputtering deposition

A further set of depositions consisted of ~0.5-μm-thick layers of tantala, deposited using ion beam sputtering (IBS) [56], on fused silica cantilevers. The depositions were carried out at SUPA, Institute of Thin Films, Sensors and Imaging, University of the West of Scotland. The samples were fabricated by dicing ~ 150-μm-thick fused silica wafers (JGS1 material, 100-mm-diameter) into 45-mm-long strips, 5-mm-wide. These were then flame welded to a 3.1-mm-thick clamping block, of the same silica material, with area 10 × 10 mm², using

a hydrogen-oxygen flame, on the 5 mm edge. The cantilevers were subsequently placed in boiling H_2O_2 (30 % w/w in H_2O) with 1 mol/l KOH dissolved, in order to clean the sample surface and to remove silica particulates associated with the welding process. Finally, the samples were annealed at 900°C in air for 1 hour. Further high temperature annealing did not change the substrate mechanical losses. The measurable vibrational modes of the cantilevers were between ~ 300 Hz and ~ 11 kHz.

A set of 5 cantilevers were coated by sputtering from a circular 4" diameter pure tantalum metal target of 0.125" thickness, purity 99.9% (Pi-Kem, UK), at room temperature and at elevated temperatures 100°C , 200°C , 300°C and 400°C . A further set of 6 cantilevers were then coated by sputtering from a 4" pure tantalum pentoxide target (Pi-Kem, UK), purity 99.99%, at room temperature and at elevated temperatures 100°C , 200°C , 300°C , 400°C and 500°C (the maximum possible with the current setup). Additional JGS1 silica witness samples, of 20 mm diameter and 0.5 mm thickness, for optical and structural characterization, were coated in separate deposition runs using nominally identical conditions.

The IBS system was custom-built and uses a single electron cyclotron resonance (ECR) ion source developed by Polygon Physics [60], as shown in Figure 3.1. The source uses a small $\lambda/4$ microwave (2.4 GHz) cavity, which is held at 11.7 kV in order to extract argon ions through a single aperture, which are focused into a near-parallel beam using electrostatic optics placed in front of the ECR cavity. The deposition system was specifically developed to be more flexible than standard (typically RF) ion beam sputtering, in addition to being potentially 'cleaner' due to the gridless extraction of the ions. However, the ion current is very low, typically in the range of $\sim 0.2 \rightarrow 0.5$ mA, which limits the deposition rate in this geometry to within a range of $1 \rightarrow 10$ Å/min. The base vacuum pressure was around 0.8×10^{-6} Torr or better prior to deposition, with the pressure rising to 6×10^{-5} Torr when injecting the required level of argon into the plasma cavity; finally increasing to 9×10^{-5} Torr once the reactive oxygen gas was fed into the chamber (introduced directly above the substrates being coated).

The temperature during deposition was monitored on the copper substrate holder, with calibration runs conducted by gluing PT100 resistance thermometers to silica cantilevers under identical conditions (the correction of the cantilever temperature with respect to the substrate holder was typically $20 \rightarrow 40$ °C, depending on deposition temperature). As with

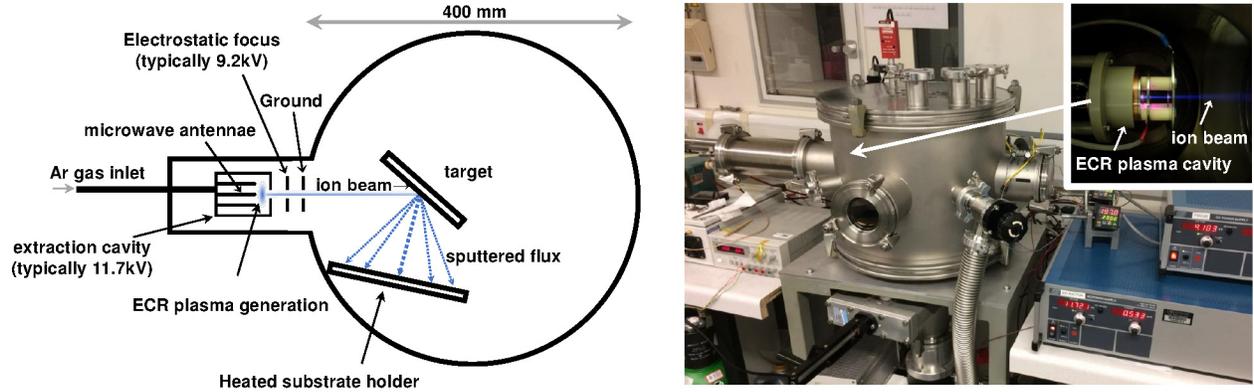


Figure 3.1 Schematic diagram (left) showing the configuration and geometry of the ion beam sputtering system, with images (right) of the chamber and ion source during operation (inset).

the magnetron coating process, the temperature was allowed to stabilize for a minimum of 30 mins before the deposition was commenced. The samples were allowed to cool naturally after deposition, with a maximum cooldown rate of $30^{\circ}\text{C}/\text{s}$ for the 500°C deposition run, and slower cooldown rates for lower deposition temperatures.

3. Post-deposition heat treatments

After deposition, the mechanical losses of all samples were measured using the techniques described below in Section 4. Additional structural measurements, described below in Section 7, were also performed. Afterwards, a subset of the samples were subjected to a heat treatment cycle (annealing). In the case of the magnetron-sputtered samples, we first annealed them at 300°C for 3 hours, then at 400°C for 3 hours, and finally at 500°C for 3 hours, carrying out mechanical loss and structural measurements after each heat treatment cycle. In each case the samples were heated up at a rate of about $1^{\circ}\text{C}/\text{min}$, and allowed to cool down at the same rate.

Similarly, the IBS samples were annealed for 5 hours in air, at increasing temperatures of 100, 200, 300, 400, 500, 600 and 650°C , and again allowed to cool naturally in the oven (maximum ramp-up rate $4^{\circ}\text{C}/\text{s}$, maximum ramp-down rate $3^{\circ}\text{C}/\text{s}$). Mechanical loss measurements were performed after each annealing step.

The small difference in annealing time for the MS and IBS samples does not significantly affect the measured loss angle. Longer annealing times have been tested by the authors on a subset of the samples, and the measured loss angles found to be comparable.

4. Measurement of mechanical losses

The mechanical loss angle of each sample was measured by exciting its resonant modes and tracking the amplitude of the motion at the mode peak frequency over time. The ring-down time is directly linked to the total mechanical loss angle of the sample ϕ_{total} , including contributions from both the substrate losses and the coating layer losses:

$$A(t) = A(0)e^{-t\pi f\phi_{total}} \quad (4.1)$$

where f is the frequency of one of the resonant modes of the sample. To disentangle the two contributions, we built finite element models of the coated substrates. The models are based on the values for the Young's modulus, density and Poisson ratio of silica and tantala listed in Table 3.1. The models are first tuned to accurately predict the resonant frequencies of the uncoated substrate. Afterwards, the coating thickness is tuned to the mean value over the whole surface measured by ellipsometry. Finally, the model can be used to extract the distribution of elastic energy in the substrate and in the coating. The ratio of the energy in the coating divided by the energy in the substrate is known as the dilution factor. It can be used to extract the coating loss angle from the total measured loss angle:

$$\phi_{total}^{(i)} = D^{(i)}\phi_{coating}^{(i)} + (1 - D^{(i)})\phi_{substrate}^{(i)} \quad (4.2)$$

where the subscript (i) refers to the vibrational modes, since the dilution factor differs from mode to mode. Also, in general, the loss angle may be frequency dependent. To accurately extract the coating loss angle, a measurement of the substrate loss is needed; this can be obtained by measuring the ring-down time of the uncoated sample, assuming that the deposition does not affect the substrate properties in a significant way. Typical numbers for the fused silica disks used in our experiments are $\phi_{substrate} \sim 10^{-7}$ and $\phi_{total} \sim 3 \times 10^{-6}$. The mechanical losses of the uncoated substrates used here are larger than what is expected for fused silica bulk [58], and they are limited by surface loss on the unpolished sides [57].

The coating loss angle could in principle be different for shear and bulk deformations [62]. Our finite element simulations show that most of the elastic energy is in shear. Moreover,

	Silica	Tantala
Young's modulus [GPa]	73.2 [6]	140 [61]
Poisson ratio	0.164 [6]	0.28 [61]
Density [kg/m ³]	2200 [6]	8200 [61]

Table 3.1 Material parameters used in finite element models.

recent results suggest that ϕ_{shear} and ϕ_{bulk} [63] are not largely different. Therefore, in the analysis presented here we do not make this distinction. This approach also makes it simpler to compare our measurements with previous results reported in the literature, which also do not take into account the distinction between shear and bulk losses. Moreover, our main goal is to determine if there is any change in the mechanical loss that is deposition-process dependent, and therefore using a single loss angle is sufficient.

The samples coated by magnetron sputtering (75-mm-diameter disks) were measured at the LIGO Laboratory (Caltech) using a system based on the Gentle Nodal Suspension [64, 16]. The fused silica substrate is supported at its center by a curved silicon surface, relying on gravity and friction between the sample and the support. This nodal suspension allows the measurements of all resonant modes between 1 kHz and 30 kHz with negligible clamping losses for all modes that have a node of non-motion at the center of the disk [65]. Four disks are mounted into one vacuum chamber, which allows the parallel measurement of four samples. The disks are excited using an electrostatic comb drive [66], and the motion is read-out with an optical lever system; a HeNe laser beam is reflected off the disk surface, close to the edge, and the beam displacement is measured with a quadrant photo-detector (QPD). The output signals are sampled at 65 kHz and saved to disk to be processed offline. This excitation and data acquisition system allows the simultaneous measurement of the ring downs of all resonant modes of four samples. More details on the measurement system can be found in [16].

In the case of the coatings deposited on cantilevers by IBS, each sample was measured before and after coating using a readout technique similar to the one described above, but with a few notable differences. The silica cantilevers were each secured inside a vacuum chamber by fixing the clamping block in place with a stainless steel clamp. A He-Ne laser outside the chamber was then directed through a chamber window, incident upon the edge of

the cantilever, and passed through a second window onto a split photodiode detector, again outside the chamber. The cantilever creates a shadow on the laser spot, the displacement of which (due to excitation of the cantilever) is then measured; each mode was measured and recorded individually by an automated LabView program for offline analysis. The mechanical losses were then calculated in the same way as with the disk samples, using eq. 4.2, with dilution factors obtained from finite element models of the cantilever geometry.

5. Results

The coating loss angle measured for all 12 MS samples is shown in Figure 3.2. For each sample, several resonant modes could be measured, with frequencies between 1 kHz to more than 20 kHz. All samples were measured after deposition, and before any additional treatment. Then, 5 samples (two deposited at room temperature and one for each of the other deposition temperatures) were treated with annealing cycles, at increasing temperatures of 300, 400 and 500°C. The results of all mechanical loss measurements, for all the frequencies, are shown in Figure 3.2.

For the majority of samples, the dependence of the loss angle upon the mode frequency is rather weak and, in most cases, a clear trend is difficult to identify. For these reasons, and to facilitate easier comparison between samples, the loss angle has been averaged over frequency for each sample; the results are shown in Figure 3.3. One can first observe that there is a reduction of mechanical losses in the as-deposited samples, when the substrate is at an elevated temperature during deposition. However, the measured losses further improved with post-deposition annealing, reaching a level as low as 4.5×10^{-4} rad; comparable with what is reported in the literature for annealed pure tantalum [52, 55, 54].

For the IBS coatings, Figure 3.4 shows the measured loss angles for all resonant modes and all samples. Again, the dependence of loss angle upon mode frequency is quite weak in most cases; therefore, the loss angles were again averaged over all resonant frequencies for ease of comparison between different samples (see Figure 3.5). The IBS coatings showed broadly similar results to the magnetron sputtered coatings, in that mechanical loss is reduced by elevated temperature deposition. However, the measured losses further improved with post-deposition annealing, with the average loss reaching $2.7 \pm 0.8 \times 10^{-4}$ rad, which is in line with the lower end of previously reported measurements [51], and also close to the loss angle

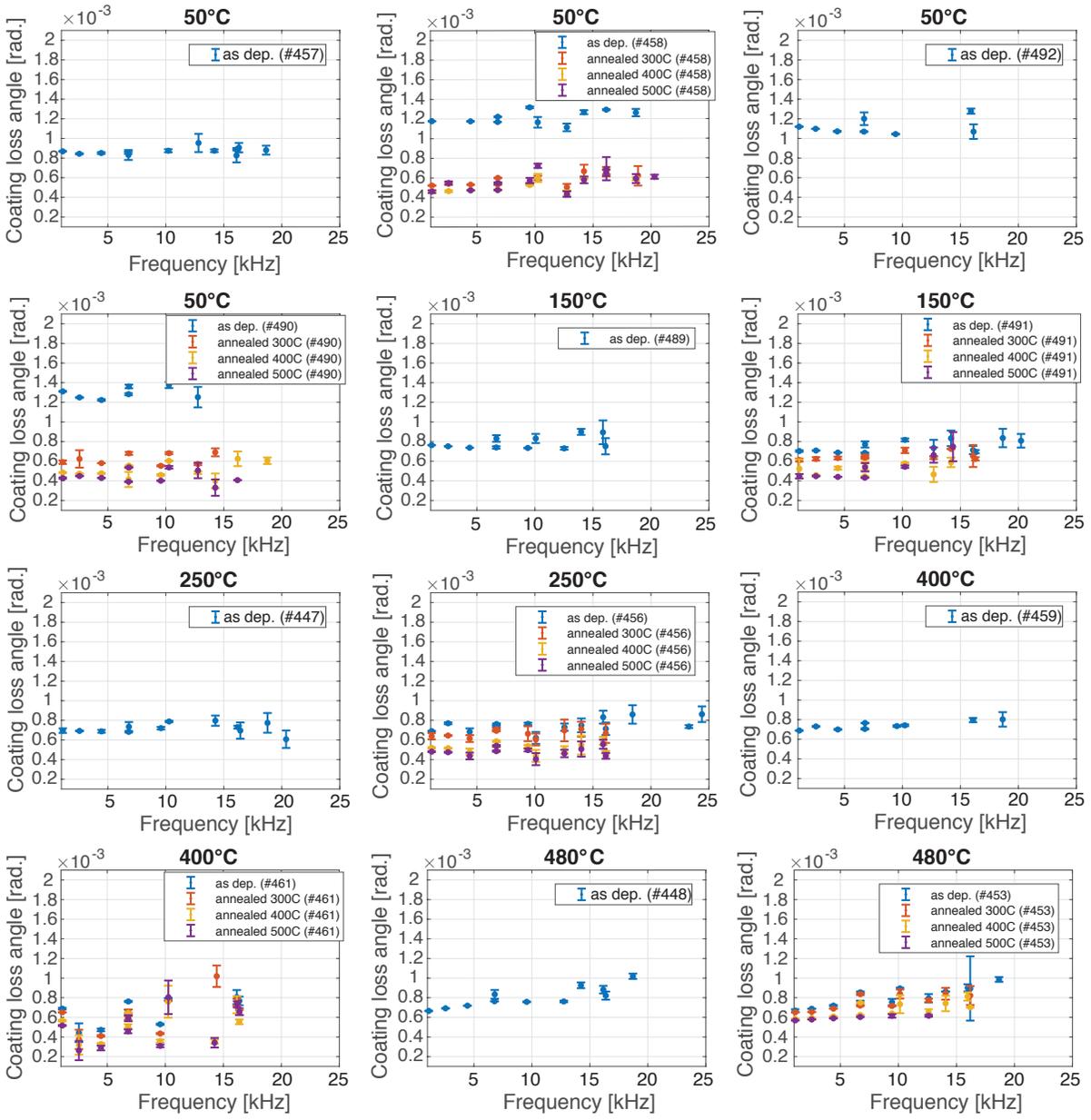


Figure 3.2 Summary of all measurements performed on the magnetron sputtered samples. Each panel corresponds to a different sample. The title shows the temperature at which the coating was deposited, while the different traces (if present) in each panel refer to the coating as-deposited or after subsequent annealing treatments. The numbers in the legend are unique identification numbers for each substrate. The error bars at each frequency are 95% confidence intervals computed from the standard deviation of repeated measurements.

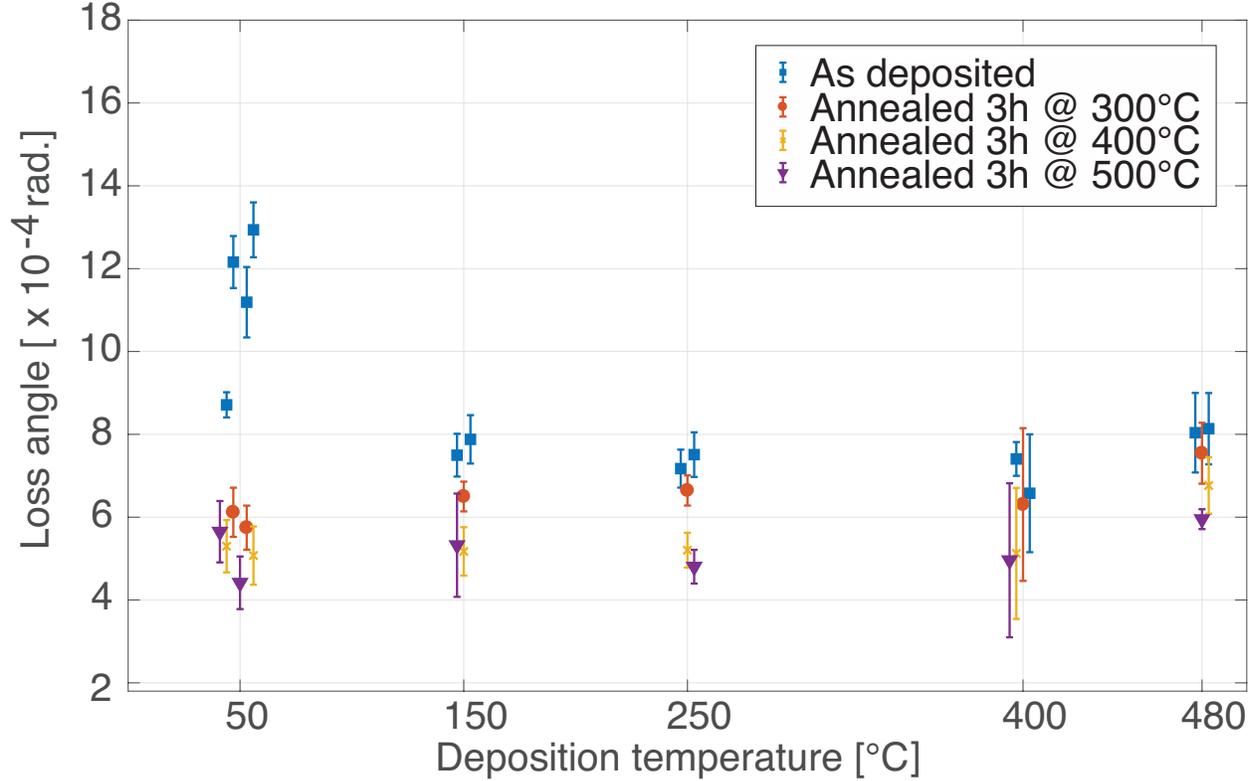


Figure 3.3 Averaged mechanical loss angle for magnetron sputtered tantalum. The values shown here are obtained by averaging the results shown in Figure 3.2, over all frequencies. The error bars are 95% confidence intervals computed from the standard deviation of the loss angles measured for the different modes for each sample (the uncertainty in the single frequency measurements are negligible). A random horizontal shift of the points have been added to improve the readability of the plot.

measured on the titania-doped-tantalum used in the Advanced LIGO coatings [43]. It should be noted that there are two significant differences between the ECR ion beam sputtering process employed in this work and current industry standard processes: a significantly slower deposition rate and a higher extraction potential. Further investigations of these factors, in relation to the achievable levels of mechanical loss, are therefore worth exploring.

In summary, the mechanical loss of as-deposited tantalum improves with the deposition temperature up to about 250°C and then remains roughly constant, although at a value better than that measured on room-temperature-deposited samples. However, high temperature annealing erases the deposition history of the coating. The main remaining difference is the fact that coatings deposited by IBS have about 1.6 times lower mechanical loss angle

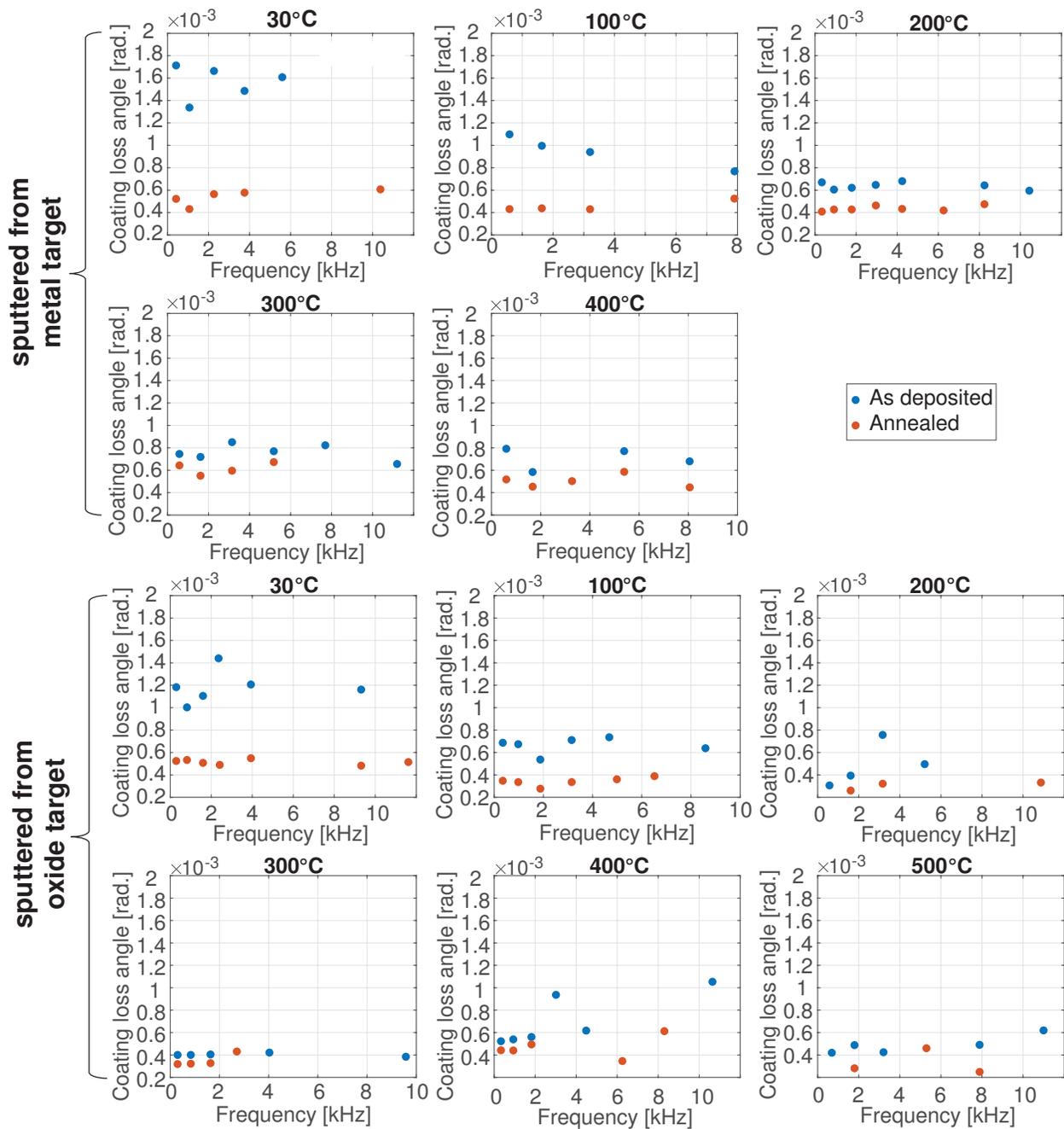


Figure 3.4 Summary of all the measurements performed on ion beam sputtered samples. Each panel corresponds to a different sample. The title shows the temperature at which the coating was deposited, with separate traces to show the mechanical loss as-deposited and post annealing treatment (all at 600°C for 1 hr). The uncertainty for all data points is about 1%, and not visible in the plot.

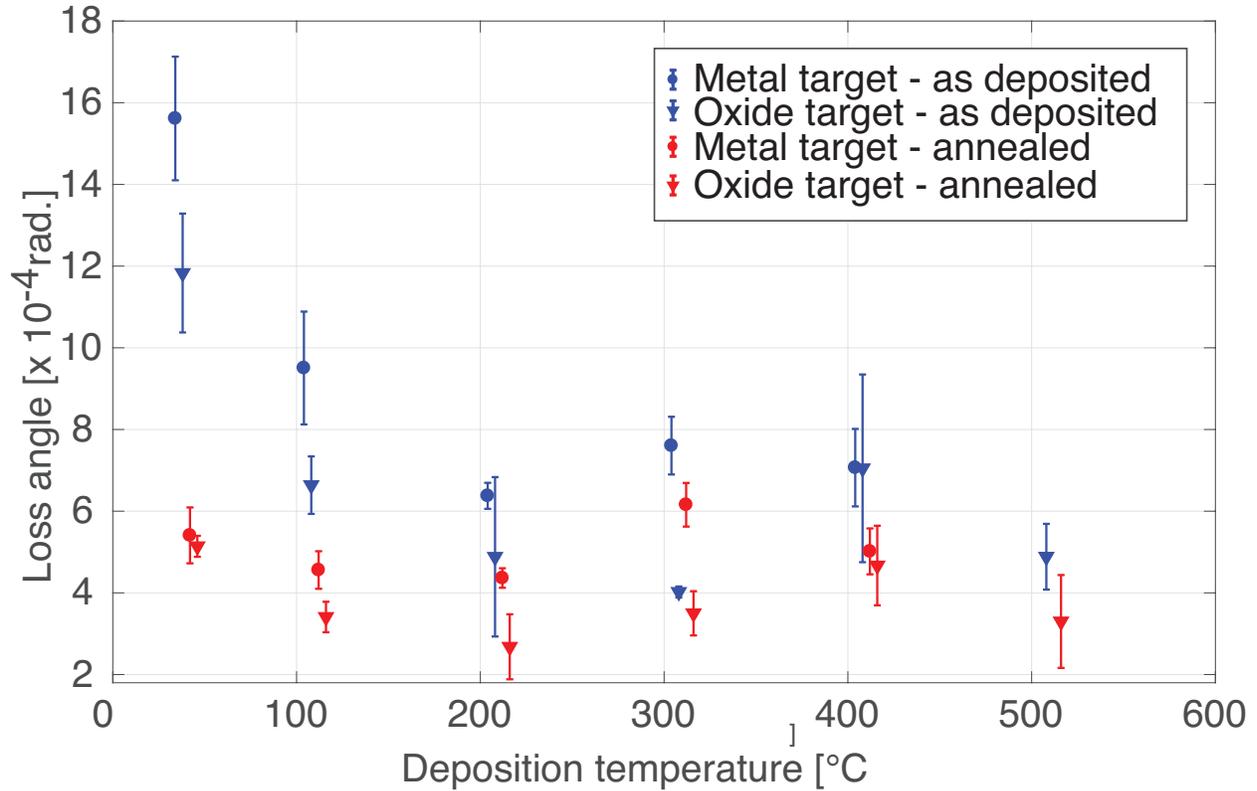


Figure 3.5 Averaged mechanical loss angle for ion beam sputtered tantalum. The values shown here are obtained by averaging the results shown in Figure 3.4 over all frequencies. The error bars show the standard error associated with the spread in the measured mechanical losses. The slight change in deposition temperature between the metal and oxide target sputtered coatings are associated with improvements in the calibration of the temperature readout carried out between these sets of coating runs.

than the coatings deposited by MS. It is worth noting that a small discrepancy has been observed in the past between mechanical loss measurements performed on disk with gentle nodal suspension systems and cantilevers. However, as shown in [6], the mechanical loss measured on disks were lower than the mechanical losses measured on cantilever. Therefore we believe that the larger difference in our samples is due to the deposition techniques.

