

**ETUDE DE LA PHYSICO-CHIMIE D'UN  
MAGNETOPLASMA DE CHLORE POUR LA GRAVURE  
SOUS-MICROMETRIQUE**

**Par**

**Olivier PAUNA**

**THESE de DOCTORAT effectuée en cotutelle**

Au

Département de physique  
Faculté des Arts et des Sciences  
Université de Montréal

et

Centre de Physique des Plasmas et de leurs Applications de Toulouse  
Université Paul-Sabatier

*Thèse présentée à la faculté des études supérieures de l'Université de  
Montréal en vue de l'obtention du grade de Philosophae Doctor (Ph.D)*

*en physique*

et à

*l'Université Paul Sabatier en vue de l'obtention du grade de Docteur de  
l'université Paul Sabatier*

*Spécialité : Génie des procédés plasmas*

Avril 2000

© Olivier PAUNA, 2000



QC  
3  
U54  
2000  
v. 016

Université de Montréal  
Faculté des études supérieures

et

Centre de Physique des Plasmas et de leurs Applications de Toulouse

Université Paul Sabatier

Cette thèse intitulée :

*Etude de la physico-chimie d'un magnétoplasma de chlore appliqué  
à la gravure sous-micrométrique*

présentée et soutenue à l'Université Paul Sabatier

par *Olivier PAUNA*

a été évaluée par un jury composé des personnes suivantes :

*Président du jury*

**M. Michel MOISAN**, Professeur, Université de Montréal - Montréal

*Directrice de recherche*

**M<sup>me</sup> Joëlle MARGOT**, Professeur, Université de Montréal - Montréal

*Directeur de recherche*  
Toulouse

**M Jean Pierre BOEUF**, Directeur de Recherche CNRS, Université Paul Sabatier -

*Examineur externe*

**M Stéphane PASQUIERS**, Chargé de recherche CNRS, Université Paris-Sud - Orsay

*Membre du jury*

**M Jacques GALY**, Professeur, Université Paul Sabatier -Toulouse

*Membre du jury*

**M Jean Claude KIEFFER**, Professeur, INRS Energie et Matériaux - Varennes

## ✓ Résumé

L'objectif de cette thèse est de mieux comprendre les phénomènes physiques et chimiques se produisant dans un plasma de haute densité conçu pour la gravure sous-micrométrique de couches minces. Le plasma est produit dans le chlore par une onde électromagnétique de surface et peut être confiné par un champ magnétique statique uniforme. La flexibilité du réacteur en termes de conditions opératoires rend possible une étude paramétrique de l'influence du confinement magnétique sur les caractéristiques du plasma. Pour cela, nous avons examiné les propriétés du plasma au moyen de plusieurs méthodes de diagnostics comme les sondes électrostatiques, le photodétachement des ions négatifs par laser, la propagation d'ondes acoustiques ioniques et la spectroscopie d'émission optique. Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés à l'influence des conditions opératoires sur les propriétés spatiales du plasma, en ce qui a trait aux caractéristiques électriques (électrons, ions positifs et négatifs) et chimiques (neutres réactifs). Dans un deuxième temps, nous avons examiné l'impact du rapport d'aspect du réacteur (i.e. rapport de la longueur du réacteur sur son rayon) tant sur les caractéristiques électriques que chimiques du plasma. Parallèlement à ces études expérimentales, nous avons développé un modèle fluide bidimensionnel, résolvant de manière auto cohérente les deux premiers moments de l'équation de Boltzmann et l'équation de Poisson. En utilisant une approche semi-implicite, nous avons pu conserver un temps de calcul assez faible et ainsi utiliser ce modèle pour l'étude d'un plasma de diffusion dans un gaz électropositif. Nous avons ainsi pu estimer la valeur du coefficient de diffusion perpendiculaire dans le cas d'un gaz électropositif soumis à un champ magnétique axial uniforme. Les résultats obtenus sont qualitativement en bon accord avec le coefficient de diffusion proposé par Liebermann et Lichtenberg.

✓ **Mots clefs** : Plasmas créés par onde de surface, plasma magnétisé, gravure, spectroscopie plasma, sonde de langmuir, photodétachement laser, diffusion ambipolaire, diffusion sous champ magnétique, plasma de chlore.

## ✓ Abstract :

The aim of this thesis is to achieve a better understanding of physical and chemical phenomena occurring in a high-density plasma designed for sub-micron etching of thin films. The plasma is produced in chlorine by means of an electromagnetic surface wave and it can be confined by a uniform static magnetic field. The flexibility offered by the reactor in terms of operating conditions makes possible a parametric study of the influence of the magnetic confinement on the plasma characteristics. Thus, we have examined the plasma properties by means of several diagnostics techniques, including electrostatic probes, laser photodetachment of negative ions, ion acoustic wave propagation and optical emission spectroscopy. First, we investigated the influence of the operating conditions on the spatial properties of the plasma; this includes electric characteristics (electrons, positive and negative ions) as well as chemical characteristics (reactive neutrals). Second, we studied the impact of the reactor aspect ratio (i.e. reactor length/radius ratio) on both electrical and chemical characteristics. Together with these experimental studies, we have developed a bidimensionnal fluid model, by solving selfconsistently the first two moments of Boltzmann equation and Poisson's equation. Using a semi-implicit scheme, it was possible to maintain a short computation time and to use this model to investigate a diffusion plasma in an electropositive gas. We were thus able to estimate the value of the diffusion coefficient in the direction perpendicular to the magnetic field. The results thus obtained are in good qualitative agreement with the diffusion coefficient proposed by Liebermann and Lichtenberg.

✓ **Key words :** *Surface waves plasmas, magnetised plasma, etching, plasma spectroscopy, Langmuir probe, photodetachment, ambipolar diffusion, diffusion in a magnetised plasma, chlorine plasma.*

# **SOMMAIRE**

## **Chapitre I**

<b>SOMMAIRE DU CHAPITRE I</b> .....	<b>7</b>
<b>INTRODUCTION</b> .....	<b>8</b>
<b>INTRODUCTION GÉNÉRALE</b> .....	<b>8</b>
<b>I. GRAVURE PAR PLASMA</b> .....	<b>10</b>
I) MÉCANISMES DE GRAVURE : .....	11
II) LES RÉACTEURS À PLASMAS .....	13
III) LA GRAVURE PAR PLASMA DE CHLORE (Cl <sub>2</sub> ) .....	20
<b>II. NOS OBJECTIFS SCIENTIFIQUES</b> .....	<b>21</b>
<b>III. APPROCHE ENTREPRISE</b> .....	<b>22</b>
<b>Liste des figures du Chapitre I</b> .....	<b>23</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE I</b> .....	<b>24</b>

## **Chapitre II**

<b>SOMMAIRE DU CHAPITRE II</b> .....	<b>27</b>
<b>DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL ET MÉTHODES DE CARACTÉRISATION DU PLASMA</b> .....	<b>29</b>
<b>INTRODUCTION</b> .....	<b>29</b>
<b>I.) DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL</b> .....	<b>30</b>
I.) LES ONDES DE SURFACE .....	30
1) <i>Historique</i> .....	30

a)	Caractéristiques physiques des ondes de surface .....	31
i)	Propriétés physiques des ondes de surface .....	31
ii)	Equation de dispersion .....	32
b)	Les ondes de surface en présence d'un champ magnétique externe .....	34
II.)	DESCRIPTION DU RÉACTEUR RCE4 .....	39
III.)	DESCRIPTION DE L'EXCITATEUR D'ONDE DE SURFACE .....	42
<b>II.)</b>	<b>DIAGNOSTICS DU PLASMA .....</b>	<b>43</b>
I.)	MÉTHODE DE SONDE ÉLECTROSTATIQUE.....	43
1)	<i>Relations entre le courant de sonde et les paramètres du plasma</i> .....	44
2)	<i>Montage expérimental et interprétation de la caractéristique de sonde</i> .....	46
3)	<i>Détermination de la fonction de distribution en énergie des électrons</i> .....	49
II.)	PHOTODÉTACHEMENT PAR LASER .....	53
1)	<i>Principe de la méthode de photodétachement</i> .....	53
2)	<i>Description du montage expérimental</i> .....	55
3)	<i>Test de validité du diagnostic</i> .....	59
a)	Authenticité du phénomène de photodétachement.....	59
b)	Influence de la densité d'énergie du laser.....	60
III.)	ÉTUDE DE LA PROPAGATION D'ONDES ACOUSTIQUES IONIQUES.....	64
1)	<i>Introduction</i> .....	64
2)	<i>Équation de dispersion</i> .....	65
a)	Approche hydrodynamique.....	65
b)	Approche cinétique.....	67
3)	<i>Amortissement</i> .....	70
4)	<i>Description du montage expérimental et de la méthode d'analyse</i> .....	71
IV.)	ETUDE SPECTROSCOPIQUE DE LA COMPOSITION EN ATOMES ET MOLÉCULES NEUTRES DU PLASMA DE Cl <sub>2</sub> .....	75
1)	<i>Introduction</i> .....	75
2)	<i>Etude de la composition du plasma dans le chlore par spectroscopie d'émission</i> .....	76
Montage expérimental .....		76
3)	<i>Spectre d'émission du plasma de chlore</i> .....	77
a)	Processus de collisions dans un plasma de chlore.....	77
b)	Spectroscopie d'émission optique .....	78
4)	<i>Principe de la méthode d'actinométrie</i> .....	80
5)	<i>Etude des populations du chlore atomique et moléculaire par actinométrie (revue bibliographique)</i> ...	82
	.....	82
	<b>LISTES DES FIGURES DU CHAPITRE II .....</b>	<b>84</b>
	<b>BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE II.....</b>	<b>86</b>

## *Chapitre III*

<b>SOMMAIRE DU CHAPITRE III</b> .....	<b>91</b>
<b>ETUDE EXPÉRIMENTALE DU PLASMA DE CHLORE : PHYSICO-CHIMIE</b> .....	<b>93</b>
<b>I. INTRODUCTION</b> .....	<b>93</b>
<b>II. CARACTÉRISATION ÉLECTRIQUE DU PLASMA DANS LE CHLORE</b> .....	<b>93</b>
I) DISTRIBUTION SPATIALE DES CARACTÉRISTIQUES DU PLASMA.....	93
II) INFLUENCE DES CONDITIONS OPÉRATOIRES SUR LES CARACTÉRISTIQUES DU PLASMA. ....	97
1) <i>Influence de la pression du gaz</i> .....	97
2) <i>Influence du champ magnétique</i> .....	103
3) <i>Influence de la puissance HF</i> .....	105
<b>III. ETUDE DE LA POPULATION DES IONS NÉGATIFS</b> .....	<b>108</b>
I) VALIDATION DE LA TECHNIQUE DES ONDES IONOSONORES .....	109
1) <i>Influence de la pression du gaz de Cl<sub>2</sub></i> .....	109
2) <i>Influence de l'intensité du champ magnétique</i> .....	110
II) INFLUENCE DE LA PRESSION DU GAZ .....	113
III) INFLUENCE DE L'INTENSITÉ DU CHAMP MAGNÉTIQUE.....	115
IV) DISTRIBUTION RADIALE DE LA PROPORTION D'IONS NÉGATIFS .....	117
V) DISCUSSION.....	118
1) <i>Mécanismes de formation et de perte des espèces chargées dans les plasmas de chlore</i> .....	118
(i) Attachement .....	119
(ii) Détachement électronique.....	119
(iii) Recombinaison ion-ion .....	119
(iv) Ionisation .....	120
2) <i>Equations d'équilibre</i> : .....	120
<b>IV. POPULATION ÉLECTRONIQUE</b> .....	<b>123</b>
I) ETUDE DE L'INFLUENCE DE LA PRESSION .....	123
II) ETUDE DE L'INFLUENCE DE L'INTENSITÉ DU CHAMP MAGNÉTIQUE .....	124
<b>V. BILAN DE PUISSANCE DE NOTRE DÉCHARGE</b> .....	<b>125</b>
I) INFLUENCE DE LA PRESSION DU GAZ DE CHLORE .....	125
II) INFLUENCE DE L'INTENSITÉ DU CHAMP MAGNÉTIQUE .....	127
<b>VI. ETUDE SPECTROSCOPIQUE DE LA COMPOSITION EN ATOMES ET MOLÉCULES NEUTRES DU PLASMA DE CL<sub>2</sub></b> .....	<b>131</b>

I) ETUDE DE LA POPULATION RELATIVE DE CHLORE ATOMIQUE PAR ACTINOMÉTRIE SUR LE CHLORE ATOMIQUE .....	131
1) <i>Influence de la pression</i> .....	131
II) ETUDE ABSOLUE DE LA POPULATION DE CHLORE MOLÉCULAIRE (ACTINOMÉTRIE DU CHLORE MOLÉCULAIRE) .....	132
1) <i>Comparaison entre les techniques d'actinométrie du chlore atomique et du chlore moléculaire</i> ....	133
a) Effet de la pression .....	133
b) Effet du champ magnétique .....	134
2) <i>Influence de la dilution du Cl<sub>2</sub> par de l'argon</i> .....	135
3) <i>Influence de la pression du gaz de Cl<sub>2</sub> sur le degré de dissociation</i> .....	136
4) <i>Influence de l'intensité du champ magnétique sur le degré de dissociation</i> .....	137
5) <i>Influence de la puissance HF sur le degré de dissociation</i> .....	138
<b>VII. CONCLUSION SUR LA PHYSICO-CHIMIE DE NOTRE PLASMA DANS LE CHLORE .....</b>	<b>140</b>
<b>LISTE DES FIGURES DU CHAPITRE III.....</b>	<b>143</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE III .....</b>	<b>146</b>

## *Chapitre IV*

<b>SOMMAIRE DU CHAPITRE IV .....</b>	<b>149</b>
<b>GÉOMÉTRIE DU RÉACTEUR .....</b>	<b>151</b>
<b>I. INTRODUCTION.....</b>	<b>151</b>
<b>II. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX.....</b>	<b>152</b>
I) INFLUENCE DE L'INTENSITÉ DU CHAMP MAGNÉTIQUE ET DE LA DIMENSION AXIALE DU RÉACTEUR SUR LA DISTRIBUTION RADIALE DE LA TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE.....	152
II) INFLUENCE DE L'INTENSITÉ DU CHAMP MAGNÉTIQUE ET DE LA DIMENSION AXIALE DU RÉACTEUR SUR LES PROFILS RADIAUX DE LA DENSITÉ D'IONS POSITIFS.....	155
III) INFLUENCE DE L'INTENSITÉ DU CHAMP MAGNÉTIQUE ET DE LA DIMENSION DU RÉACTEUR SUR LA DISTRIBUTION AXIALE DE LA TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE.....	157
IV) INFLUENCE DE L'INTENSITÉ DU CHAMP MAGNÉTIQUE ET DE LA DIMENSION DU RÉACTEUR SUR LA DISTRIBUTION AXIALE DE LA DENSITÉ D'IONS POSITIFS. ....	159
V) INFLUENCE DE LA PRESSION SUR LES PROFILS AXIAUX DE LA DENSITÉ D'IONS POSITIFS.....	162
VI) INFLUENCE DE L'INTENSITÉ DU CHAMP MAGNÉTIQUE ET DE LA DIMENSION AXIALE DU RÉACTEUR SUR LA PROPORTION D'IONS NÉGATIFS DANS LA DÉCHARGE.....	164

VII)	BILAN DE PUISSANCE DE LA DÉCHARGE DE CHLORE. ....	167
VIII)	INFLUENCE DE L'INTENSITÉ DU CHAMP MAGNÉTIQUE ET DE LA DIMENSION AXIALE DU RÉACTEUR SUR LA CHIMIE DU PLASMA. ....	168
	1) <i>Impact sur le degré de dissociation</i> .....	169
	2) <i>Discussion</i> .....	171
<b>III.</b>	<b>CONCLUSION</b> .....	<b>173</b>
	<b>LISTE DES FIGURES DU CHAPITRE IV</b> .....	<b>175</b>
	<b>BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE IV</b> . ....	<b>177</b>

## *Chapitre V*

	<b>SOMMAIRE DU CHAPITRE V</b> .....	<b>179</b>
	<b>MODÉLISATION DES DÉCHARGES</b> .....	<b>181</b>
I.)	INTRODUCTION.....	181
II.)	EQUATION DE BOLTZMANN.....	184
III.)	DESCRIPTION DE L'APPROCHE FLUIDE.....	186
	1) <i>Hypothèses sur la forme de la fonction de distribution</i> .....	188
	2) <i>Hypothèses simplificatrices de l'équation de transport de quantité de mouvement</i> .....	190
	3) <i>Fréquence de collisions effective</i> .....	191
	4) <i>Champ magnétique axial uniforme</i> .....	192
IV.)	ÉTUDE DE LA DIFFUSION DES PARTICULES.....	193
	1) <i>Définitions et signification physique de la mobilité et de la diffusion</i> .....	193
	2) <i>Dérivation à partir de l'équation de transport de quantité de mouvement</i> .....	193
	3) <i>Diffusion ambipolaire</i> .....	194
V.)	ÉTUDE DE LA DIFFUSION DES PARTICULES EN PRÉSENCE D'UN CHAMP MAGNÉTIQUE.....	195
	1) <i>Diffusion ambipolaire en présence d'un champ magnétique</i> .....	197
	2) <i>Théorie de Bohm</i> .....	198
	3) <i>Théorie de Simon</i> .....	199
	4) <i>Théorie de Liebermann et Lichtenberg</i> .....	201
VI.)	TEMPS CARACTÉRISTIQUES DU PLASMA. ....	202
	1) <i>Temps caractéristiques des collisions</i> .....	202
	a) <i>Electrons</i> .....	202
	b) <i>Ions</i> .....	202
	c) <i>Temps de diffusion ambipolaire</i> .....	202
	d) <i>Temps caractéristiques de l'interaction plasma-champ électrique</i> .....	203

e)	Représentation des différents temps caractéristiques.....	204
VII.)	MODÈLE FLUIDE 2D .....	205
1)	<i>Description générale</i> .....	205
2)	<i>Hypothèses du modèle</i> .....	205
3)	<i>Equations du modèle</i> .....	206
4)	<i>Conditions aux limites</i> .....	206
a)	Flux aux parois .....	206
b)	Potentiel.....	207
5)	<i>Schéma numérique adopté et discrétisation des équations du modèle</i> .....	207
a)	Equation de continuité.....	207
b)	Equation de Poisson.....	207
c)	Couplage des équations de transport et de l'équation de Poisson .....	210
VIII.)	ETUDE NUMÉRIQUE DU COEFFICIENT DE DIFFUSION PERPENDICULAIRE.....	210
1)	<i>Temps de diffusion</i> .....	214
2)	<i>Diffusion dans un gaz électropositif soumis à un champ magnétique uniforme</i> .....	216
Théorie de Liebermann	.....	219
Théorie de Simon	.....	219
	CONCLUSION .....	227
	<b>LISTE DES FIGURES DU CHAPITRE V.....</b>	<b>228</b>
	<b>BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE V.....</b>	<b>229</b>
	 <b>Conclusion générale.....</b>	 <b>233</b>
	 <b>ANNEXES.....</b>	 <b>237</b>
	<b>ANNEXE A.....</b>	<b>239</b>
	<b>ANNEXE B.....</b>	<b>243</b>
	<b>ANNEXE C.....</b>	<b>249</b>

<b>Sommaire du Chapitre I</b>
-------------------------------

<b>SOMMAIRE DU CHAPITRE I.....</b>	<b>7</b>
<b>INTRODUCTION.....</b>	<b>8</b>
<b>INTRODUCTION GÉNÉRALE.....</b>	<b>8</b>
<b>I. GRAVURE PAR PLASMA .....</b>	<b>10</b>
I) MÉCANISMES DE GRAVURE : .....	11
II) LES RÉACTEURS À PLASMAS .....	13
III) LA GRAVURE PAR PLASMA DE CHLORE (Cl <sub>2</sub> ).....	20
<b>II. NOS OBJECTIFS SCIENTIFIQUES.....</b>	<b>21</b>
<b>III. APPROCHE ENTREPRISE .....</b>	<b>22</b>
<b>LISTE DES FIGURES DU CHAPITRE I. ....</b>	<b>23</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE I.....</b>	<b>24</b>

## Introduction

### Introduction générale

La révolution de l'électronique des 30 dernières années n'aurait pas eu lieu sans les procédés plasmas [1]. De nos jours un million de bits d'information peut être stocké sur un disque de silicium d'un quart de centimètre. Les procédés plasmas, la gravure, le dépôt et le nettoyage de couches minces sont essentiels à la fabrication économique de circuits intégrés de grande dimension. En 1990, l'industrie des procédés plasmas avait des revenus de près d'un milliard de dollars US, et l'industrie de l'électronique et de la microélectronique respectivement de 50 et 750 milliards de dollars. Avec des enjeux économiques de cette importance, la compréhension des procédés plasmas, et donc leur exploitation maximale devient impérative. Le défi des procédés plasmas vient de la complexité présentée par ces environnements hors-équilibre, et chimiquement réactifs. Le problème est encore aggravé par la complexité des réacteurs eux-mêmes, qui peuvent être de configuration géométrique et électromagnétique variées.