6. Structural characterization : measurement techniques

6.1. X-ray diffraction

X-ray diffraction study of all MS samples was carried out on a PANalytical X'Pert PRO x-ray diffraction system in parallel beam mode at the Stanford Nano Shared Facilities. For these measurements, in order to obtain maximum scattered intensity from the deposited thin films, while minimizing the contribution from the substrate, the incident x-ray beam angle was fixed at 1.5° while the detector was scanned from 10° to 90° . The angle of divergence for the incident and diffracted beams was 0.04° and 0.27° , respectively. For polycrystalline samples, such a scan results in the same Bragg peaks as a standard θ - 2θ scan but with slightly different relative peak intensities. In amorphous thin films, one would not observe sharp Bragg peaks but broad diffraction peaks. Once properly reduced (i.e. expressed as oscillations about the structure factor versus scattering vector) a Fourier transform of these broad structures gives the atomic radial distribution function (see, e.g., ref. [67]). Therefore, increased medium range order in the atomic structure of an amorphous material usually results in sharper (less broad) diffraction features.

6.2. Raman spectroscopy

Raman spectroscopy was performed using a Renishaw Invia Reflex Raman microscope employing an Argon laser operating at 514 nm, non-polarized in a backscattering geometry. The 25.0 mW laser beam was focused to a circular spot of $2\ \mu\text{m}$ diameter. Rayleigh scattering was removed by an edge filter with a $90\ \text{cm}^{-1}$ cut-off. A 1800 l/mm grating spectrometer dispersed the scattered light onto 1040×256 pixel CCD resulting in a spectral resolution of $1.0\ \text{cm}^{-1}$. Three measurements were carried out at different locations on each sample, and the average is plotted in the figure. Individual measurements were also analyzed to check for non-uniformity; no obvious effect was found. The Raman spectrum of an amorphous material resembles its vibrational density of states, since the selection rules that affect the Raman scattering in crystalline materials is not operative. The shape of the Raman spectrum can be described in an ad-hoc fashion, as a combination of lorentzian curves each representing one band in the (crystalline) phonon dispersion diagram or from a molecular dynamics simulation of the material. For the case of Ta_2O_5 , the first approach requires 19 lorentzians ref. [68]; the vibrational density of states deduced from molecular dynamics was reported by ref. [69].

7. Structural studies: results

Several structural studies (X-ray diffraction (XRD) and Raman spectroscopy) were carried out to gain more insights into the effect of deposition temperature and annealing, and to look for residual differences between coatings deposited at different substrate temperatures.

7.1. X-ray diffraction

As a first step, XRD measurements were performed for all samples to check for possible crystallization, both immediately after deposition and after subsequent heat treatment cycles. Figure 3.6 shows the resulting diffraction patterns for the IBS samples and the MS samples. In the case of IBS samples, XRD scans were performed on the samples as deposited, and after the last annealing step at 600°C. No crystallization was detected for any deposition temperature in IBS samples, while the MS coating deposited on a substrate at 480°C showed clear signs of crystallization. Crystallization in MS thin films was already observed at deposition temperatures above 450°C [70, 71]. No further crystallization was induced by the post-deposition annealing cycles. The IBS deposition is likely to produce denser coating, thus suppressing crystallization; other workers have also reported crystallisation of amorphous thin films to increase with increasing packing density [72].

7.2. Medium range order and loss angle

XRD measurements were also used to characterize more subtle changes in the microscopic structure of the coatings. In particular, medium range order (the local atomic structure in the range of 0.5 - 5 nm) in amorphous covalent glasses can be characterized by the *first sharp diffraction peak* (FSDP) in the XRD spectrum [73]. Both the position and width of the FSDP provide information on the statistical distribution of bond angles [74]. We have therefore attempted to correlate the loss angle measurements with the width and position of the FSDP on the MS samples. Since in Ta₂O₅ the FSDP is very asymmetric with a large shoulder on the high-angle side, we selected an angular range of 2θ between 16 and 28 degrees and fit the data with a Gaussian peak plus a constant offset. Figure 3.7 shows the results for the as-deposited and post-annealing MS coatings. The width of the FSDP is correlated with the deposition temperature, as visible in the left panel of Figure 3.7: for both the as-deposited samples and the annealed samples, the peak width decreases with increasing

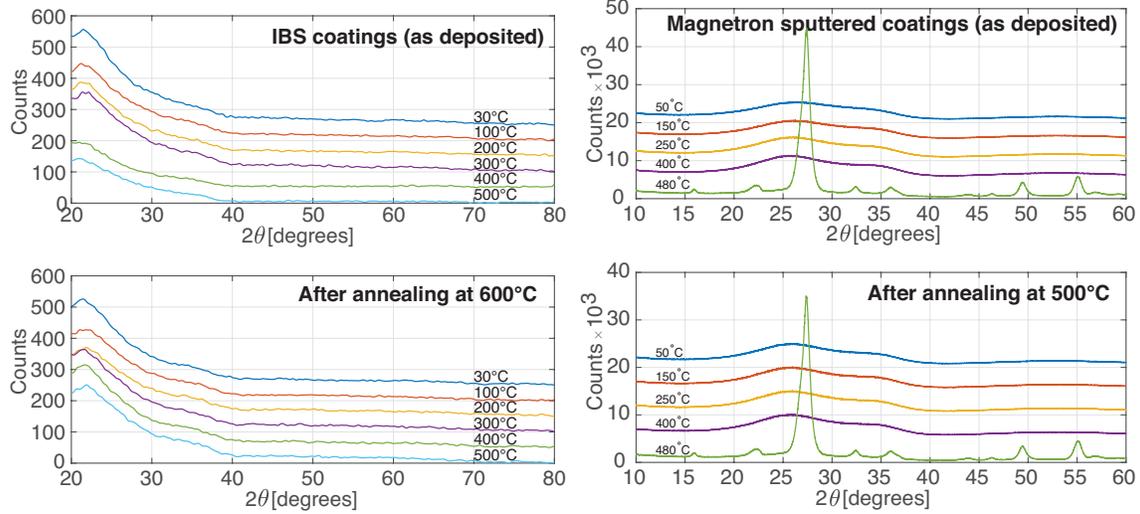


Figure 3.6 **Left.** XRD diffraction patterns for ion beam deposited tantalum pentoxide films, sputtered from an oxide target, before (top) and after (bottom) annealing at 600°C. The temperatures listed in the graph correspond to the different substrate temperature during deposition. XRD scans were carried out using a Siemens D5000 X-ray diffractometer at room temperature with Cu K_{α} radiation ($\lambda = 0.154$ nm) in the range of 2θ between 20° and 80° (2 seconds per scan, step size = 0.02°). **Right.** X-ray diffraction curves for a selection of the magnetron sputtered samples, before (top) and after (bottom) annealing. In each panel, the curves corresponding to different deposition temperatures have been shifted vertically by an arbitrary amount for readability.

deposition temperature. The effect of annealing is also important: annealed samples show narrower peaks with respect to the corresponding as-deposited sample.

The correlation between the loss-angle measurements and the FSDP-peak widths is shown in the right panel of Figure 3.7. The anneal temperature in all cases was 500°C. Very similar results are obtained when comparing the loss angle measurements to the FSDP position instead of width (not shown here). There is a weak linear correlation (correlation coefficient $r = 0.78$) between the FSDP width and the mechanical loss angle: lower loss angles correspond to narrower peaks.

In view of the good linear fit for most data points, we can speculate that a narrower FSDP, corresponding to an increased medium range order, is correlated to lower loss angle. However, for two samples (as deposited, 250°C and 400°C), another mechanism inhibited low loss angles in spite of good medium range order. This could be caused by, for example,

a strain mismatch between substrate and deposited layer, or some other issue that can be remedied with the post-deposition anneal. Still, aiming at low loss angles one should strive for increased medium range order [75]. This suggests that the deposition should be carried out at as high a deposition temperature as possible, and post-deposition annealing should be carried out at as high a temperature as possible. Indeed, in the case of pure amorphous silicon, high medium range order, as characterized by X-ray diffraction and Raman spectroscopy, was obtained by a short, high temperature flash anneal [76]; crystallization was avoided by limiting the anneal time to a few seconds. It is therefore worthwhile to investigate the loss angle in samples deposited at temperatures above 400°C (but below 480°C which results in partly crystalline MS films) and subsequently heat treat at higher anneal temperatures, perhaps using rapid thermal annealing.

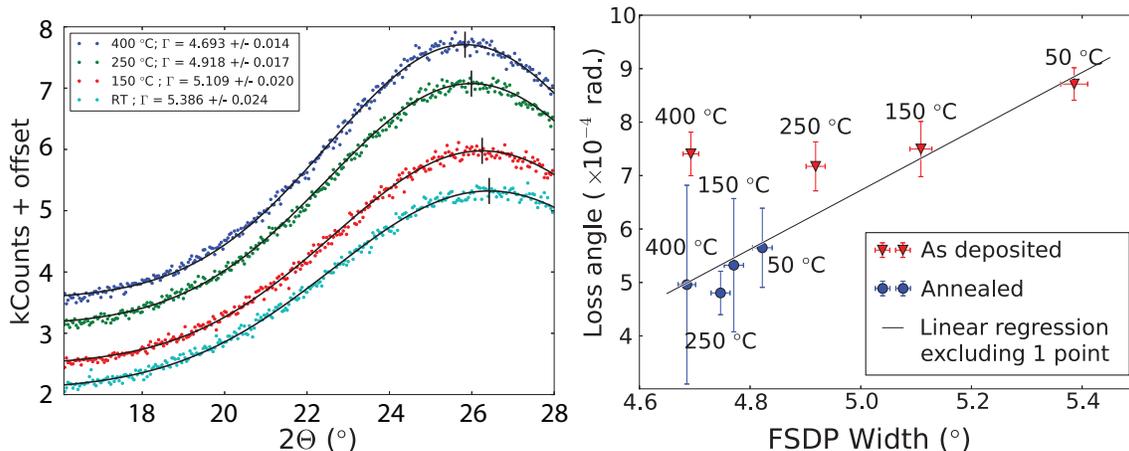


Figure 3.7 **Left.** First sharp diffraction peak (small angle side only) of four magnetron sputtered samples, before annealing. Spectra have been offset vertically for clarity. From top to bottom : deposited at 400°C, 250°C, 150°C, and at room temperature. The solid lines show a gaussian fit to the experimental data. The peak positions determined by the fit are shown as vertical lines across the maximum of each curve, and the peak widths are reported in the legend. The quoted uncertainty corresponds to the 1-sigma increase in chi-squared as determined by the fitting routine. **Right.** Mechanical loss angle as a function of the FSDP width for magnetron sputtered samples, before (red triangles) and after (blue circles) annealing at 500°C . The solid line is a linear fit to all datapoints, excluding the one deposited at 400° C before annealing.

7.3. Raman spectroscopy and loss angle

Raman spectroscopy is a powerful tool to detect structural relaxation, as shown in amorphous silicon in [77]. This type of structural relaxation, or change in the medium range ordering, involves a thermally activated atomic rearrangement of the otherwise static atomic structure. Based on our XRD observations, we surmise that the dynamical relaxation or internal friction mechanisms which we try to minimize in the Ta₂O₅ layers are reduced somewhat in materials that have undergone such a structural relaxation of the permanent atomic structure. In other words, the mechanical loss angle in Ta₂O₅ may be correlated to medium range order, and in turn the medium range order in amorphous Ta₂O₅ can perhaps be detected by Raman spectroscopy. Therefore we decided to measure the Raman spectrum of all the samples for which the mechanical loss angle had also been measured. The Raman spectrum of Ta₂O₅ is much more complicated than that of amorphous silicon: in the case of silicon, there are only four main bands (TO-, TA-, LA-, LO -like) relatively well separated, so that one can determine the width, position, and relative intensity of each band. In particular, the width of the amorphous silicon TO-like band has been shown to depend on the average distortion of the tetrahedral bond angle, and hence to be a good indicator of medium range order [78]. In the case of Ta₂O₅, the Raman spectra of the crystalline and amorphous phases can be described with a fit containing essentially 19 Lorentzian curves [68], and most of those are overlapping. This makes it difficult to reliably extract the width of any single band from the Ta₂O₅ Raman spectrum.

The left panel in Figure 3.8 shows the Raman spectrum measured for each of the magnetron sputtered samples, after annealing. The main feature in all spectra is a large peak centered near 700 cm⁻¹, which is due to at least 4 separate bands according to the fit described in [68]. Molecular dynamics ([69]) indicate this frequency range corresponds to bending and stretching movements involving 3 Ta coordinated oxygen atoms. One spectrum (deposition temperature = 480°C) also shows a peak near 200 cm⁻¹ indicative of crystallization [68], as already noticed in the XRD analysis (see Figure 3.6). The right panel in Figure 3.8 compares the mechanical loss angles of all samples with the Raman peak width. As can be observed, this analysis is inconclusive: lower mechanical losses are weakly correlated to narrower peaks (correlation coefficient $r = 0.71$), similarly to what was already determined in the XRD analysis. We have extracted many more parameters from the Raman spectra,

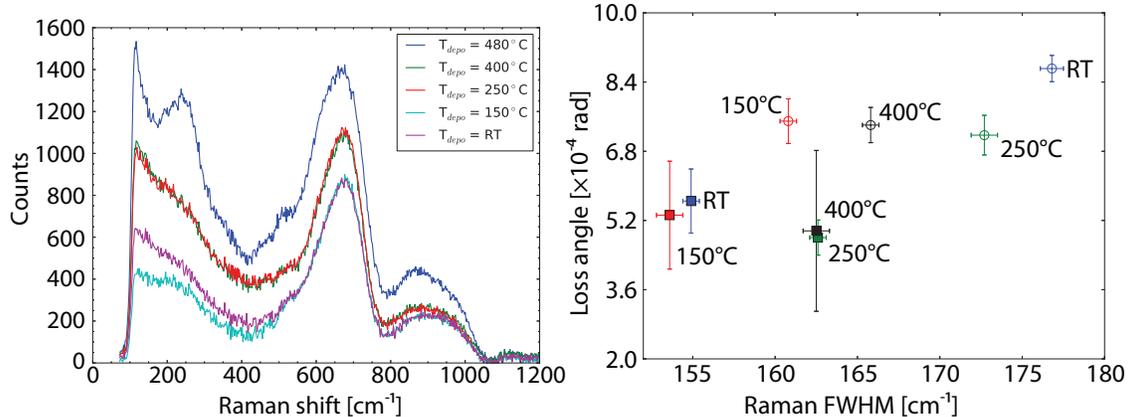


Figure 3.8 **Left.** Raman spectra of five magnetron sputtered samples, after annealing. From top to bottom: deposited at 480 °C, 400 °C nearly overlapping with the one deposited at 250 °C, 150 °C, and at room temperature. **Right.** Loss angle as a function of the full width at half maximum (FWHM) of the main peak of the Raman spectrum, for the magnetron sputtered samples. Open circles correspond to measurements performed on samples as-deposited, while solid squares to measurements performed on samples annealed at 500 °C. The substrate temperature during deposition is written next to each data point.

such as the relative intensity of the bands at 90 and 650 cm⁻¹ or the mean position rather than FWHM of the main peak, and evaluated their behavior versus the loss angle or anneal temperature. So far, no parameter measured by Raman spectroscopy shows a clear correlation with the mechanical loss angle even though in all samples the anneal treatment leads to both a decrease in Raman peak width and mechanical loss angle. Further efforts are needed, especially from a simulation point of view, in order to interpret the features of these spectra.

8. Discussion of the results

In this work, we explored the effect of deposition on a substrate held at elevated temperature on the mechanical loss of pure tantalum. The results obtained from two different deposition techniques agree quite well: depositing the coating on a hot substrate improves the mechanical loss. However, the as-deposited coatings did not show a significant improvement of mechanical loss with respect to previous results for room-temperature-deposited films after optimal post-deposition annealing. Additionally, heat treatment after deposition appears to have a much larger effect than elevated temperature deposition: after annealing

at about 400°C all coatings, regardless of the deposition technique or the substrate temperature, show mechanical loss in the range $2.7 - 4 \times 10^{-4}$ radians, in line with previous results. It is worth noting that post annealing the IBS films exhibit about 1.6 times lower loss angle than the MS films: further investigations are needed to confirm if this difference is due to the deposition technique, or that the IBS coatings were deposited at a significantly lower rate.

Structural studies were carried out to correlate the mechanical loss with increased medium range order. Lower mechanical losses are correlated with a narrower width of the first diffraction peak in X-ray measurements and, more weakly, with the width of the main Raman spectrum peak. Although the substrate temperature during deposition played a role in determining the peak widths as well as the mechanical loss, the effect of post-deposition heat treatment is much more significant: annealed samples systematically showed lower loss angles and more relaxed structure (narrower peaks).

In conclusion, we could not achieve for tantalum the same level of reduction in mechanical loss angle observed in amorphous silicon [?]. From a theoretical point of view, mechanical losses are associated with low-energy excitations usually modeled as two-level systems (TLS). The structure of the energy landscape in glasses depends on the fabrication history: a detectable change in the glass structure is expected to happen when the deposition is carried out at a significant fraction (85%) of the glass transition temperature [49, 50]. This was indeed observed in amorphous silicon. If, as expected from experiments and models, the fraction of the glass transition temperature at which the density of TLS reduces is universal, we might expect any effect to be visible in tantalum for temperatures much higher than those explored in this study, which was limited by the incipient crystallization of the thin film. It is possible that the glass transition temperature of tantalum is too high to be practically reachable before crystallization of the coating is induced. A strategy that will be explored in the future is the prevention of crystallization, either geometrically, with nano-layers [79], or chemically, with the addition of dopants to tantalum, for example titania [38] or zirconia [43].

Further investigations are needed to better understand the microscopic structure of tantalum coatings. Future planned experiments will use X-ray scattering [80] and electron diffraction [81], combined with atomic deposition modeling [82], to perform a detailed analysis of

the medium range order. Such studies could elucidate the atomic structure motifs that play a significant role in the mechanical loss, in particular with elevated temperature deposition and post-deposition heat treatment of tantalum and other oxides.

The results reported here indicate that elevated temperature deposition of pure tantalum might not be a viable solution for low mechanical loss coatings for future gravitational wave detectors. We do not have enough data to generalize these results to other materials, or to doped tantalum. Future investigations will therefore focus on doping, other oxides with lower melting temperatures, and alternative deposition techniques, such as ion-beam-assisted IBS and lower deposition rates.

Acknowledgements

Part of this work was performed at the Stanford Nano Shared Facilities (SNSF), supported by the National Science Foundation under award ECCS-1542152. In the UK, we would like to thank the UK Science and Technology Facilities Council (STFC, project refs: ST/L000946/1, ST/L000938/1, ST/L003465/1, ST/N005422/1 and ST/N005406/1) in addition to support from SUPA, the Royal Society, the Royal Society of Edinburgh, the University of Glasgow, the University of Strathclyde and the University of the West of Scotland. IWM is supported by a Royal Society Research Fellowship and S Reid was supported by a Royal Society Industry Fellowship and Wolfson Research Merit award. LJG, RA, RS, SR, FS and LM are supported by the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC) and the Fonds de recherche Québec, Nature et technologies (FQRNT). The work performed at Polytechnique Montréal and at the Université de Montréal has been supported in part by the NSERC Discovery Grants of the participating researchers. The authors also thank their colleagues within GEO and the LIGO Scientific Collaboration for advice and support. LIGO was constructed by the California Institute of Technology and Massachusetts Institute of Technology with funding from the National Science Foundation, and operates under cooperative agreement PHY-0757058. Advanced LIGO was built under award PHY-0823459. This paper has LIGO document number LIGO-P1700372.

Chapitre 4

Expériences supplémentaires

Ce chapitre présente les expériences supplémentaires effectuées dans le cadre de ce projet de recherche. Tout d'abord, l'ensemble des expériences seront décrites. Par la suite, la méthodologie utilisée pour effectuer celles-ci est présentée. Pour poursuivre, les résultats des expériences supplémentaires sont présentés par technique de caractérisation à la section 4.3 étant donné que ceux-ci sont semblables pour les diverses expériences et pour faciliter la comparaison entre les expériences. Une analyse des résultats pour chaque expérience est ensuite faite à la section 4.4.

4.1. Description des expériences

Les résultats de la variation de la température du substrat présentés au chapitre 3 permettent de conclure que le recuit des échantillons a une importance significative. Ainsi, pour la première expérience supplémentaire, l'influence d'un recuit thermique rapide à 250 °C pendant 30 secondes a été étudiée sur deux échantillons ayant un revêtement de Ta₂O₅ de 1 μm déposé à RT par MS. De plus, l'un des deux échantillons a été implanté par Romane Asselin avec des ions d'oxygène avant son recuit thermique rapide afin d'obtenir une couche de pentoxyde de tantale totalement saturée en oxygène et plus dense. L'implantation a été effectuée à trois énergies et fluences différentes afin d'obtenir un profil d'implantation le plus uniforme possible sur toute la profondeur de la couche de Ta₂O₅ sans atteindre le substrat. L'implantation a aussi pour effet de créer du désordre dans le revêtement de l'échantillon qui pourrait permettre à la couche de se réorganiser dans une configuration énergétique plus basse lors du recuit. Plus d'information quant à l'implantation peut être retrouvée dans le rapport de stage de Romane Asselin. Pour la suite de ce mémoire, on référera à cette

expérience comme «Expérience 1 (RTA)».

Pour poursuivre, il a été envisagé que si une contrainte importante est formée dans couche de Ta_2O_5 cela pourrait influencer l'angle de perte. Pour déterminer si les couches présentaient des contraintes suffisantes pour augmenter l'angle de perte des dépôts deux fois plus épais ont été étudiés. En effet, pour les échantillons précédents, la couche de Ta_2O_5 est trop mince en comparaison à l'épaisseur substrat pour affecter ce dernier. Ainsi, en déposant $2\ \mu\text{m}$ sur un substrat de Si de $100\ \mu\text{m}$ il est possible d'étudier la contrainte dans le revêtement. Les dépôts ont eu lieu à RT et à $250\ ^\circ\text{C}$. La température de $250\ ^\circ\text{C}$ a été choisie puisqu'elle a permis d'obtenir les meilleurs résultats dans l'étude variant la température de dépôt présentée au chapitre 3. Pour la suite, l'étude des échantillons de $2\ \mu\text{m}$ se nommera «Expérience 2 (Contrainte)».

Par la suite, d'autres méthodes de dépôt ont été explorées. Dans un premier temps, une tension de polarisation a été appliquée sur le substrat lors du dépôt. Cette méthode est décrite à la sous-section 4.2.1. Deux séries de dépôt ont été faites l'une à température de la pièce et l'autre à $250\ ^\circ\text{C}$. On y référera respectivement comme «Expérience 3 (ΔV , RT)» et «Expérience 4 (ΔV , $250\ ^\circ\text{C}$)». L'avantage d'ajouter une tension de polarisation sur le substrat est d'accélérer des ions d'argon présents dans le plasma vers le substrat. De cette façon, les ions transfèrent leur énergie aux atomes dans la couche en croissance ce qui permet à aux atomes présents dans la couche de se placer dans une configuration énergétique plus basse. Par contre, il est possible que les ions d'argon plus énergétiques créent des défauts dans la couche.

La dernière méthode de dépôt utilisée est le HiPIMS tel que décrit à la sous-section 4.2.1. Deux dépôts ont été faits à température de la pièce et on nommera cette étude «Expérience 5 (HiPIMS)» dans ce qui suit. Les dépôts par HiPIMS ont été explorés puisque cette méthode permet d'obtenir des ions d'argon très énergétiques et des atomes pulvérisés de tantale très ionisés ayant une masse environ 4,5 fois supérieure à celle d'un atome d'azote. Ainsi, des ions d'argons et de tantale très énergétiques pourraient favoriser une meilleure relaxation de la couche et une densification de celle-ci. Il est toutefois possible que

les ions aient une énergie suffisante au substrat pour re-pulvériser la couche en croissance et diminuer le taux de dépôt ce qui doit être évité.

Finalement, il est important de noter que pour alléger le texte, on référera à l'expérience ayant mené à la publication de l'article présenté plus tôt comme l'«Expérience 0 (ΔT)». Aussi, un résumé de l'ensemble des échantillons créés pour ces expériences et des conditions dans lesquels les dépôts ont eu lieu se retrouve à la table 4.1.

Échantillon	Expérience	Méthode de dépôt	Température de dépôt (°C)	Particularité	Échantillon de référence
447	0	MS	250	Pression de dépôt : 2 mTorr	447
448	0	MS	480	Pression de dépôt : 2 mTorr	inconnu
453	0	MS	480	Pression de dépôt : 2 mTorr	inconnu
456	0	MS	250	Pression de dépôt : 2 mTorr	456
457	0	MS	RT	Pression de dépôt : 2 mTorr	457
458	0	MS	RT	Pression de dépôt : 2 mTorr	458
459	0	MS	400	Pression de dépôt : 2 mTorr	inconnu
461	0	MS	400	Pression de dépôt : 2 mTorr	inconnu
489	0	MS	150	Pression de dépôt : 2 mTorr	489
491	0	MS	150	Pression de dépôt : 2 mTorr	inconnu
519	1	MS	RT	RTA, implantation, Vide de base : $9,2 \times 10^{-8}$ Torr	519
520	2	MS	250	Dépôt de $2 \mu m$, Pression de dépôt : 2 mTorr	5
521	2	MS	RT	Dépôt de $2 \mu m$	521
522	1	MS	RT	RTA	522
523	2	MS	250	Dépôt de $2 \mu m$, Vide de base : $1,7 \times 10^{-5}$ Torr	523
524	2	MS	RT	Dépôt de $2 \mu m$	524
541	5	HiPIMS	RT	Pression de dépôt : 5,2 mTorr, 75 %Ar, 25 %O ₂	s541
561	4	MS	250	Polarisation : 200V	69
562	4	MS	250	Polarisation : 300V	67

563	4	MS	250	Polarisation : 450V	60
564	4	MS	250	Polarisation : 200V	50
565	3	MS	RT	Polarisation : 150V	25
566	3	MS	RT	Polarisation : 300V	49
567	3	MS	RT	Polarisation : 450V	46
568	3	MS	RT	Polarisation : 100V	37
569	3	MS	RT	Polarisation : 200V	33
571	4	MS	250	Polarisation :100V	34
572	4	MS	250	Polarisation : 150V	53
657	5	HiPIMS	RT	Pression de dépôt : 5,2 mTorr, 75 %Ar, 25 %O ₂	inconnu

Tableau 4.1. Identification de l'ensemble des disques sur lesquels un dépôt a été fait, de leur échantillon de référence respectif, de l'expérience pour laquelle le dépôt a été produit et des conditions dans lesquelles le dépôt a été fait. Sauf indication contraire, le vide de base étaient entre 3×10^{-7} Torr et 7×10^{-6} Torr. Lors des dépôts la pression était de 2,5 mTorr, le gaz était constitué à 63 % d'argon et 37 % de dioxygène.

4.2. Méthodologie expérimentale

4.2.1. Méthode de dépôt

Le système utilisé pour effectuer les expériences supplémentaires est le même que le système de dépôt par pulvérisation magnétron utilisé pour les expériences décrites au chapitre 3. Ainsi, les particularités et la géométrie de ce système sont décrites à la section 2.1 du chapitre 3. De plus, les mêmes disques de silice fondue décrits à cette même section ont été utilisés comme substrat. Mentionnons aussi que lors des dépôts, l'impact des ions sur le substrat augmente la température de celui-ci à environ 50°C. La mention RT réfère donc à une température de dépôt d'environ 50°C. Considérons maintenant les particularités propres aux expériences supplémentaires.