Quel apport peut donc faire la recherche à l'amélioration des procédés ? Quand on considère la complexité du problème, on comprend la nécessité d'une collaboration de plus en plus étroite entre expérimentateurs et théoriciens. Les défis à relever sont les suivants : tout d'abord, la configuration du réacteur ; on peut tout à fait, ce qui était d'ailleurs le cas auparavant, construire des réacteurs sur des bases empiriques, et obtenir des taux de dépôt ou de gravure uniformes et élevés. Mais les industries ont besoin de repères pour évaluer les avantages et les défauts des différents concepts de réacteur, avant d'envisager des programmes de développement et d'évaluation coûteux. Quelle géométrie

utiliser ? Quel est l'impact des matériaux (par exemple des parois) sur le flux d'énergie des ions ou sur l'uniformité du procédé ? Un second défi est le plasma lui-même, sa stabilité et donc sa reproductibilité, mais aussi son uniformité. Le développement de codes numériques a déjà permis d'apporter un certain nombre de réponses. Mais certains éléments de compréhension essentiels, comme la propagation d'ondes ou l'absorption dans des plasmas inhomogènes sont encore mal connus. Du point de vue expérimental, il reste aussi beaucoup à faire, ce qui nécessite de nouveaux diagnostics de caractérisation du plasma, mais aussi des surfaces qui le confinent. Finalement, l'étude des probabilités de dissociation pour les collisions des ions, électrons et neutres avec les molécules ou radicaux issus du gaz plasmagène de chimie souvent complexe est nécessaire. Tous ces paramètres sont bien sûr tous couplés, ce qui ne simplifie pas le défi à relever.

En ce qui concerne le présent travail, il sera plus spécifiquement consacré aux plasmas d'intérêt pour la gravure par plasma et plus particulièrement au cas des plasmas de Chlore. Avant d'entrer dans le vif du sujet, nous présenterons dans les prochains paragraphes quelques rappels concernant la gravure et nous décrirons quelques nouveaux types de réacteurs utilisés à cette fin. Par la suite, nous exposerons notre travail.

## I. Gravure par plasma

La gravure par plasma a révolutionné *l'industrie micro-électronique*, car elle a permis de réduire de manière considérable la taille des dispositifs, à des dimensions qu'on ne pouvait espérer jusqu'alors. Il existe deux procédés de gravure : la gravure chimique (dite humide) et la gravure sèche (i.e. utilisant les plasmas, par opposition à la gravure chimique). Les procédés chimiques furent les premiers utilisés, mais ces derniers ne permettent pas le dessin de motifs de faible dimension (par l'utilisation de masques), puisque que la gravure s'effectue de manière isotrope, i.e. avec la même vitesse dans toutes les directions. Ce procédé demeure adéquat pour la gravure de motifs micrométriques. Cependant la réduction de la taille des circuits nécessite à présent des motifs à l'échelle sous-micrométrique dont la réalisation fait appel à la gravure par plasma. L'industrie doit donc développer des réacteurs satisfaisant les impératifs industriels, à savoir un taux de gravure élevé, une bonne uniformité macroscopique et microscopique, une grande sélectivité et une excellente anisotropie [2].

Les plasmas sont utilisés pour les procédés de micro-électronique depuis les années 60, les premières applications concernant la gravure du silicium par plasma de  $\text{CF}_4/\text{O}_2$  [2]. Ce qui rend le plasma si attractif pour la gravure de matériaux est que ce procédé peut être *chimiquement sélectif*, c'est à dire qu'il permet de graver un matériau tout en laissant les autres matériaux intacts, et *anisotrope* ce qui permet de graver sur un matériau des motifs minces et profonds avec des parois bien verticales. En effet, cette technologie permet de graver des tranchées ayant une largeur de moins de  $0.2 \mu\text{m}$ , pour une profondeur de près de  $4 \mu\text{m}$ .

Bien que d'autres techniques puissent être utilisées (i.e faisceaux) la gravure par plasma est la seule commercialement viable pour la gravure anisotrope de matériaux [3].

**I) Mécanismes de gravure :**

Tel qu'illustré sur la Figure I.1, il existe quatre mécanismes de gravure par plasma : *la pulvérisation, la gravure chimique pure, la gravure assistée par les ions, et la gravure par ion inhibiteur.*<sup>[3]</sup>

La *pulvérisation* est l'éjection d'atomes de la surface résultant d'un bombardement par les ions. La pulvérisation est un procédé peu sélectif, mais anisotrope fortement sensible à l'angle d'incidence des ions. De plus, la pulvérisation est le seul des quatre procédés qui permet d'enlever des produits non-volatils de la surface. Par contre, en général les taux de gravure sont faibles.

La *gravure chimique* est un procédé dans lequel la décharge fournit des atomes ou molécules neutres capables de réagir chimiquement avec la surface. Le taux de gravure est souvent important car le flux d'atomes neutres est souvent important dans les décharges.

On parle de *gravure assistée par les ions* lorsque la décharge fournit à la fois les atomes ou molécules «réactifs» vis à vis de la surface, mais aussi des ions énergétiques. L'effet de synergie entre les atomes ou molécules et les ions conduit à une gravure plus efficace que la gravure chimique ou la pulvérisation seules. La gravure est de nature chimique, mais le taux de réaction est déterminé par le bombardement ionique. Comme les ions ont une distribution angulaire très directionnelle, ce procédé de gravure autorise une gravure fortement anisotrope.

Le quatrième type de procédé de gravure est *la gravure par ion inhibiteur*. Dans ce cas, en plus d'atomes "graveurs", la décharge fournit des atomes, ions ou molécules inhibiteurs qui s'adsorbent ou se déposent sur la surface pour former une couche protectrice. Dans les zones de la surface soumises au bombardement ionique, la couche protectrice est détruite et le matériau gravé chimiquement. Par contre, là où le bombardement ionique est faible, les espèces inhibitrices forment une couche de protection qui freine la gravure chimique. Les molécules inhibitrices sont habituellement les molécules de  $CF_2$ ,  $CF_3$ ,  $CCl_2$  et  $CCl_3$ . Par exemple dans la gravure de l'aluminium par des plasmas chlorés de  $CCl_4/Cl_2$  ou de  $CHCl_3/Cl_2$ , l'atome ou la molécule de chlore grave

rapidement l'aluminium, la gravure étant ainsi isotrope. L'ajout de carbone dans le mélange gazeux permet la formation d'une couche protectrice chlorocarbonée sur la surface d'où le recours à des décharges de  $\text{CCl}_4/\text{Cl}_2$  ou de  $\text{CHCl}_3/\text{Cl}_2$ . Le bombardement ionique permet une gravure dans la direction verticale, tandis que la couche protectrice « inhibe » la gravure dans la direction latérale, autorisant une grande anisotropie.

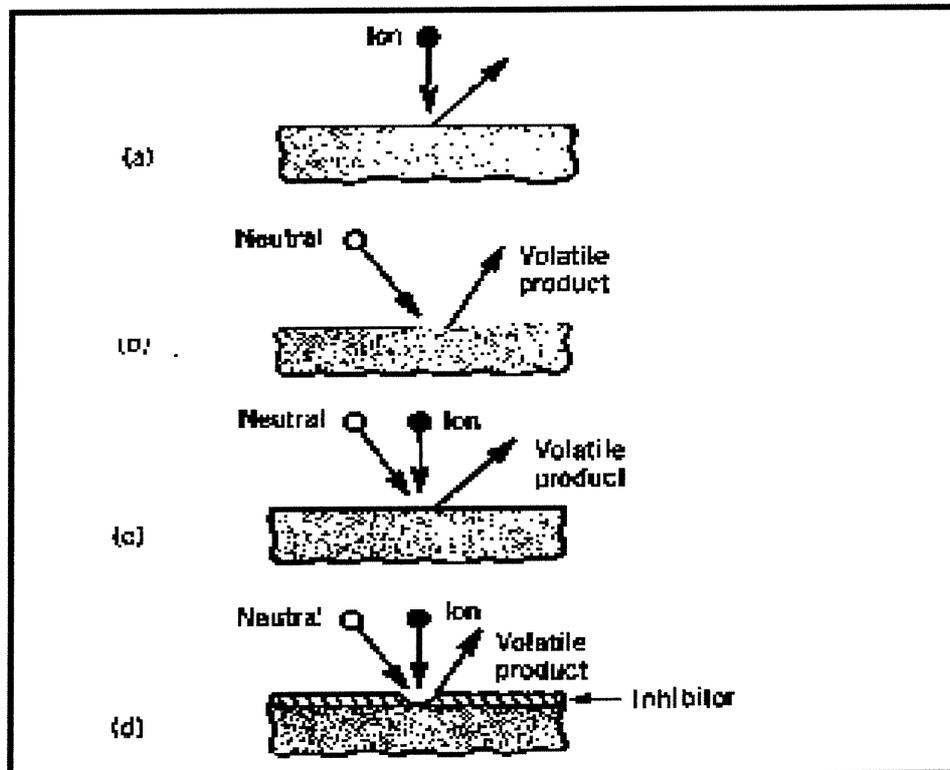


Figure I.1. Schéma des différents mécanismes de gravure [3].

En plus de favoriser une gravure anisotrope, les procédés utilisant les plasmas doivent permettre un bon contrôle d'autres paramètres. Il est impératif d'assurer un taux de gravure élevé afin de réduire la durée du procédé et d'assurer la viabilité économique du procédé, une bonne sélectivité du masque par rapport au substrat afin d'assurer le transfert exact du motif désiré sur la surface, et bien sûr une bonne uniformité microscopique, (c'est à dire une même vitesse de gravure pour des motifs de différentes dimensions), et macroscopique (gravure uniforme sur l'ensemble du substrat). Enfin il est

de plus important de limiter les dommages et contamination des surfaces. Pour atteindre l'ensemble de ces objectifs, on doit donc faire appel à beaucoup d'ingéniosité. En particulier, les réacteurs de gravure ont dû évoluer pour tenir compte des exigences toujours renouvelées en matière de réalisation de dispositifs.

### **II) Les réacteurs à plasmas**

Les procédés de gravure par plasma font encore, en grande partie, appel aux *réacteurs de types diode*, où le plasma est créé entre deux électrodes planes séparées de quelques centimètres, auxquelles on applique une tension alternative dans le domaine des radiofréquences (RF), souvent à 13.56 MHz. Ces décharges capacitives sont de géométrie généralement plane, avec une distance inter-électrodes de 2 à 10cm et fonctionnent dans une gammes de fréquences allant de 50 kHz à 13.56 MHz. La densité ionique obtenue dans ce type de réacteurs est de l'ordre de  $10^9$ - $10^{10}$  cm<sup>-3</sup>, pour une pression de travail de l'ordre de 100-300 mTorr. L'augmentation du flux d'ions requiert d'accroître la puissance appliquée aux électrodes (50 W-2kW [4]). Malheureusement à cause de la conception de ces réacteurs, cette augmentation se traduit par l'augmentation du potentiel plasma par rapport à la surface, et donc par celle de l'énergie des ions, ce qui conduit à des dommages du matériau traité. Ainsi, il est impossible de contrôler indépendamment le flux et l'énergie des ions bombardant la surface. Ainsi ces réacteurs ne permettent pas d'atteindre les objectifs actuels en matière de gravure.

Les inconvénients des décharges capacitives ont conduit à d'importantes recherches, visant à la mise au point de nouvelles sources de plasma plus à même de satisfaire les nouveaux impératifs des procédés de microélectronique. C'est ainsi qu'un nouveau type de sources de plasma est apparu : les sources dites à *haute densité et basse pression*. Il s'agit d'une nouvelle génération de réacteurs permettant d'atteindre un fort degré d'ionisation à basse pression.

A cause de leur conception ces sources autorisent un meilleur contrôle de l'énergie des ions que les décharges RF. En effet, le contrôle de la polarisation du substrat et de la densité des ions est indépendant. De plus, le travail à basse pression permet de minimiser

les collisions des ions avec les neutres dans la gaine se trouvant à la frontière de la surface à traiter. En effet, les collisions ions-neutres modifient la trajectoire des ions et tendent à rendre la fonction de distribution en vitesse des ions plus isotrope ce qui défavorise l'anisotropie de la gravure.

Dans un grand nombre de cas, il est nécessaire de recourir à un champ magnétique, soit pour assurer l'existence de la décharge (i.e décharges ECR ou hélicon), soit simplement pour accroître le degré d'ionisation, par réduction des pertes par diffusion vers les parois latérales du réacteur.

Les réacteurs avec sources à haute densité fonctionnent suivant le schéma suivant [5] :

- ✓ Création du plasma au niveau de la source avec ou sans champ magnétique selon les cas.
- ✓ Diffusion du plasma dans une enceinte où a lieu l'interaction entre le plasma et la surface à traiter. A ce niveau, on pourra modifier le plasma, de manière à rendre ces caractéristiques les plus uniformes possibles, par exemple en imposant un champ magnétique.
- ✓ Contrôle de l'interaction plasma-matériau par polarisation continu ou RF du substrat, notons que cette interaction dépend du comportement des ions dans la gaine.

Les différents types de réacteurs à haute densité diffèrent surtout par la méthode de création du plasma (principe de fonctionnement de la source elle-même). Dans ce qui suit, nous nous proposons de présenter brièvement les divers types de réacteurs à haute densité et basse pression.

Historiquement, le premier type de réacteur à haute densité, a été le *réacteur de type "RCE"(Résonance Cyclotronique Electronique)*. Dans ce plasma, le champ magnétique sert à la fois au confinement des électrons et au *transfert résonant d'énergie* entre *une onde électromagnétique* à une fréquence de 2450 MHz et les *électrons*. La RCE

nécessite deux mouvements circulaires différents, autour des lignes de champ magnétique, celui du champ électrique d'une onde électromagnétique polarisée circulairement droite de pulsation  $\omega$  et celui des électrons à la fréquence  $\omega_{ce} = eB_0/m_e$ . Cette résonance est possible lorsque  $\omega = \omega_{ce}$  ce qui, pour une onde de fréquence de 2450 MHz, correspond à un champ magnétique de 875 Gauss (87.5 mT). Les électrons voient donc un champ électrique constant par lequel ils sont continuellement accélérés, jusqu'au moment où ils subissent une collision avec une autre particule et transfèrent ainsi l'énergie acquise lors de l'accélération. La configuration conventionnelle d'un réacteur RCE est présentée à la Figure II.1 [6].