Pour les expériences 1 (RTA) et 2 (Contrainte) les dépôts ont été faits dans les mêmes conditions que pour l'expérience 0 (ΔT) dont les résultats sont présentés au chapitre 3. Rappelons que puisque les disques ont la propriété de très peu absorber dans l'infrarouge, il est ardu d'augmenter la température de ceux-ci avec les lampes typiquement utilisées dans les systèmes de dépôts. Pour pallier à ce problème, un disque de Macor est placé derrière le substrat lors du dépôt. Le Macor absorbe la lumière infrarouge et la réémet dans une plage de longueurs d'onde pouvant être plus facilement absorbée par les disques. Pour ce qui est des expériences 3 (ΔV , RT) et 4 (ΔV , 250 °C), une tension de polarisation a été ajoutée sur le substrat lors des dépôts. La source de tension utilisée était en mode RF. La tension a été appliquée à la suite de l'allumage du plasma au début de la période de stabilisation de 20 min. Notons également que pour les dépôts à 250 °C il n'a pas été possible d'utiliser un disque de Macor pour augmenter l'émission dans l'infrarouge comme aux expériences 0 (ΔT), 1 (RTA) et 2 (Contrainte) puisque le Macor est un isolant électrique. Un disque de cuivre a été utilisé en remplacement. Celui-ci engendre une émission moins importante dans l'infra-rouge, mais suffisamment grande pour que le substrat atteigne 250 °C. Finalement, pour que le plasma reste stable lors du dépôt, il a fallu modifier légèrement la composition en gaz utilisée. Ainsi, un mélange de 63% d'argon et de 37% d'oxygène à 2,5 mTorr a été injecté dans la chambre plutôt que 66.6% d'argon et 33.4% d'oxygène à même pression.

Pour l'expérience 5 (HiPIMS) après le pré-nettoyage de la cible de tantale les dépôts ont été effectués en utilisant une toute nouvelle procédure. Tout d'abord, la source de tension RF appliquée sur le magnétron a été échangée pour une source à haute tension pulsée. Dans une atmosphère à 5,2 mTorr composés à 75% d'argon et 25% d'oxygène, des pulses de 200 μ s à une fréquence de 50 Hz ont été appliqués sur le magnétron. La puissance de ceux-ci a été augmentée graduellement jusqu'à ce qu'ils atteignent 0,4 kW. La puissance moyenne est similaire à la puissance en mode RF (450 W). Le plasma obtenu grâce au magnétron pulsé a par la suite été stabilisé pendant 1h. L'objectif de la période de stabilisation est de diminuer la quantité d'arcs électriques produits. Effectivement, étant donnée la très grande puissance appliquée lors des pulses individuels sur la cible de tantale, il arrive qu'un arc électrique se forme entre celle-ci et le magnétron. Cela est particulièrement courant lorsque de petits débris sont présents à la surface de la cible. Lors de la formation d'un arc électrique, des nano-particules, et même parfois des micro-particules, sont éjectées de la cible et se déposent sur le substrat. Par contre, après la période de stabilisation le nombre d'arcs électriques produits diminue considérablement sans pour autant devenir nul. Suite à la stabilisation, le substrat a été exposé au plasma permettant le dépôt de la couche de Ta₂O₅. Une tentative de produire ces couches sur un substrat à 250 °C a également eu lieu. Toutefois, à cette température il n'a pas été possible de créer un plasma suffisamment stable pour faire un dépôt. En effet, la quantité d'arcs électriques était trop grande et ne diminuait pas malgré une stabilisation de plus d'une heure.

Finalement, pour l'ensemble des expériences l'entièreté de la chambre est recouverte d'une couche de Ta₂O₅ lors des dépôts. Ainsi, après plusieurs heures la couche de pentoxyde de tantale devient suffisamment épaisse pour se détacher de la surface de la chambre en s'émiettant. Dans cette situation il est courant que des petits morceaux de cette couche tombent sur la cible de tantale formant une couche de «poussière» ce qui réduit la tension mesurée sur celle-ci et donc également le taux de dépôt. Si la quantité de débris est trop importante, il est même possible que le magnétron ne puisse pas être allumé. Lorsqu'un début de formation de poussière est observé à la fin d'un dépôt, la chambre est ouverte et nettoyée au jet de sable entièrement pour s'assurer de la qualité du prochain dépôt.

4.2.2. RTA

Les RTA ont été faits dans la salle blanche du pavillon Joseph Armand Bombardier à l'aide d'un four de type Heatpulse 410 fabriqué par AG Associates. Pour contrôler la température du four, un thermocouple est déposé à la surface de l'échantillon. Pour faire la calibration de la température à la surface du substrat, des peintures indicatrices de température ont été utilisées. Celles-ci ont la particularité de noircir lorsque leur température atteint un certain seuil. Ici, deux peintures ont été utilisées, un changeant de couleur à 343 °C et l'autre à 510 °C. La température visée pour le RTA était de 500 °C. Toutefois, en faisant la calibration il a été trouvé que le four était instable à des températures de cet ordre de grandeur. Dans les faits, pour tout réglage de température supérieure à 250 °C, les deux peintures devenaient noires. Le RTA a donc été fait à 250 °C. Pour ce réglage les deux peintures ont conservé leur couleur initiale après le RTA. Il est donc difficile d'établir précisément la température du substrat lors d'un RTA à 250 °C. Le RTA des échantillons 519 et 522 a eu lieu sous atmosphère d'argon. Les échantillons ont été chauffés un à la fois jusqu'à 250 °C en 20 secondes. Cette température a par la suite été maintenue pendant 10 secondes et finalement les échantillons ont été refroidis à 100 °C par secondes jusqu'à ce qu'ils atteignent 80 °C. Le four a par la suite été ouvert pour accélérer le refroidissement à l'air ambiant.

4.2.3. Implantation d'oxygène

L'implantation d'oxygène dans l'échantillon 519 a été effectuée à l'Université de Montréal par Romane Asselin à l'aide d'un accélérateur de particules de type Tandetron fabriqué par High Voltage Engineering Europa B.V. Trois énergie d'implantation ont été choisies afin que le profil d'implantation soit le plus uniforme possible sur la plus grande fraction possible de la couche de Ta₂O₅ sans endommager le substrat. Un nombre de moyen de déplacement par atome de 1 a été visé. Le profil d'implantation respectant ces conditions a été trouvé par simulation numérique et se trouve à la figure 4.1 L'échantillon a donc d'abord été implanté à l'aide d'un faisceau d'oxygène à 300 keV avec une fluence de $4,2 \times 10^{15} \text{ion/cm}^2$ puis à 100 keV avec une fluence de $1,1 \times 10^{15} \text{ion/cm}^2$ et finalement à 30 keV avec une fluence de 0,8

$\times 10^{15} \text{ion/cm}^2$. À toutes les énergies, le faisceau a été balayé sur la surface de l'échantillon afin d'implanter la totalité de celui-ci.

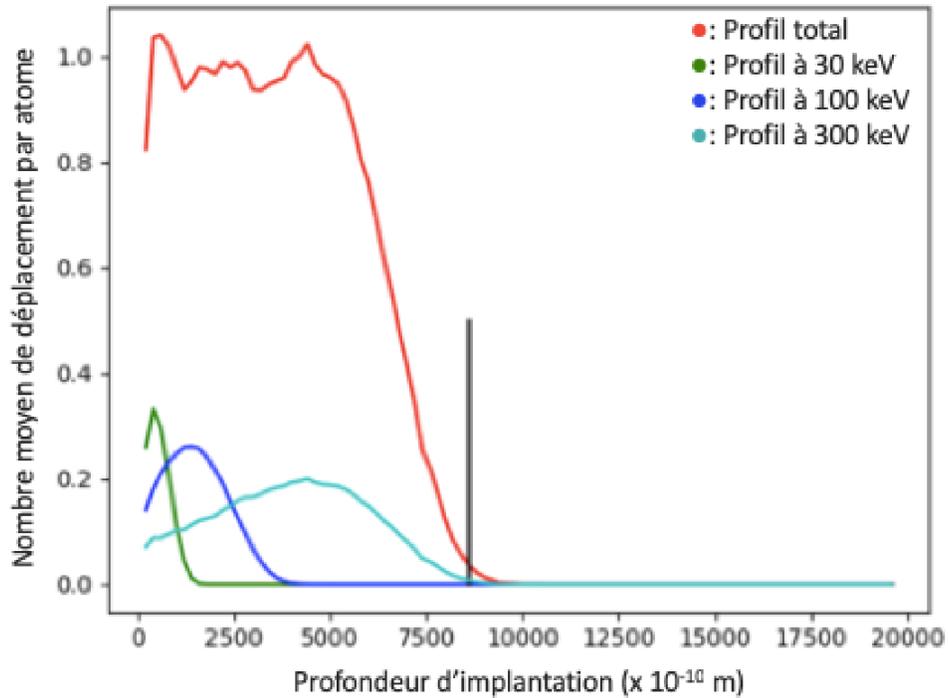


FIGURE 4.1 Profil d'implantation de l'échantillon 519 obtenue par simulation. Les courbes verte, turquoise et bleu indiquent respectivement le profil d'implantation d'un faisceau d'oxygène à 30 keV avec une fluence de $0,8 \times 10^{15} \text{ion/cm}^2$, 100 keV avec une fluence de $1,1 \times 10^{15} \text{ion/cm}^2$ et 300 keV avec une fluence de $4,2 \times 10^{15} \text{ion/cm}^2$ dans une couche de Ta_2O_5 . La courbe rouge indique le profil d'implantation obtenu en combinant les profils vert, turquoise et bleu. La ligne verticale noire indique la fin de la couche de Ta_2O_5 et le début du substrat de l'échantillon. Figure adaptée de [83].

4.2.4. Caractérisation des échantillons

L'ellipsométrie résolue spectralement, le RBS, le ERD, la mesure de la contrainte, la mesure de l'angle de perte et la spectroscopie Raman ont été utilisés pour caractériser les couches de pentoxyde de tantale.

La première méthode utilisée est l'ellipsométrie résolue spectralement. Les mesures ont été prises à l'École Polytechnique à l'aide d'un ellipsomètre spectral de type RC2 fabriqué par J.

A. Woollam. Cet appareil a une plage spectrale allant de 193 nm à 1700 nm et une résolution latérale de 3 à 10 mm. Pour l'ensemble des échantillons caractérisé par ellipsométrie, une correction due à la réflexion sur la face arrière du disque a été apportée. En effet, lors de l'usage normal de l'ellipsomètre, une bande de ruban adhésif est apposée sur la face arrière de l'échantillon mesuré. Cela permet de diffuser la lumière et ainsi d'éviter d'avoir à considérer la réflexion sur la face arrière. Toutefois, il a été trouvé en mesurant l'échantillon avec le ruban adhésif sans appliquer de correction ou sans de ruban adhésif avec une correction, sensiblement les mêmes résultats étaient obtenus. Pour éviter d'abîmer et de contaminer les disques, il a donc été choisi de ne pas utiliser de ruban adhésif. Avant d'analyser les couches de Ta_2O_5 , les disques de silice fondue utilisés comme substrats ont été caractérisés. Un disque vierge a été mesuré en plaçant la source à 4 angles différents de la normale de l'échantillon, soit 45° , 55° , 65° et 75° . Nous nommerons ce type de mesure «isosample». Les spectres obtenus ont par la suite été analysés en utilisant le logiciel CompleteEASE fourni par J.A. Woollam. Afin de déterminer les caractéristiques de la silice fondue, un spectre simulé a été ajusté à la courbe expérimentale. Le spectre simulé est obtenu à l'aide de deux oscillateurs l'un de type Tauc-Lorentz et l'autre Gaussian. Ces types d'oscillateurs ont été choisis puisqu'ils étaient les plus simples et contenaient le moins de paramètres à ajuster. Le modèle obtenu a, par la suite, été enregistré et réutilisé pour simuler le substrat de tous les disques sur lesquels une couche de pentoxyde de tantale a été déposée.

Chaque échantillon a été mesuré de deux façons afin d'obtenir différentes informations. Tout d'abord, une mesure «isosample» a été prise en trois points sur les disques. Les trois points étaient le centre du disque et deux autres positions opposées se trouvant à environ 3 cm du centre. Pour simuler les spectres obtenus, deux oscillateurs de type Tauc-Lorentz et gaussien ont été utilisés. Ceux-ci ont été choisis puisqu'ils sont ce qui est généralement utilisé pour simuler l'absorption ultraviolette des diélectriques. Un modèle de base des caractéristiques optiques du Ta_2O_5 a d'abord été construit. Le modèle obtenu a par la suite été utilisé pour simuler les couches de pentoxyde de tantale de tous les autres échantillons en minimisant la variation des propriétés optiques par rapport au modèle de référence. Notons également que l'épaisseur et la rugosité ont été ajustées librement pour tous les échantillons. Afin de caractériser les échantillons, le modèle pour chacun de ceux-ci a été construit en

utilisant le spectre mesuré au centre de l'échantillon. Il a par la suite été vérifié que ce modèle était valide pour les deux autres positions où le spectre a été mesuré.

Par la suite, les échantillons ont été mesurés d'une deuxième façon pour s'assurer de l'uniformité du dépôt. Un spectre a été mesuré en 55 points équidistants en plaçant la source à 65° de la normale des échantillons pour faire une cartographie de ceux-ci. Les spectres sont par la suite analysés en utilisant le programme CompleteEASE et le modèle obtenu en caractérisant un point au centre du disque avec une mesure «isosample» mentionnée ci-dessus. Le programme permet d'ajuster l'épaisseur et la rugosité de la couche de pentoxyde de tantale en chaque point de la cartographie tout en maintenant les caractéristiques optiques constantes. Lorsque l'épaisseur et la rugosité sont déterminées pour tous les points, le programme interpole les valeurs entre les points pour produire une cartographie complète. Malheureusement, J.A. Woollam ne fournit pas d'information quant à comment cette interpolation est effectuée, mais l'ensemble des informations associées à chaque point est disponible. Après l'interpolation, le profil d'épaisseur et de rugosité sur l'ensemble du disque est produit permettant d'évaluer l'uniformité de la couche de Ta_2O_5 .

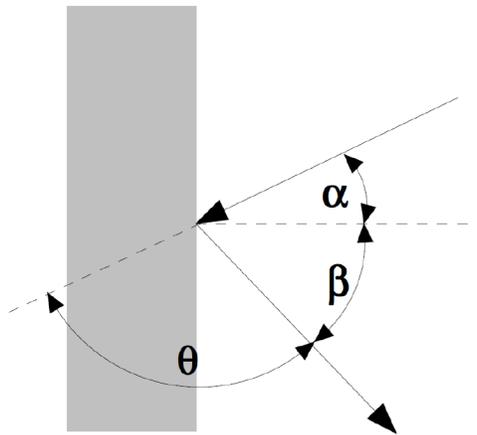


FIGURE 4.2 Schéma représentant la géométrie utilisée lors des mesures RBS. Les flèches indiquent la direction du faisceau d'ions et des ions rétrodiffusés, et le rectangle gris représente l'échantillon analysé [84].

Deuxièmement, la composition des couches déposées a été déterminée par RBS et ERD. Les mesures ont été prises à l'Université de Montréal à l'aide d'un accélérateur de particules de type Tandetron fabriqué par High Voltage Engineering Europa B.V. Premièrement,

considérons comment les mesures RBS ont été obtenues. Tout d'abord, les échantillons de référence de silicium ont été analysés à l'aide d'un faisceau d'hélium à 2 MeV. Les échantillons ont été placés de façon à ce que l'angle incident (α) soit de 7° , l'angle de sortie (β) soit de 10° et que l'angle de diffusion (θ) soit de 170° . Un schéma représentant la position des angles par rapport aux échantillons se trouve la figure 4.2.

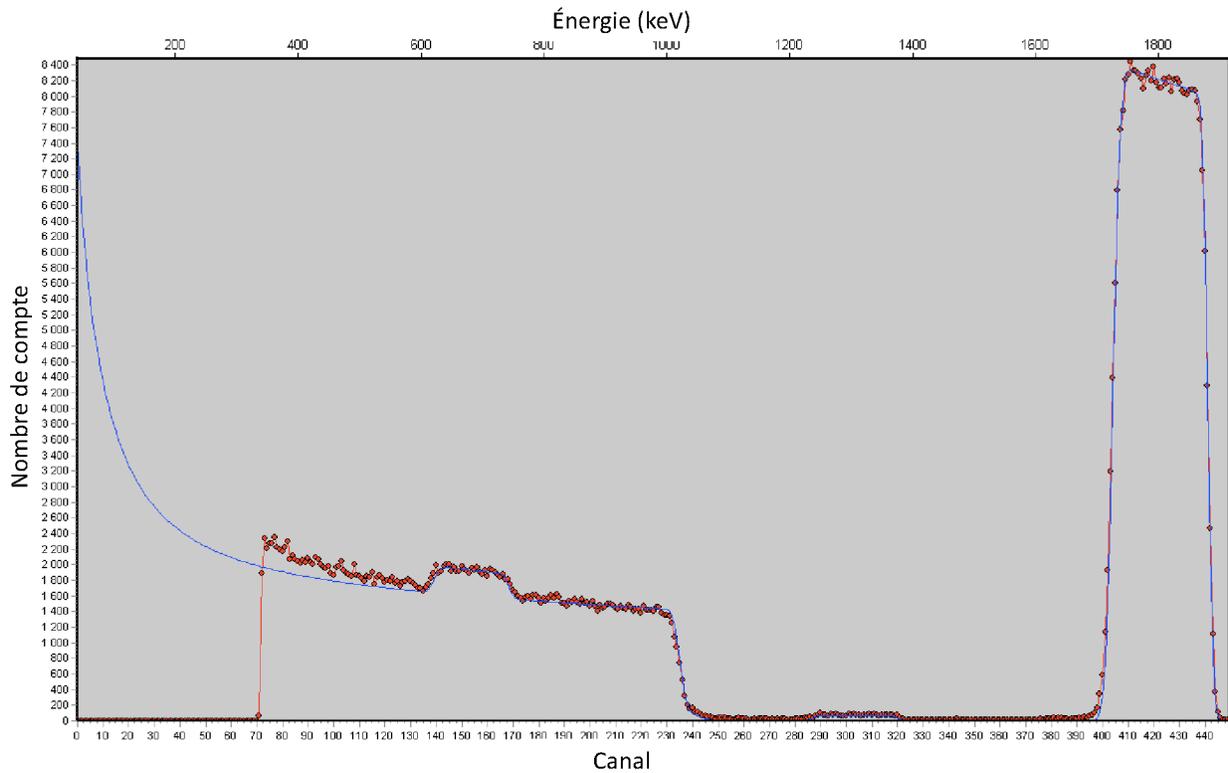


FIGURE 4.3 Spectre RBS de l'échantillon 562, en rouge, pris à l'aide d'un faisceau d'hélium à 2 MeV avec un angle incident de 7° , un angle de sortie de 10° et un angle de diffusion de 170° . La courbe en bleu est la simulation faite à l'aide de SIMNRA.

Les spectres obtenus ont par la suite été analysés à l'aide du programme SIMNRA [84]. Les paramètres de calibrations ont été déterminés en ajustant le spectre simulé au plateau de silicium. Par la suite, la couche de pentoxyde de tantale a été simulée de manière à correspondre le mieux possible à la courbe expérimentale afin de déterminer la composition du dépôt. Un exemple de spectre analysé avec SIMNRA se trouve à la figure 4.3. On observe tout d'abord un plateau entre les canaux 70 et 240 provenant du le substrat de silicium. Sur celui-ci s'ajoute le signal de l'oxygène dans l'échantillon des canaux 135 à 170. Par la suite, des canaux 290 à 320, une légère dénivellation est observée. Celle-ci est causée par

de l'argon présent à environ 3% dans la couche de l'échantillon 562. Finalement, le pic le plus important est observé des canaux 400 à 445 et est associé au tantale dans la couche. Puisque le spectre expérimental, en rouge, présente du bruit la simulation a été ajustée pour correspondre le mieux possible à l'allure du spectre expérimental. Les incertitudes associées aux concentrations de chaque éléments dans le revêtement déposé sur l'échantillon ont été déterminées en modifiant la simulation jusqu'à ce que celle-ci ne concorde plus avec l'allure générale du spectre expérimental.

Dans certains cas, pour obtenir une meilleure précision sur la concentration en oxygène, les échantillons ont été remesurés dans la même configuration, mais en utilisant un faisceau d'hélium à environ 3,1 MeV. Dans cette situation, la section efficace de l'oxygène n'est plus Rutherford et elle devient 30 fois plus grande. Ainsi, puisque le signal de l'oxygène est grandement amplifié il devient plus facile d'établir avec précision sa contribution dans le matériau. Pour s'assurer que les spectres ont été mesurés exactement à la résonance de l'oxygène, l'énergie du faisceau a été augmentée graduellement jusqu'à ce que le pic d'oxygène ait atteint sa valeur maximale et ait commencé à diminuer. Par la suite, l'énergie du faisceau a été diminuée pour retrouver la valeur maximale du pic d'oxygène. Cependant, puisque les échantillons sont isolant, une accumulation de charge était observée sur ceux-ci lors des mesures. À cause de l'accumulation de charges les spectres obtenus à cet énergie étaient effectivement une accumulation de spectres à plusieurs énergies, modifiant significativement la forme de la résonance, celle-ci devenant impossible à simuler. Ainsi, les mesures faites avec un faisceau à 2MeV été utilisées pour la caractérisation de la composition des échantillons. Les mesures RBS des échantillons de calibration ont été faites par Émile Lalande, Alexandre Lussier, Romane Asselin et moi-même.

Un échantillon de référence de silicium a été mesuré par ERD avec le même accélérateur de particules pour détecter la présence d'hydrogène. Pour ce faire, la géométrie utilisée est $\alpha = 70^\circ$, $\beta = 70^\circ$ et $\theta = 40^\circ$. Une pellicule de Mylar épaisse de $2,54 \mu\text{m}$ a été mise devant le détecteur pour bloquer les ions d'hélium rétrodiffusés. L'analyse du spectre obtenu a par la suite était faite comme décrit précédemment en ajoutant une couche simulant le Mylar. Il a été vérifier que la couche simulée obtenue grâce à cette mesure concordait avec celle obtenue par les mesures RBS.

Troisièmement, pour trouver la contrainte appliquée sur les couches de pentoxyde de tantale, un Flexus 2900 fabriqué par Tencor a été utilisé à l'École Polytechnique. Selon le fabricant, cet appareil peut mesurer des contraintes allant de -20 GPa à 20 GPa où une valeur positive réfère à une contrainte en tension et une valeur négative à une contrainte en compression. La mesure de la contrainte a été effectuée pour l'expérience 2 (Contrainte) sur des échantillons de référence de silicium ayant une épaisseur de 100 μm . À l'aide du Flexus 2900, le rayon de courbure des échantillons avant et après dépôt a été mesuré. Par la suite en utilisant l'équation de Stoney présentée à la section 2.6. Cette équation nécessite le module de Young (E) et le coefficient de Poisson (ν) du substrat et de la couche déposée soit du Ta_2O_5 . Les valeurs utilisées pour le substrat sont $E=162$ GPa et $\nu=0,22$ [85]. Pour le Ta_2O_5 elles sont $E=140$ GPa et $\nu=0,23$ [3]. Il a été observé que la mesure du rayon de courbure dépendait grandement de l'alignement de l'échantillon par rapport au laser. En effet, en répétant la mesure sur un même échantillon, une variation allant jusqu'à 20 cm a été observée. Puisque cela représente jusqu'à 10% du rayon mesuré, cette variation est une importante source d'erreur lors de la mesure de la contrainte.

Quatrièmement, l'angle de perte des échantillons a été mesuré à Caltech par Gabriele Vajente. La méthode utilisée est celle présentée dans au chapitre 3 à la section 4. Rappelons que l'angle de perte varie selon la fréquence de résonance de l'échantillon mesurée. Toutefois, lorsque cette dépendance est faible, l'angle de perte moyen de l'échantillon est utilisé pour caractériser ce dernier. Tout comme pour l'expérience 0 (ΔT) présentée au chapitre 3, cette approximation est valide pour les expériences supplémentaires.

Finalement, les échantillons ont été caractérisés par spectroscopie Raman. La méthode utilisée est la même que celle décrite à la section 6.2 au chapitre 3. Ajoutons à ces informations que pour augmenter le signal, une feuille de papier d'aluminium a dû être mise derrière les échantillons puisque ceux-ci n'étaient pas assez réfléchissants par eux-mêmes. Aussi, lors des mesures une lentille 50x a été mise sur le microscope. Les échantillons ont été exposés 25,0 mW pendant 30 secondes.

4.3. Résultats

Cette section présente l'ensemble des résultats obtenus pour toutes les séries de dépôts sauf celle ayant mené à la publication de l'article présenté au chapitre 3, soit les expériences 1 à 5. Les résultats sont présentés selon le type de caractérisation effectuée. La section 4.4 discute des résultats en fonction de chaque expérience.

4.3.1. Caractéristiques physiques

Échantillon		519	522
Implantation		Oui	Non
Indice de réfraction à 1064 nm		2,11	2,14
Rugosité (nm)		$3,55 \pm 0,5$	$1,47 \pm 0,5$
Épaisseur _{ellipsométrie} (nm)		$864,265 \pm 0,02$	$364,48 \pm 0,04$
Épaisseur _{RBS} ($\times 10^{16}$ Atomes/cm ²)		570 ± 10	230 ± 4
Composition (%) :	O	$70,0 \pm 0,4$	$72,3 \pm 1,0$
	Ta	$27,0 \pm 0,4$	$24,8 \pm 0,4$
	Ar	$3,0 \pm 1,0$	$1,5 \pm 0,5$
	H		$1,65 \pm 0,10$
Ratio O/Ta		2,59	2,91
Temps de dépôt (s)		4528	4528
Taux de dépôt (nm/s)		0,19	0,08

Tableau 4.2 Indice de réfraction, rugosité, épaisseur, composition, ratio O/Ta, temps de dépôt et taux de dépôt des couches de Ta₂O₅ déposées par MS à RT ayant par la suite subi un RTA (Expérience 1). L'un des deux échantillons a également été implanté à l'aide d'ions d'oxygène. Pour du Ta₂O₅ stoechiométrique, le ratio O/Ta attendu est de 2,5.

Cette section présente les caractéristiques physiques des dépôts faits dans le cadre des expériences 1 à 5. Les caractéristiques physiques des dépôts dont il est question ici sont l'indice de réfraction à 1064 nm, l'épaisseur du dépôt, la rugosité, la composition atomique, la densité et la contrainte des couches de Ta₂O₅. Les valeurs exactes de ces paramètres se trouvent aux tableaux 4.2, 4.3, 4.4, 4.5 et 4.6 respectivement pour l'expérience 1

(RTA), l'expérience 2 (Contrainte), l'expérience 3 (ΔV , RT), l'expérience 4 (ΔV , 250 °C) et l'expérience 5 (HiPIMS). Abordons maintenant plus en détail chacune de ces caractéristiques.

Échantillon	521	524	520	523	
Température (°C)	RT	RT	250	250	
Indice de réfraction à 1064 nm	2,13	2,08	2,13	2,21	
Rugosité (nm)	$0,2 \pm 0,5$	$0,25 \pm 0,5$	$0,85 \pm 0,5$	$0,8 \pm 0,5$	
Épaisseur _{ellipsométrie} (nm)	1448,47 $\pm 0,02$	1228,81 $\pm 0,02$	847,46 $\pm 0,01$	1891,795 $\pm 0,02$	
Épaisseur _{RBS} ($\times 10^{16}$ Atomes/cm ²)	$530 \pm 7,5$	$880 \pm 7,5$	570 ± 5	$1355 \pm 7,8$	
Composition (%) :	O	$71,4 \pm 1,0$	$69,2 \pm 0,3$	$69,7 \pm 1,0$	$71,4 \pm 0,4$
	Ta	$26,1 \pm 0,4$	$28,3 \pm 0,3$	$28,3 \pm 1,0$	$28,6 \pm 0,4$
	Ar	$2,5 \pm 0,5$	$2,5 \pm 0,3$	$3,0 \pm 0,7$	0
Ratio O/Ta	2,74	2,44	2,46	2,50	
Contrainte (MPa)	-137 ± 50	-428 ± 50	-204 ± 50		
Temps de dépôt (s)	10523	10523	10523	10523	
Taux de dépôt (nm/s)	0,14	0,12	0,08	0,18	

Tableau 4.3 Indice de réfraction, rugosité, épaisseur, composition, ratio O/Ta, contrainte, temps de dépôt et taux de dépôt des couches de Ta₂O₅ déposées par MS à RT et à 250 °C afin de caractériser la contrainte dans les couches (Expérience 2). Pour du Ta₂O₅ stoechiométrique, le ratio O/Ta attendu est de 2,5.