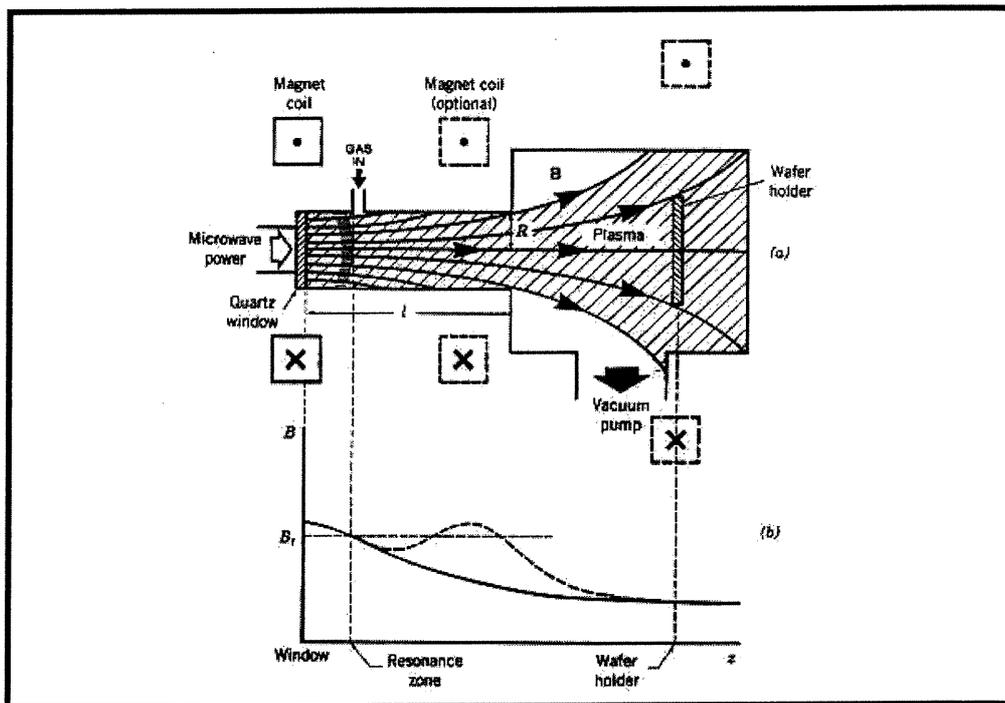
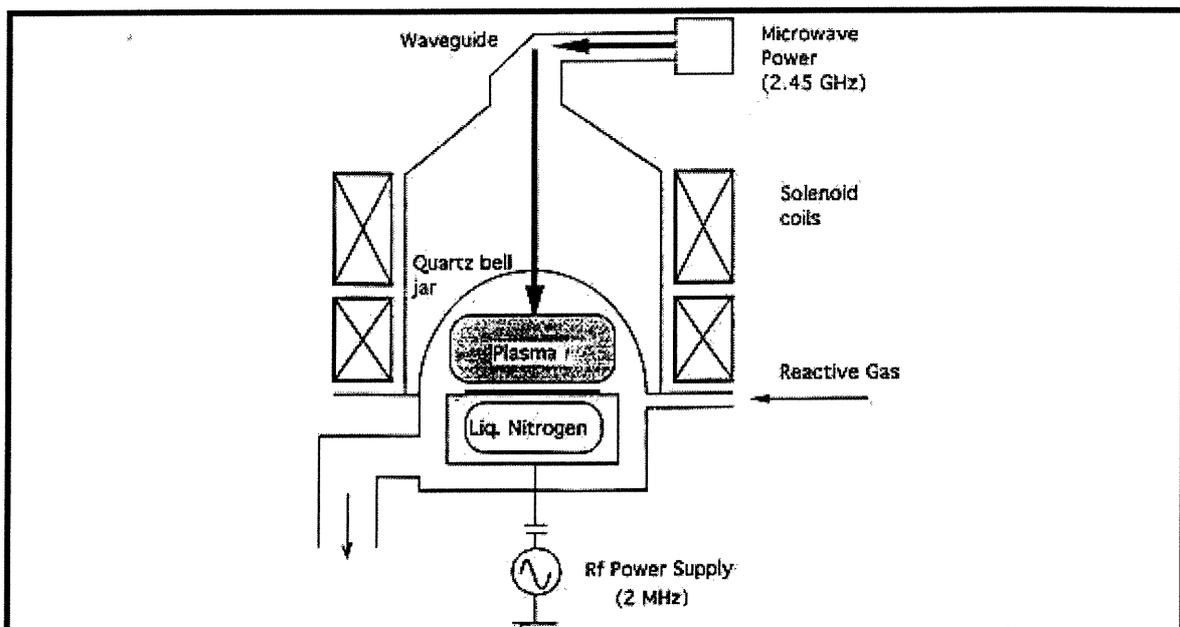


Figure II.1. Configuration classique d'un réacteur ECR [6].

Le champ magnétique (le plus souvent inhomogène) est produit par un ensemble de deux solénoïdes. La puissance microonde, cheminée par un guide d'onde, est transmise dans le réacteur métallique au travers d'une fenêtre plane de silice fondue. Le plasma s'amorce, de l'autre côté de la fenêtre, à l'endroit où la condition de RCE est satisfaite. Le porte-substrat est situé en aval de cette source et le plasma y diffuse en suivant les lignes

divergentes du champ magnétique. Souvent, on adjoint une autre bobine autour du substrat afin de favoriser l'uniformité de la gravure. Ces décharges fonctionnent à une pression de 0.1 à 20 mtorr, et permettent d'atteindre des densités ioniques de  $10^{10}$  à  $10^{12}$   $\text{cm}^{-3}$ , pour une puissance d'environ 1 kW.

Une autre configuration de réacteur RCE intéressante, est la *source développée par la manufacturier Hitachi* [7]. La Figure II.2 présente un schéma de la configuration du réacteur RCE, de Hitachi.



**Figure II.2. Configuration du réacteur produit par le manufacturier Hitachi [7].**

La puissance microonde, à une fréquence de 2450 MHz, est transmise au travers d'une cloche de silice fondue. Au bas de cette cloche se trouve le porte-substrat polarisé en RF. Deux bobines disposées autour de la cloche permettent de satisfaire la condition de RCE au voisinage du centre de la chambre de silice fondue.

Les avantages des réacteurs RCE pour la gravure sont, une bonne uniformité, une anisotropie et un taux de gravure élevés, un procédé propre par l'absence d'électrodes. Ils

constituent cependant des systèmes complexes et coûteux, et, de plus, ils n'autorisent pas une homogénéité suffisante pour une échelle industrielle.

Intéressons nous maintenant à la *source "hélicon"*. Selon l'application visée, ces sources opèrent avec un champ magnétique de quelques dizaines à quelques centaines de Gauss, et fournissent des densités électroniques de l'ordre de  $10^{12} \text{ cm}^{-3}$  pour une puissance RF incidente de 1 à 2 kW et une pression de quelques mtorr. La fréquence de fonctionnement est typiquement, entre 1 et 50 MHz. Les ondes hélicons sont des modes guides qui s'apparentent à des ondes "siffleuses". Ces ondes se propagent dans un plasma magnétisé et vérifient les conditions de continuité du champ électromagnétique aux frontières du plasma. Une antenne, disposée autour d'un tube diélectrique de géométrie cylindrique, produit un champ magnétique RF, transverse à l'axe du tube et à un champ magnétique statique produit par un ou plusieurs solénoïdes. Suivant la géométrie de l'antenne utilisée, ce champ RF excite le mode azimutal  $m=\pm 1$ , ou  $m=0$  d'une onde hélicon, laquelle entretient le plasma. Chen [8] a décrit de façon détaillée la propagation des ondes hélicons dans une colonne de plasma. Nous invitons le lecteur intéressé à se référer à cet article pour plus d'information sur ce mode d'excitation d'un plasma. En ce qui concerne l'absorption par le plasma, les deux mécanismes principaux considérés sont l'absorption collisionnelle et l'amortissement Landau. Dans le cas de l'absorption collisionnelle, les électrons transfèrent de l'énergie aux ions et aux neutres, et l'onde est amortie par effet Joule. Pour l'amortissement Landau, les électrons qui ont à peu près la même vitesse que la vitesse de phase de l'onde sont accélérés par le champ électrique de l'onde, qui leur apparaît alors constant.

La Figure II.3 présente le schéma d'une source hélicon [9]. Les sources hélicons ont été étudiées tant d'un point de vue expérimental que numérique [9, 10] et ont permis de développer des sources commerciales de plasma de haute densité pour des applications au traitement des matériaux.

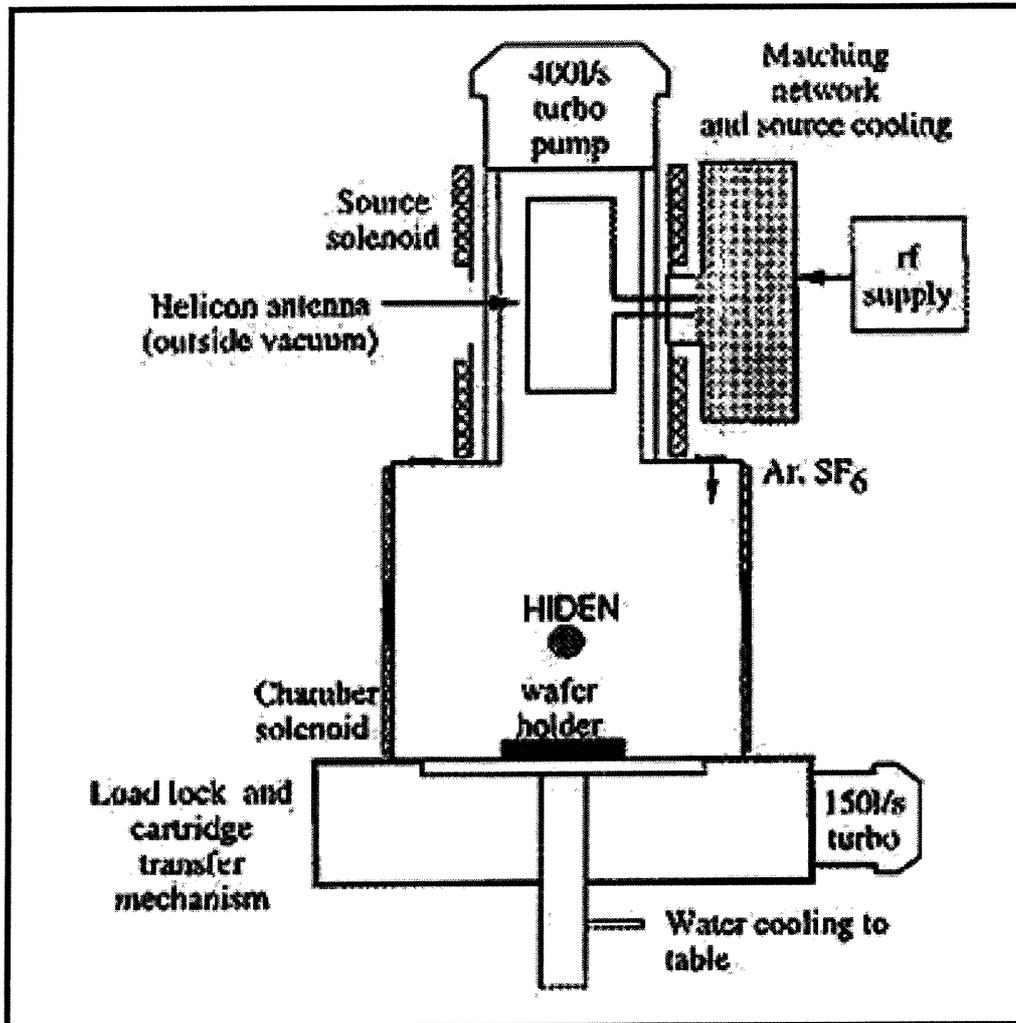


Figure II.3. Configuration du réacteur hélicon [9].

Une autre source qui reçoit une attention particulière dans l'industrie américaine, est la *source à couplage inductif par spirale*, par exemple de *type TCP* ( en anglais *Transformer Coupled Plasma*) [11]. Une spirale plane située sur le dessus du réacteur produit un plasma par couplage inductif RF au travers d'une fenêtre diélectrique, généralement de silice fondue. Ce transfert est non résonnant, et ne requiert donc pas de champ magnétique. On peut toutefois utiliser des solénoïdes pour optimiser l'uniformité de la gravure. La structure des ces réacteurs autorise le traitement de grandes surfaces, de manière propre, puisque sans électrodes. La fréquence de travail de ces réacteurs est de

13.56 MHz, pour des pressions comprises entre 0.5 et 20 mtorr et des puissances de quelques centaines de watts. La Figure II.4 présente le schéma d'un TCP étudié par sonde de Langmuir, dans le cadre de la gravure de l'aluminium par un plasma de chlore [11]. L'intérêt suscité par ces sources tient à deux raisons. D'une part, elles pourraient permettre de recycler les réacteurs à décharges capacitive devenus obsolètes. De plus, il s'agit là d'une excellente occasion pour les USA de concurrencer le seul réacteur commercialement viable à savoir le réacteur RCE dont la plupart des brevets sont japonais.

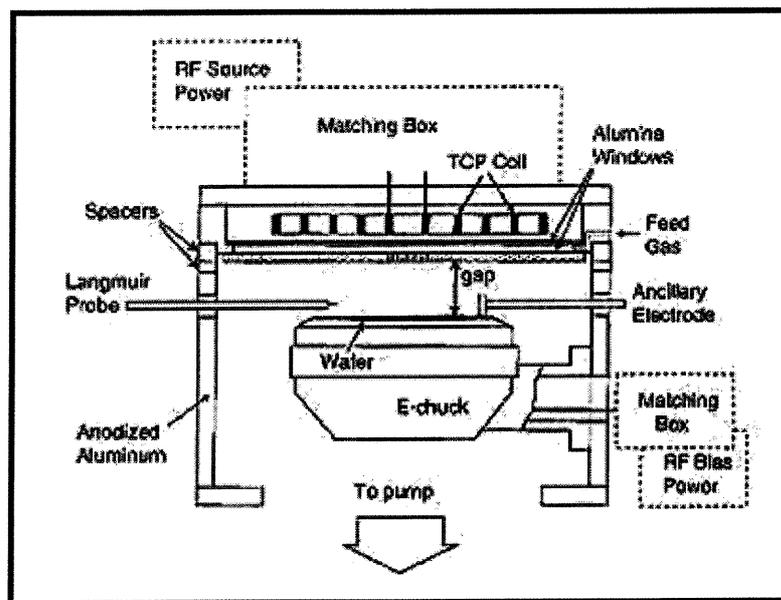


Figure II.4. Configuration du réacteur de type TCP [11].

Enfin, l'objet de notre étude est un nouveau type de réacteur à plasma appartenant à la catégorie des sources à haute densité. La mise au point de ce réacteur a résulté d'un effort conjoint du groupe de physique des plasmas de l'université de Montréal et du groupe Plasma-matériaux de l'INRS-Energie et matériaux à Varennes. La source est basée sur un plasma créé par une onde de surface en présence d'un champ magnétique. Ce réacteur non conventionnel bénéficie des mêmes avantages que les autres sources à hautes densités, c'est à dire une basse pression, une polarisation indépendante de la source et du substrat. Sa particularité est la présence d'un champ magnétique statique, uniforme sur

une grande longueur, permettant de placer le porte substrat dans une région sans divergence du champ. Nous décrirons en détails le fonctionnement et les caractéristiques du réacteur au chapitre II.

### **III) La gravure par plasma de chlore ( $Cl_2$ )**

Les décharges produites dans les gaz chlorés sont employées pour la gravure de divers matériaux, notamment le silicium, le matériau de base des circuits intégrés [12]. Des études [3] ont démontré l'importance de l'orientation cristallographique sur le taux de gravure, pour la gravure chimique du silicium par le chlore atomique. L'orientation cristallographique  $\langle 111 \rangle$  ayant une plus grande densité que l'orientation  $\langle 100 \rangle$ , la pénétration des atomes Cl ou  $Cl^{\cdot}$  dans la couche est réduite, ce qui diminue le taux de gravure. Les produits de gravure obtenus à la température de la pièce, sont  $SiCl_4$  et  $Si_2Cl_6$  et  $SiCl_2$ .

Les autres matériaux pouvant être gravés par le chlore sont les films TCO (Transparent Conductive Oxyde) qui sont traités dans des mélanges  $Ar/Cl_2$  [13, 14]. Les films TCO ont de nombreuses applications, telles que les cellules solaires, les écrans de grande diagonale comme les panneaux LCD, plasma et électroluminescent. La gravure est de type pulvérisation par les ions  $Ar^+$ , mais le taux de gravure est accru par l'apport de  $Cl_2$ , à des concentrations avoisinant les 20%. Les composés III-V (par exemple GaAs, InP, GaN..etc) qui servent à la réalisation de circuit, sont aussi des matériaux gravés par le chlore. Enfin, l'aluminium qui sert à créer les liaisons électriques entre les différents éléments des circuits est également gravé par le chlore, les résidus étant couramment de la forme  $AlCl_x$ . La réduction des circuits des puces a cependant fait apparaître les faiblesses de l'aluminium ; en particulier la résistance au passage du courant dû à sa trop faible conductivité. Cette résistance se traduit en un effet d'électromigration qui finit par occasionner une perte de matériau. On commence donc à se tourner vers des matériaux plus conducteurs, comme par exemple le cuivre gravé également par le chlore. Des tranchés de cuivre de  $0.25\mu m$  ont pu être gravés à l'aide de chlore pur [15]. Selon la température du substrat, les résidus formés sont de type  $Cu_xCl_x$ , et particulièrement  $Cu_3Cl_3$ .

## II. Nos objectifs scientifiques

Bien que l'utilisation du chlore comme gaz plasmagène présente un intérêt majeur, les caractéristiques de tels plasmas dans le régime des basses pressions et hautes densités demeurent mal connues. Des études ont prouvé [16] que la gravure dépend peu de la source en elle-même, les paramètres critiques gouvernant la qualité du procédé étant surtout fonction de la manière dont on optimise l'uniformité du plasma dans la chambre des procédés, la façon dont on polarise le matériau à traiter, et de la composition du mélange gazeux utilisé. Ainsi une étude de la physico-chimie du plasma dans un réacteur à haute densité particulier est de nature à faire avancer les connaissances dans tout le domaine des plasmas haute densité. C'est dans ce cadre que se situe notre travail. En premier lieu, nous allons chercher à caractériser d'un point de vue expérimental la physico-chimie de notre plasma dans le chlore. Par physico-chimie, nous entendons l'ensemble des phénomènes physiques (ceux impliquant les particules chargées) et chimiques (impliquant les particules neutres) qui s'y déroulent. Eu égard à la complexité des plasmas de gravure, qui comprennent des atomes, radicaux, molécules, ions et électrons, nous allons nous concentrer sur les espèces les plus pertinentes à la gravure, à savoir le chlore atomique neutre, ainsi que les ions positifs et négatifs correspondant. En second lieu, nous nous intéresserons au design du réacteur, qui joue un rôle crucial dans l'optimisation des plasmas destinés à la gravure. En parallèle à ces expériences, nous avons de plus, mené une étude numérique de la diffusion dans un plasma soumis à un champ magnétique uniforme.

### III. Approche entreprise

Ces études se feront au moyen d'une approche expérimentale et numérique. Le **chapitre II** sera consacré à la description de l'expérience et des diverses méthodes de diagnostic utilisées pour caractériser notre magnétoplasma de chlore. Dans le cadre de ce chapitre, nous présenterons donc l'expérience RCE4, ainsi que l'ensemble des diagnostics que sont les sondes électrostatiques, le photodétachement par laser, la propagation d'ondes acoustiques ioniques et la spectroscopie d'émission optique.

Le **chapitre III** nous permet de présenter l'ensemble des résultats expérimentaux obtenus à l'aide des méthodes de diagnostics décrites dans le chapitre II. Ce chapitre présente en fait l'étude de la physico-chimie du magnétoplasma de chlore. Nous étudierons donc les variations spatiales et l'impact des conditions opératoires sur les caractéristiques tant électriques (ions positifs, ions négatifs et électrons) que chimiques (neutres réactifs).

Le **quatrième chapitre** sera l'occasion de présenter une étude expérimentale systématique sur l'impact du dimensionnement et de l'intensité du champ magnétique sur les caractéristiques électriques et chimiques de la décharge de chlore.

En parallèle à ces études expérimentales, nous avons développé un modèle fluide bidimensionnel résolvant les deux premiers moments de l'équation de Boltzmann couplé de manière auto-cohérente à l'équation de Poisson. Ce modèle nous a permis d'estimer l'ordre de grandeur du coefficient de diffusion perpendiculaire dans le cas d'une décharge électropositive soumise à un champ magnétique axial uniforme. Cette étude est le propos du **chapitre V**.

Le dernier chapitre sera consacré à une conclusion générale rappelant les principaux résultats présentés et les perspectives envisagées.