Premièrement, l'indice de réfraction à une longueur d'onde de 1064 nm de tous les échantillons a été trouvé par ellipsométrie spectrale. Pour la majorité des échantillons, l'indice de réfraction est environ de 2,11. Toutefois, pour les échantillons 522, 524, 523, 567 et 541 l'indice de réfraction change significativement allant de 2,01 à 2,21. Ces cas semblent cependant isolés et n'ont pas pu être corrélés à un paramètre de dépôt.

Deuxièmement, l'épaisseur des revêtements sur les disques a été trouvée par ellipsométrie spectrale. Pour tous les échantillons, une épaisseur de 1 μm était visée sauf pour ceux de l'expérience 2 (Contrainte) pour laquelle 2 μm étaient visés. Toutefois, puisqu'il est difficile

Échantillon	568	565	569	566	567	
Polarisation (V)	-100	-150	-200	-300	-450	
Indice de réfraction à 1064 nm	2,11	2,13	2,11	2,11	2,21	
Rugosité (nm)	0,7 ± 0,5	0,8 ± 0,5	1,15 ± 0,5	0,5 ± 0,5	0,45 ± 0,5	
Épaisseur _{ellipsometrie} (nm)	978,04 ± 0,02	937,71 ± 0,03	1073,37 ± 0,03	250,43 ± 0,03	282,54 ± 0,05	
Épaisseur _{RBS} (x10 ¹⁶ Atomes/cm ²)	740 ± 4	712 ± 7	707 ± 7	680 ± 5		
Composition (%) :	O	68,0 ± 0,8	69,6 ± 1,0	69,6 ± 1,0	71,5 ± 1,0	-
	Ta	25,0 ± 0,8	27,4 ± 0,4	27,4 ± 0,4	23,5 ± 1,0	
	Ar	7 ± 2	3 ± 0,5	3 ± 0,5	5 ± 3	
Ratio O/Ta	2,72	2,54	2,54	3,04		
Temps de dépôt (s)	56000	6000	6000	6000	7000	
Taux de dépôt (nm/s)	0,17	0,16	0,18	0,04	0,04	

Tableau 4.4 Indice de réfraction, rugosité, épaisseur, composition, ratio O/Ta, temps de dépôt et taux de dépôt des couches de Ta₂O₅ déposées par MS à RT en variant la tension de polarisation appliquée sur le substrat de -100 à -450V (Expérience 3). Pour du Ta₂O₅ stoechiométrique, le ratio O/Ta attendu est de 2,5.

de contrôler le taux de dépôt, plusieurs échantillons sont plus minces que prévu. En effet, le taux de dépôt dépend de l'état de la cible de tantale qui change après chaque utilisation et même parfois pendant les dépôts puisque des fragments de pentoxyde de tantale tombent parfois sur la cible. Notons que pour l'expérience 3 (ΔV , RT), lors de l'application d'une forte tension de polarisation, le taux de dépôt chute. Cela pourrait indiquer la présence de repulvérisation par les ions d'argons. Toutefois, il n'est pas possible d'affirmer cela avec certitude puisque cette tendance n'est pas observée pour l'expérience 4 (ΔV , 250 °C) et que l'on observe une grande variation du taux de dépôt même lorsque les dépôts sont effectués dans les mêmes conditions. De plus, puisque le porte-échantillon n'effectue qu'une rotation sur lui-même lors des dépôts, les revêtements obtenus ne sont pas parfaitement uniformes radialement. Ainsi, les dépôts présentent un gradient d'épaisseur dans cette direction. Toutefois, l'uniformité est suffisante pour qu'une variation de moins de 10% sur

les disques soit mesurée. Cela a pu être établi en faisant une cartographie des disques par ellipsométrie. Toutes les cartographies de l'épaisseur et de la rugosité des couches de Ta₂O₅ peuvent être trouvées aux figures A.1 à A.12 de l'annexe A. Mentionnons également que tous les échantillons présentent une faible rugosité.

Échantillon	571	572	564	562	563
Polarisation (V)	-100	-150	-200	-300	-450
Indice de réfraction à 1064 nm	2,11	2,11	2,10	2,11	2,11
Rugosité (nm)	0,8 ± 0,5	0,8 ± 0,5	0,6 ± 0,5	0,7 ± 0,5	0,6 ± 0,5
Épaisseur _{ellipsometrie} (nm)	396,54 ± 0,01	314,12 ± 0,01	212,22 ± 0,03	262,68 ± 0,02	182,44 ± 0,015
Épaisseur _{RBS} (x10 ¹⁶ Atomes/cm ²)	297 ± 7	288 ± 3	112 ± 3	150 ± 4	
Composition (%) :	O	71,0 ± 1,0	71,1 ± 1,0	71,0 ± 1,0	68,6 ± 1,0
	Ta	26,5 ± 0,4	26,85 ± 0,4	26,0 ± 0,4	28,4 ± 0,4
	Ar	2,5 ± 0,5	2,5 ± 0,5	3,0 ± 0,5	3,0 ± 0,5
Ratio O/Ta	2,68	2,65	2,7	2,41	
Temps de dépôt (s)	5800	6000	7000	6200	7000
Taux de dépôt (nm/s)	0,07	0,05	0,03	0,04	0,03

Tableau 4.5 Indice de réfraction, rugosité, épaisseur, composition, ratio O/Ta, temps de dépôt et taux dépôt des couches de Ta₂O₅ déposées par MS à 250 °C en variant la tension de polarisation appliquée sur le substrat de -100 à -450 V (Expérience 4). Pour du Ta₂O₅ stoechiométrique, le ratio O/Ta attendu est de 2,5.

Troisièmement, la composition des échantillons a été trouvée par RBS. Un ratio O/Ta de 2,5 était attendu pour la couche d'oxyde de tantale puisque la seule phase possible est Ta₂O₅ comme le montre le diagramme de phase à la figure 4.4. Il est possible de constater que la majorité des dépôts étaient suroxygénés et que des faibles concentrations d'argon et d'hydrogène étaient présentes. Cela n'est pas surprenant puisque cet élément est présent sous forme de gaz dans la chambre lors de dépôts. Sans argon, il ne serait pas possible de maintenir un plasma stable dans la chambre. Une hypothèse pouvant expliquer la suroxygénation est que

les dépôts obtenus par MS sont poreux. Ainsi, il pourrait être possible que des molécules de dioxygène soient emprisonnées dans le matériau ou que dans les molécules de pentoxyde de tantale, deux atomes d'oxygène se retrouvent là où il ne devrait y avoir qu'un atome. Mentionnons que les concentrations pour l'échantillon 519 ont été trouvées avant l'implantation de celui-ci. De plus, l'échantillon 657 n'avait pas d'échantillon de référence alors sa composition n'a pas pu être établie. Aussi, une mesure par ERD a été faite sur l'échantillon 522 pour mesurer la quantité d'hydrogène contenue dans les dépôts. Une faible concentration de 1,65% a été détectée ce qui correspond a des molécules d'eau emprisonnées dans la couche de pentoxyde de tantale pendant le dépôt. Puisque la concentration d'hydrogène est faible et correspond à ce qui est attendu, elle n'a pas été mesurée pour les autres échantillons.

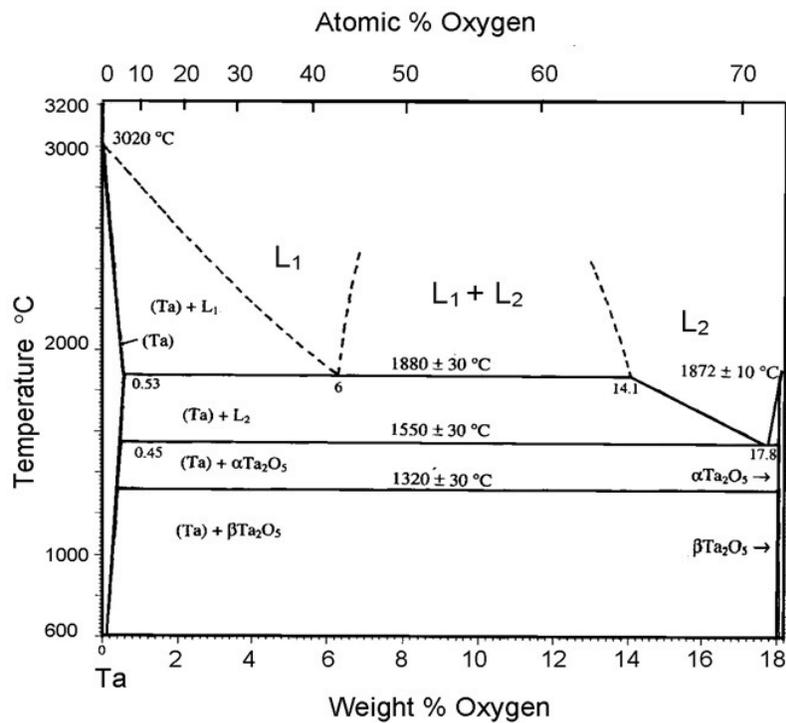


FIGURE 4.4 Diagramme de phase du système Ta-O. L'axe du haut indique le pourcentage atomique d'oxygène. L'axe du bas indique le pourcentage en terme de point d'oxygène dans la molécule. L'axe de gauche indique la température. [86] adapté de [87]

Finalement, les contraintes des échantillons de l'expérience 2 (Contrainte) ont pu être déterminés sur un substrat mince de Si. Pour ce faire, le rayon de courbure des échantillons a été mesuré avant et après le dépôt. La contrainte dans la couche de Ta₂O₅ pour chaque

échantillon a par la suite été trouvé à l'aide de l'équation de Stoney soit l'équation 2.6.1. Les valeurs obtenues se trouvent à la table 4.3. Malheureusement il n'a pas été possible de déterminer la contrainte dans l'échantillon 523 puisque la couche de Ta_2O_5 était trop mince sur celui-ci. Son impact sur le substrat était négligeable. Pour les autres échantillons, on trouve une faible contrainte en compression. Puisque la contrainte est seulement de l'ordre de quelques centaines de MPa, elle ne devrait pas avoir d'influence sur le facteur de qualité des couches de pentoxyde de tantale.

Échantillon	541	657
Indice de réfraction à 1064 nm	2,01	2,12
Épaisseur _{ellipsométrie} (nm)	613,05 ± 0,02	688,07 ± 0,2
Épaisseur _{RBS} ($\times 10^{16}$ Atomes/cm ²)	420 ± 20	
Rugosité (nm)	0,1 ± 0,5	
Composition (%) :	O	71,8 ± 0,5
	Ta	24,2 ± 0,5
	Ar	4,0 ± 1,0
Ratio O/Ta	2,97	
Temps de dépôt (s)	19800	19800
Taux de dépôt (nm/s)	0,03	0,03

Tableau 4.6 Indice de réfraction, rugosité, épaisseur, composition, ratio O/Ta, temps de dépôt et taux de dépôt des couches de Ta_2O_5 déposées par HiPIMS (Expérience 5). Pour du Ta_2O_5 stoechiométrique, le ratio O/Ta attendu est de 2,5.

4.3.2. Angle de perte

Intéressons-nous maintenant aux angles de perte des couches de pentoxyde de tantale pour chaque expérience. Les angles de perte ont été mesurés à Caltech par Gabriele Vajente sur les échantillons tel que déposés et après un recuit à 500 °C pendant 10h. Aussi, les valeurs présentées sont les angles de perte moyens des échantillons sur l'ensemble de leurs fréquences de résonance puisque la variation en fonction de la fréquence est faible comme expliqué à la section 4.2.4. Un exemple de l'angle de perte en fonction de la fréquence se

trouve à la figure 4.5. Ainsi, les angles de pertes mesurés à différentes fréquences concordent les uns avec les autres pour chaque échantillon en considérant l'incertitude associée à chaque angle de perte. De part de fait, l'angle de perte moyen décrit correctement l'angle de perte des échantillons.

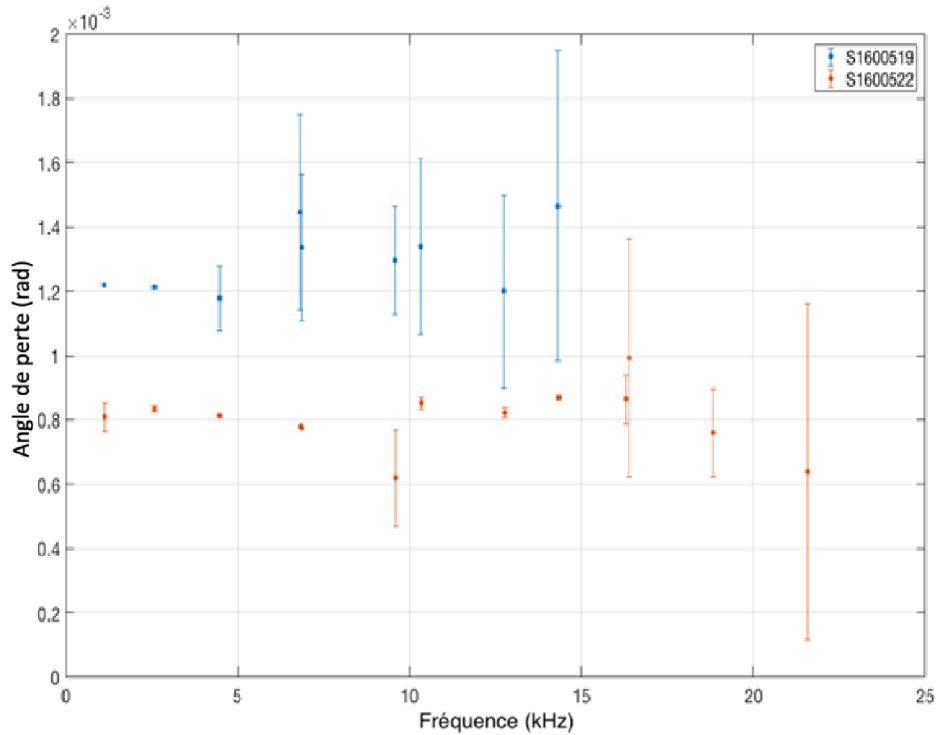


FIGURE 4.5 Angle de perte en fonction de la fréquence de résonance de l'échantillon des couches de Ta_2O_5 d'environ $1 \mu m$ déposées par MS à RT et ayant subi un RTA pendant 10 secondes à $250^\circ C$ (Expérience 1). Les angles de perte ont été mesurés avant le RTA. Les points bleus indiquent l'échantillon 519 (S1600519) et les points oranges indiquent l'échantillon 522 (S1600522).

Premièrement les angles de perte pour l'expérience 1 (RTA) sont présentés à la figure 4.6. On y observe que l'angle de perte de l'échantillon implanté (519) est supérieur à celui de l'échantillon non implanté (522). Cela n'est pas surprenant puisque l'implantation crée du désordre et des défauts dans la couche de pentoxyde de tantale. Cela est intentionnel et a pour objectif de mettre la couche dans un état de déséquilibre pour favoriser une restructuration dans une configuration énergétique plus basse lors du recuit. Toutefois, après

le recuit, les deux échantillons ont des angles de perte très semblables et donc l'implantation n'a pas eu l'effet espéré d'engendrer une plus grande relaxation de la couche. De plus, les échantillons recuits présentent un angle de perte légèrement supérieur à 4×10^{-4} rad ce qui correspond aux valeurs obtenues lors de l'expérience 0 (ΔT). Ainsi, le RTA n'a pas amélioré l'angle de perte du Ta_2O_5 .

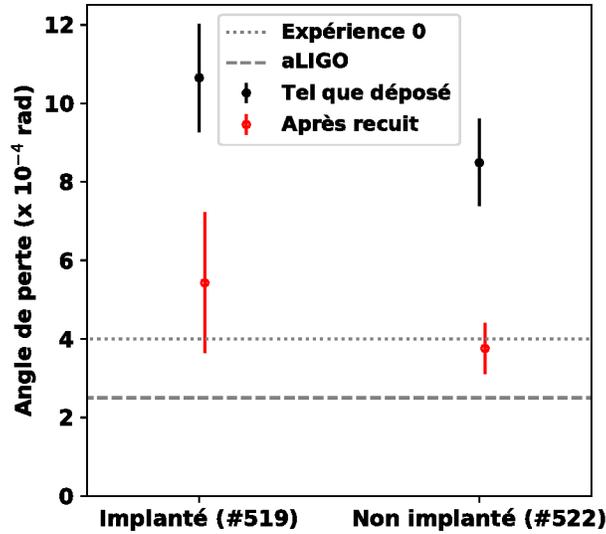


FIGURE 4.6 Angle de perte moyen en fonction de l'implantation d'oxygène des couches de Ta_2O_5 d'environ $1 \mu m$ déposées par MS à RT et ayant subi un RTA pendant 10 secondes à $250 \text{ }^\circ C$ (Expérience 1). Les angles de perte tel que déposé sont ont été mesurés avant le RTA. Le recuit a été fait à $500 \text{ }^\circ C$ pendant 10 h. La ligne pointillée indique le meilleur résultat de l'expérience 0 et la ligne tiretée indique l'angle de perte actuel du Ta_2O_5 utilisé pour l'aLIGO.

Deuxièmement, pour l'expérience 2 (Contrainte) on retrouve les angles de perte à la figure 4.7. Puisque les dépôts ont eu lieu dans les mêmes conditions que pour l'expérience 0 (ΔT) on s'attend à obtenir les mêmes résultats que pour cette dernière expérience. C'est effectivement ce qui est observé. En effet, l'angle de perte des échantillons avant dépôt est d'environ $8,5 \times 10^{-4}$ rad et d'environ de $4,5 \times 10^{-4}$ rad après recuit.

Troisièmement, la figure 4.8 présente l'angle de perte des échantillons de l'expérience 3 (ΔV , RT) en fonction de la tension de polarisation. Cette figure permet de constater qu'une

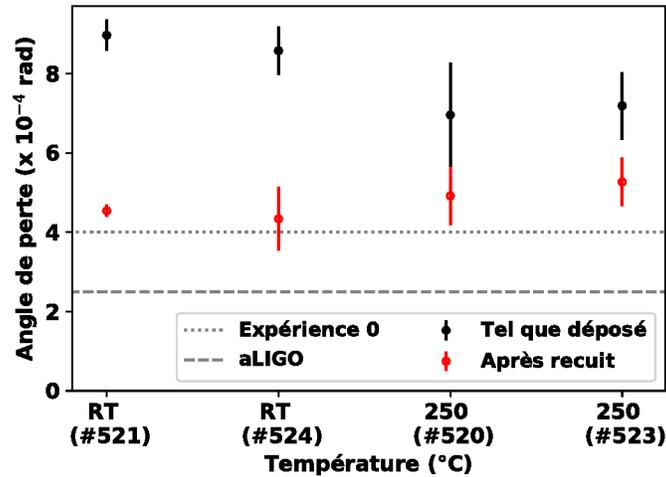


FIGURE 4.7 Angle de perte moyen en fonction de la température de dépôt de couches de Ta_2O_5 d'environ $2 \mu\text{m}$ déposées par MS (Expérience 2). Le recuit a été fait à $500 \text{ }^\circ\text{C}$ pendant 10 h. La ligne pointillée indique le meilleur résultat de l'expérience 0 et la ligne tiretée indique l'angle de perte actuel du Ta_2O_5 utilisé pour l'aLIGO.

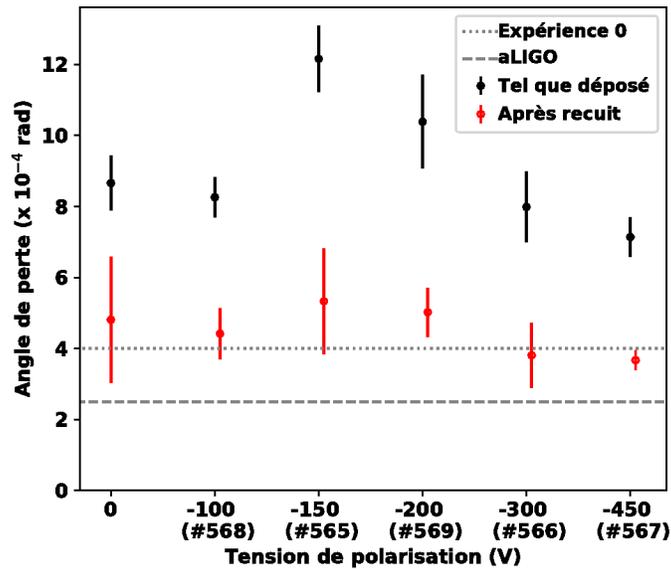


FIGURE 4.8 Angle de perte moyen en fonction de la tension de polarisation appliquée sur le substrat de couches de Ta_2O_5 d'environ $1 \mu\text{m}$ déposées par MS à RT (Expérience 3). Le recuit a été fait à $500 \text{ }^\circ\text{C}$ pendant 10 h. La ligne pointillée indique le meilleur résultat de l'expérience 0 et la ligne tiretée indique l'angle de perte actuel du Ta_2O_5 utilisé pour l'aLIGO.

polarisation inférieure ou égale à -150V augmente l'angle de perte et est donc défavorable. Toutefois, lorsque la tension de polarisation est plus grande que -150V, l'angle de perte diminue sans pour autant être inférieur à l'angle de perte pour une polarisation nulle obtenue lors que l'expérience 0 (ΔT). Cette tendance s'observe à la fois avant et après le recuit de l'échantillon, mais est beaucoup plus marquée avant le recuit. L'impact de la tension de polarisation a également été étudié pour un substrat à 250 °C, les angles de perte obtenus se retrouvent à la figure 4.9.

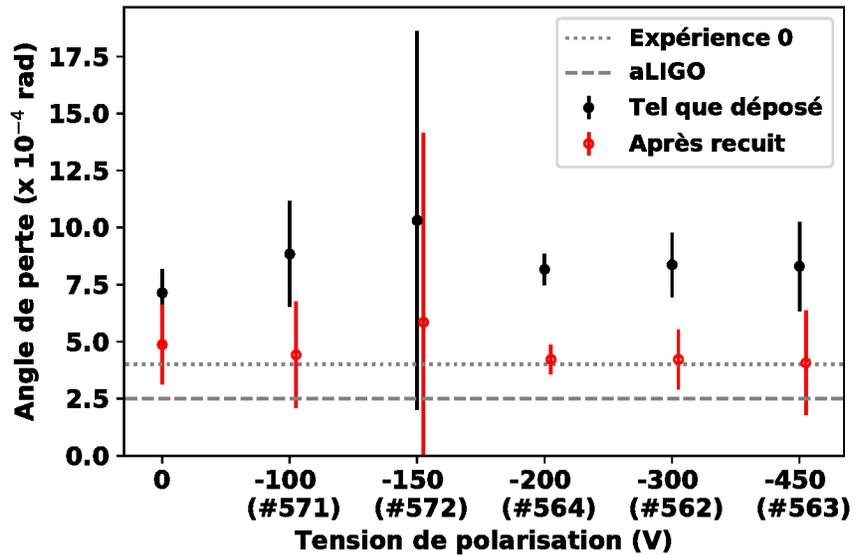


FIGURE 4.9 Angle de perte moyen en fonction de la tension de polarisation appliquée sur le substrat de couches de Ta_2O_5 d'environ $1 \mu m$ déposées par MS à 250 °C (Expérience 4). Le recuit a été fait à 500 °C pendant 10h. La ligne pointillée indique le meilleur résultat de l'expérience 0 et la ligne tiretée indique l'angle de perte actuel du Ta_2O_5 utilisé pour l'aLIGO.

Dans cette situation, l'influence de la polarisation du substrat sur l'angle de perte est moins importante. La seule différence significative observée est une augmentation de l'angle de perte pour une tension de polarisation de -150 V. Aussi, pour à la fois les dépôts faits à RT et à 250 °C avec polarisation, les angles de perte avant recuit sont supérieurs à ceux obtenus pour des dépôts faits aux mêmes températures sans que le substrat ne soit polarisé. Après recuit, les angles de perte sont similaires avec ou sans polarisation du substrat.

Quatrièmement, considérons les échantillons obtenus grâce à l'expérience 5 (HiPIMS). Les deux échantillons présentés ont été faits en utilisant les mêmes paramètres de dépôt. Toutefois, une nouvelle cible de tantale a été utilisée lors du dépôt de l'échantillon 657. Aussi, en utilisant la cible neuve beaucoup moins d'arcs électriques ont été observés ce qui indique un plasma plus stable et réduit les chances que des nanoparticules soient déposées sur le substrat. De plus, le taux de dépôt pour l'échantillon 657 était beaucoup plus rapide ce qui, selon l'article présenté au chapitre 3, nuit à la relaxation de la couche de Ta_2O_5 . Cela est supporté par la figure 4.10 qui montre que l'angle de perte de l'échantillon 657 est supérieur à celui de l'échantillon 541 avant et après recuit.

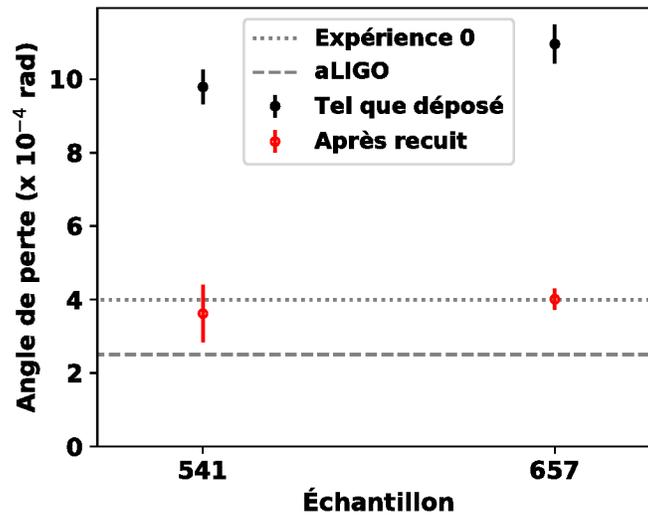


FIGURE 4.10 Angle de perte moyen de couches de Ta_2O_5 d'environ $1 \mu m$ déposées par HiPIMS à RT (Expérience 5). Le recuit a été fait à $500 \text{ }^\circ C$ pendant 10h. La ligne pointillée indique le meilleur résultat de l'expérience 0 et la ligne tiretée indique l'angle de perte actuel du Ta_2O_5 utilisé pour l'aLIGO.

4.3.3. Spectroscopie Raman

Afin de déterminer le degré de relaxation des couches de Ta_2O_5 , les échantillons ont été caractérisés par spectroscopie Raman. Pour s'assurer que les échantillons sont uniformes, le spectre Raman a été mesuré à trois positions sur les échantillons et la moyenne de ces données est le spectre brut présenté pour chaque échantillon. Pour l'ensemble des spectres

bruts, la contribution du substrat au spectre a dû être soustraite. Pour ce faire, la courbe $y = a_1 \times Spectre_{substrat} + a_2 \times e^{a_2 \times x}$ où a_1 , a_2 et a_3 sont des constantes et x est la valeur du décalage Raman, a été ajustée à la courbe de chaque échantillon dans les zones de 390 à 500 cm^{-1} , 780 à 820 cm^{-1} et 1000 à 1250 cm^{-1} . L'exponentielle est ajoutée pour décrire le bruit perçu dans les spectres. La courbe ajustée à chaque échantillon a part la suite été soustraite du spectre de ce dernier. Les résultats obtenus sont présentés ci-dessous.