<b>Liste des figures du Chapitre I.</b>
---

✓ Figure I.1. Schéma des différents mécanismes de gravure [3].	12
✓ Figure II.1. Configuration classique d'un réacteur ECR [6].	15
✓ Figure II.2. Configuration du réacteur produit par le manufacturier Hitachi [7].	16
✓ Figure II.3. Configuration du réacteur hélicon [9].	18
✓ Figure II.4. Configuration du réacteur de type TCP [11].	19

**Bibliographie du Chapitre I.**

- 
- <sup>1</sup> R.Gottscho, Physics World, 39, (1993)
- <sup>2</sup> Nancy Lynn Basset, Ph.D thesis, Faculty of the department of chemical engineering, University of Houston, Mai 1994.
- <sup>3</sup> Liebermann et Lichtenberg, *Principles of plasma discharges and materials processings*.Chap 15, Wiley-Interscience, (1994).
- <sup>4</sup> M.Chaker, réacteurs à plasmas, rapport interne, 1997.
- <sup>5</sup> P.Jacquet, Rapport dans le cadre du cours plasmas froids, INRS, 1996
- <sup>6</sup> D.M.Manos, D.L.Flamm, *Plasma etching, An introduction*, Academic Press, Inc, 1988.
- <sup>7</sup> D.B.Graves, IEEE.Trans.Plasma.Sci, **22**, 31, (1994).
- <sup>8</sup> F.Chen, Plasma.Phys.controlled.Fus, **33**, 4, 339, (1991).
- <sup>9</sup> P.Chabert, R.W.Boswell, et C.Davis, *Investigation of a SF<sub>6</sub> helicon plasma*, J.Vac.Sci.Technol.A, **16**, 1, 78, Jan/feb 1998.
- <sup>10</sup> A.D.Cheetham, J.P.Rayner, *Characterization and modeling of a helicon plasma source*, J.Vac.Sci.Technol.A, **16**, 5, 2777, Sep/Oct 1998.

<sup>11</sup> M.V.Malyshev, V.M.Donnely, A.Kornblit, N.A.Campia, J.I.Colonell, et J.T.C.Lee, *Langmuir probe studies of a transformer coupled plasma, aluminium etcher*, J.Vac.Sci.Technol.A, **17**,2, 480, Mar/Apr 1999.

<sup>12</sup> Y.Teraoka, et I.Nishiyama, *Si(100) etching by translationnal energy controlled atomic chlorine beams*, J.Appl.Phys, **79**, 8, 4397, 15 april 1996.

<sup>13</sup> P.Maguire, J.Mollov, S.J.Laverty, et J.McLaughlin, *Etching characteristics of tin oxyde thin films in argon-chlorine radiofrequency plasmas*, J.Vac.Sci.Technol.A, **14**, 6, 3010, Nov/dec 1996.

<sup>14</sup> M.Balooch, M.Moalem, Wei.E.Wang, et A.V.Hamza, *Low-energy Ar ion-induced and chlorine ion etching of silicon*, J.Vac.Sci.Technol.A, **14**, 1, 229, Jan/feb 1996.

<sup>15</sup> H.Miyazaki, K.Takeda, N.Sakuma, S.Kondo, Y.Homma, and K.Hinode, *Copper dry etching with precise wafer-temperature control using Cl<sub>2</sub> gas as a single reactant*, J.Vac.sci.Technol.B, **15**, 2, 237, Mar/Apr 1997.

<sup>16</sup> M.Pichot, et J.Pelletier, *in Microwave excited plasmas*, édité par M.Moisan et J.Pelletier (Elsevier, Amsterdam, 1992), chap 14.

## Chapitre I-Introduction sur les plasmas de gravure

---

---

## Sommaire du chapitre II.

<b>SOMMAIRE DU CHAPITRE II.....</b>	<b>27</b>
<b>DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL ET MÉTHODES DE CARACTÉRISATION DU PLASMA.....</b>	<b>29</b>
<b>INTRODUCTION .....</b>	<b>29</b>
<b>I.) DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL.....</b>	<b>30</b>
I.) LES ONDES DE SURFACE .....	30
1) <i>Historique</i> .....	30
a) Caractéristiques physiques des ondes de surface .....	31
i) Propriétés physiques des ondes de surface .....	31
ii) Equation de dispersion .....	32
b) Les ondes de surface en présence d'un champ magnétique externe .....	34
II.) DESCRIPTION DU RÉACTEUR RCE4 .....	39
III.) DESCRIPTION DE L'EXCITATEUR D'ONDE DE SURFACE.....	42
<b>II.) DIAGNOSTICS DU PLASMA .....</b>	<b>43</b>
I.) MÉTHODE DE SONDE ÉLECTROSTATIQUE.....	43
1) <i>Relations entre le courant de sonde et les paramètres du plasma</i> .....	44
2) <i>Montage expérimental et interprétation de la caractéristique de sonde</i> .....	46
3) <i>Détermination de la fonction de distribution en énergie des électrons</i> .....	49
II.) PHOTODÉTACHEMENT PAR LASER .....	53
1) <i>Principe de la méthode de photodétachement</i> .....	53
2) <i>Description du montage expérimental</i> .....	55
3) <i>Test de validité du diagnostic</i> .....	59
a) Authenticité du phénomène de photodétachement.....	59
b) Influence de la densité d'énergie du laser .....	60
III.) ÉTUDE DE LA PROPAGATION D'ONDES ACOUSTIQUES IONIQUES .....	64
1) <i>Introduction</i> .....	64
2) <i>Équation de dispersion</i> .....	65
a) Approche hydrodynamique.....	65
b) Approche cinétique.....	67

## Chapitre II- Dispositif expérimental et méthodes de caractérisation du plasma

---

3) <i>Amortissement</i> .....	70
4) <i>Description du montage expérimental et de la méthode d'analyse</i> .....	70
IV.) ETUDE SPECTROSCOPIQUE DE LA COMPOSITION EN ATOMES ET MOLÉCULES NEUTRES DU PLASMA DE CL <sub>2</sub> . .....	75
1) <i>Introduction</i> .....	75
2) <i>Etude de la composition du plasma dans le chlore par spectroscopie d'émission</i> .....	76
Montage expérimental .....	76
3) <i>Spectre d'émission du plasma de chlore</i> . .....	77
a) Processus de collisions dans un plasma de chlore.....	77
b) Spectroscopie d'émission optique .....	78
4) <i>Principe de la méthode d'actinométrie</i> .....	80
5) <i>Etude des populations du chlore atomique et moléculaire par actinométrie (revue bibliographique)</i> ... .....	82
<b>LISTES DES FIGURES DU CHAPITRE II</b> .....	<b>84</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE II</b> .....	<b>86</b>

# Dispositif expérimental et méthodes de caractérisation du plasma

## Introduction

Le réacteur à haute densité (réacteur dénommé RCE4) sur lequel porte notre travail a été conçu en 1992 dans le cadre d'un projet de collaboration entre le groupe de physique des plasmas de l'université de Montréal et l'INRS-énergie et Matériaux de Varennes. Il a déjà donné lieu à un certain nombre d'études à la fois dans l'argon et le SF<sub>6</sub> autant du point de vue de la caractérisation que de la gravure. La motivation des études menées dans le SF<sub>6</sub> était en grande partie liée à l'étude de la gravure sous-micrométriques du tungstène. Ces expériences furent menées à une fréquence de 2450 MHz. A une telle fréquence, le fonctionnement du plasma en régime de basse pression nécessite l'emploi d'un champ magnétique voisin des conditions de résonance cyclotronique électronique (RCE), ce qui limite la gamme dynamique d'opération du réacteur. Pour cette raison, les travaux ultérieurs firent appel à une fréquence plus basse d'environ un facteur 10. Dans ces conditions, l'amortissement collisionnel de l'onde est suffisant pour assurer un transfert d'énergie efficace de l'onde vers le plasma.

Dans ce chapitre, nous décrivons d'abord de manière détaillée les ondes de surface et le plasma auquel elles donnent lieu ainsi que le réacteur RCE4. En second lieu, nous examinerons les méthodes de diagnostic qui ont été mises en œuvre pour caractériser le plasma à la fois en ce qui concerne ses propriétés électriques (électrons, ions positifs et négatifs) et chimiques (neutres réactifs).

## I.) Dispositif expérimental

### I.) Les ondes de surface

#### 1) Historique

L'existence d'ondes électromagnétiques guidées par une interface plasma-diélectrique a été découverte par Trivelpiece et Gould en 1959 [1]. Initialement désignées comme ondes de charge d'espace, puis modes Trivelpiece-Gould, elles sont maintenant couramment connues sous le terme d'onde de surface bien que cette terminologie ne soit pas toujours appropriée. Dans les années 60, furent publiés de nombreux articles portant sur l'étude de ces ondes[2]. Utilisées au début comme moyen de diagnostic de la densité d'électrons dans des plasmas de colonnes positives, on s'aperçut dans les années 70 que ces ondes pouvaient être employées à la création de longues colonnes de plasma, et cela sans l'utilisation d'électrodes. En 1970, Tuma mit en évidence le premier cas de plasma créé par onde de surface [3]. Les premiers excitateurs vraiment adaptés au lancement de ce type d'onde ont été mis au point par Moisan et al, à partir de 1974 [4]. A ce jour, on dispose de plusieurs dispositifs permettant de produire un plasma par propagation d'une onde de surface.

La cause principale du succès des ondes de surface provient de leur extraordinaire flexibilité en termes de conditions opératoires, ce qui inclut les dimensions de la chambre de création du plasma, la nature et la pression du gaz, la fréquence de l'onde et éventuellement l'intensité du champ magnétique. Ces décharges peuvent être produites dans des gammes de fréquence variant entre 100 kHz et 10 GHz. La gamme de pression possible, quant à elle, varie du domaine du sous-millitorr à plusieurs atmosphères. En géométrie cylindrique, la dimension de la chambre de création du plasma peut varier du capillaire ayant 0.5 mm de rayon jusqu'à 200 mm ou plus. De plus, la reproductibilité et la stabilité des sources plasmas créées par ondes de surface est un atout majeur par rapport aux autres types d'excitation de plasma.

La physique des plasmas créés par onde de surface a particulièrement progressé ces dernières années. Les travaux de Ferreira et de ses collaborateurs ont mené, dès le début des années 80, à l'établissement d'une base théorique pour la description de ces plasmas, au moins pour des pressions réduites et en l'absence de champ magnétique [5]. La compréhension des ondes de

surface s'est étendue maintenant aux plasmas à pression atmosphérique et aux plasmas soumis à un champ magnétique extérieur<sup>[6, 7, 8]</sup>.

### a) Caractéristiques physiques des ondes de surface

#### i) Propriétés physiques des ondes de surface

Une onde de surface est une onde guidée par une structure plasma-diélectrique. L'onde est excitée par un lanceur d'onde dont les dimensions peuvent être petites par rapport à celles de l'enceinte. Une fois excitée, cette onde se propage le long de l'interface plasma-diélectrique. La plupart des expériences ont eu lieu dans le cadre de géométrie cylindrique, dans laquelle le plasma est contenu dans un tube diélectrique entouré par l'air, bien que des structures planaires aient été mises au point récemment par des groupes japonais <sup>[9]</sup>. La présence d'une enceinte diélectrique n'est pas obligatoire pour obtenir la propagation de l'onde de surface (une couche d'air pouvant suffire), mais il s'avère nécessaire pour obtenir un plasma à basse pression ou, à la pression atmosphérique, pour éviter de contaminer le plasma par l'air ambiant. On entoure parfois le tube diélectrique par un tube métallique afin de limiter les problèmes liés aux radiations.

Les ondes de surface sont ainsi dénommées, car, en général, les composantes du champ électromagnétique sont maximales à l'interface plasma-diélectrique et minimales au centre du plasma. Ces ondes peuvent être utilisées pour la décharge, dès qu'elles disposent d'une énergie suffisante. Elles ne se propagent que dans un plasma surdense, i.e. dont la densité électronique est supérieure à une valeur minimale, notée  $n_{ec}$  appelée densité

critique<sup>[10]</sup>, qui correspond à la condition  $\omega = \omega_p$  où  $\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}}$  est la pulsation plasma

électronique et  $\omega$  la pulsation de l'onde ( $\omega = 2\pi f$ ). Dans nos conditions,  $n_{ec} = 5 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$ . Si, à son point d'injection, l'onde crée une densité électronique supérieure à  $n_{ec}$ , alors elle génère son milieu de propagation en cédant une partie de l'énergie qu'elle transporte de son point d'injection (appelé interstice de lancement) vers le bout de colonne, où la densité est alors voisine de  $n_{ec}$ .

ii) Equation de dispersion

En l'absence de champ magnétique et en supposant que le plasma est froid ( $v_{the} \ll v_{\phi}$ ), on peut considérer le plasma comme un diélectrique de permittivité relative  $\epsilon_p$  donnée par :

$$\epsilon_p = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \frac{1}{1 - i\nu/\omega} \quad 1.$$

où  $\nu$  est la fréquence effective de collisions électron-neutre pour le transfert de quantité de mouvement et  $i = \sqrt{-1}$ . Le champ électromagnétique obéit aux équations de Maxwell qui, en considérant une variation temporelle sous la forme  $e^{i\omega t}$ , peuvent être écrites comme :

$$\begin{aligned} \nabla \times \vec{E} &= -i\omega\mu_0\vec{H} \\ \nabla \times \vec{H} &= i\omega\epsilon_0\epsilon\vec{E} \\ \nabla \cdot (\epsilon\vec{E}) &= 0 \end{aligned} \quad 2.$$

Ces équations peuvent être développées en utilisant une méthode de séparation où les constantes de séparation sont

- ✓ Le nombre d'onde complexe axial,  $k = \beta - i\alpha$ ,  $\beta$  étant le nombre d'onde axial et  $\alpha$  le coefficient complexe d'atténuation axial.
- ✓ Le nombre d'onde azimutal  $m$ .

Il en résulte que les composantes axiales du champ électromagnétiques ont la forme  $R(r)\exp(i\omega t + im\phi - ikz)$ . Le nombre d'onde azimutal  $m$  ne peut prendre que des valeurs entières. Quant à la fonction  $R(r)$ , en géométrie cylindrique, elle est décrite par une superposition de fonctions de Bessel complexes  $J_m$  et de fonctions de Hankel  $H_m$ . Les composantes radiales et azimutales du champ se déduisent des composantes axiales via les équations de Maxwell. Une fois les composantes du champ calculées, on applique les conditions aux limites :

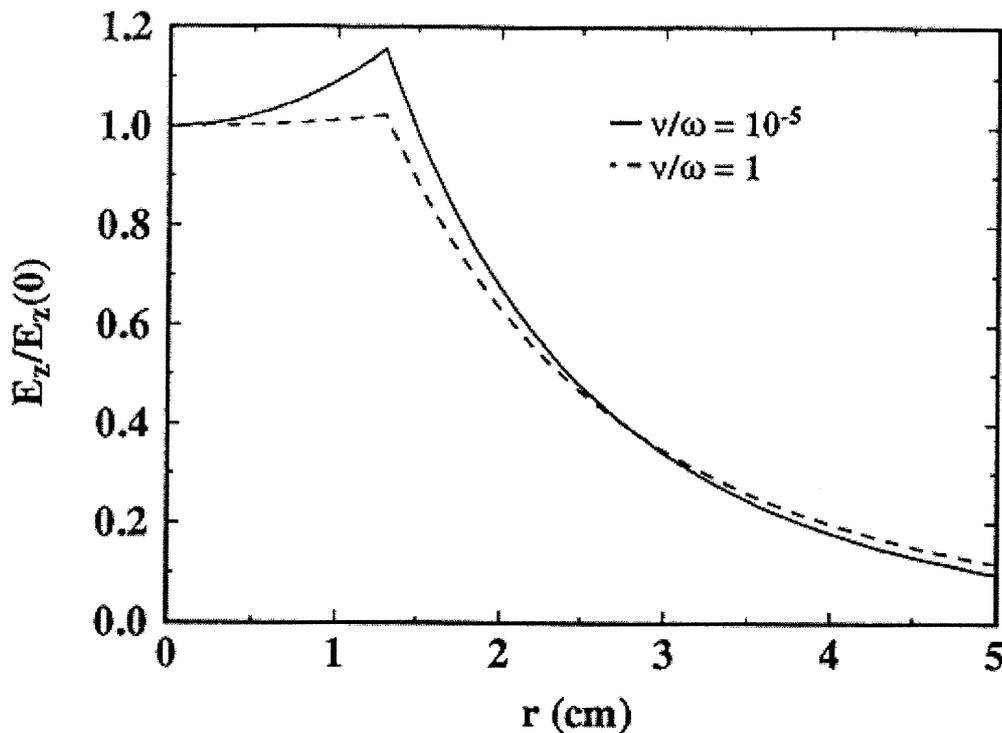
- ✓ Le champ doit tendre vers zéro pour  $r$  tendant vers l'infini

✓ Il y a continuité des composantes tangentielles à l'interface plasma-diélectrique.

Ces considérations permettent d'écrire une équation déterminante  $D(\omega, \omega_p, k) = 0$  dont les solutions donnent la valeur de  $k$  en fonction de  $\frac{\omega}{\omega_p}$  pour un mode donné (i.e. une valeur de  $m$  donnée). Il faut également noter que l'argument des fonctions de Bessel ou de Hankel définit un nombre d'onde radial  $k_r$ . Lorsque le plasma est strictement non collisionnel,  $k_r$  prend une valeur purement imaginaire, ce qui signifie que l'onde est radialement évanescence. Cette évanescence implique que le champ électrique (ou électromagnétique) est maximum à l'interface plasma-diélectrique, d'où le terme d'onde de surface. Pour  $m=0$ , l'onde est un mode TM alors que pour  $|m| > 0$ , il s'agit d'un mode hybride.

La Figure I.1 présente la distribution radiale de l'intensité de la composante axiale du champ électrique pour une fréquence de 600 MHz. Puisque le champ est plus intense près de la paroi, le chauffage Joule des électrons est plus grand près de la périphérie du plasma. Pour une fréquence de collisions plus élevée ( $\frac{\nu}{\omega}=1$ ) le rapport entre l'intensité du champ de l'onde à la paroi et celle sur l'axe du plasma décroît, c'est à dire que la pénétration du champ dans le plasma est plus importante. Dans les cas extrêmes ( $\nu \gg \omega$ ), le champ de l'onde peut même avoir un maximum sur l'axe du plasma.

Plusieurs modes peuvent coexister dans un milieu donné, selon notamment la fréquence  $f$  de l'onde, le rayon interne  $R$  de l'enceinte diélectrique et le dispositif de lancement de l'onde. Quand l'onde de surface entretient le plasma, le mode prédominant est déterminé par la fréquence de l'onde et le rayon du tube<sup>[11]</sup>. Il a été montré que pour obtenir seulement un mode à symétrie azimutale  $m=0$ , le produit  $fR$  devait être plus petit que 2GHz.cm. Pour des valeurs supérieures de  $fR$ , les modes  $m>1$  sont excités même avec des lanceurs d'ondes à symétrie azimutale ; plus le produit  $fR$  est grand, plus l'ordre du mode excité  $l$  est <sup>[12, 13]</sup>.