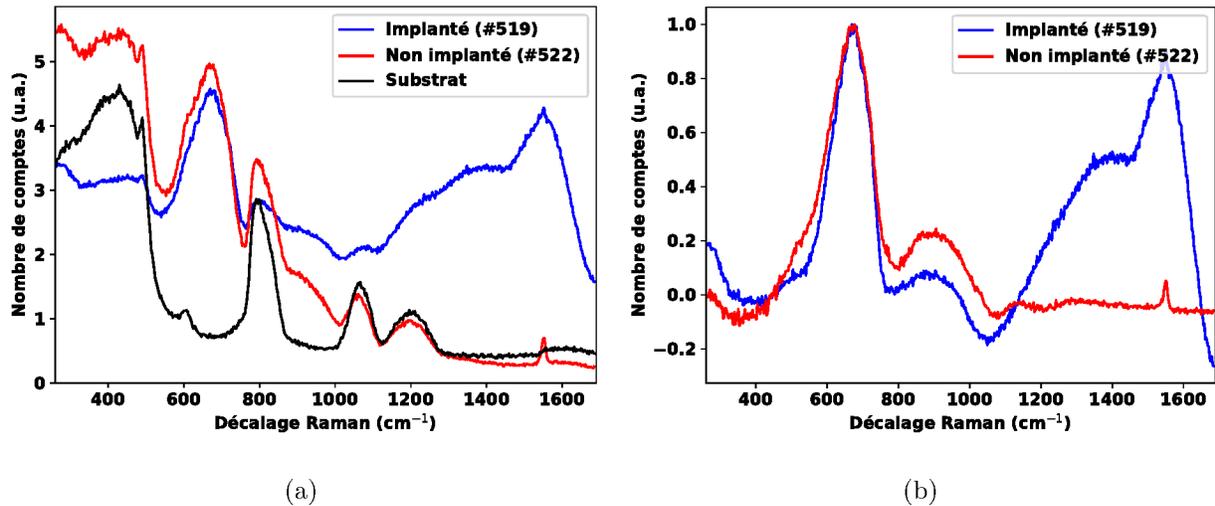


FIGURE 4.11 Spectres Raman des couches d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposées sur substrat de silice fondue par MS à RT (Expérience 1) obtenus à l'aide d'un laser à 514 nm . Les échantillons ont également subi un RTA et l'un des deux échantillons a été implanté à l'aide d'oxygène. Les spectres ont été mesurés sur les échantillons avant le recuit à $500 \text{ }^\circ\text{C}$ pendant 10h . La figure a) montre les spectres moyens sur trois positions des échantillons, soit les spectres bruts, normalisés selon leur épaisseur et celui du substrat normalisé arbitrairement. La figure b) montre les spectres obtenus en soustrayant la contribution du substrat aux spectres bruts. Ceux-ci ont également été normalisés à 1.

La figure 4.11 a) montre les spectres bruts des échantillons 519 et 522. La figure 4.11 b) quant à elle montre les spectres des échantillons desquels le spectre du substrat a été soustrait. Tout d'abord, on observe sur ces figures que pour l'échantillon implanté (519) le signal a une grande intensité entre 1000 et 1700 cm^{-1} qui n'est pas présente pour l'échantillon non implanté. Cette contribution au signal de l'échantillon 519 est due aux défauts formés dans la couche lors de l'implantation. C'est pour cette raison que ce

«pic» n'est pas observé pour l'échantillon 521 ni pour aucun autre échantillon. On observe également un petit élargissement du pic principal du pentoxyde de tantale autour de 550 cm^{-1} qui peut aussi être expliqué par la création de défauts lors de l'implantation. Sur un autre ordre d'idée, il est important de noter que somme toute, la largeur et la position des pics du pentoxyde de tantale sont les mêmes que pour un échantillon déposé à température de la pièce n'ayant pas subi d'autre traitement. Ainsi, le RTA ne crée pas d'effet notable sur le degré de relaxation de la couche déposée

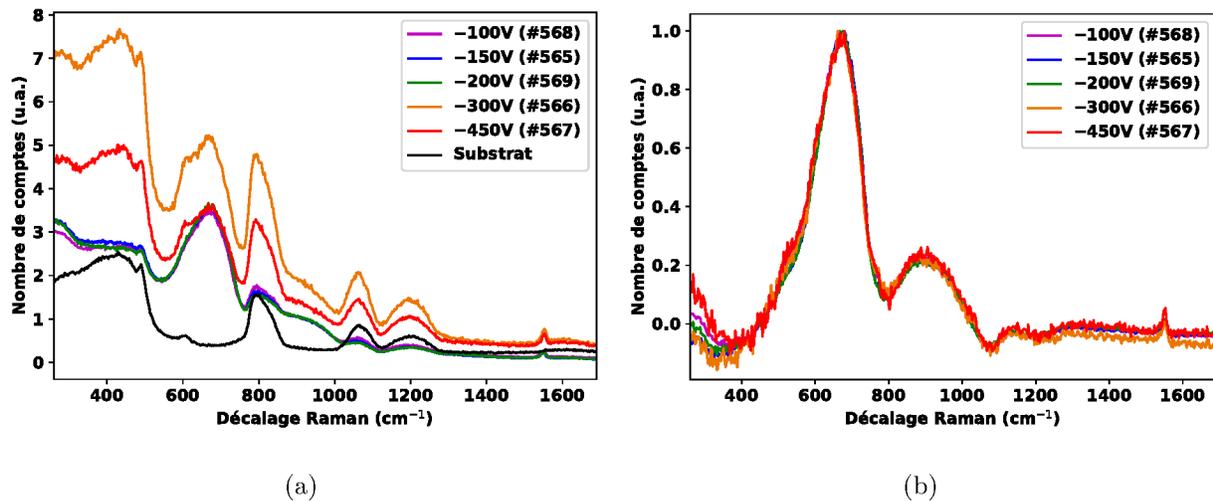


FIGURE 4.12 Spectres Raman des couches d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposées sur substrat de silice fondue par MS à RT obtenus à l'aide d'un laser à 514 nm . Lors des dépôts une tension de polarisation allant de -100 V à -450 V a été appliquée sur le substrat (Expérience 3). Les spectres ont été mesurés sur les échantillons avant le recuit. La figure a) montre les spectres moyens sur trois positions des échantillons, soit les spectres bruts, normalisés selon leur épaisseur et celui du substrat normalisé arbitrairement. La figure b) montre les spectres obtenus en soustrayant la contribution du substrat aux spectres bruts. Ceux-ci ont également été normalisés à 1.

Pour l'expérience 3 (ΔV , RT) les spectres Raman des échantillons sont présentés à la figure 4.12. Encore une fois, la figure a) présente les spectres bruts et la figure b) les spectres obtenus après avoir soustrait la contribution du substrat. Tout d'abord, on observe la présence d'un petit pic à 1575 cm^{-1} . Ce dernier indique la présence d'une faible quantité de carbone dans l'échantillon ce qui n'est pas surprenant puisque les échantillons

ont été exposés à l'air ambiant et manipulés à multiples reprises. Pour ce qui est des pics caractéristiques du pentoxyde de tantale à environ 700 cm^{-1} et 900 cm^{-1} , ils restent semblables peu importe la tension de polarisation appliquée sur le substrat. Effectivement, la position et la largeur des pics restent les mêmes pour tous les échantillons. Cela indique que la variation de la polarisation du substrat n'a pas eu d'impact significatif sur le degré de relaxation de la couche de Ta_2O_5

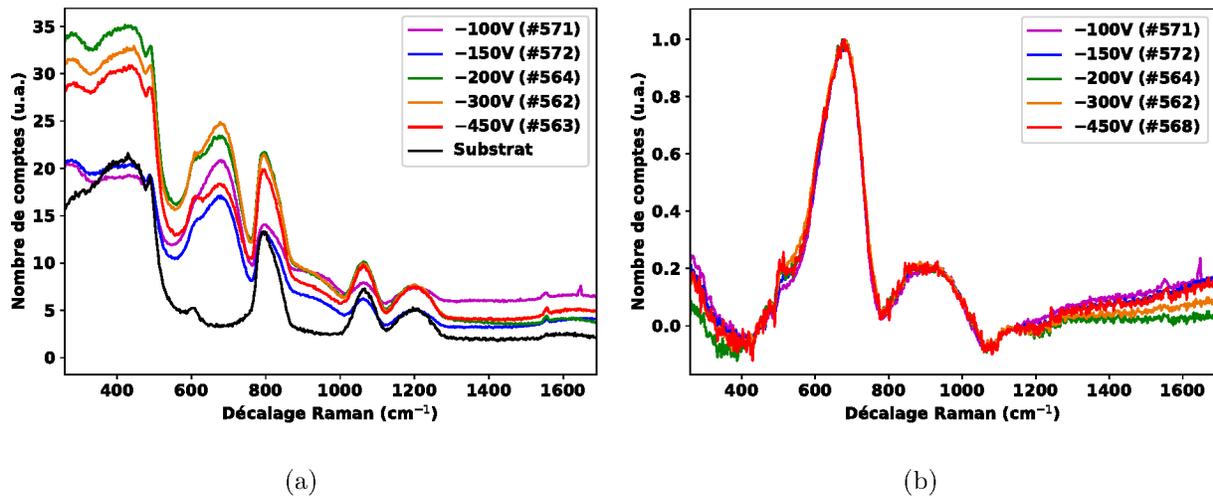


FIGURE 4.13 Spectres Raman des couches d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposées sur substrat de silice fondue par MS à $250\text{ }^\circ\text{C}$ obtenus à l'aide d'un laser à 514 nm . Lors des dépôts une tension de polarisation allant de -100 V à -450V a été appliquée sur le substrat (Expérience 4). Les spectres ont été mesurés sur les échantillons avant le recuit. La figure a) montre les spectres moyens sur trois positions des échantillons, soit les spectres bruts, normalisés selon leur épaisseur et celui du substrat normalisé arbitrairement. La figure b) montre les spectres obtenus en soustrayant la contribution du substrat aux spectres bruts. Ceux-ci ont également été normalisés à 1.

Les spectres de l'expérience 4 (ΔV , $250\text{ }^\circ\text{C}$) peuvent être observés à la figure 4.13. En comparant les différentes courbes, on remarque que tout comme pour les dépôts faits à RT, la tension de polarisation n'a pas d'effet notable sur les spectres Raman. Le spectre de l'échantillon déposé avec une tension de polarisation égale à -450V semble présenter la formation d'une épaule au début du pic associé au pentoxyde de tantale à 700 cm^{-1} . Toutefois, le bruit présent dans le spectre est trop important à cet endroit pour que

l'augmentation du signal soit significative. Cela est corroboré par le fait que la formation de l'épaule n'est pas visible dans les spectres bruts. On peut donc en conclure que la polarisation du substrat ne change pas le degré de relaxation de la couche de Ta_2O_5 même lorsque déposée à 250 °C.

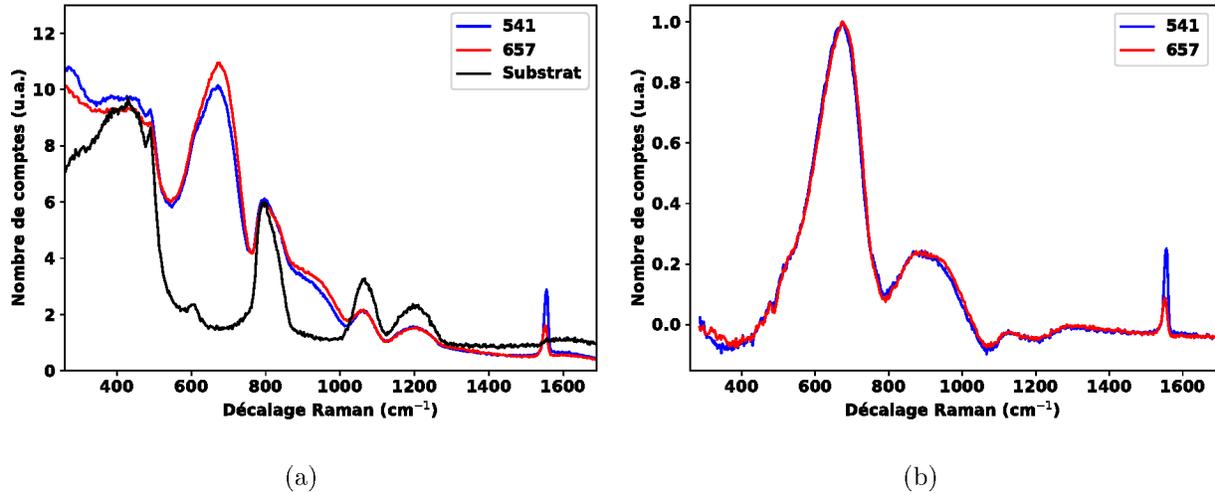


FIGURE 4.14 Spectres Raman des couches d'environ $1\mu m$ de Ta_2O_5 déposées sur substrat de silice fondue par HiPIMS à RT (Expérience 5) obtenus à l'aide d'un laser à 514 nm. Les spectres ont été mesurés sur les échantillons avant le recuit. La figure a) montre les spectres moyens sur trois positions des échantillons, soit les spectres bruts, normalisés selon leur épaisseur et celui du substrat normalisé arbitrairement. La figure b) montre les spectres obtenus en soustrayant la contribution du substrat aux spectres bruts. Ceux-ci ont également été normalisés à 1.

Pour les dépôts faits par HiPIMS soit ceux de l'expérience 5, les spectres Raman sont à la figure 4.14. Encore une fois, la largeur et la position des pics sont les mêmes pour les deux échantillons ce qui n'est pas surprenant puisque ceux-ci ont été déposés dans les mêmes conditions. De plus, le pic de carbone est plus important, mais n'affecte pas la structure du pentoxyde de tantale. L'augmentation de l'intensité du pic de carbone est probablement causée par une contamination accidentelle plus importante.

4.3.4. XRD

Une autre méthode pour caractériser la structure des échantillons à une échelle moléculaire est le XRD. Pour ce projet, les mesures ont été prises à Stanford University. Lors de la mesure, la même énergie de faisceau a été utilisée pour tous les échantillons d'une même expérience. Toutefois, puisque les dépôts sur les échantillons n'ont pas tous la même épaisseur, le faisceau est parfois trop énergétique et mesure le substrat. Dans cette situation, un signal associé au SiO_2 est additionné au signal du Ta_2O_5 . C'est ce qui est observé pour les échantillons 522, 566 et 567. Pour établir la contribution du substrat au signal, une combinaison linéaire du spectre du substrat et du spectre d'un échantillon pour lequel seul le Ta_2O_5 contribue au signal est utilisée. Les paramètres de cette combinaison sont ajustés pour chaque échantillon afin que la combinaison linéaire corresponde le mieux possible au spectre des échantillons 522, 566 et 567. Par la suite, la contribution du substrat à la combinaison linéaire est soustraite au spectre brut de chaque échantillon et on obtient ainsi uniquement la contribution du Ta_2O_5 pour les échantillons 522, 566, 567. Nous pouvons maintenant aborder les résultats pour chacune des expériences.

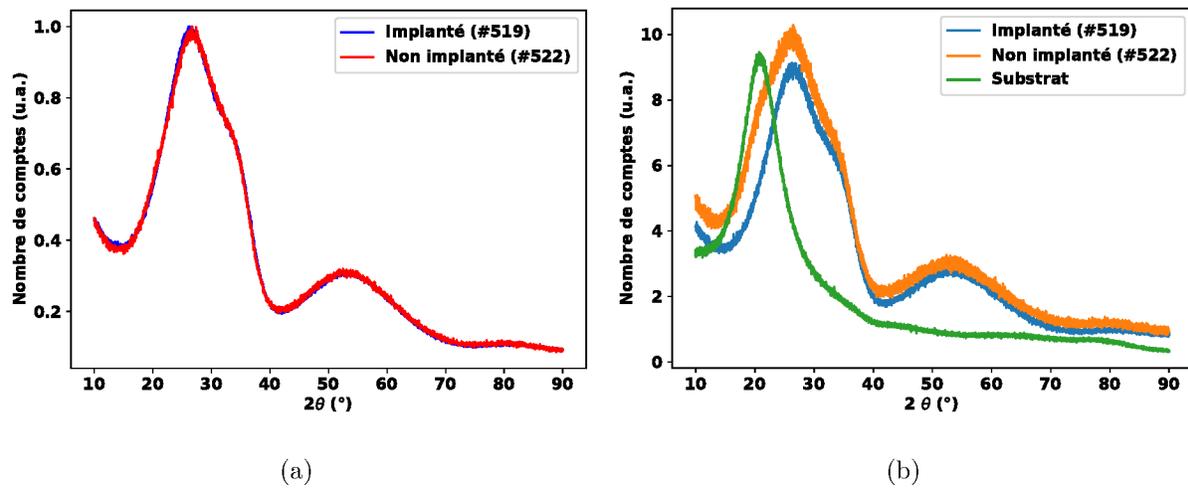
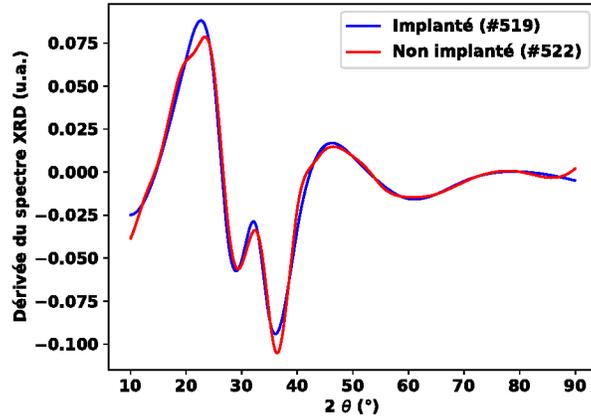
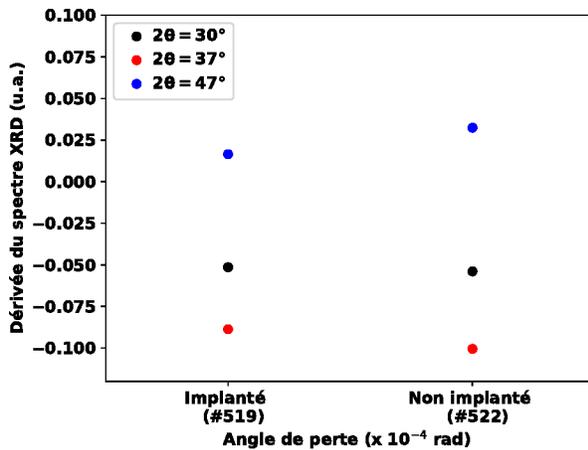


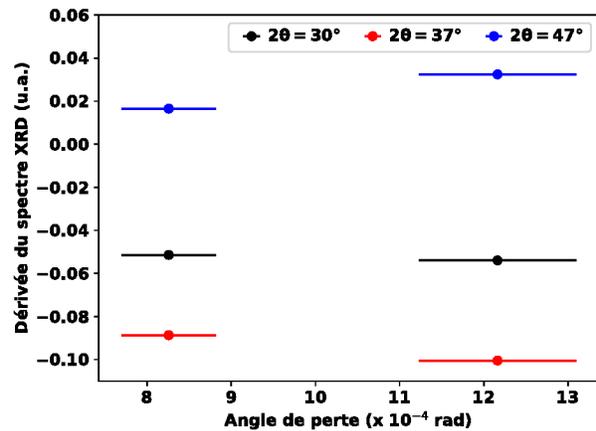
FIGURE 4.15 Spectres XRD des couches d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposées sur substrat de silice fondue par MS à RT (Expérience 1) . Les échantillons ont également subi un RTA et l'un des deux échantillons a été implanté d'oxygène. La figure a) montre les spectres bruts, normalisés selon leur épaisseur et celui du substrat normalisé arbitrairement. La figure b) montre les spectres obtenus en soustrayant la contribution du substrat aux spectres bruts. Ceux-ci ont également été normalisés à 1.



(a)



(b)



(c)

FIGURE 4.16 Dérivée des spectres XRD dont la contribution du substrat a été soustraite des échantillons ayant une couche d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposée sur substrat de silice fondue par MS à RT (Expérience 1). Les échantillons ont également subi un RTA et l'un des deux échantillons a été implanté d'oxygène. La figure a) montre la dérivée complète des spectres. La figure b) montre la dérivée aux endroits critiques du spectre XRD en fonction de l'échantillon. La figure c) montre la valeur de la dérivée en $2\theta=30^\circ$, 37° et 47° en fonction de l'angle de perte.

Pour l'expérience 1 (RTA), la figure 4.15 a) illustre les spectres bruts normalisés selon l'épaisseur des couches de Ta_2O_5 . Sur la figure 4.15 b) la contribution du substrat a été soustraite au spectre de l'échantillon 522 et le spectre des deux échantillons a été lissé en effectuant une moyenne de chaque point sur deux voisins. À première vue, les

deux spectres de la figure b) semblent identiques. Cependant, un léger élargissement d'un des pics des courbes correspondrait à un changement significatif de la structure de la couche de pentoxyde de tantale. Ainsi, pour s'assurer qu'il n'y a réellement pas de différence significative entre le spectre de l'échantillon implanté et celui de l'échantillon non implanté, la dérivée de chacun des spectres a été prise. En effet, une modification de la pente des courbes montrerait une augmentation ou une diminution de la largeur des pics. La dérivée de l'entièreté des spectres XRD se retrouve à la figure 4.16 a). Aussi, la figure 4.16 b) montre la valeur de la dérivée en $2\theta=30^\circ$, 37° et 47° puisque ces angles correspondent aux positions critiques dans les spectres bruts. Il est possible de constater que pour ces trois angles les valeurs de la dérivée obtenues sont sensiblement les mêmes que l'échantillon ait été implanté ou pas. De plus, la figure 4.16 c) montre qu'il n'y a pas de corrélation entre l'angle de perte et la dérivée du spectre XRD pour ces échantillons.

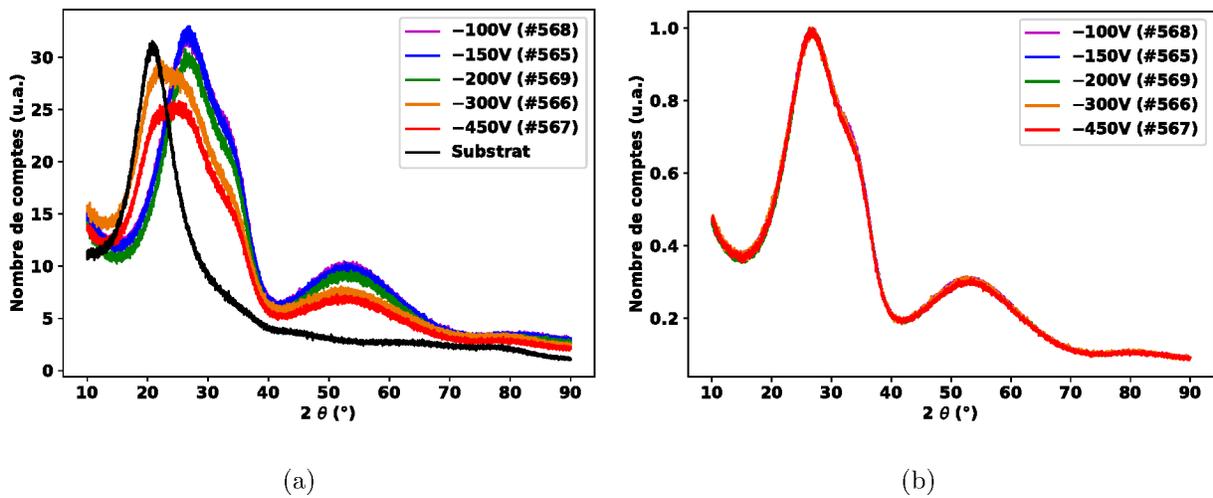
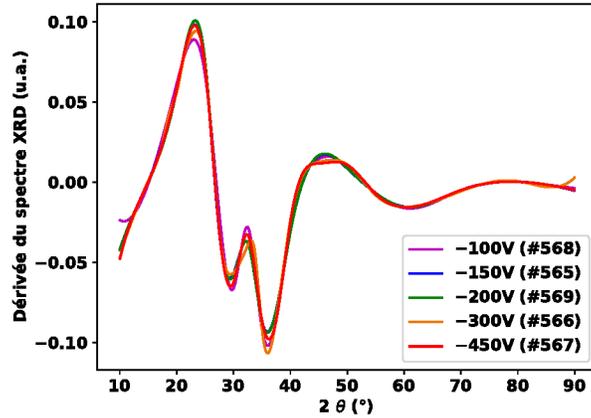
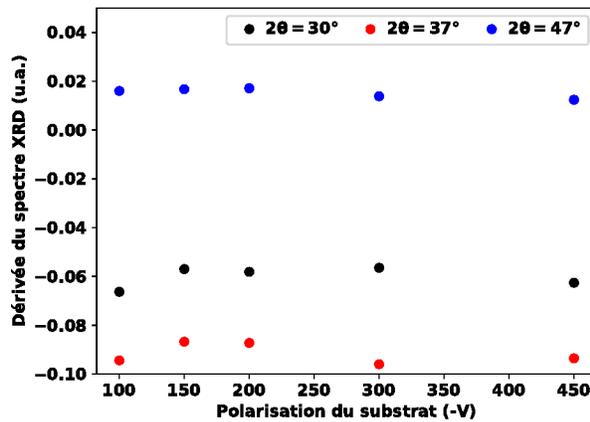


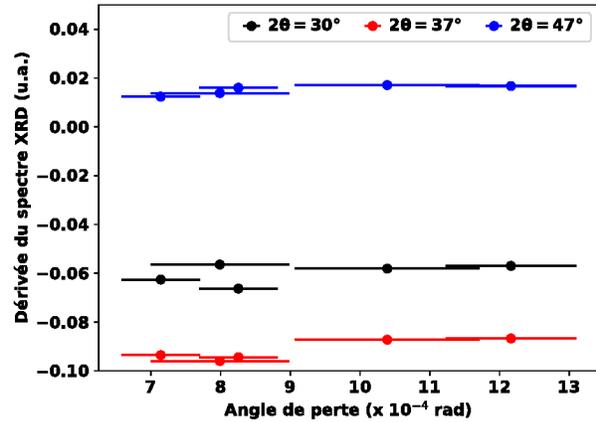
FIGURE 4.17 Spectres XRD des couches d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposées sur substrat de silice fondue par MS à RT. Lors des dépôts une tension de polarisation allant de -100 V à -450V a été appliquée sur le substrat (Expérience 3). La figure a) montre les spectres bruts, normalisés selon leur épaisseur et celui du substrat normalisé arbitrairement. La figure b) montre les spectres obtenus en soustrayant la contribution du substrat aux spectres bruts. Ceux-ci ont également été normalisés à 1.



(a)



(b)



(c)

FIGURE 4.18 Dérivée des spectres XRD dont la contribution du substrat a été soustraite des échantillons ayant une couche d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposée sur substrat de silice fondue par MS à RT. Lors des dépôts une tension de polarisation allant de -100 V à -450V a été appliquée sur le substrat (Expérience 3). La figure a) montre la dérivée de l'ensemble des spectres XRD. La figure b) montre la dérivée aux endroits critiques du spectre XRD en fonction de l'échantillon. La figure c) montre la valeur de la dérivée en fonction de l'angle de perte.

Continuons avec les résultats de l'expérience 3 (ΔV , RT). Les spectres bruts se retrouvent à la figure 4.17. Les spectres lissés et dont la contribution du substrat a été soustraite se retrouvent à la figure 4.17 b). Encore une fois, *a priori* les spectres semblent identiques et donc la dérivée de ceux-ci a été calculée. Le résultat obtenu est présenté à la figure 4.18 a).

Une analyse plus spécifique de la dérivée en $2\theta=30^\circ$, 37° et 47° en fonction de la tension de polarisation du substrat est présentée à la figure 4.18 b). La valeur de la dérivée reste la même peu importe la tension de polarisation aux trois endroits critiques du spectre. Aussi, aucune corrélation n'a pu être établie entre la valeur de l'angle de perte et celle de la dérivée comme le montre la figure 4.18 c).

Échantillon	Module de Young (GPa)	Dureté (GPa)
520	140	8,8
567	129	6,9
563	131	6,8

Tableau 4.7 Module de Young et dureté de couches de Ta_2O_5 des échantillons 520 (Expérience 2 : MS, 250 °C), 567 (Expérience 3 : MS, RT, tension de polarisation de -450 V) et 563 (Expérience 4 : MS, 250 °C, tension de polarisation de -450 V).