**Figure I.1. Distribution radiale de l'intensité de la composante axiale du champ électrique de l'onde pour deux valeurs de  $\nu / \omega$ ,  $r_{\text{plasma}}=1.3$  cm.**

### b) Les ondes de surface en présence d'un champ magnétique externe

Le précédent paragraphe considère un plasma ne subissant pas l'effet d'un champ magnétique externe. En présence d'un champ magnétique externe, les ondes de surfaces présentent des caractéristiques forts différentes du cas non-magnétisé.

Comme nous l'avons présenté dans le paragraphe ii), le plasma est décrit comme un diélectrique de permittivité complexe dont la partie imaginaire est reliée à la dissipation collisionnelle de l'énergie. La présence d'un champ magnétique a pour conséquence principale de rendre le plasma anisotrope et sa permittivité complexe. Dans la direction du champ magnétique, elle reste inchangée par rapport au cas non magnétisé, mais les termes

diagonaux transversaux sont modifiés et on note aussi la présence de termes non diagonaux [6].

En présence d'un champ magnétique fini, les ondes sont toujours hybrides (le mode de propagation n'est ni purement TM, ni pur TE). Il existe plusieurs solutions à l'équation de dispersion qu'on peut classer suivant les deux catégories suivantes :

- Champ magnétique faible ( $\omega_{ce}/\omega < 1$ ), on retrouve la solution correspondant à une onde de surface (pour  $B_0$  tendant vers 0), on qualifie alors ces modes de fondamentaux (identifiés par le symbole  $HE_{m1}$ ). De plus, puisqu'ils sont hybrides par la présence du champ magnétique, on les appelle *des modes hybrides fondamentaux*.
- Champ magnétique fort ( $\omega_{ce}/\omega > 1$ ), à chaque valeur du nombre azimutal  $m$  correspond une infinité de solutions répertoriées par l'indice  $n$  qui correspond à des solutions  $(\beta, \alpha)$  classées par ordre croissant de  $\beta$ . On appelle les solutions du déterminant : *modes hybrides magnétiques* (identifiés par le symbole  $HE_{mn}^*$ ). Cette appellation est justifiée par le fait que contrairement aux modes hybrides fondamentaux, ils ne peuvent exister en absence de champ magnétique. Dans la limite d'un champ  $B$  infini, ces modes sont purement TM.

Afin de pouvoir expliquer les divers processus d'ionisation et d'excitation dans le plasma, il est intéressant de connaître la distribution radiale du champ électrique total pour les différents modes de propagation. La Figure I.1 montre ces distributions pour les modes  $HE_{01}$  et  $HE_{11}$ , pour différentes valeurs de  $\omega_{ce}/\omega$  ( $\omega = 2.45$  GHz et  $R = 13$  mm) obtenues par calcul numérique [6]. On constate, dans le cas du mode  $HE_{01}$ , que l'intensité du champ électrique total présente une distribution radiale similaire à celle d'une onde de surface. Par contre, le mode  $HE_{11}$  présente pour de grandes valeurs de l'intensité du champ magnétique, un maximum près de l'axe pour des valeurs de  $\omega_{ce}/\omega > 2$ . Nous pourrions alors parler d'une onde de surface généralisée puisqu'en absence de champ magnétique nous retrouvons un profil de type « onde de surface ».

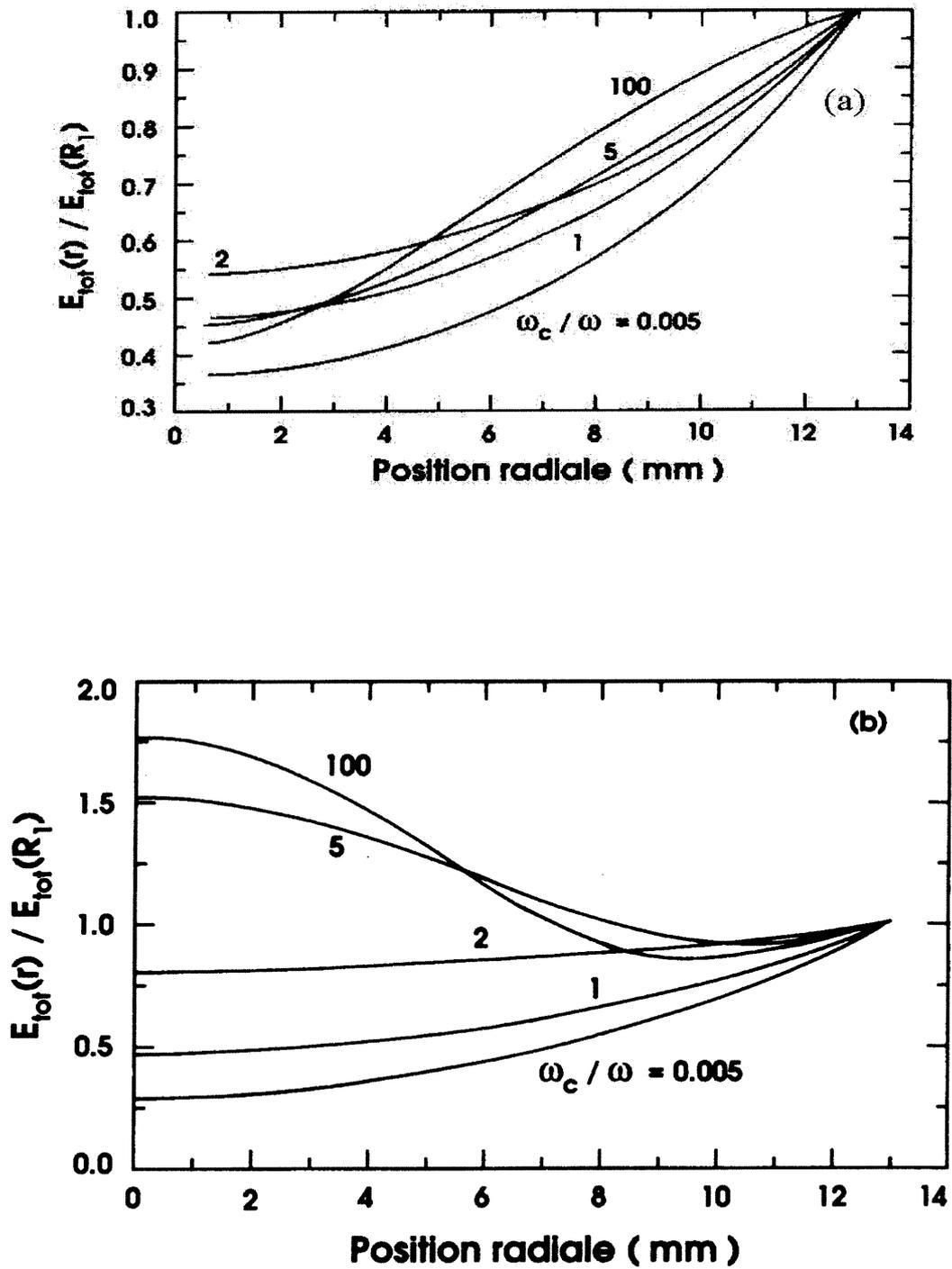


Figure I.1. Effet de  $\omega_c/\omega$  sur la distribution radiale de l'intensité du champ électrique total pour le mode  $HE_{01}$  (a) et le mode  $HE_{11}$  (b) [6].

Comme nous l'avons précisé précédemment, une onde de surface est une onde guidée par une interface plasma-diélectrique. On peut se demander si elle ne continue pas de se propager dans l'enceinte métallique, la gaine séparant le plasma du métal (dans le cas à faible champ magnétique : cas 1) ou le plasma peu dense entourant le plasma dense central (à fort champ magnétique : cas 2), faisant alors office de diélectrique.

Une étude théorique effectuée par Margot et al [14], dans nos conditions expérimentales, a montré que dans les deux cas, une onde de surface peut se propager. Dans le cas 1, les auteurs ont alors constaté que le champ de l'onde est maximum à l'interface plasma-gaine et que la pénétration du champ dans le plasma diminue avec l'épaisseur de la gaine, comme illustré à la Figure I.2. Dans le cas 2, l'interface entre les deux plasmas de permittivité différente sert également de support à la propagation d'une onde de surface (voir Figure I.3).

Cependant, alors que pour le cas d'un seul plasma magnétisé entouré d'un diélectrique, aucune résonance ou coupure n'a lieu à  $\frac{\omega}{\omega_c} = 1$ , lorsque le diélectrique extérieur est un plasma, une

résonance ou un coupure se développent autour de  $\frac{\omega}{\omega_c} = 1$ .

Maintenant que nous avons présenté la propagation des ondes de surface, ainsi que leurs caractéristiques avec ou sans champ magnétique, nous allons nous attarder à décrire le montage expérimental RCE4 étudié pendant ce projet.

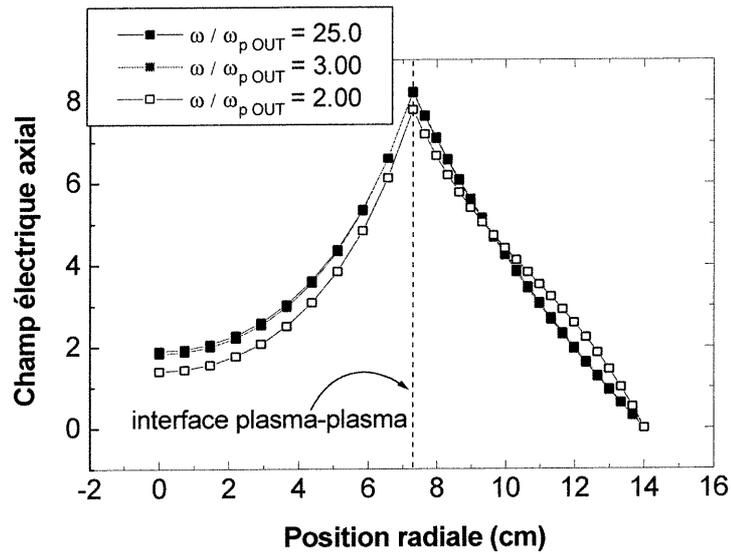


Figure I.2. Profil radial de l'intensité de la composante axiale du champ électrique de l'onde, pour deux épaisseurs de la gaine, un champ magnétique nul et  $(\omega/\omega_p)_{\text{extérieur}}=100$  (air) (cas1).

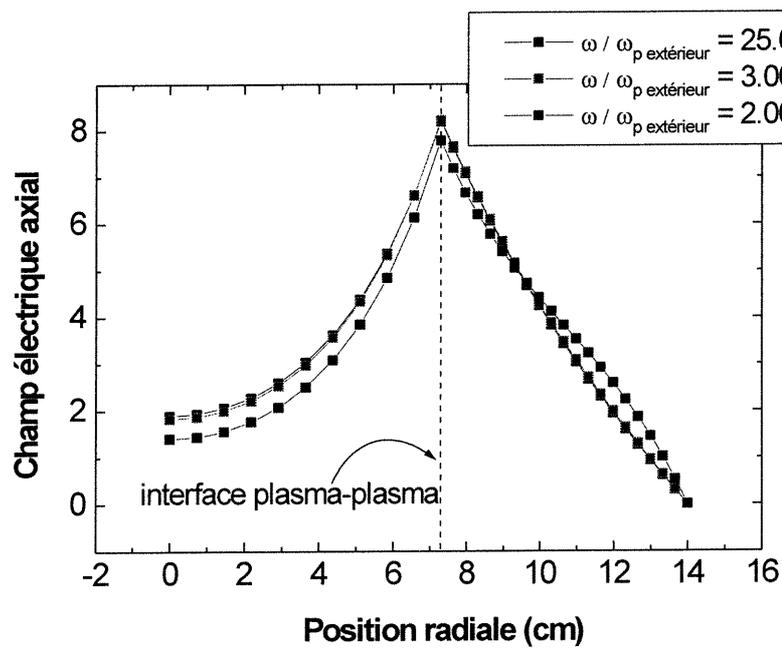


Figure I.3. Profil radial du champ électrique axial pour un champ magnétique de  $B=204$  gauss, une densité électronique de  $4.5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  et un rapport  $(\omega/\omega_p)$  du plasma interne égal à 0.1.

## II.) Description du réacteur RCE4

Le réacteur RCE4 est illustré sur la Figure I.. Le montage est divisé en deux parties :

- (i) Un tube diélectrique en silice fondue où l'onde de surface est lancée. Ce tube est long de 76 cm, pour un diamètre interne de 14.5 cm et un diamètre externe de 15.2 cm.
- (ii) Une enceinte métallique d'un diamètre de 28 cm, et d'une longueur de 87 cm sans compter la croix où est assujettie le système de pompage.

Les deux parties du réacteur sont connectées via une plaque munie d'un joint d'étanchéité. Le réacteur est évacué en effectuant d'abord un vide grossier avec une pompe à pistons Trivac. Une fois obtenue une pression de l'ordre de quelques mtorrs, un vide secondaire est obtenu à l'aide d'une pompe turbomoléculaire Turbovac 1500 de Leybold, couplée à une pompe mécanique Alcatel 2063CP+, spécialement destinée aux applications utilisant des gaz corrosifs.

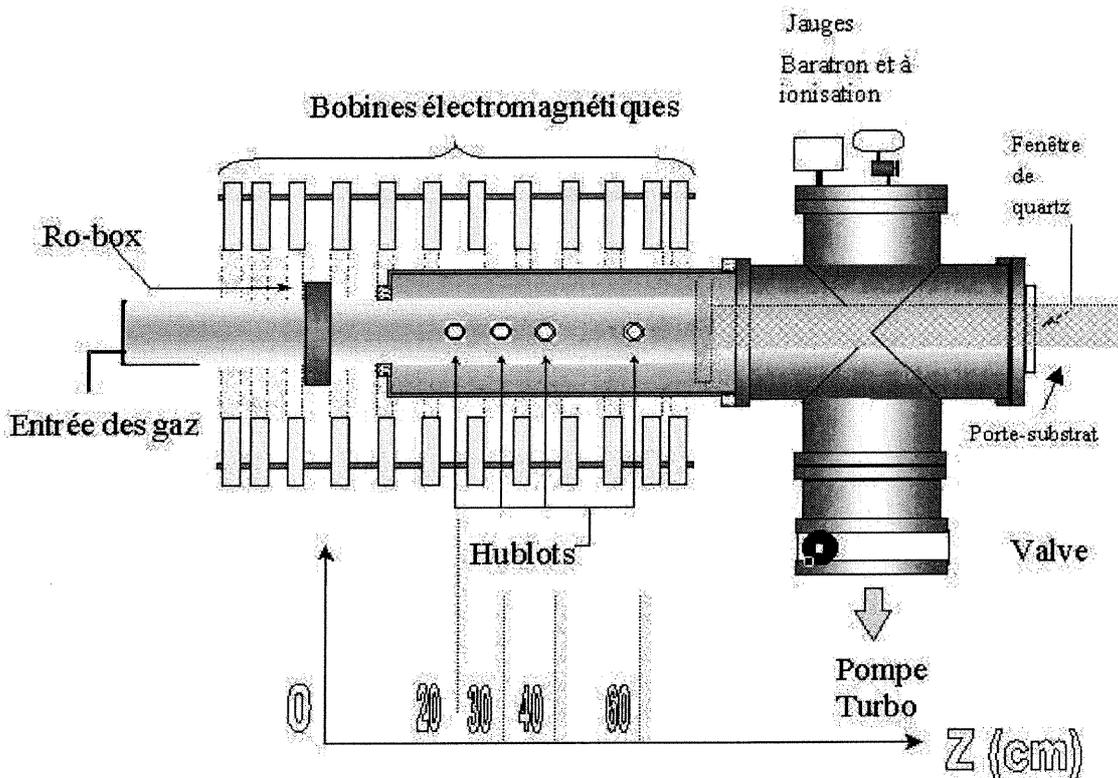
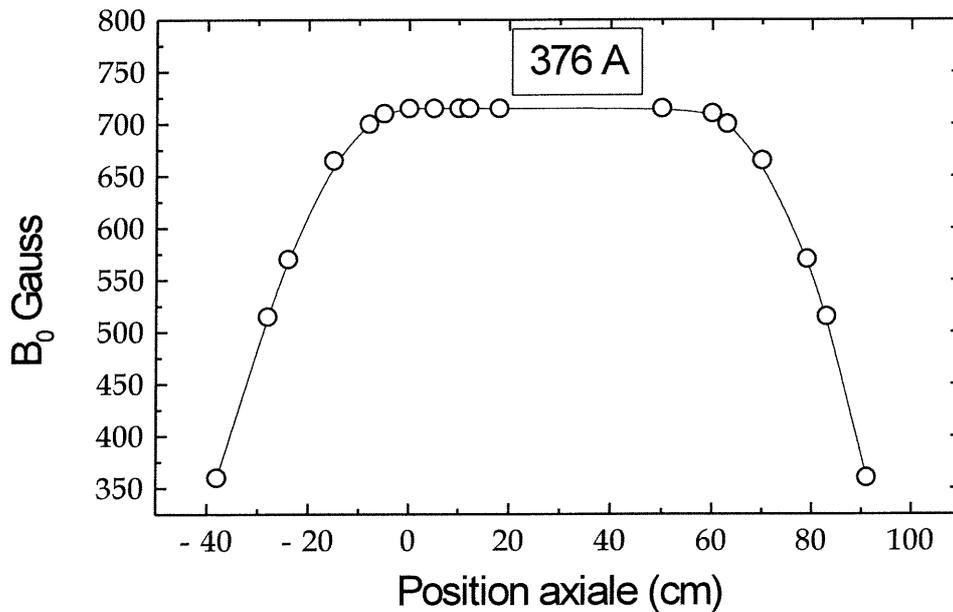


Figure I.5. Schéma illustrant l'ensemble du réacteur à plasma.

Dans les conditions normales d'expérience, la pression résiduelle dans le réacteur, mesurée à l'aide d'une jauge à ionisation, est de l'ordre de  $4.10^{-7}$  Torr.

Le champ magnétique est produit à l'aide d'un ensemble de douze bobines connectées en série. Les 12 bobines, d'une largeur de 5cm, sont séparées de 6cm, sauf pour celles se trouvant à chaque extrémité, ceci afin d'obtenir un champ magnétique uniforme sur la plus grande longueur possible. La distribution spatiale du champ magnétique a été mesurée à l'aide d'un gaussmètre couplé à une sonde axiale et elle est représentée à la Figure I..

Le courant circulant dans les bobines varie entre 0 et 700 Ampères. Toutefois, nous nous sommes limités à 500 A. Les bobines sont refroidies par une circulation d'eau.



**Figure I.6. Distribution axiale de l'intensité du champ magnétique. La position z est mesurée par rapport à l'interstice de lancement de l'excitateur d'onde de surface.**

Les gaz utilisés dans les expériences sont l'argon, le chlore, et des mélanges de gaz chlore/argon/xénon, tous de qualité "haute pureté". Le xénon et l'argon servent essentiellement d'actinomètre (cf paragraphe IV.) Leurs débits de gaz varient entre 0.3 et 20  $\text{cm}^3$  par minutes, ils sont mesurés et contrôlés par des débitmètres massiques. Les mélanges de gaz sont effectués quelques mètres avant leur entrée dans l'enceinte, à l'extrémité arrière du tube de silice fondue. Le plasma est créé dans un gaz en circulation continue. Compte

tenu de la forte capacité de pompage du système, il est nécessaire de fermer partiellement une vanne à plateau située au-dessus de la pompe turbomoléculaire pour régler la pression de travail au dessus de  $1.10^{-5}$  torr. La pression de travail est mesurée à l'aide d'une jauge à membrane capacitive baratron, située sur le dessus de la croix. Cette jauge permet de mesurer des pressions allant jusqu'à 1 torr.

Un excitateur à onde de surface, décrit dans le prochain paragraphe, est disposé autour du tube de silice fondue, à une distance de 10 cm avant la jonction avec la chambre métallique. A l'avant de l'excitateur est formé un interstice de lancement dont la position définit l'origine  $z=0$ , tel qu'indiqué sur la Figure I.. L'excitateur est alimenté en hautes fréquences (HF) par un signal fourni par un amplificateur pouvant délivrer jusqu'à 1 kW. Le générateur de puissance est muni d'un circulateur permettant de diriger toute la puissance réfléchiée vers une charge adaptée. En aval du circulateur, une ligne bidirectionnelle sert à prélever une fraction faible et calibrée (environ 52dB) des puissances incidentes  $P_I$  et réfléchies  $P_R$ . Ces faibles puissances sont ensuite lues à l'aide d'un bolomètre de précision. La puissance absorbée par le plasma  $P_A$  est alors définie comme la différence de  $P_I$  et  $P_R$ . Dans la plupart de nos expériences,  $P_A$  sera fixée à 250 W.

Afin d'observer et de caractériser le plasma, les deux extrémités du réacteur sont normalement fermées par des fenêtres de silice fondue épaisses de 1 cm et de 15 cm de diamètre. De plus, de chaque côté de l'enceinte métallique, nous disposons d'une série de quatre ouvertures circulaires (hublots) auxquelles nous pouvons assujettir soit une fenêtre de silice fondue d'un diamètre de 2.5 cm soit un autre outil de diagnostic tel qu'une sonde ou une antenne. Ces ouvertures sont situées à  $z=20, 30, 40, 60$  cm. L'étanchéité des jonctions est assurée par des assemblages appropriés de joints toriques et, dans certains cas, en faisant appel à un pompage différentiel (sonde de Langmuir, antenne acoustique).

Enfin, comme le montre la Figure I., nous disposons d'un porte-substrat utilisé soit dans le cadre des expériences de gravure, soit pour modifier la longueur du réacteur.

Ce porte-substrat est composé d'un tube de 1m30 de longueur terminé à l'avant par une plaque circulaire en inox d'un diamètre de 10 cm environ. Cette plaque est isolée électriquement du tube de sorte que, dans le plasma elle se fixe au potentiel flottant, à moins que l'on y applique une polarisation externe ou qu'elle ne soit mise à la masse. Nous n'avons utilisé ce porte-substrat que lors des études portant sur l'influence de la géométrie du réacteur.

### III.) Description de l'excitateur d'onde de surface

Dans notre cas, la fréquence a été fixée à 190 MHz. A cette fréquence, le seul excitateur à onde de surface d'encombrement acceptable est le Ro-Box, montré schématiquement sur la Figure I.

L'ensemble des excitateurs à onde de surface est décrit en détail dans la référence [15]. Le Ro-box (Figure I.) est constitué de deux cylindres métalliques concentriques qui forment une ligne coaxiale dont le diélectrique est l'air. A l'avant, une mince plaque métallique en contact avec le cylindre extérieur forme avec le cylindre intérieur un espace de quelques mm de longueur, l'interstice de lancement. Avec ce dispositif, il est possible de maintenir une différence de potentiel entre les deux cylindres de sorte que la longueur du Ro-box peut être réduite à des dimensions bien inférieures à  $\lambda_0/4$ , qui était la longueur nécessaire au fonctionnement du surfatron. La puissance HF est transmise au Ro-Box à l'aide d'un coupleur capacitif (formé à partir d'un câble coaxial semi-rigide terminé par une plaque) disposé transversalement à l'axe du Ro-Box. Le champ électrique ainsi créé dans la cavité coaxiale permet d'exciter l'onde de surface au niveau de l'interstice de lancement. Une ligne coaxiale terminée par un court-circuit (piston d'accord) à position variable est disposée en parallèle avec le coupleur afin d'effectuer l'ajustement d'impédance.

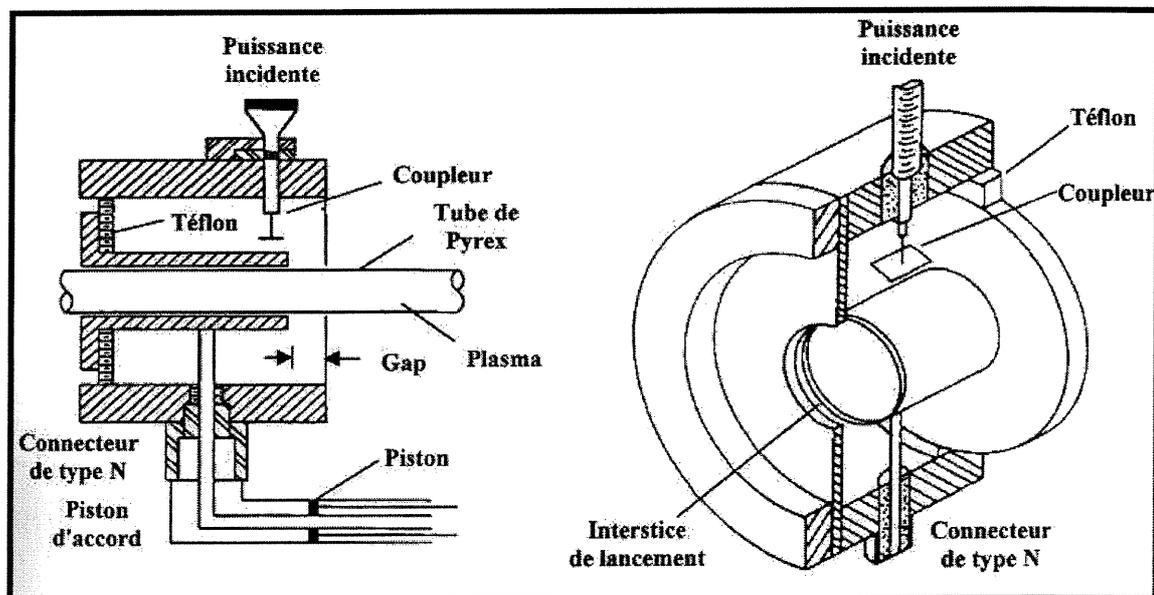


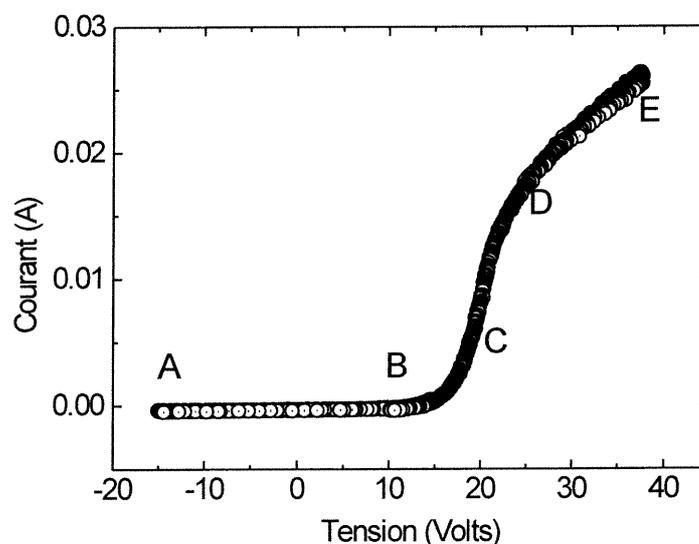
Figure I.7. Schéma du lanceur d'onde Ro-box.

## II.) Diagnostics du plasma

### I.) Méthode de sonde électrostatique

Dans sa forme la plus simple, la sonde de Langmuir consiste en un petit élément de métal inséré dans le plasma. La sonde est souvent utilisée comme diagnostic pour son apparente simplicité de construction et de mise en place. La technique consiste à appliquer une tension à la sonde par rapport au plasma. Le courant recueilli en fonction de la tension fournit des informations sur les caractéristiques du plasma. Ainsi, la caractéristique courant-tension peut être reliée aux paramètres plasmas tels que la température électronique, la densité électronique et ionique et le potentiel plasma. Les sondes ont montré leur efficacité dans des gammes de densités de  $10^4$  à  $10^{13}$   $\text{cm}^{-3}$ , de température électronique de 0.1 eV à quelques centaines d'eV, des potentiels plasmas de 0.1 V à quelques kilovolts, et pour des pressions aussi faibles que  $10^{-6}$  torr, et aussi élevées que l'atmosphère.

Pour simplifier, nous considérerons un plasma électropositif à basse pression. Le courant de la sonde consiste en général en un courant d'ions et d'électrons. La caractéristique de sonde a la forme présentée sur la Figure II.1.



**Figure II.1. Caractéristique de courant-tension d'une sonde électrostatique.**

Nous pouvons interpréter cette caractéristique de manière qualitative, lorsque le potentiel de la sonde par rapport au plasma est négatif, le champ électrique de charge d'espace entourant la sonde empêche les électrons les plus énergétiques de l'atteindre. Le courant est alors entièrement dû au courant ionique (section AB de la courbe). Cette partie de la courbe est appelée zone de saturation ionique. Lorsque le potentiel décroît en valeur absolue; les électrons ayant assez d'énergie pour vaincre la barrière de potentiel sont collectés et un courant négatif s'ajoute à celui des ions (zone BD dite de retardement électronique). Le potentiel pour lequel les courants ioniques et électroniques se compensent est appelé le potentiel flottant. Il s'agit du potentiel auquel se fixe spontanément une surface isolée en contact avec la paroi. Lorsque le potentiel appliqué à la sonde par rapport au plasma est nul (point D sur la Figure II.1), tous les électrons ont assez d'énergie pour être collectés. Le courant est dû aux électrons dont la trajectoire intercepte la surface de la sonde. Au delà de ce potentiel, les électrons sont accélérés par le potentiel de sonde: c'est la zone de saturation électronique.

Bien que l'obtention expérimentale d'une caractéristique de sonde soit relativement simple, l'analyse théorique l'est malheureusement moins. Il n'existe pas de méthode universelle d'analyse à cause de la diversité des conditions opératoires et de la forte dépendance du courant de sonde sur ces conditions.

Il existe une littérature importante portant sur les théories des sondes. De nombreux articles ou ouvrages résument ces travaux [16, 17, 18]. En grande majorité, les théories permettant d'interpréter des caractéristiques de sondes sont toujours représentatives de cas simples, ce qui correspond rarement à la réalité.

### 1) Relations entre le courant de sonde et les paramètres du plasma

Dans les plasmas à basse pression où la température des ions est très faible devant celle des électrons, le courant de sonde dépend essentiellement de la température électronique (à supposer bien sûr que la fonction de distribution en énergie des électrons soit maxwellienne) et de la densité des espèces chargées. Les autres facteurs pouvant affecter le courant sont la géométrie de la sonde, le libre parcours moyen des espèces, la présence ou non d'un champ magnétique, etc.. En fait, tout facteur de nature à influencer la structure de la gaine entourant la sonde doit être considéré dans la théorie de sonde à laquelle on a recourt. Enfin, le courant ionique est également influencé par la masse des ions collectés (ou par un ion "moyen" si plusieurs espèces ioniques sont présentes dans le plasma).

Dans un plasma à basse pression et non magnétisé, lorsque la fonction de distribution en énergie des électrons est maxwellienne, le courant électronique dans la région de retardement électronique est donnée par:

$$i_e = i_e^0 \exp(-V/T_e) \quad 3.$$

où  $T_e$  est la température électronique en eV et  $V$  le potentiel de la sonde par rapport au plasma. On voit donc que la pente de  $\ln i_e$  permet de déterminer  $T_e$ . Pour les mêmes conditions, il existe un très grand nombre de théories qui permettent de relier la densité des espèces chargées au courant dans la zone de saturation soit électronique soit ionique. Le choix de la théorie adéquate nécessite donc une certaine connaissance *a priori* des paramètres du plasma.

Outre la pression, la présence d'un champ magnétique est de nature à affecter de façon importante la collection de courant par la sonde, à cause du confinement dans la direction perpendiculaire aux lignes de champ magnétique, qui ralentit le mouvement transversal des électrons et les forces à effectuer un mouvement de giration autour des lignes de champ magnétiques. Dans les cas extrêmes, le courant électronique dans la zone de retardement peut même être affecté et s'écarter notablement de la relation (3), même si la distribution en énergie est maxwellienne. La distorsion du courant se traduit par un phénomène dit d'arrondissement du coude au voisinage du potentiel plasma. Il a cependant été montré que si le champ n'est pas trop intense, l'utilisation d'une sonde cylindrique orientée perpendiculairement aux lignes de champ de façon à ce qu'elle collecte les électrons diffusant axialement, permet de minimiser l'effet du champ magnétique [19,20]. Il n'en reste pas moins que, même dans ces conditions, le courant de saturation électronique demeure inexploitable et qu'il est donc préférable d'utiliser le courant de saturation ionique, les ions étant plus faiblement magnétisés que les électrons.

Dans un plasma de chlore, on peut s'attendre à une forte proportion d'ions négatifs. Bien que ceux-ci soient effectivement attirés par une sonde polarisée positivement par rapport au potentiel du plasma, leur contribution reste tout de même assez faible. En effet, à cause de leur masse élevée et de leur faible température, on peut s'attendre à ce que leur contribution soit faible devant celle des électrons, plus légers et rapides. Mais les ions négatifs peuvent

toutefois affecter la mesure de sonde, en modifiant la distribution du potentiel dans la gaine électrique de la sonde, et ainsi légèrement déformer la zone de retardement, ce qui affecte la détermination de la température électronique. Bien que dans nos conditions, les perturbations ne soient pas nécessairement importantes, nous considérerons tout de même que l'incertitude sur nos mesures de  $T_e$  est plus grande.

Enfin dans un plasma produit par des hautes fréquences, il peut y avoir une fluctuation importante du potentiel du plasma qui, en retour, affecte la caractéristique de sonde. En particulier, le potentiel flottant prend une valeur beaucoup plus négative qu'en l'absence de champ RF [21]. Pour réduire cet effet, on peut recourir à un système de compensation. La technique consiste à superposer à la tension de sonde, un signal alternatif à la même fréquence que celle utilisée pour créer le plasma en phase avec les fluctuations du potentiel [22, 23].

### 2) Montage expérimental et interprétation de la caractéristique de sonde

Le montage expérimental de la sonde est illustré sur la Figure II.1. La sonde est le prolongement d'un câble coaxial dont le conducteur interne est un fil de platine de 0.5mm de diamètre et le conducteur externe de l'acier inoxydable. Un cylindre d'alumine d'un diamètre interne ajusté au fil de platine isole électriquement celui-ci du conducteur externe. La partie à nu de la sonde, c'est-à-dire celle collectant le courant, a une longueur variable de 7 à 15 mm, de sorte que sa surface collectrice varie de 11 mm<sup>2</sup> à 24 mm<sup>2</sup>. La sonde est introduite dans l'enceinte métallique au travers d'un de ses hublots (Figure I.). Un ensemble de trois joints toriques permet d'assurer l'étanchéité durant le déplacement de la sonde. De plus, l'espace situé entre les joints est évacué par un pompage différentiel (assuré par la pompe mécanique) pour éviter toute introduction d'air dans le réacteur.

Le conducteur externe est en contact électrique avec l'enceinte métallique placée à la masse. La référence du potentiel électrique dans cette partie du réacteur est donc la paroi de l'enceinte métallique.

Le circuit électrique permettant la mesure du courant collecté par la sonde est représenté sur la Figure II.2. Le potentiel appliqué à la sonde est varié de façon continue en superposant un signal sinusoïdal  $V_{AC}$  d'une fréquence de 0.5 ou 0.7 Hz à un signal continu  $V_{DC}$ . Le signal sinusoïdal variant de +/- 15 volts, le système permet de couvrir une plage allant de -50V à +50V. Le courant est déterminé en mesurant la chute de potentiel aux bornes

d'une résistance calibrée et variable ( entre 0 et  $100000\Omega$ ) insérée dans le circuit. Enfin, un système d'acquisition par ordinateur, isolé du circuit de sonde au moyen d'amplificateurs d'isolation, enregistre les tensions proportionnelles au potentiel de sonde et au courant collecté.

Afin d'assurer des mesures fiables, la sonde était périodiquement nettoyée, notamment après un contact avec l'air, en la portant dans le plasma à un potentiel très positif pour collecter un fort courant d'électrons, ce qui par chauffage permet son nettoyage. De plus, une vérification périodique de sa surface était aussi faite afin de vérifier la présence de dépôts métalliques pouvant augmenter la surface de collection de la sonde et donc fausser la mesure de la densité ionique.