4.3.5. Nano-indentation

Finalement, le module de Young et la dureté des échantillons 520 (Expérience 2 : MS, 250°C), 567 (Expérience 3 : MS, RT, tension de polarisation de -450V) et 563 (Expérience 4 : MS, 250°C, tension de polarisation de -450V) ont été mesurés par nano-indentation. Ces échantillons ont été sélectionnés pour étudier l'influence de la température de dépôt et de la tension de polarisation sur le module de Young et la dureté des couches de Ta_2O_5 . Les résultats obtenus se trouvent au tableau 4.7. Considérons d'abord la dureté. Pour le Ta_2O_5 la dureté attendue varie entre 4,3 et 7,3 Gpa et dépend grandement de la densité de la couche [88]. Ainsi, les duretés obtenues pour les échantillons 520 (8,8 GPa), 567 (6,9 GPa) et 563 (6,8 GPa) concordent avec la littérature. Notons que les échantillons sur lesquels une tension de polarisation a été appliquée pendant le dépôt ont une dureté plus faible. Une hypothèse pouvant peut-être expliquer cela est que la forte tension de polarisation engendre de la repulvérisation qui crée plusieurs défauts et laisse la couche déposée dans un état moins dense. Pour ce qui est du module de Young, la valeur attendue est de 140 GPa [3]. Le module de Young de l'échantillon 520 est exactement de 140 GPa. Les échantillons 567 et 563 pour lesquels une tension de polarisation de -450V a été appliquée sur le substrat ont un module

de Young légèrement plus faible indépendamment de la température du substrat lors du dépôt. Cela indique donc *a priori* que la température de dépôt n'influence pas le module de Young et la dureté, mais que l'application d'une tension de polarisation engendre une diminution de ces deux paramètres. Nous avons également tenté de mesurer le module de Young et la dureté directement sur les disques et non pas sur les échantillons de référence ayant un substrat de silicium. Malheureusement, la courbure des disques rend impossible une mesure fiable de ces paramètres sans endommager les disques. Dans les faits, même en utilisant un porte-échantillon fait sur mesure, les disques bougent légèrement entre chaque mesure ce qui fausse les résultats obtenus. Pour obtenir une mesure fiable, il faudrait coller les disques à une plaque de métal. De plus, les résultats trouvés pour les échantillons de référence doivent être utilisés avec prudence puisque la densité des couches sur ceux-ci n'est pas nécessairement égale à celle des couches sur les disques correspondants et que la densité influence grandement le module de Young et la dureté [88] comme mentionné plus tôt.

4.4. Discussion

Cette section a pour objectif de tirer de conclusion grâce aux résultats présentés plus tôt pour chaque expérience. Afin de rappeler les résultats les plus importants, une comparaison entre les angles de pertes des expériences 0 à 5 se trouve à la figure 4.19 et une comparaison des spectres Raman des expériences 0,1,3,4 et 5 se retrouve à la figure 4.20. Mentionnons que pour ces deux figures, les échantillons 453 et 448 de l'expérience 0 n'ont pas été considérés puisque ceux-ci ont cristallins lors du dépôt. Ils ne sont donc pas comparables aux échantillons amorphes.

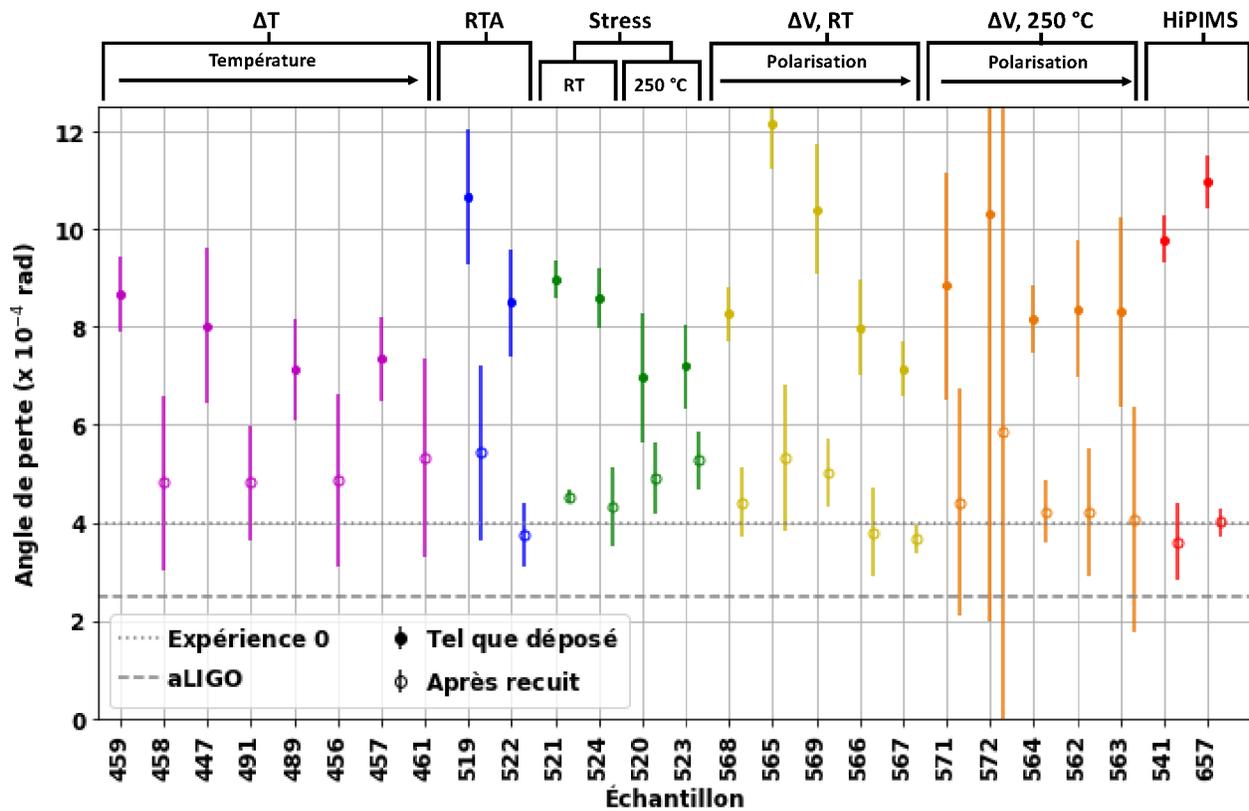
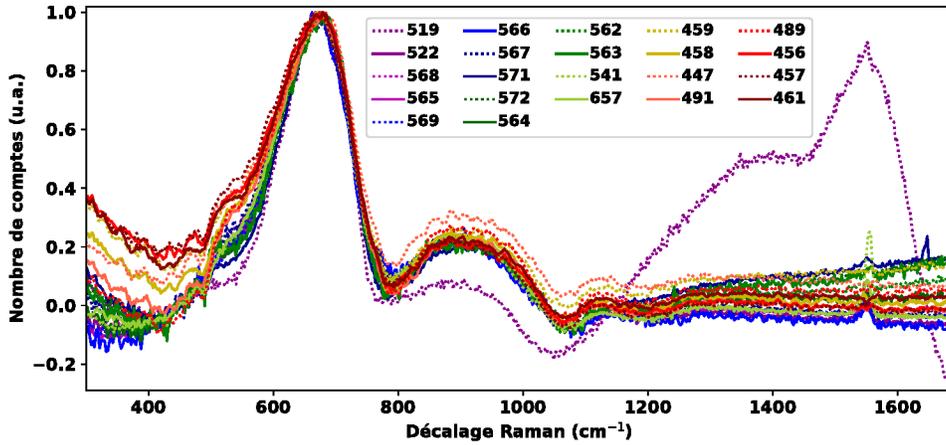
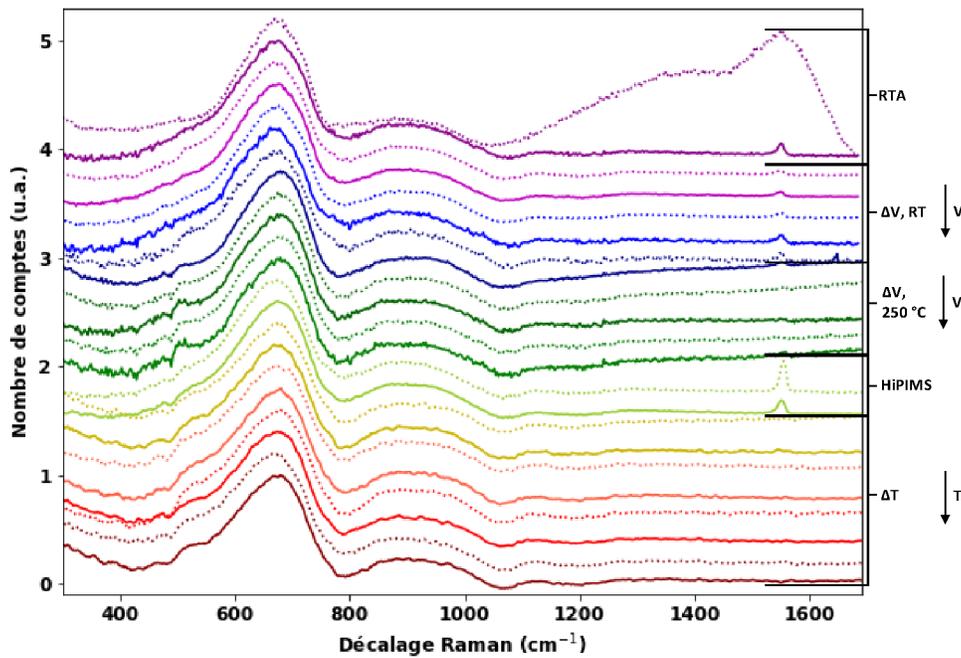


FIGURE 4.19 Angle de perte moyen de couches de Ta_2O_5 déposées dans le cadre des expériences 0 à 5. Chaque couleur est associée une expérience et les échantillons sont présentés dans l'ordre croissant du paramètre étudié. Le recuit a été fait à 500°C pendant 10h. La ligne pointillée indique le meilleur résultat de l'expérience 0 et la ligne tiretée indique l'angle de perte actuel du Ta_2O_5 utilisé pour l'aLIGO. Certaines barres d'erreurs sont supérieures à 12,5.



(a)



(b)

FIGURE 4.20 Spectres Raman obtenus à l'aide d'un laser à 514 nm des couches d'environ $1\mu\text{m}$ de Ta_2O_5 déposées sur substrat de silice fondue par diverses méthodes dans le cadre des expériences 0 à 5. Les spectres ont été mesurés sur les échantillons avant le recuit. La figure a) montre les spectres dont la contribution du substrat a été soustraite normalisés à 1. La figure b) montre les mêmes spectres décalés afin de mieux voir les particularités de chaque spectre. Les expériences associées à chaque échantillon sont identifiées ainsi que la direction dans laquelle le paramètre étudié croît. La légende de couleur montrée dans la figure a) est la même que celle utilisée pour la figure b).

4.4.1. Expérience 1 (RTA)

Cette expérience avait pour objectif de déterminer si le RTA et l'implantation d'oxygène pouvaient améliorer la relaxation du pentoxyde de tantale. En comparant l'angle de perte des échantillons déposés par MS à température de la pièce (459 et 458) à l'échantillon déposé dans les mêmes conditions, mais ayant également subi un RTA (519) à la figure 4.19, on constate que le RTA n'améliore pas l'angle de perte pour l'échantillon tel que déposé et n'améliore que faiblement l'angle de perte après le recuit. Aussi, puisque les incertitudes des échantillons ayant subi un RTA après recuit sont très grandes, il est difficile d'affirmer avec certitude que le RTA améliore la relaxation de la couche de pentoxyde de tantale. Pour ce qui est de l'échantillon ayant subi un RTA et une implantation d'oxygène, en consultant la même figure on observe que l'angle de perte de cet échantillon est supérieur à celui n'ayant pas été implanté. Ceci suggère que l'implantation dégrade la qualité de la couche de pentoxyde de tantale.

La spectroscopie Raman a permis d'établir que l'implantation d'oxygène crée une grande quantité de défauts dans la couche de tantale créant un «pic» entre 1100 et 1700 cm^{-1} . Cela indique que les défauts changent la structure à l'échelle de quelques nanomètres dans la couche de pentoxyde de tantale. Pour ce qui est de l'échantillon ayant uniquement subi un RTA (521), on n'observe aucune déformation ou translation significative du pic principal du pentoxyde de tantale se trouvant à environ 700 cm^{-1} par rapport au spectre d'un échantillon déposé à température de la pièce par MS (459) comme le montre la figure 4.20. Cela suggère que le RTA ne crée pas une structure plus ordonnée.

La structure du pentoxyde de tantale à l'échelle moléculaire a également été caractérisée par XRD. Pour les deux échantillons il a été trouvé que les spectres étaient pratiquement identiques. Ce qui suggère que la structure n'a pas été modifiée par l'implantation contrairement à ce que la spectroscopie Raman a permis de conclure. Aussi, les dérivées de spectres XRD des expériences 1 (RTA) et 3(ΔV , RT) sont sensiblement les mêmes. Cela signifie que le RTA n'a pas permis de restructurer la couche de pentoxyde de tantale dans une configuration énergétique plus basse.

Somme toute, l'angle de perte et la spectroscopie Raman indiquent que l'implantation d'oxygène dans la couche de pentoxyde de tantale crée une multitude de défauts sans pour autant favoriser une plus grande relaxation du matériau lors du recuit à haute température. Aussi, l'angle de perte, la spectroscopie Raman et le XRD s'accordent pour dire que le RTA n'a pas d'influence significative sur la relaxation de la couche de Ta₂O₅.

4.4.2. Expérience 2 (Contrainte)

Pour cette expérience, des couches deux fois plus épaisses de pentoxyde de tantale ont été déposées sur un substrat de silicium de 100 μm . Comme présenté plutôt, en mesurant le rayon de courbure avant et après les dépôts la contrainte des couches de Ta₂O₅ a été calculée. Puisque les contraintes obtenues sont seulement de quelques centaines de MPa en compression, celles-ci ne devraient pas affecter les angles de perte. Sur le même ordre d'idée, les dépôts ont été faits simultanément sur des disques de silice fondue pour pouvoir mesurer l'angle de perte des couches. Les angles de perte obtenus sont très semblables à ceux des échantillons déposés dans les mêmes conditions lors de l'expérience 0 (ΔT) tel qu'attendu. Finalement, la dureté et le module de Young de l'échantillon 520 déposé à 250 °C ont été mesurés et concordent avec la littérature.

4.4.3. Expérience 3 (ΔV , RT)

Dans le cadre de l'expérience 3 (ΔV , RT), l'influence de la polarisation sur le degré de relaxation de la couche de pentoxyde de tantale a été explorée. Les résultats présentés dans la section précédente nous informent que l'angle de perte augmente pour une tension de polarisation égale à -250V, mais qu'il diminue graduellement par la suite pour les tensions plus importantes. Il est possible que pour de faibles tensions, les ions d'argon soient assez accélérés vers le substrat et donc acquièrent assez d'énergie pour y créer des défauts, mais pas assez pour que l'énergie qu'ils transmettent à la couche permette à celle-ci de se réorganiser. Aussi, comparons les angles de perte de cette expérience à ceux des autres expériences à la figure 4.19 on constate qu'en moyenne l'ajout d'une tension de polarisation n'améliore pas les angles de perte sauf pour les échantillons sur lesquels -300V et -450V ont été appliqués. En effet, pour ces échantillons l'angle de perte après recuit est inférieur

à celui de l'échantillon de l'expérience 0 (ΔT), mais il reste toutefois supérieur à la valeur typique trouvée dans la littérature de 4×10^{-4} rad.

Puisque l'angle de perte des échantillons devrait diminuer si leur structure à l'échelle de quelques nanomètres est plus ordonnée, nous avons caractérisé le degré de relaxation des échantillons par spectroscopie Raman et par XRD. Tout d'abord, la spectroscopie Raman ne révèle aucune variation dans le spectre des échantillons en fonction de la tension de polarisation. Aussi, comme le montre la figure 4.20, l'ajout d'une tension de polarisation n'a pas créé de nouveaux pics ou modifié ceux déjà présents par rapport aux autres expériences. Par la suite, le XRD a aussi montré des spectres ayant la même forme indépendamment de la tension de polarisation appliquée. Cela a été confirmé en calculant la dérivée du spectre en $2\theta = 30^\circ\text{C}$, 37°C et 47°C . Celle-ci reste constante en fonction de la tension de polarisation et de l'angle de perte.

Finalement, bien que l'angle de perte indique une détérioration de la qualité de la couche de Ta_2O_5 lorsque de faibles tensions de polarisation sont appliquées et une amélioration de la qualité de la couche lorsque de grandes tensions de polarisation sont appliquées, la spectroscopie Raman n'indique pas de modification du degré de relaxation et le XRD ne permettent pas de voir des modifications de la structure du matériau à l'échelle moléculaire. Rappelons également que le module de Young et la dureté de l'échantillon 567, pour lequel une tension de polarisation de -450 V a été appliquée, ont été mesurés et sont inférieurs à ce qui se retrouve dans la littérature. Il est possible que cela soit le résultat d'une repulvérisation par les ions d'argons qui rend la couche déposée moins dense.

4.4.4. Expérience 4 (ΔV , 250°C)

L'influence de la tension de polarisation a également été étudiée dans une deuxième expérience pour laquelle la température du substrat était de 250°C et non pas RT. La température de 250°C a été choisie puisqu'elle avait permis d'obtenir les meilleurs résultats pour l'expérience 0 (ΔT). Ainsi, en déposant les couches de Ta_2O_5 avec une tension de polarisation à 250°C il a été trouvé que l'angle de perte augmentait légèrement pour une

tension de polarisation de -150 V, mais considérablement moins qu'à l'expérience 3 (ΔV , RT). En général, la tension de polarisation a peu d'impact sur l'angle de perte de la couche de Ta₂O₅.

La spectroscopie Raman a permis de confirmer qu'il n'y avait pas de modification de la structure du matériau à l'échelle moléculaire. En effet, les spectres sont les mêmes indépendamment de la tension de polarisation et de la température de dépôt comme le montre la figure 4.20. Ainsi, l'angle de perte et la spectroscopie Raman s'accordent pour dire que la tension de polarisation appliquée sur le substrat à 250 °C n'a pas d'impact sur la qualité de la couche déposée.

Finalement, la mesure du module de Young et de la dureté de l'échantillon 563 déposé avec une tension de polarisation de -450 V a montrée que ces deux paramètres étaient inférieurs à ce qui se retrouve dans la littérature. Cela peut suggérer que l'application d'une forte tension de polarisation engendre de la repulvérisation qui diminue la densité de la couche obtenue.

4.4.5. Expérience 5 (HiPIMS)

Pour cette expérience une nouvelle méthode de dépôt a été testée. En effet, deux dépôts ont été faits par HiPIMS à RT. En comparant l'angle de perte des couches à ceux obtenus en utilisant d'autres méthodes de dépôt à la figure 4.19, on observe que les échantillons déposés par HiPIMS ont des angles de pertes supérieurs pour les échantillons tels que déposés. Cela peut être dû au fait que dans la chambre de dépôt utilisée, le magnétron se situe loin, à environ 30 cm, du substrat. Ainsi, les ions entrent en collision avec un grand nombre d'atomes avant d'atteindre le substrat ce qui empêcherait les effets bénéfiques du HiPIMS répertorié dans la littérature [8] d'être observés. Pour vérifier cela, le logiciel SRIM [89] a été utilisé pour simuler des atomes de tantale traversant un gaz à une pression de 5 mTorr formé à 75% d'argon et 25 % de dioxygène ayant une densité de $9 \times 10^{-9} g/cm^3$ sur 50 cm. Il a été trouvé que seul 25% des atomes de tantale ayant une énergie de 100 eV traversent le gaz et que leur énergie moyenne est presque nulle lorsqu'ils

atteignent le substrat. Pour des atomes ayant une énergie de 1 keV, presque la totalité (99,98%) de ceux-ci peuvent traverser le gaz, mais leur énergie moyenne est inférieure à 0,33 keV au substrat. Dans tous les cas, les ions qui se rendent au substrat avec une énergie cinétique d'au moins quelques électron-volts sont ceux ayant fait peu de collisions et ils sont relativement directionnels. Dans les faits, pour des ions incidents ayant une énergie allant de 1 keV à 10 keV, il a été trouvé l'angle de déflexion moyen allait de $18,81^\circ$ à $9,30^\circ$ selon la simulation mentionné précédemment. De plus, lors de dépôt par HiPIMS, il est ardu de maintenir un plasma stable et il est très fréquent que des arcs électriques se forment à la surface du magnétron. Lorsque cela se produit, des nanoparticules de tantale sont éjectées de la cible et se déposent sur le substrat. Puisque les nanoparticules sont grosses en comparaison aux molécules de Ta_2O_5 , leur présence nuit à la relaxation du matériau et à la qualité optique du dépôt. Pour ce qui est des angles de pertes après le recuit, ceux-ci sont approximativement les mêmes que ceux obtenus en utilisant d'autres méthodes de dépôt.

Les résultats de la spectroscopie Raman présentés plus tôt nous renseignent sur la structure à l'ordre de quelques nanomètres de la couche de pentoxyde de tantale. Ainsi, puisque les spectres de deux échantillons obtenus par HiPIMS sont très semblables entre eux et qu'ils sont pratiquement les mêmes que ceux obtenus dans les autres expériences comme le montre la figure 4.20, on peut en attester que le HiPIMS n'a pas créé de modifications dans la structure des couches de Ta_2O_5 visibles par spectroscopie Raman.

Somme toute, on conclut que le HiPIMS ne permet pas d'obtenir des dépôts plus relaxés que le MS puisqu'aucune amélioration significative n'a été observée par l'angle de perte ou par spectroscopie Raman. Toutefois, il est important de rappeler ici que dans la chambre de dépôt utilisée le magnétron se trouve très loin du substrat. Ainsi, il serait intéressant de refaire ces dépôts dans un système mieux optimisé au HiPIMS pour établir s'il est possible d'obtenir des dépôts plus relaxés dans ces conditions.

Chapitre 5

Conclusion

Somme toute, ce projet de recherche avait pour objectif d'améliorer l'angle de perte de couches de Ta_2O_5 . Pour ce faire, la température du substrat lors du dépôt a été variée (Expérience 0 (ΔT)), les échantillons ont subis un RTA et l'un des échantillons a été implanté après dépôt avec des ions d'oxygène (Expérience 1 (RTA)), la contrainte des couches déposées a été caractérisée (Expérience 2 (Contrainte)), une tension de polarisation a été appliquée sur les substrats à RT (Expérience 3 (ΔV , RT)) et à 250 °C (Expérience 4 (ΔV , 250 °C)) et finalement, des couches ont été déposées par HiPIMS (Expérience 5 (HiPIMS)).

L'expérience 0 (ΔT) a montré que l'angle de perte des couches diminuait avec la température de dépôt jusqu'à 250 °C puis qu'il augmentait. Toutefois, cet effet était minime par rapport à celui du recuit à 500 °C. Une amélioration de la structure à l'échelle moléculaire a également pu être observée par spectroscopie Raman et par XRD. L'expérience 1 (RTA) quant à elle a permis de conclure que le RTA n'améliorait pas l'angle de perte et n'influait pas les spectres Raman et XRD. Cette expérience montre également que la création de défauts par implantation ne permet pas d'obtenir une couche plus relaxée après recuit. L'expérience 2 (Contrainte) indique que la contrainte dans les couches est de seulement quelques MPa en compression. Ainsi, la contrainte des couches ne devrait pas affecter l'angle de perte. L'expérience 3 (ΔV , RT) a montré une détérioration de l'angle de perte lors de l'application de faibles tensions de polarisation et une amélioration de celui-ci lors de l'application de fortes tensions de polarisation. Par contre, il n'a pas été possible de mesurer une modification du degré de relaxation de matériau par spectroscopie Raman ou

par XRD. L'expérience 4 (ΔV , 250 °C) indique des résultats semblables à la différence que la tension de polarisation a un impact moins important lors de dépôt à 250 °C. Finalement, l'expérience 5 (HiPIMS) n'a pas permis d'obtenir des couches ayant un angle de perte plus faible que les couches déposées par MS.

Pour conclure, il n'a pas été possible de trouver une méthode pour réduire significativement l'angle de perte d'une couche de Ta_2O_5 dans le cadre de ce projet. Pour atteindre cet objectif, il serait intéressant de refaire des dépôts par HiPIMS dans un système mieux adapté. Aussi, puisque les couches de Ta_2O_5 actuelles des miroirs de LIGO sont dopées au titane il pourrait être pertinent d'explorer d'autres dopants tel que le zirconium. Ce dernier pourrait permettre d'augmenter la température de recuit maximale avant cristallisation et modifier l'indice de réfraction.

Dans le futur, il est presque certain que LIGO deviendra cryogénique puisque le bruit causé par les excitations à basses énergie dépend grandement de la température à laquelle celui-ci se trouve comme l'indique l'équation 1.0.1. [3] Il a également été montré que le Ta_2O_5 n'était pas un bon candidat pour un système maintenu à de telles températures puisque son angle de perte augmente grandement et que le silicium amorphe et les nitrures de silicium est beaucoup plus prometteurs.[3] Ainsi, dans le futur, il serait intéressant d'étudier les mécanismes de diffusion d'énergie du silicium amorphe et les nitrures de silicium à basse température pour assurer le futur de LIGO.

Bibliographie

- [1] C CHANELIERE, J L AUTRAN, R A B DEVINE et B BALLAND : Tantalum pentoxide (Ta_2O_5) thin films for advanced dielectric applications. *Materials Science and Engineering : R : Reports*, 22:269 – 322, 6 1998.
- [2] Jian FANG-XING et S K KURINEC : Tantalum oxide thin films for microelectronic applications. *Proceedings of the Eleventh Biennial University/Government/ Industry Microelectronics Symposium*, pages 101–104, 1995.
- [3] Gregory HARRY, Timothy BODIYA et Ricardo DESALVO : *Optical coatings and thermal noise in precision measurement*. Cambridge University Press, New York, États-Unis, 2012.
- [4] J Aasi et col. ((Collaboration scientifique LIGO (720 AUTEURS))) : Advanced ligo. *Classical and Quantum Gravity*, 32:074001, 7 2015.
- [5] G M HARRY, A M GRETARSSON, P R SAULSON, S E KITTELBERGER, S D PENN, W J STARTIN, S ROWAN, M M FEJER, D R M CROOKS, G CAGNOLI, J HOUGH et N NAKAGAWA : Thermal noise in interferometric gravitational wave detectors due to dielectric optical coatings. *Class. Quantum Grav.*, 19:897, 2002.
- [6] M GRANATA, E SARACCO, N MORGADO, A CAJGFINGER, G CAGNOLI, J DEGALLAIX, V DOLIQUE, D FOREST, J FRANC, C MICHEL, L PINARD et R FLAMINIO : Mechanical loss in state-of-the-art amorphous optical coatings. *Phys. Rev. D*, 93:012007, 2017.
- [7] Xiao LIU, Daniel R QUEEN, Thomas H METCALF, Julie E KAREL et Frances HELLMAN : Hydrogen-free amorphous silicon with no tunneling states. *Phys. Rev. Lett.*, 113:025503, Jul 2014.
- [8] M HÁLA, R VERNHES, O ZABEIDA, E BOUSSER, J E KLEMBERG-SAPIEHA, R SARGENT et L MARTINU : Growth and properties of high index Ta_2O_5 optical coatings prepared by hipims and other methods. *Surface and Coatings Technology*, 241:33 – 37, 2014. Selected Papers from the Society of Vacuum Coaters 56th Annual Technical Conference - SVC TechCon 2013.
- [9] G VAJENTE, R BIRNEY, A ANANYEVA, S ANGELOVA, R ASSELIN, B BALOUKAS, R BASSIRI, G BILLINGSLEY, M M FEJER, D GIBSON, L J GODBOUT, E GUSTAFSON, A HEPTONSTALL, J HOUGH, S MACFOY, A MARKOSYAN, I W MARTIN, L MARTINU, P G MURRAY, S PENN, S ROORDA, S ROWAN, F SCHIETTEKATTE, R SHINK, C TORRIE, D VINE et S Reid et R X ADHIKARI : Effect of elevated substrate

- temperature deposition on the mechanical losses in tantala thin film coatings. *Classical and Quantum Gravity*, 35:075001, feb 2018.
- [10] R KUBO : The fluctuation-dissipation theorem. *Reports on Progress in Physics*, 29(1):255–284, jan 1966.
- [11] Herbert B. CALLEN et Theodore A. WELTON : Irreversibility and generalized noise. *Phys. Rev.*, 83:34–40, Jul 1951.
- [12] Yuri LEVIN : Internal thermal noise in the ligo test masses : A direct approach. 1998.
- [13] Matej HALA, Richard VERNHES, Oleg ZABEIDA, Jolanta-Ewa KLEMBERG-SAPIEHA et Ludvik MARTINU : Reactive hipims deposition of $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ optical interference filters. *Journal of Applied Physics*, 116(21):213302, 2014.
- [14] Milton OHRING : *The materials science of thin films*. Academic Press, Californie, États-Unis, 1992.
- [15] Diederik DEPLA : *Magnetrons, reactive gases and sputtering*. Diederik Depla, 2013.
- [16] G VAJENTE, A ANANYEVA, G BILLINGSLEY, E GUSTAFSON, A HEPTONSTALL, E SANCHEZ et C TORRIE : A high throughput instrument to measure mechanical losses in thin film coatings. *Rev. Sci. Instrum.*, 88:073901, 2017.
- [17] Hiroyuki FUJIWARA : *Spectroscopic ellipsometry : Principles and applications*. John Wiley Sons, Ltd, Angleterre, 2007.
- [18] The Surface Science Society of JAPAN : *Compendium of surface and interface analysis*. Springer, Singapore, 2018.
- [19] Wei-Kan CHU, James MAYER et Marc-A. NICOLET : *Backscattering spectrometry*. Academic Press, Floride, États-Unis, 1978.
- [20] Maria Rosa ARDIGO, Maher AHMED et Aurélien BESNARD : Stoney formula : Investigation of curvature measurements by optical profilometer. *Advanced materials research, rans Tech Publications Ltd*, 996:361–366, 10 2014.
- [21] S ROORDA, W SINKE, J POATE, D JACOBSON, S DIERKER, B S DENNIS, D J EAGLESHAM, F SPAEPEN et P. FUOSS : Structural relaxation and defect annihilation in pure amorphous silicon. *Physical Review B*, 44, 8 1991.
- [22] J.-F MERCURE, R KARMOUCH, Y ANAHORY, S ROORDA et F SCHIETTEKATTE : Dependence of the structural relaxation of amorphous silicon on implantation temperature. *Physical Review B*, 71, 13 2005.
- [23] Peter J. LARKIN : *Infrared and Raman Spectroscopy*. Elsevier, Amsterdam, Netherlands, second édition, 2018.
- [24] Ewen SMITH et Geoffrey DENT : *Modern Raman spectroscopy : a practical approach*. Wiley, West Sussex, UK, second édition, 2019.
- [25] Oliver SEECK et Bridget M. MURPHY : *X-ray diffraction : Modern experimental techniques*. CRC Press : Taylor francis Group, Floride, États-Unis, 2014.