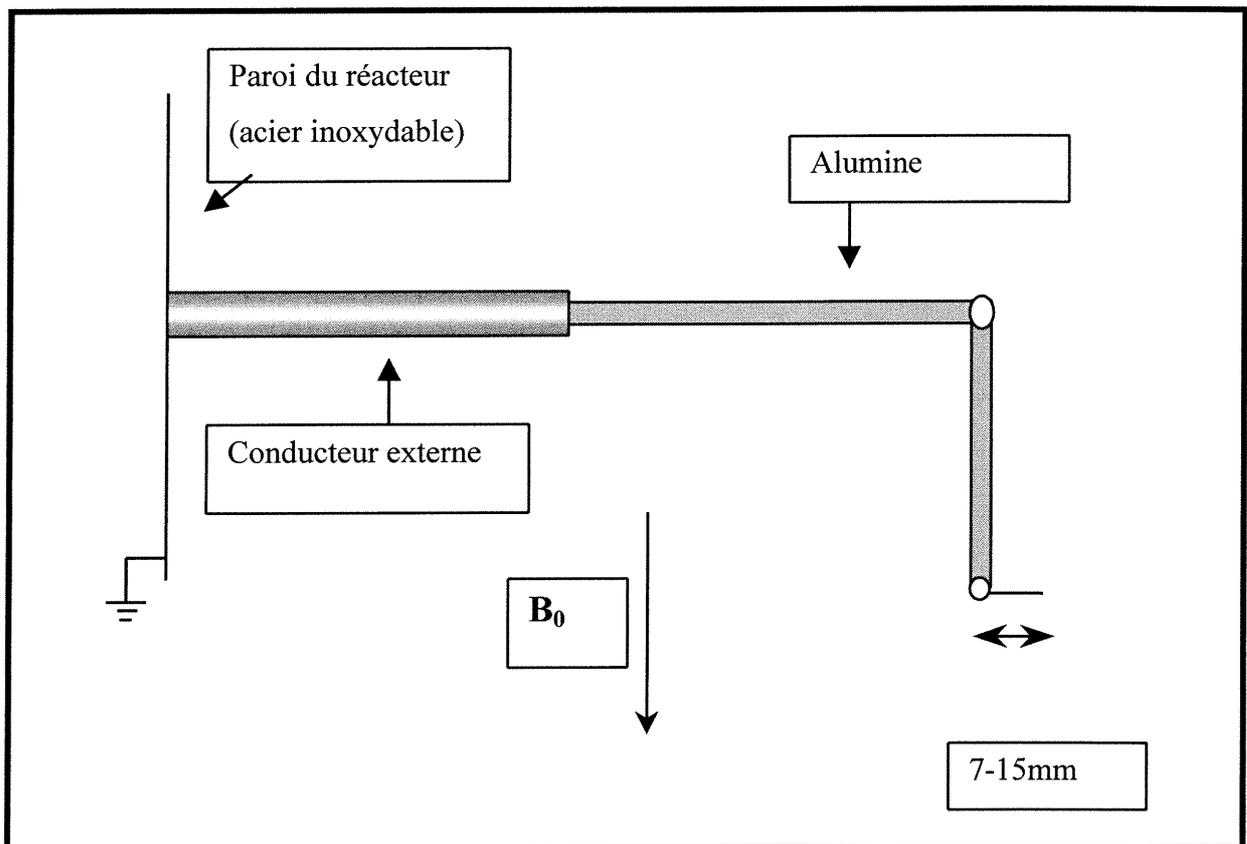


Figure II.1. Schéma de la sonde électrostatique.

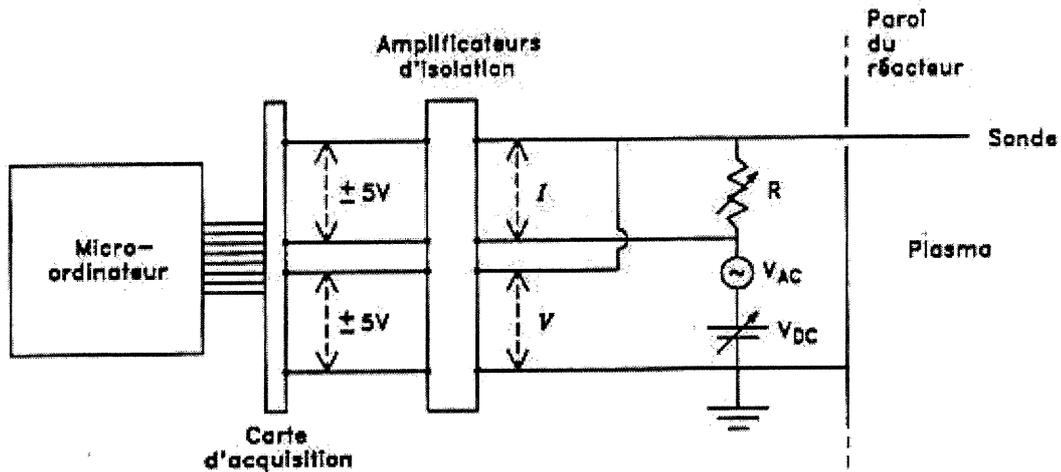


Figure II.2. Schéma du circuit permettant la mesure du courant collecté par la sonde.

Le système de compensation utilisé pour réduire les effets de fluctuation RF est représenté sur la Figure II.3. La phase du signal RF est ajustée avec un déphaseur de façon à obtenir un potentiel flottant le plus positif possible., afin de contrer la diminution du aux fluctuations RF.

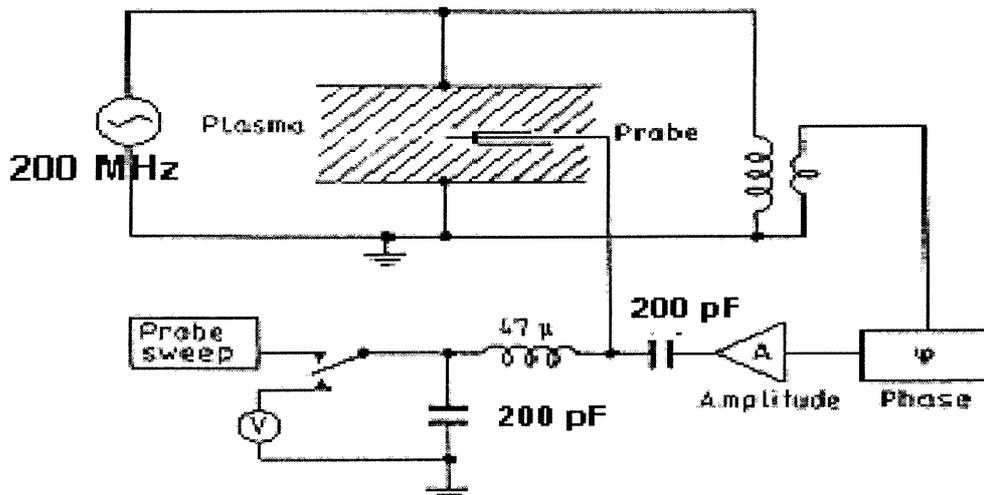


Figure II.3. Montage électrique pour la compensation RF [23].

Tel que mentionné plus haut, pour minimiser les effets du champ magnétique, nous avons disposé la sonde perpendiculairement aux lignes de champ magnétique. Dans ces conditions,

nous avons observé que le logarithme du courant électronique présentait une assez bonne linéarité en fonction de la tension. En particulier, le coude de la caractéristique est assez bien défini et on peut déterminer une température électronique assez fiable à partir du courant.

Par ailleurs, puisque les ions sont faiblement magnétisés, la densité ionique a été déterminée à partir du courant de saturation ionique en utilisant la théorie de Allen, Boyd et Reynolds [24]. Puisque le gaz plasmagène est du chlore, deux types d'ions sont *a priori* possibles;  $Cl^+$  et  $Cl^{2+}$ . Toutefois, comme nous le verrons ultérieurement, dans nos conditions expérimentales, c'est l'ion  $Cl^+$  qui devrait être majoritaire.

Un programme informatique permet le dépouillement complet de la courbe de sonde en introduisant la masse désirée (dans notre cas 35.5 uma) et les dimensions de la sonde.

### 3) Détermination de la fonction de distribution en énergie des électrons

Nous avons vu plus tôt que lorsque le potentiel appliqué à la sonde augmente, la différence  $V=V_s-V_p$  diminue et les électrons du plasma d'énergie suffisamment grande ( $E > eV$ ) sont collectés. Pour le calcul du courant électronique recueilli par la sonde, considérons la fonction de distribution en vitesse des électrons dans le plasma  $f(v)$ . Parmi ceux-ci, seuls les électrons dont la composante normale de la vitesse  $v$  à la frontière de la gaine est supérieur à  $(-2eV_p/m_e)^{1/2}$  atteignent la sonde.

En considérant la zone de retardement de la caractéristique, nous avons l'expression du courant électronique sur toute la surface de la sonde définie par [18]:

$$I_e = -A_s \frac{2e\pi}{m_e^2} \int_{-eV_p}^{\infty} f(E)(E + eV_p) dE \quad 4.$$

avec  $e$  la charge de l'électron,  $A_s$  la surface de la sonde,  $m_e$  la masse de l'électron et  $V_p$  la potentiel du plasma.

On obtient alors en dérivant deux fois selon  $V_p$  :

$$\frac{d^2 I_e}{d^2 V_p} = -A_s 2e\pi \left( \frac{e}{m_e} \right)^2 [f(E)]_{E=-eV_p} \quad \text{pour } V_p < 0 \quad 5.$$

La relation (5) montre qu'à partir de la dérivée seconde du courant électronique, on peut remonter à la fonction de distribution en vitesse des électrons, soit:

$$[f(E)]_{E=-eV_p} = \frac{-1}{A_s 2e\pi} \left( \frac{m_e}{e} \right)^2 \frac{d^2 I_e}{d^2 V_p} \quad \text{pour } V_p < 0 \quad 6.$$

La fonction de distribution en énergie  $f_1$ , se déduit de  $f$  par la relation suivante:

$$f_1(E)dE = 4\pi c^2 f(E)dc \quad 7.$$

où  $f_1(E)dE$  est le nombre d'électrons par unité de volume dans la gamme d'énergie  $E$  comprise entre  $E$  et  $E+dE$  et  $c$ , le module de la vitesse.

Ainsi,

$$[f_1(E)]_{E=-eV_p} = -\frac{4}{A_s e^2} \left( \frac{-m_e V_p}{2e} \right)^{1/2} \frac{d^2 I_e}{d^2 V_p} \quad \text{pour } V_p < 0 \quad 8.$$

Par la suite, nous étudierons les fonctions de distribution en énergie des électrons normalisées pour différents types de gaz et dans différentes conditions expérimentales. Mais il est avant tout nécessaire de préciser la méthode utilisée pour obtenir la dérivée seconde du courant électronique collecté par la sonde.

*Méthode d'obtention de la dérivée seconde:*

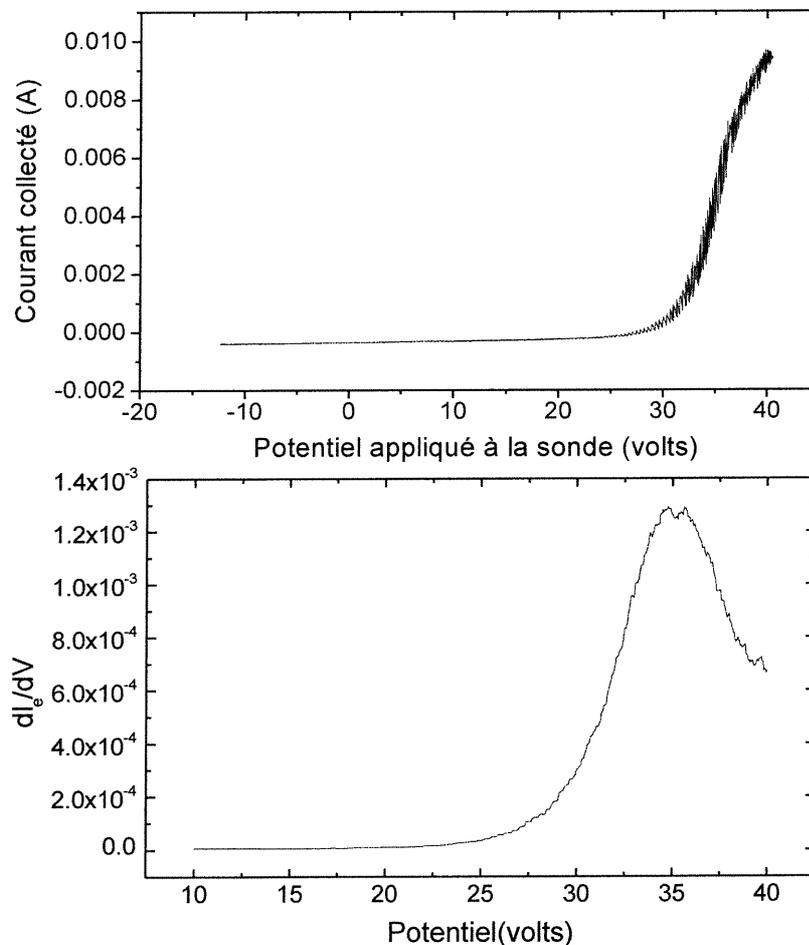
Il est important de remarquer que dans la région de retardement, le changement dans le courant électronique lié au changement du potentiel de la sonde est plus important que le changement correspondant dans le courant ionique, même pour des potentiels très négatifs. C'est pourquoi, on peut considérer que la dérivée seconde du courant électronique, dans cette zone de la caractéristique, est plus grande que celle du courant ionique, c'est-à-dire que la dérivée seconde du courant du circuit de sonde est égale à celle du courant électronique. Bien sûr, si l'on veut obtenir plus d'informations sur les électrons les plus énergétiques, il sera nécessaire de pousser la différentiation pour des valeurs plus négatives du potentiel de la

sonde, ce qui implique alors de tenir compte de l'influence du courant d'ions positifs. Nous ne considérerons par la suite que l'étude des électrons de moyenne énergie, en considérant que nous avons une forte incertitude sur la population électronique de haute énergie.

La méthode que nous avons retenue est une méthode graphique, pour sa simplicité. Pour cela, nous avons utilisé le logiciel graphique Origin.

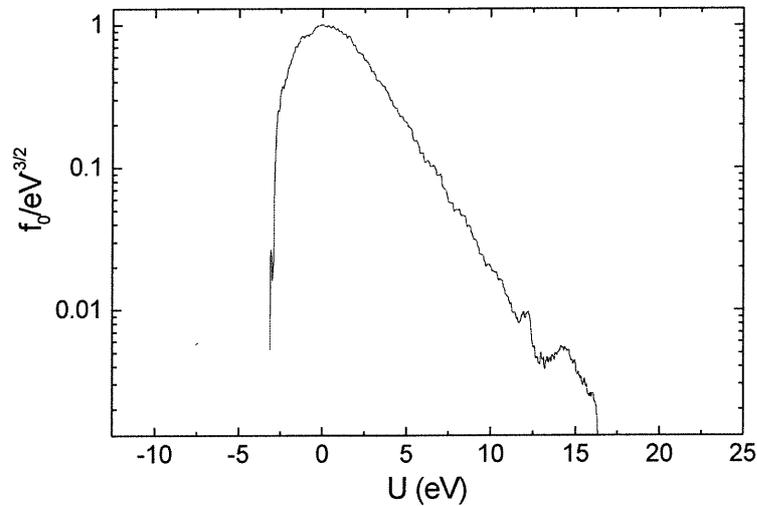
Tout d'abord, nous traçons la caractéristique de sonde  $I=f(V)$  dont un exemple est donné sur la Figure II.1. A partir de cette courbe, nous calculons graphiquement la première dérivée et appliquons un lissage de type "adjacent averaging" afin de réduire le bruit (Figure II.1). Dans cette technique de lissage utilisée la valeur lissée d'index  $i$  est la moyenne des points dans

l'intervalle  $\left[ i - \frac{(n-1)}{2}, i + \frac{(n+1)}{2} \right]$ , "n" étant le taux de lissage.



**Figure II.1. Caractéristique de sonde  $I=f(V)$  et sa première dérivée  $dl/dV$ .**

A partir de cette première dérivée, nous calculons la deuxième dérivée qui, après un nouveau lissage et normalisation de la courbe, conduit à la fonction de distribution en énergie des électrons normalisée présentée sur la Figure II.2.



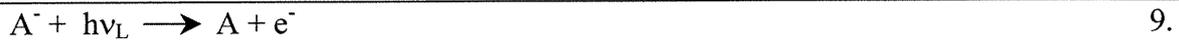
**Figure II.2. Fonction de distribution en énergie des électrons, normalisée pour un plasma de chlore à 1mTorr et en absence de champ magnétique.**

Nous présentons à l'annexe A, les résultats obtenus pour l'argon et le chlore à une pression de 1 mtorr et trois intensités du champ magnétique.

## II.) Photodétachement par laser

### 1) Principe de la méthode de photodétachement

On définit l'énergie d'ionisation d'un ion négatif comme étant l'affinité électronique  $E_a$  de l'atome. Si une particule d'énergie supérieure à  $E_a$  est incidente sur l'ion négatif (suivant la section efficace de détachement de cet ion), un électron pourra être détaché. Un photon possédant une telle énergie ( $h\nu_L$ ) peut jouer ce rôle, soit la réaction de photodétachement



( $h$  est la constante de Planck et  $\nu_L$  la fréquence de la radiation). Ainsi l'augmentation de la densité électronique ou de la concentration d'atome  $A$ , à l'endroit où se produit le photodétachement constitue une mesure de la densité locale d'ions négatifs. C'est sur ce principe que s'appuie le diagnostic de photodétachement. A cet égard, l'outil idéal est bien sûr un laser à cause de sa monochromaticité, de sa très bonne résolution spatiale et de sa grande densité d'énergie. La détection des électrons photodétachés peut se faire par diverses méthodes: la sonde électrostatique [25], la spectroscopie d'absorption[26], l'interférométrie micro-onde[27] et la spectroscopie d'émission dans des cas particuliers[28].

Si la densité d'énergie du laser est assez grande, presque tous les ions négatifs à l'intérieur de la zone d'interaction disparaissent suite au photodétachement. A des énergies plus faibles, la densité d'ions négatifs détruits ( $\Delta n_-$ ) par rapport à la densité initiale de ces ions ( $n_-$ ), suit la relation:

$$\frac{\Delta n_-}{n_-} = 1 - \exp\left(-\frac{E_L \sigma_p}{S_L h\nu_L}\right) \quad 10.$$

où  $E_L$  est l'énergie totale du faisceau laser,  $S_L$  l'aire du faisceau laser, et  $\sigma_p$  est la section efficace de photodétachement pour des photons incidents d'énergie  $h\nu_L$ .

Pour  $h\nu_L$  et  $\sigma_p$  fixes, on voit d'après l'équation (10) qu'à partir de valeurs de  $E_L/S_L$  suffisamment grandes, on aura détaché tous les électrons excédentaires. C'est pour cela qu'un test préalable à l'utilisation de la technique de photodétachement sera de vérifier que la densité

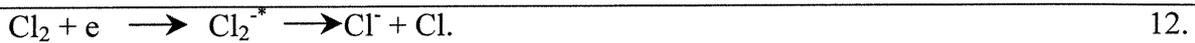
d'énergie  $E_L/S_L$  est telle que tous les ions négatifs présents dans la section du faisceau laser seront photodétachés.

Dans notre cas, nous avons choisi de détecter l'excès d'électrons à l'aide d'une sonde électrostatique plane, polarisée positivement par rapport au potentiel du plasma afin d'obtenir un régime de saturation électronique. Ainsi, l'augmentation de densité électronique qui suit le photodétachement est proportionnelle à l'augmentation du courant collecté par la sonde. Si  $I_e$  est le courant d'électrons en régime stationnaire (avant le photodétachement) et  $\Delta I_e$  le courant supplémentaire dû au photodétachement, on obtient alors directement le rapport de la densité d'ions négatifs sur la densité électronique par la relation:

$$\frac{n_-}{n_e} = \frac{\Delta I_e}{I_e} \quad 11.$$

La source de photons est fournie par un laser à excimère (XeCl) fonctionnant à 308 nm.