- [26] Yoshid WASEDA, Eiichiro MATSUBARA et Kazo SHINODA : *X-ray diffraction crystallography : Introduction, examples and solved problems*. Springer, Berlin : Heidelberg : New York, 2011.
- [27] Anthony C. FISHER-CRIPSS : *Nanoindentation*. Springer, New York, États-Unis, third édition, 2011.
- [28] Haidou WANG, Lina ZHU et Binshi XU : *Residual Stresses and Nanoindentation Testing of Films and Coatings*. Springer Singapore, Singapore, 2018.
- [29] B P Abbott et col. ((Collaboration scientifique LIGO et collaboration VIRGO (1040 AUTEURS)) : Observation of gravitational waves from a binary black hole merger. *Phys. Rev. Lett.*, 116:061102, 2016.
- [30] B P Abbott et col. ((Collaboration scientifique LIGO et collaboration VIRGO (1095 AUTEURS)) : GW151226 : Observation of gravitational waves from a 22-solar-mass binary black hole coalescence. *Phys. Rev. Lett.*, 116:241103, 2016.
- [31] B P Abbott et col. ((Collaboration scientifique LIGO et collaboration VIRGO (1049 AUTEURS)) : GW170104 : Observation of a 50-solar-mass binary black hole coalescence at redshift 0.2. *Phys. Rev. Lett.*, 118:221101, 2017.
- [32] B P Abbott et col. ((Collaboration scientifique LIGO et collaboration VIRGO (1095 AUTEURS)) : GW170814 : A three-detector observation of gravitational waves from a binary black hole coalescence. *Phys. Rev. Lett.*, 119:141101, 2017.
- [33] B P Abbott et col. ((Collaboration scientifique LIGO et collaboration VIRGO (1095 AUTEURS)) : GW170817 : Observation of gravitational waves from a binary neutron star inspiral. *Phys. Rev. Lett.*, 119:161101, 2017.
- [34] B P Abbott et col. ((Collaboration scientifique LIGO et collaboration VIRGO (1088 AUTEURS)) : The advanced LIGO detectors in the era of first discoveries. *Phys. Rev. Lett.*, 116:131103, 2016.
- [35] F Acernese et coll (238 autres AUTEURS) : Advanced virgo : a second-generation interferometric gravitational wave detector. *Class. Quantum Grav.*, 32:024001, 2015.
- [36] T Akutsu et col. (COLLABORATION KAGRA) : Large-scale cryogenic gravitational-wave telescope in japan : KAGRA. *Journal of Physics : Conference Series*, 610:012016, 2015.
- [37] J MILLER, L BARSOTTI, S VITALE, P FRITSCHER et M EVANS : Prospects for doubling the range of Advanced LIGO. *Phys. Rev. D*, 91:062005, 2015.
- [38] G M HARRY, M R ABERNATHY, A E BECERRA-TOLEDO, H ARMANDULA, E BLACK, K DOOLEY, M EICHENFIELD, C NWABUGWU, A VILLAR, M EICHENFIELD, C NWABUGWU, A VILLAR, D R M CROOKS, G CAGNOLI, J HOUGH, C R HOW, I MACLAREN, P MURRAY, S REID, S ROWAN, P H SNEDDON, M M FEJER, R ROUTE, S D PENN, P GANAU, J-M MACKOWSKI, C MICHEL, L PINARD et A REMILLIEUX : Titania-doped tantala/silica coatings for gravitational-wave detectors. *Class. Quantum Grav.*, 24:405, 2007.
- [39] Y T LIU et K S THORNE : Thermoelastic noise and homogeneous thermal noise in finite sized gravitational-wave test masses. *Phys. Rev. D*, 62:122002, 2000.

- [40] Y LEVIN : Internal thermal noise in the LIGO test masses : A direct approach. *Phys. Rev. D*, 57:659, 1998.
- [41] Y LEVIN : Fluctuation-dissipation theorem for thermo-refractive noise. *Phys. Lett. A*, 372:1941, 2008.
- [42] S D PENN, P H SNEDDON, H ARMANDULA, Betzwieser J C, G CAGNOLI, J CAMP, D R M CROOKS, M M FEJER, A M GRETARSSON, G M HARRY, J HOUGH, S E KITTELBERGER, M J MORTONSON, R ROUTE, S ROWAN et C C VASSILIOU : Mechanical loss in tantala/silica dielectric mirror coatings. *Class. Quantum Grav.*, 20:2917, 2003.
- [43] R FLAMINIO, J FRANC, C MICHEL, N MORGADO, L PINARD et B SASSOLAS : A study of coating mechanical and optical losses in view of reducing mirror thermal noise in gravitational wave detectors. *Class. Quantum Grav.*, 27:084030, 2010.
- [44] G D COLE, W ZHANG, B J BJORK, D FOLLMAN, P HEU, C DEUTSCH, L SONDERHOUSE, J ROBINSON, C FRANZ, A ALEXANDROVSKI, M NOTCUTT, Heckl O H, J YE et M ASPELMEYER : High-performance near- and mid-infrared crystalline coatings. *Optica*, 3(6):647, 2016.
- [45] S REID et I W MARTIN : Development of mirror coatings for gravitational wave detectors. *Coatings*, 6:61, 2016.
- [46] I W MARTIN *et al.* : Effect of heat treatment on mechanical dissipation in Ta₂O₅ coatings. *Class. Quantum Grav.*, 27:225020, 2010.
- [47] T PÉREZ-CASTAÑEDA, C RODRÍGUEZ-TINOCO, J RODRÍGUEZ-VIEJO et Ramos M A : Suppression of tunneling two-level systems in ultrastable glasses of indomethacin. *PNAS*, 111:11275, 2014.
- [48] L BERTHIER et M D EDIGER : Facets of glass physics. *Physics Today*, 69:40, 2016.
- [49] W A PHILLIPS : Tunneling states in amorphous solids. *J. Low Temp. Phys.*, 7:351, 1972.
- [50] A J LEGGETT et D C VURAL : Tunneling two-level systems model of the low-temperature properties of glasses : are smoking gun tests possible? *J. Phys. Chem. B*, 117:12966, 2013.
- [51] I W MARTIN, E CHALKLEY, R NAWRODT, H ARMANDULA, R BASSIRI, C COMTET, M M FEJER, A GRETARSSON, G HARRY, D HEINERT et J and HOUGH.
- [52] D R M CROOKS, G CAGNOLI, M M FEJER, G HARRY, J HOUGH, B T KHURI-YAKUB, S PENN, R ROUTE, S ROWAN, P H SNEDDON, I O WYGANT et G G YARALIOGLU : Experimental measurements of mechanical dissipation associated with dielectric coatings formed using SiO₂, Ta₂O₅ and Al₂O₃. *Class. Quantum Grav.*, 23:4953, 2006.
- [53] E CESARINI *et al.* : Silica as a key material for advanced gravitational wave detectors. *J. of Non Cryst. Sol.*, 357:2005, 2011.
- [54] T LI, F A AGUILAR SANDOVAL, M GEITNER, G CAGNOLI, J DEGALLAIX, V DOLIQUE, R FLAMINIO, D FOREST, M GRANATA, C MICHEL, N MORGADO, L PINARD et L BELLON : Measurements of mechanical thermal noise and energy dissipation in optical dielectric coatings. *Phys. Rev. D*, 89:092004, 2014.

- [55] M PRINCIPE, I M PINTO, V PIERRO, DeSalvo R et I TAURASI : Material loss angles from direct measurements of broadband thermal noise. *Phys. Rev. D*, 91:022005, 2015.
- [56] J L VOSSEN : *Thin Film Processes*. Elsevier, 1978.
- [57] G CAGNOLI, M LORENZINI, E CESARINI, F PIERGIOVANNI, M GRANATA, D HEINERT, F MARTELLI, R NAWRODT, A AMATO, Q CASSAR, J DICKMANN, D KROKER, S Lumaca, C MALHAIRE et C B ROJAS HURTADO : Mode-dependent mechanical losses in disc resonators. *Phys. Lett. A*, in press, 2017.
- [58] S D PENN, A AGEEV, D BUSBY, G M HARRY, A M GREJARSSON, K NUMATA et P WILLEMS : Frequency and surface dependence of the mechanical loss in fused silica. *Phys. Lett. A*, 352:3, 2006.
- [59] G M CARLOMAGNO et G CARDONE : Infrared thermography for convective heat transfer measurements. *Exp. Fluids*, 49:1187, 2010.
- [60] Polygon physics. <http://www.polygonphysics.com>, pages Accessed : 2017-05-01.
- [61] E GOLDENBERG, B BALOUKAS, O ZABEIDA, J E KLEMBERG-SAPIEHA et L MARTINU : Mechanical and thermoelastic characteristics of optical thin films deposited by dual ion beam sputtering. *Appl. Opt.*, 48:4536, 2009.
- [62] T HONG, H YANG, E GUSTAFSON, R ADHIKARI et Y CHEN : Brownian thermal noise in multilayer coated mirrors. *Phys. Rev. D*, 87:26, 2012.
- [63] M ABERNATHY, G HARRY, J NEWPORT, H FAIR, M KINLEY-HANLON, S HICKEY, I JIFFAR, A GREJARSSON, S PENN, R BASSIRI, E GUSTAFSON, I MARTIN, S ROWAN et J HOUGH : Bulk and shear mechanical loss of titania-doped tantala. *Phys. Lett A*, in press, 2017.
- [64] E CESARINI, M LORENZINI, E CAMPAGNA, F MARTELLI, F PIERGIOVANNI, Vetrano F, Losurdo G et C GIANPIETRO : A gentle nodal suspension for measurements of the acoustic attenuation in materials. *Rev. Sci. Instrum.*, 80:053904, 2009.
- [65] M GRANATA, L BALZARINI, J DEGALLAIX, V DOLIQUE, R FLAMINIO, D FOREST, D HOFMAN, C MICHEL, R PEDURAND, L PINARD, B SASSOLAS, N STRANIERO, J TEILLON et C GIANPIETRO : Internal friction and young's modulus measurements on SiO₂ and Ta₂O₅ films done with an ultra-high Q silicon-wafer suspension. *Arch. Metall. Mater.*, 60:365, 2016.
- [66] A CADEZ et A ABRAMOVICI : Measuring high mechanical quality factors of bodies made of bare insulating materials. *J. Phys. E : Sci. Instrum.*, 21:453, 1988.
- [67] S R ELLIOTT : *Physics of amorphous Materials*. Longman, 1983.
- [68] C JOSEPH, P BOURSON et M D FONTANA : Amorphous to crystalline transformation in Ta₂O₅ studied by raman spectroscopy. *Journal of Raman Spectroscopy*, 43:1146-1150, 2012.
- [69] T DAMART, E COILLET, A TANGUY et D RODNEY : Numerical study of the structural and vibrational properties of amorphous Ta₂O₅ and TiO₂-doped Ta₂O₅. *J. Appl. Phys.*, 119:175106, 2016.
- [70] Y NAKAGAWA, Y GOMI et Okada T : Deposition of new piezoelectric Ta₂O₅ thin films and their surface acoustic wave properties. *J. Applied Phys.*, 61:5012, 1987.

- [71] Chen GUOPING, Li LINGZHEN, Zhang SUIXIN et Zhang HAOKANG : Structures and properties of a Ta₂O₅ thin film deposited by dc magnetron reactive sputtering in a pure O₂ atmosphere. *Vacuum*, 41(4):1204 – 1206, 1990. Selected proceedings of the 11th international vacuum congress (IVC-11) 7th international conference on solid surfaces (ICSS-7).
- [72] H-C CHEN, K-S LEE et C-C LEE : Annealing dependence of residual stress and optical properties of TiO₂ thin film deposited by different deposition methods. *Appl. Opt.*, 47(13), mai 2008.
- [73] S R ELLIOT : Origin of the first sharp diffraction peak in the structure factor of covalent glasses. *Phys. Rev. Lett.*, 67:711, 1991.
- [74] G LUCOVSKY et J C PHILLIPS : Nano-regime length scales extracted from the first sharp diffraction peak in non-crystalline SiO₂ and related materials : Device applications. *Nanoscale Res. Lett.*, 5:550, 2010.
- [75] R BASSIRI, K EVANS, K B BORISENKO, Fejer M M, J HOUGH, I MACLAREN, I W MARTIN, R K ROUTE et S ROWAN : Correlations between the mechanical loss and atomic structure of amorphous TiO₂-doped Ta₂O₅ coatings. *Acta Materialia*, 61:1070, 2013.
- [76] L de WIT, S ROORDA, W C SINKE, F W SARIS, A J M BERNTSEN et W F van der WEG : Structural relaxation of amorphous Si induced by high temperature annealing. *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, 205:3, 1992.
- [77] R TSU, J GONZALEZ-HERNANDEZ et F H POLLACK : Determination of energy barrier for structural relaxation in a-Si and a-Ge by Raman scattering. *J. Non-Cryst. Solids*, 66:109, 1984.
- [78] D BEEMAN, R TSU et M F THORPE : Structural information from the Raman spectrum of amorphous silicon. *Physical Review B*, 32:874, 1985.
- [79] H-W PAN, S-J WANG, L-C KUO, S CHAO, M PRINCIPE, I M PINTO et R DESALVO : Thickness-dependent crystallization on thermal anneal for titania/silica nm-layer composites deposited by ion beam sputter method. *Opt. Expr.*, 22:29847, 2014.
- [80] B SHYAM, K H STONE, R BASSIRI, M M FEJER, M F TONEY et A MEHTA : Measurement and modeling of short and medium range order in amorphous Ta₂O₅ thin films. *Scientific Reports*, 6:32170, 2016.
- [81] M J HART, R BASSIRI, K B BORISENKO, M VÉRON, E F RAUCH, I W MARTIN, S ROWAN, M M FEJER et I MACLAREN : Medium range structural order in amorphous tantalum spatially resolved with changes to atomic structure by thermal annealing. *J. Non-cryst. solids*, 438:10, 2016.
- [82] F GRIGORIEV, A SULIMOV, I KOCHIKOV, O KONDAKOVA, V SULIMOV et A TIKHONRAVOV : Computational experiments on atomistic modeling of thin-film deposition. *Appl. Optics*, 56:C87, 2017.
- [83] Romane ASSELIN : Rapport de stage. 2017.
- [84] M. MAYER : Simnra, a simulation program for the analysis of nra, rbs and erda. *AIP Conference Proceedings*, 475(1):541–544, 1999.

- [85] Marvin J WEBER : *Handbook of optical materials*. CRC Press, 2003.
- [86] Hyun Seon HONG et Kyung Sub LEE : Thermodynamic evaluation of the ta-o system from pure tantalum to tantalum pentoxide. *Journal of Alloys and Compounds*, 360(1):198 – 204, 2003.
- [87] Zdenek SITA, M BILER, Tomas KARNIK, J. SIKULA et Vlasta SEDLAKOVA : Dielectric improvement in nbo capacitors. 01 2020.
- [88] S P BAKER, Clemens OTTERMANN, M LAUBE, F RAUCH et Klaus BANGE : Dependence of hardness and stiffness on density of ta2o5 and tio2 layers. *MRS Proceedings*, 436, 01 2011.
- [89] James F. ZIEGLER, Jochen P. BIERSACK et Matthias D. ZIEGLER : *SRIM The Stopping and Range of Ions in Matter*. Lulu Press Co., 15 édition, 2015.

Annexe A

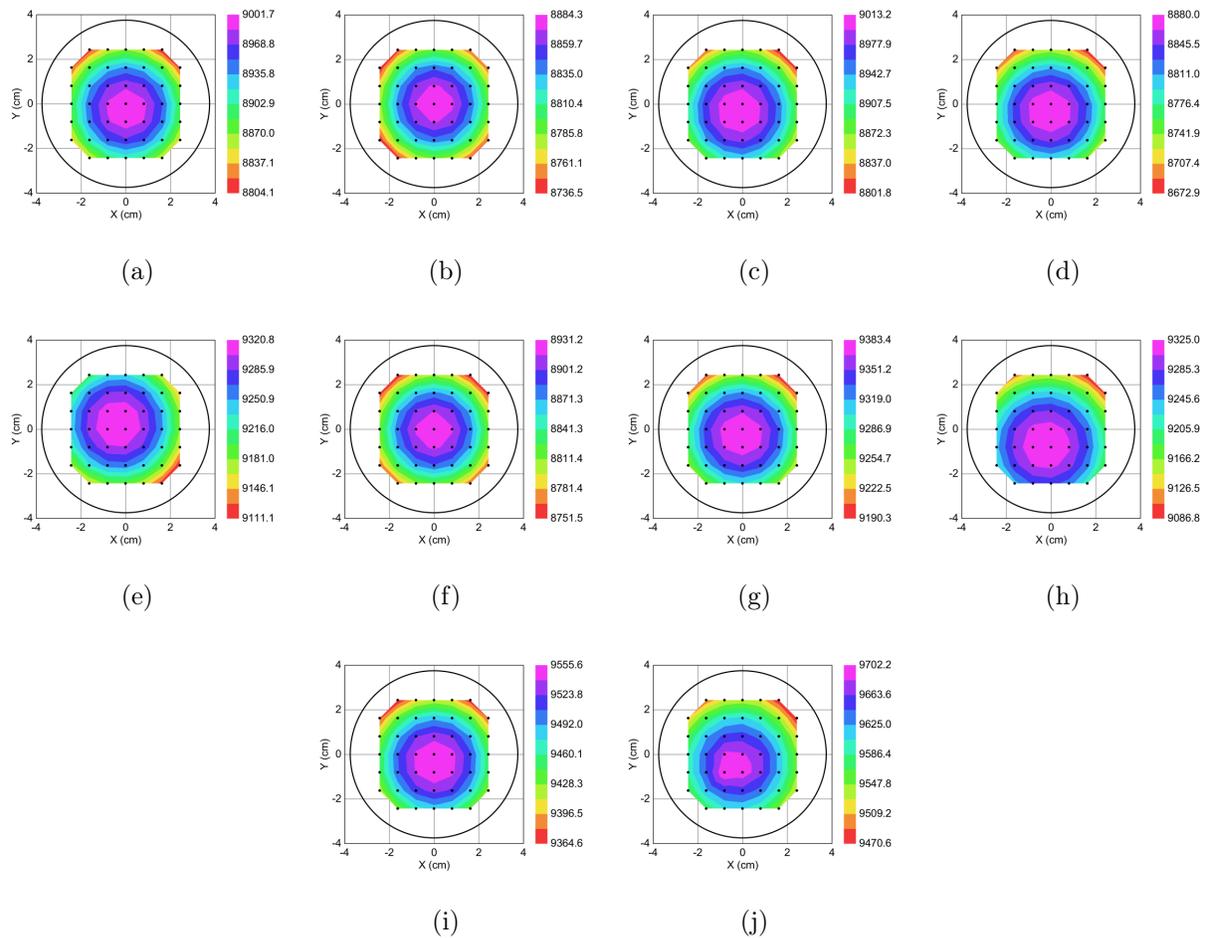


FIGURE A.1 Cartographie de l'épaisseur en Å des échantillons de l'expérience 0 (ΔT) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), d), e), f), g), h), i) et j) correspondent respectivement aux échantillons 453, 447, 448, 491, 461, 489, ,459, 458, 456, 457. Le cercle en noir représente le disque.

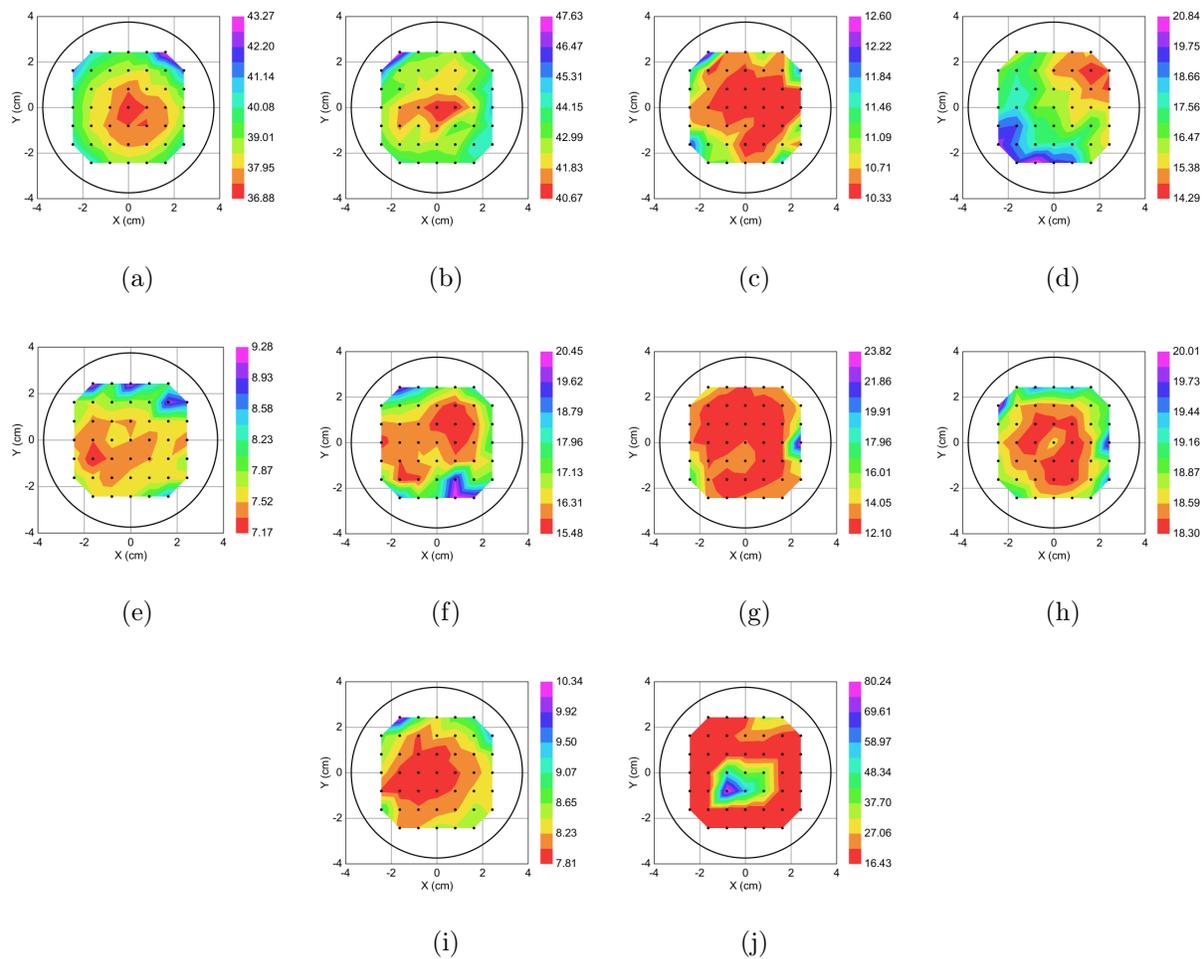


FIGURE A.2 Cartographie de la rugosité en \AA des échantillons de l'expérience 0 (ΔT) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), d), e), f), g), h), i) et j) correspondent respectivement aux échantillons 453, 447, 448, 491, 461, 489, ,459, 458, 456, 457. Le cercle en noir représente le disque.

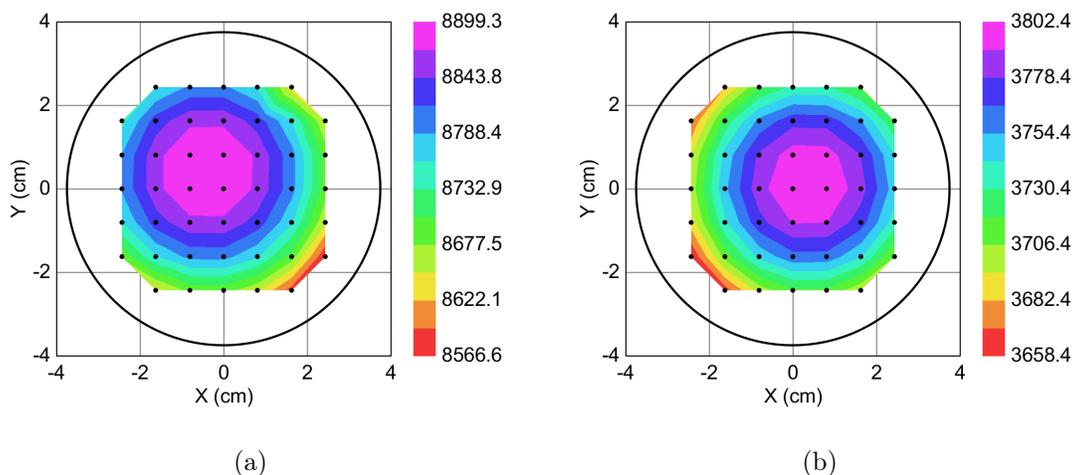


FIGURE A.3 Cartographie de l'épaisseur en \AA des échantillons de l'expérience 1 (RTA) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a) et b) correspondent respectivement aux échantillons 519 et 522. Le cercle en noir représente le disque.

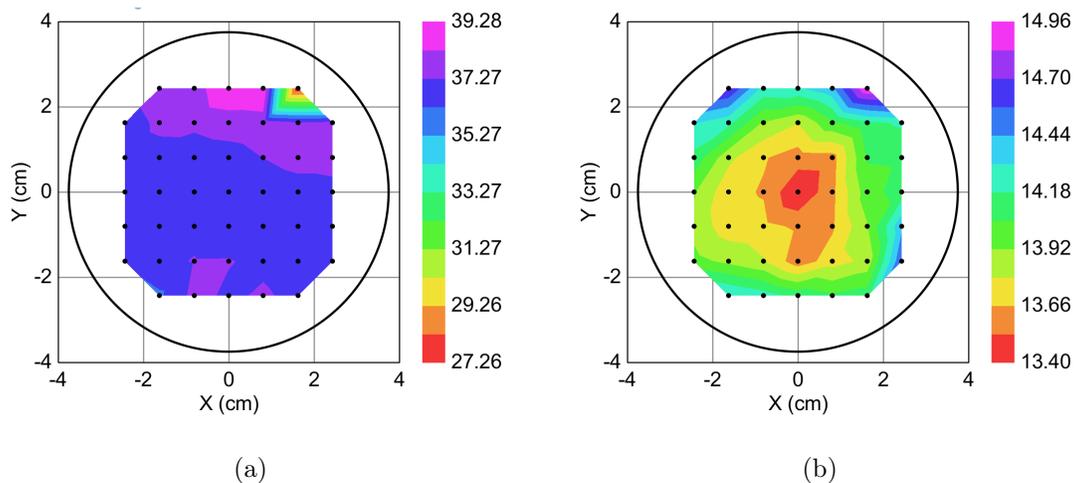
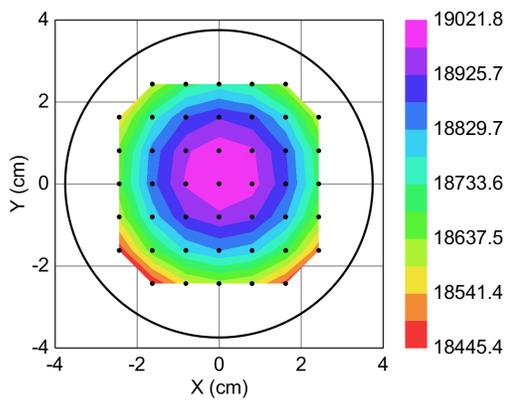
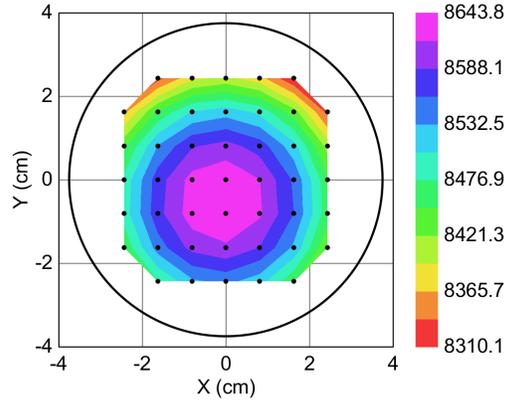


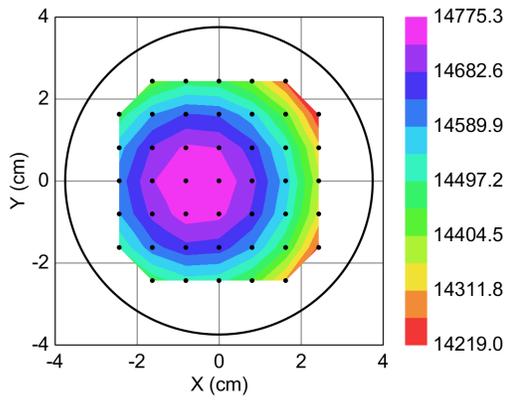
FIGURE A.4 Cartographie de la rugosité en \AA des échantillons de l'expérience 1 (RTA) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a) et b) correspondent respectivement aux échantillons 519 et 522. Le cercle en noir représente le disque.



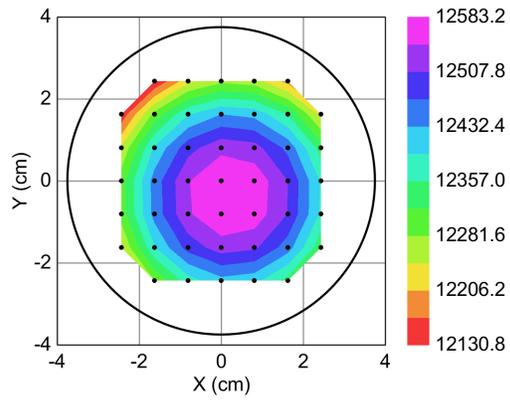
(a)



(b)



(c)



(d)

FIGURE A.5 Cartographie de l'épaisseur en \AA des échantillons de l'expérience 2 (Contrainte) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), et d) correspondent respectivement aux échantillons 523, 520, 521, 524. Le cercle en noir représente le disque.

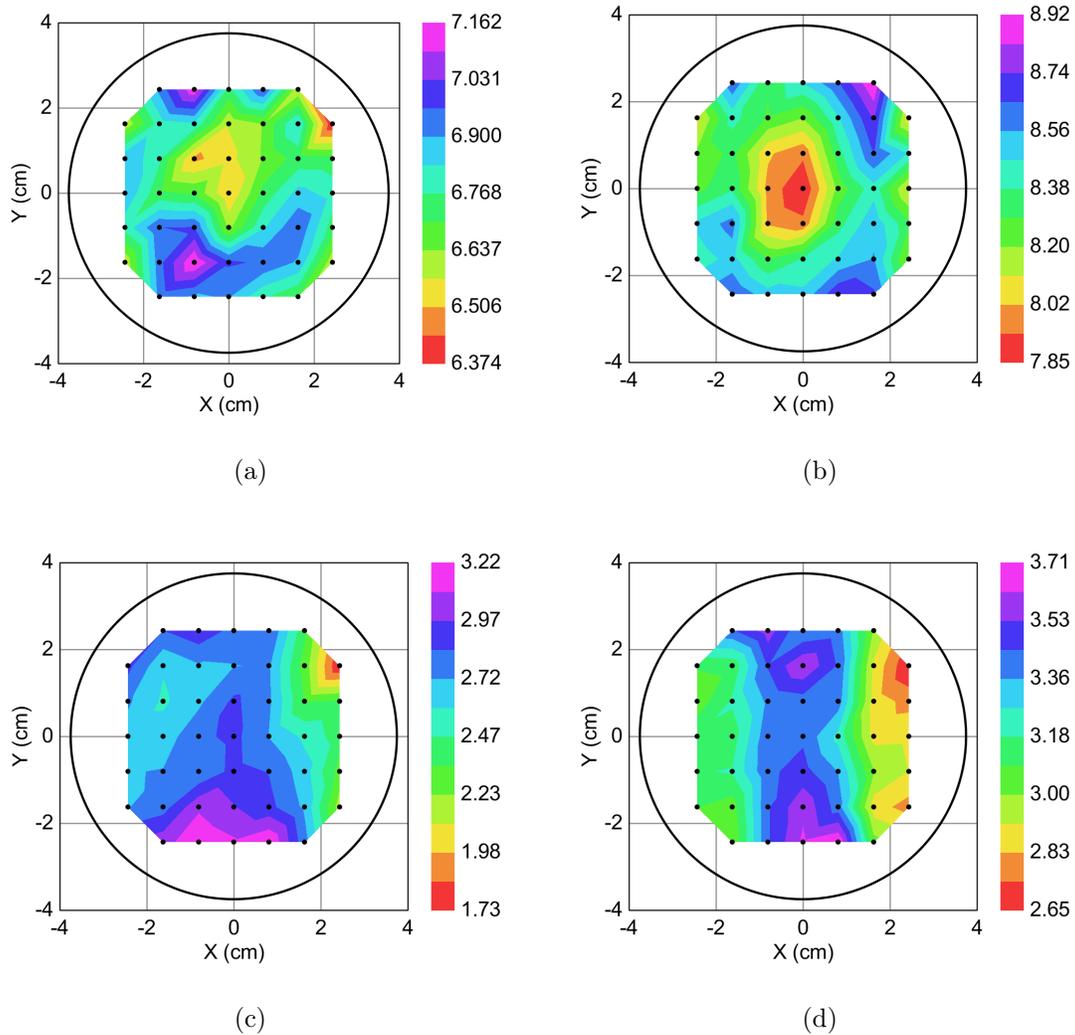


FIGURE A.6 Cartographie de la rugosité en \AA des échantillons de l'expérience 2 (Contrainte) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), et d) correspondent respectivement aux échantillons 523, 520, 521, 524. Le cercle en noir représente le disque.

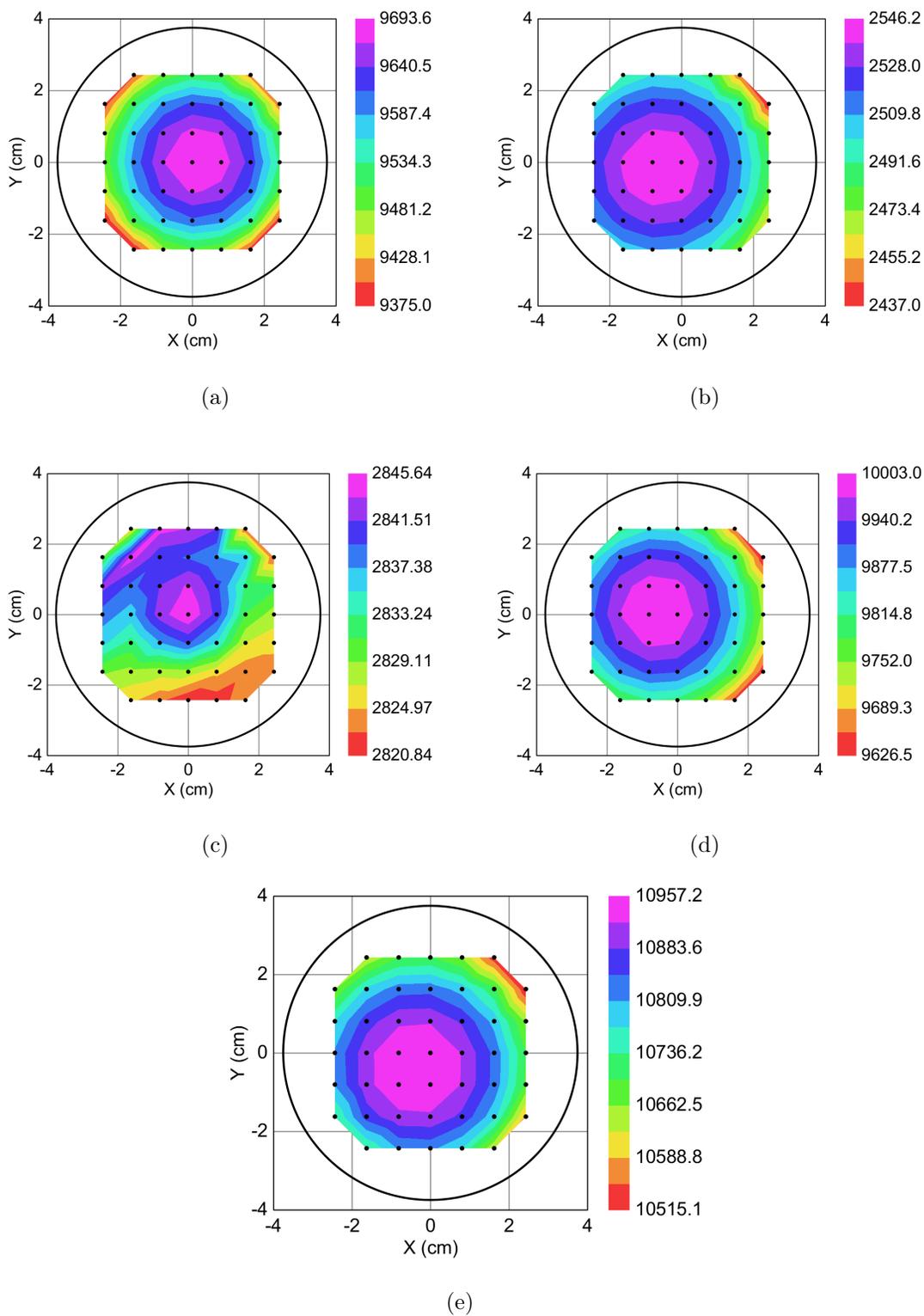


FIGURE A.7 Cartographie de l'épaisseur en \AA des échantillons de l'expérience 3 (ΔV , RT) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), d), et e) correspondent respectivement aux échantillons 565, 566, 567, 568, 569. Le cercle en noir représente le disque.

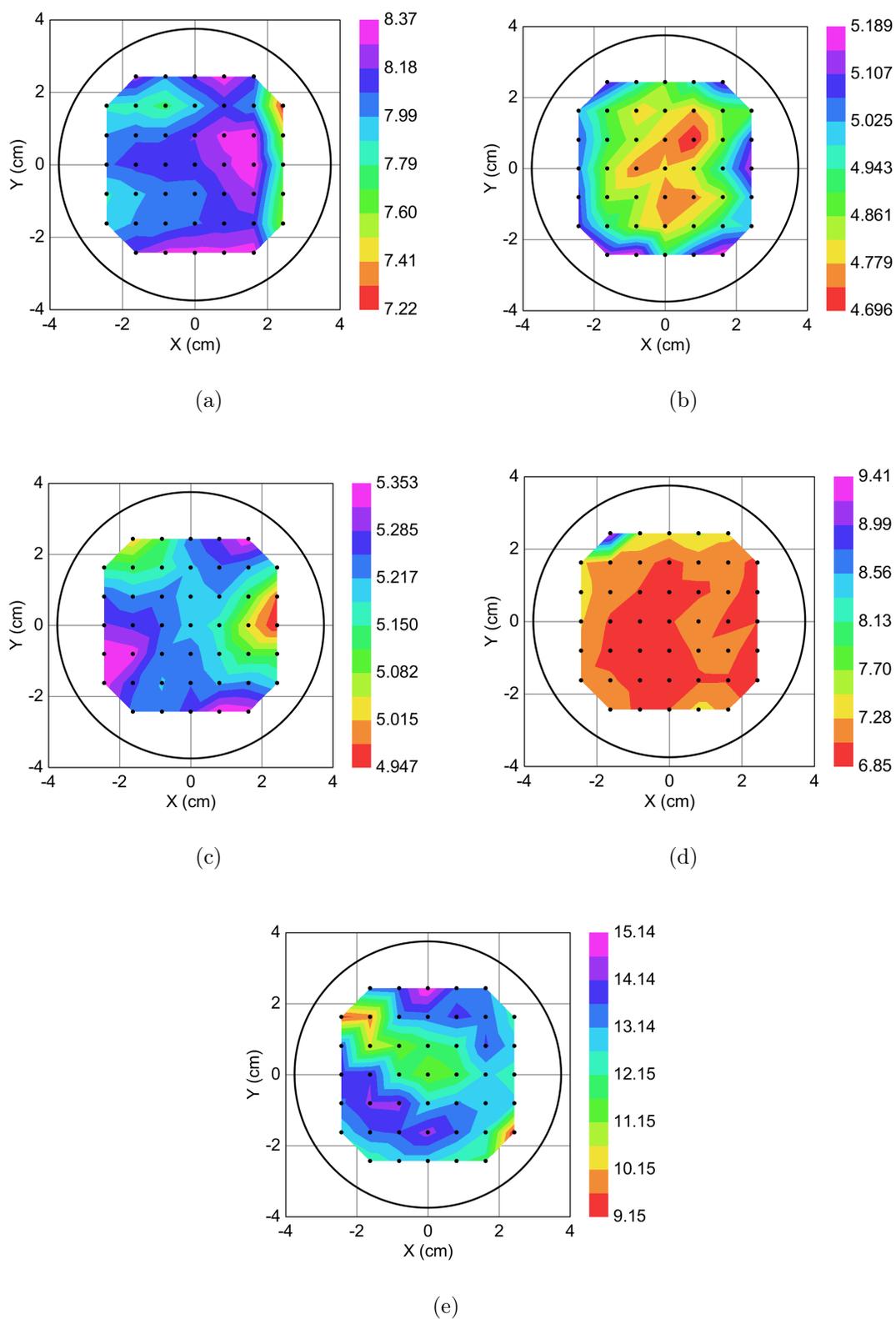


FIGURE A.8 Cartographie de la rugosité en \AA des échantillons de l'expérience 3 (ΔV , RT) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), d), et e) correspondent respectivement aux échantillons 565, 566, 567, 568, 569. Le cercle en noir représente le disque.

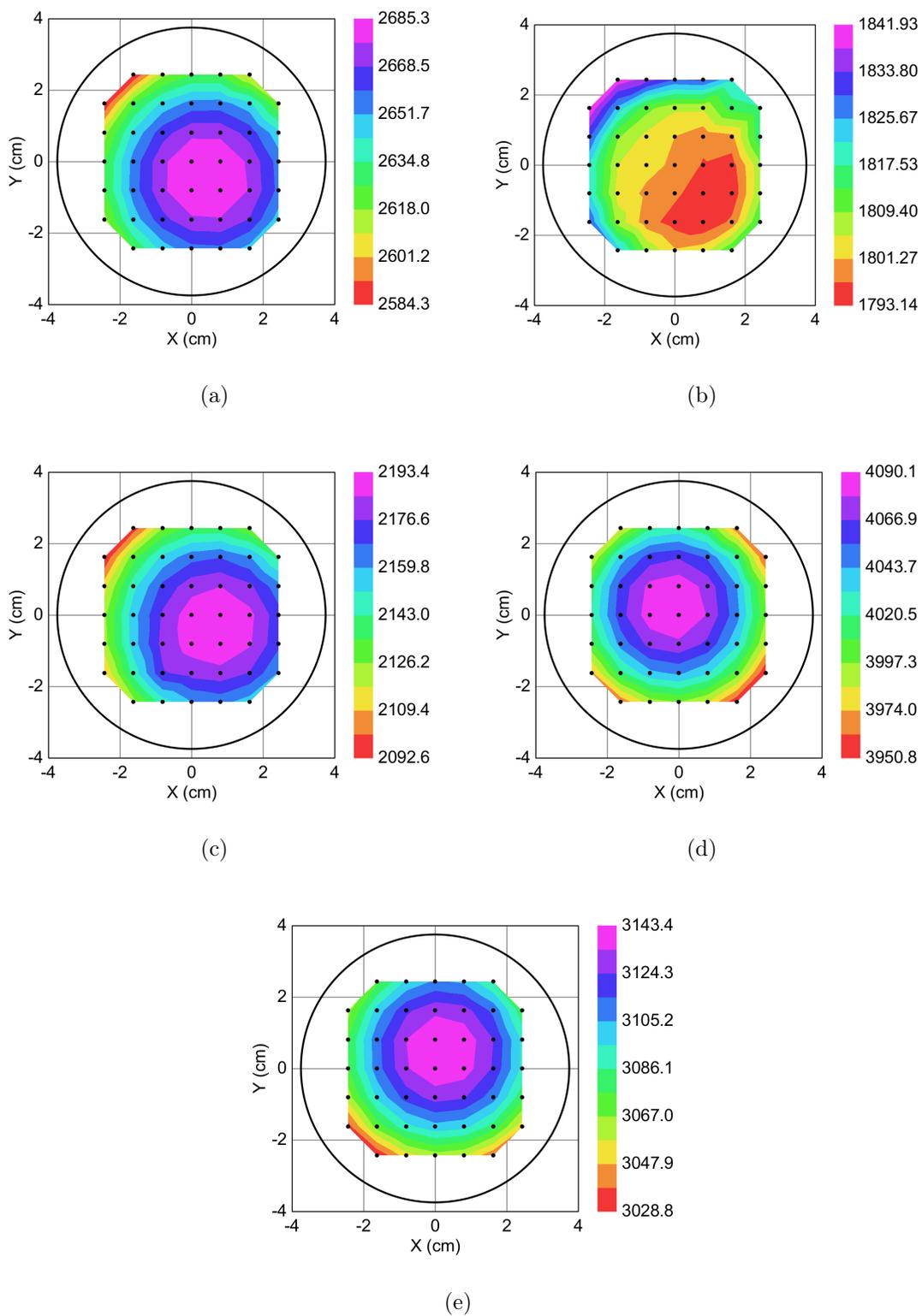


FIGURE A.9 Cartographie de l'épaisseur en Å des échantillons de l'expérience 4 (ΔV , 250 °C) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), d), et e) correspondent respectivement aux échantillons 562, 563, 564, 571, 572. Le cercle en noir représente le disque.

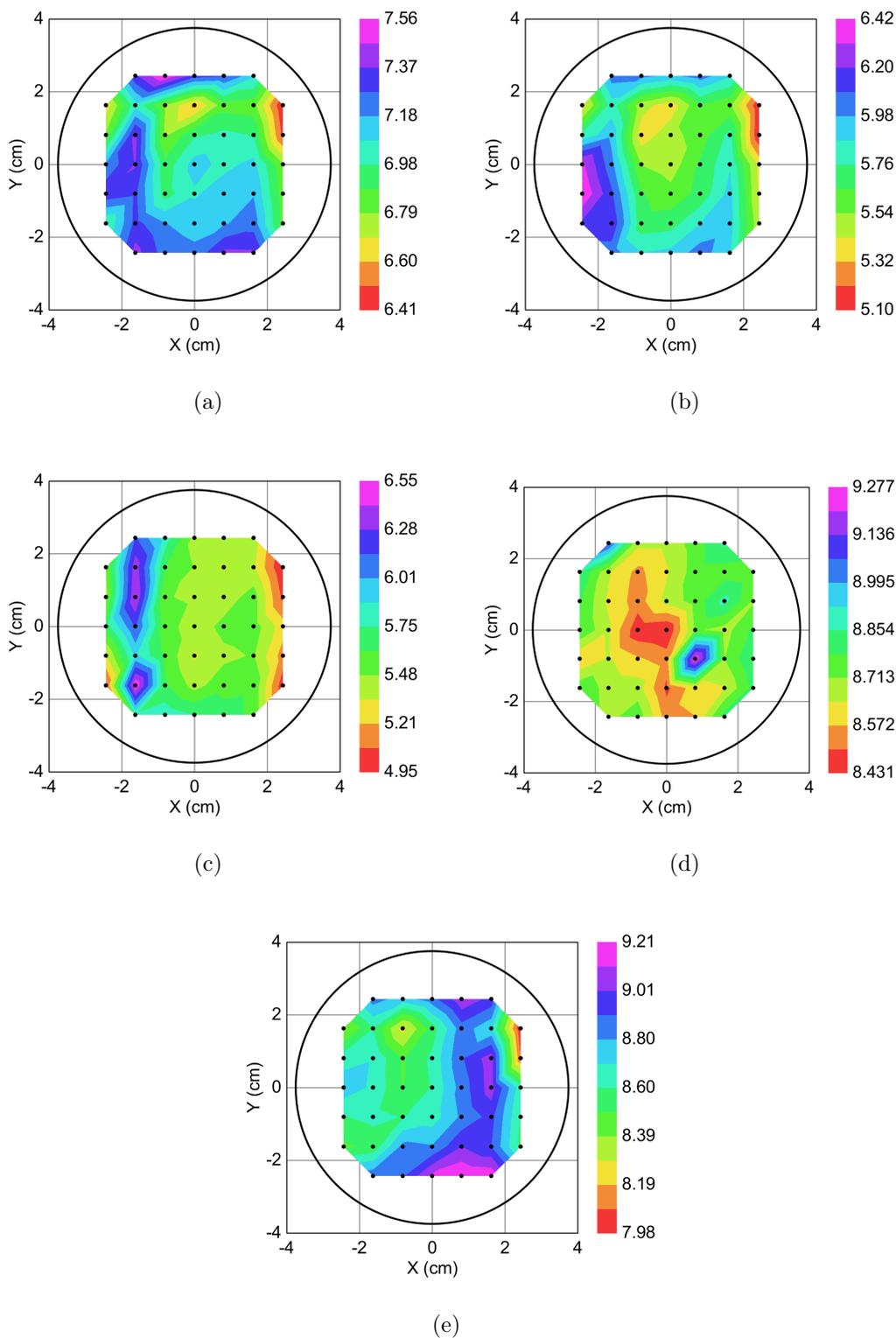


FIGURE A.10 Cartographie de la rugosité en \AA des échantillons de l'expérience 4 (ΔV , $250\text{ }^\circ\text{C}$) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a), b), c), d), et e) correspondent respectivement aux échantillons 562, 563, 564, 571, 572. Le cercle en noir représente le disque.

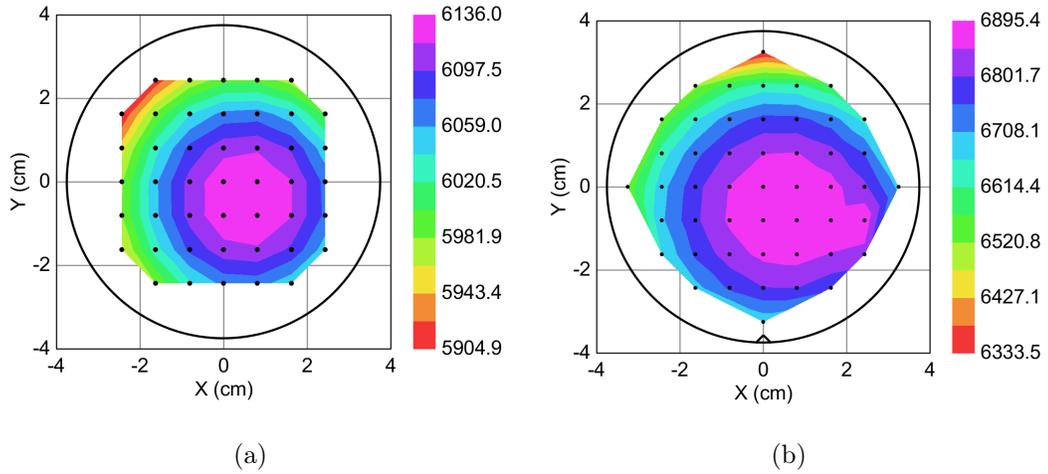


FIGURE A.11 Cartographie de l'épaisseur en \AA des échantillons de l'expérience 5 (HiPIMS) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a) et b) correspondent respectivement aux échantillons 541 et 657. Le cercle en noir représente le disque. Pour l'échantillon 657, un nouvel ensemble de point a été sélectionnés pour faire la cartographie suite à une mise à jour de l'ellipsomètre. Notons que les spectres en $[1.75,-2.25]$, $[2.25,-1.75]$, $[2.25,-1.25]$ et $[3.25,0]$ n'étaient pas valides et donc l'interpolation dans cette zone est incorrecte.

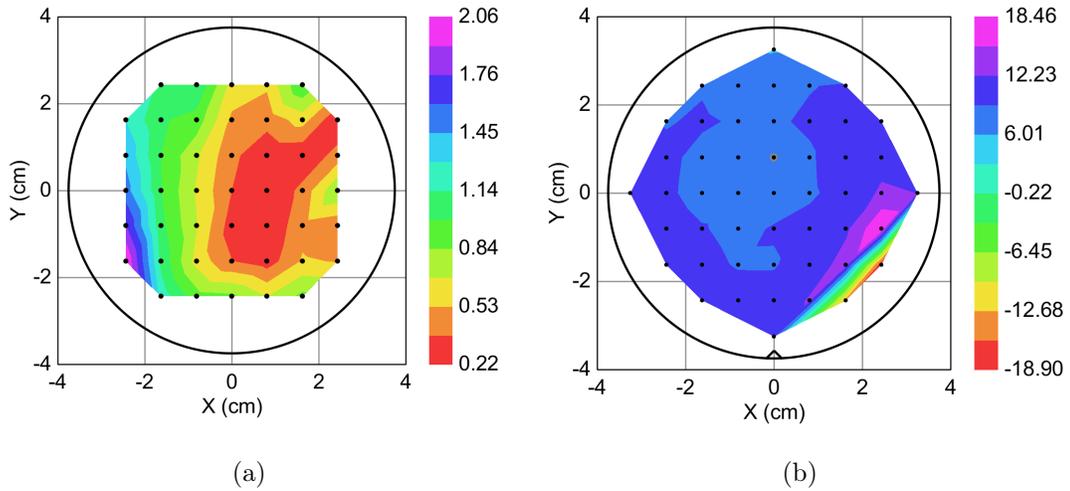


FIGURE A.12 Cartographie de la rugosité en \AA des échantillons de l'expérience 5 (HiPIMS) obtenue par ellipsométrie spectrale. Les figures a) et b) correspondent respectivement aux échantillons 541 et 657. Le cercle en noir représente le disque. Pour l'échantillon 657, un nouvel ensemble de point a été sélectionnés pour faire la cartographie suite à une mise à jour de l'ellipsomètre. Notons que les spectres en $[1.75,-2.25]$, $[2.25,-1.75]$, $[2.25,-1.25]$ et $[3.25,0]$ n'étaient pas valides et donc l'interpolation dans cette zone est incorrecte.