Dans un plasma de chlore, il n'y a qu'une espèce d'ions négatifs dominantes, l'ion atomique  $\text{Cl}^-$ . En effet, l'ion moléculaire est instable, ce qui crée par attachement dissociatif l'ion atomique:

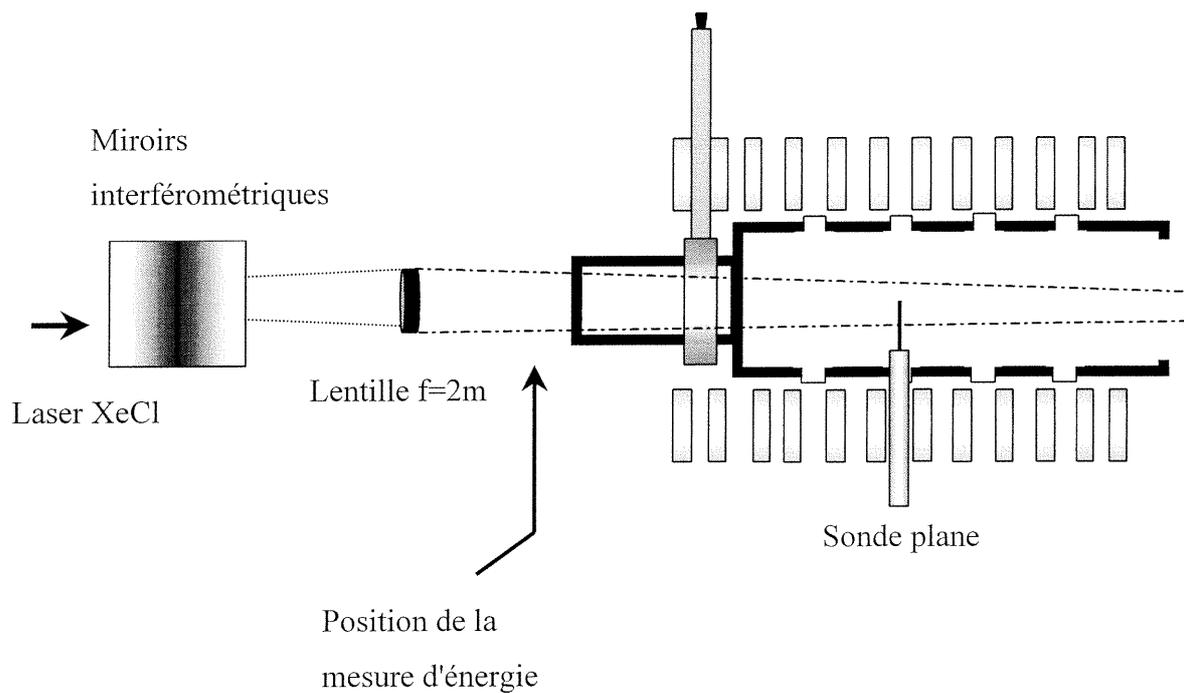


Notre but étant de mesurer la densité totale des ions négatifs, nous devons veiller à ce que l'énergie des photons provoquant le photodétachement soit supérieure au seuil de photodétachement de l'espèce considérée. Dans le cas du plasma de chlore, l'affinité électronique du chlore atomique est de 3.617 eV [<sup>29</sup>], cela correspond donc à un seuil de photodétachement de 343 nm. Il est donc nécessaire d'utiliser un laser de longueur d'onde inférieure à 343 nm.

## 2) Description du montage expérimental

Nous avons représenté sur la Figure II.7 le montage expérimental utilisé pour le photodétachement.

La source de photons est fournie par un laser à excimère de marque Lumonix dont la longueur d'onde de fonctionnement est de 308 nm et la durée d'impulsion de 10 ns. La forme du faisceau est rectangulaire, d'une dimension de 1 x 3 cm à la sortie du laser. Malgré l'optique interne du laser, nous avons noté une divergence assez importante du faisceau au long de son parcours; les spécifications du manufacturier pour la divergence sont de 1 x 3 mrad.



**Figure II.7. Schéma global du montage expérimental servant au diagnostic de photodétachement.**

Le faisceau est acheminé vers l'enceinte à l'aide de trois miroirs interférentiels. Avant l'entrée dans le réacteur par une fenêtre de silice fondue, le faisceau est collecté par une lentille, également en silice fondue, dont la longueur focale est de 2m et le diamètre de 5cm environ. Ceci nous permet de concentrer l'énergie du laser en la focalisant quelques centimètres en arrière de la sonde électrostatique. La distance entre la sonde et le point focal représente la distance de défocalisation  $D_L$ . Elle peut être variée afin de changer la densité d'énergie au

voisinage de la sonde. On évite de focaliser le faisceau sur la sonde afin de ne pas graver celle-ci.

Nous mesurons d'autre part l'énergie du laser, à l'aide d'un joulemètre avant l'entrée du réacteur. En considérant que la fenêtre de silice fondue réfléchit environ 10% de l'énergie, nous pouvons ainsi déterminer l'énergie laser  $E_L$  au niveau de la sonde. Dans les expériences de validation, nous ferons varier  $D_L$  entre 10 et 50cm et  $E_L$  entre 10 et 100mJ par impulsion.

### *La sonde plane*

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe I.) (sonde de Langmuir), la présence d'un champ magnétique perturbe de manière significative la caractéristique de sonde électrostatique, interdisant ainsi l'utilisation de la partie électronique de cette caractéristique pour la mesure de la densité électronique. On peut alors légitimement se demander si l'utilisation de la sonde électrostatique pour la mesure de l'excès d'électrons dû au photodétachement est valable. Toutefois, comme nous l'avons précisé précédemment, puisque nous devons seulement mesurer le rapport  $\Delta n_e/n_e$  et qu'on peut supposer que le facteur de réduction du courant électronique dû au champ magnétique est le même pour le courant électronique stationnaire et celui résultant du photodétachement, la mesure du rapport  $\Delta I_e/I_e$  est une bonne estimation de  $\Delta n_e/n_e$ .

De plus, l'anisotropie du plasma, complique le problème de la réponse de la sonde au photodétachement. En effet, la réponse de la sonde diffère selon l'orientation de la surface collectrice par rapport au champ magnétique. Pour limiter ce problème d'anisotropie, nous avons utilisé une sonde plane dont la surface est perpendiculaire aux lignes de champ magnétiques. La sonde plane est formée d'un disque de platine de 3mm de diamètre soudé à une tige de tungstène de 0.5mm de diamètre (Figure II.2). La tige de tungstène est recouverte (jusqu'au disque de platine) d'un mince tube d'alumine, et l'arrière ainsi que les côtés du disque de platine sont recouverts d'une colle étanche au vide afin que seule la face avant du disque soit exposée au bombardement électronique. Le tube d'alumine est lui-même entouré d'un tube métallique servant de conducteur externe et relié au bâti du réacteur.

La Figure II.3, montre schématiquement le faisceau laser au voisinage de la sonde plane. On peut noter que l'ombre portée de la sonde permet d'estimer le paramètre  $S_L$ , l'aire du faisceau laser, près de la sonde. Pour cela, on compare le diamètre du faisceau loin derrière la

sonde (dans notre cas à la sortie de notre réacteur) au diamètre de l'ombre de la sonde (correspondant au disque de platine de 3mm).

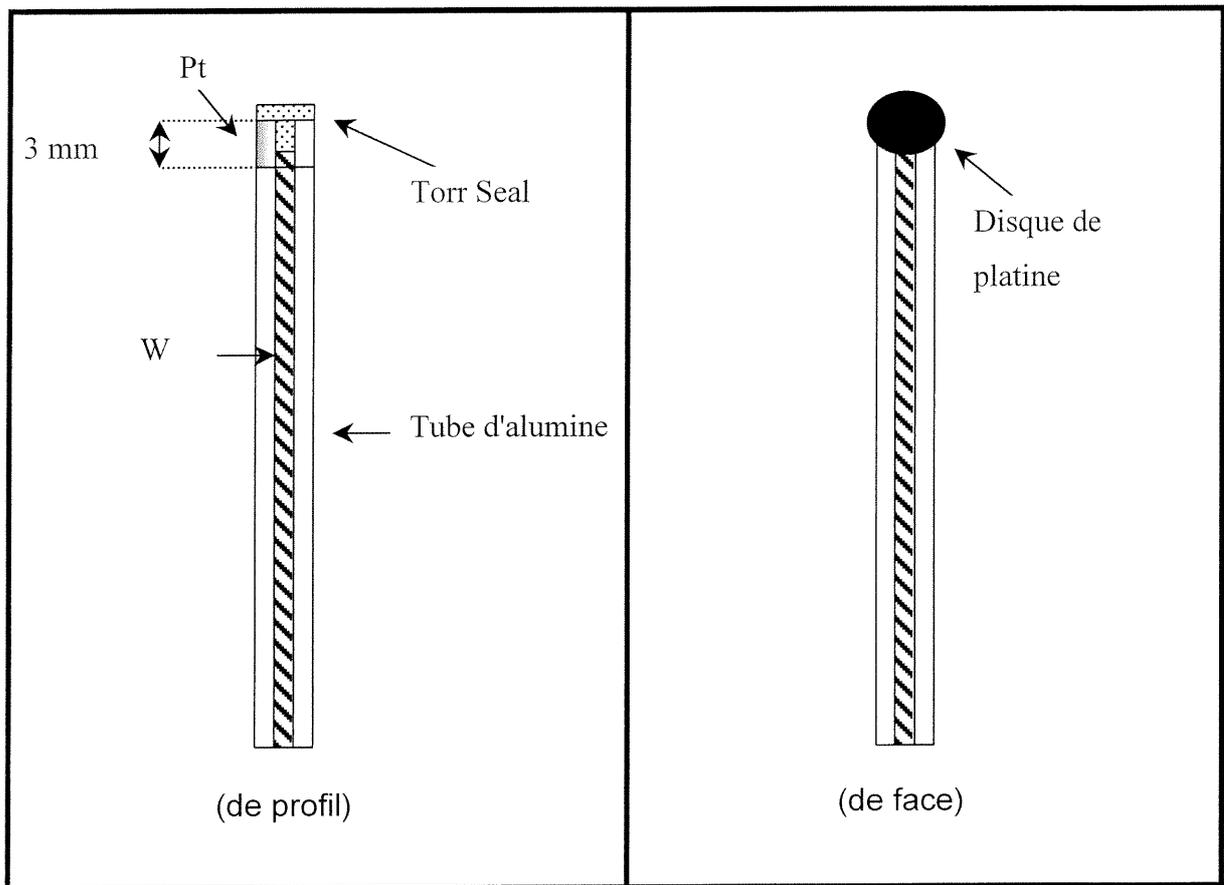


Figure II.8. Schéma de la sonde plane.

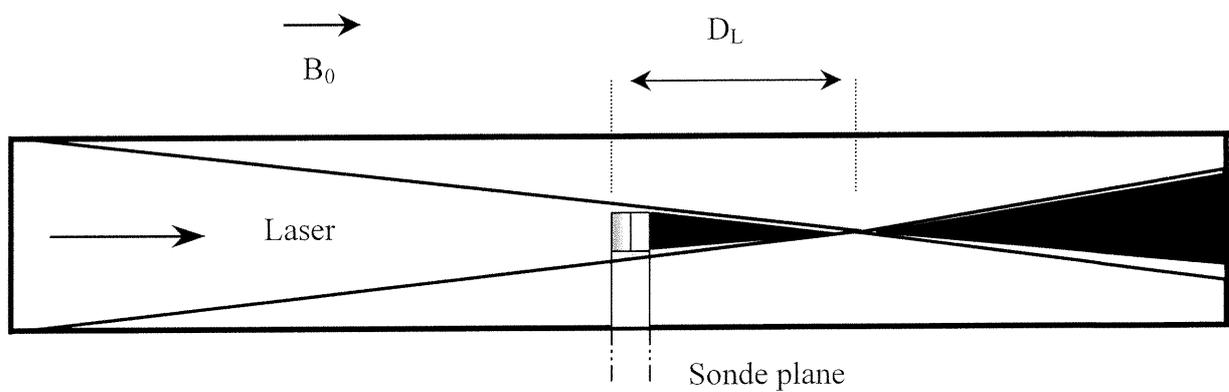


Figure II.9. Positionnement de la sonde dans le faisceau laser.

Selon la littérature scientifique, on sait que la réponse au phénomène de photodétachement, ne dure que quelques microsecondes. Le circuit électrique conduisant le courant collecté par la sonde doit donc avoir un temps de réponse rapide. Comme nous ne sommes pas intéressés par une caractéristique de sonde complète, nous pouvons construire un circuit où une tension fixe est appliquée à la sonde. Afin que le temps de réponse du circuit soit le plus court possible, nous avons veillé à éliminer le plus possible les éléments inductifs ou capacitifs. Pour cela, nous avons utilisé comme source de polarisation de la sonde de simples piles connectées en série, de façon à obtenir des multiples de 9V. Le potentiel appliqué à la sonde est de l'ordre de 27 volts (trois piles connectées en série). De plus, nous avons réduit au minimum la longueur du câble coaxial reliant la sonde au circuit. Le courant collecté, quant à lui, est mesuré aux bornes d'une résistance calibrée de 100 ou 200  $\Omega$ , disposée en série avec la source de tension.

Une représentation du circuit électrique est donnée sur la Figure II.10, où nous montrons également comment est traité le signal collecté à la sonde.

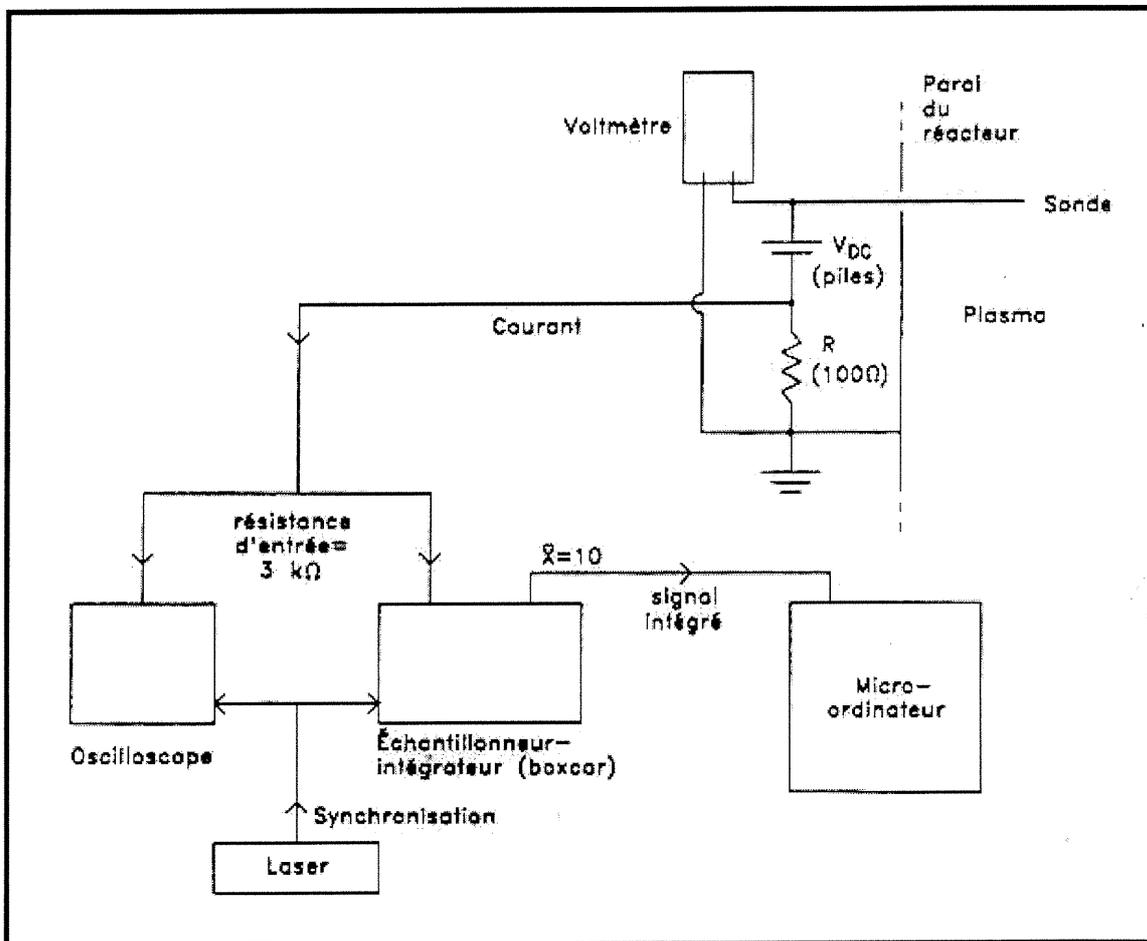


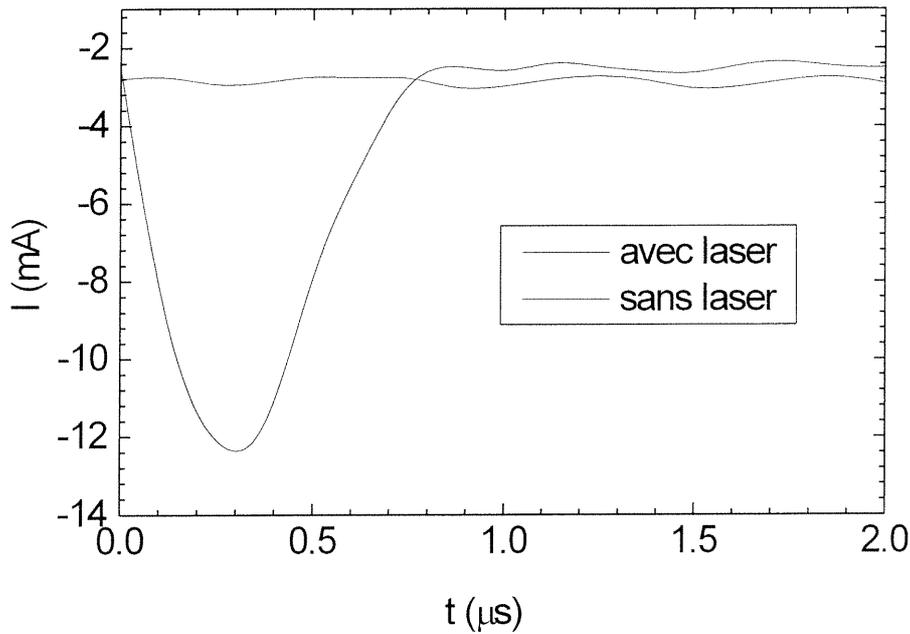
Figure II.10. Schéma du circuit permettant la mesure et le traitement du courant collecté par la sonde électrostatique lors du photodétachement induit par laser.

Comme nous l'indique ce schéma, la tension mesurée aux bornes de la résistance calibrée est envoyée aux bornes d'un "échantillonneur-intégrateur" (communément appelé Boxcar), ainsi qu'à l'entrée d'un oscilloscope synchronisé avec un signal électrique provenant du laser. La résistance d'entrée de ces appareils doit être suffisamment grande afin de pouvoir mesurer correctement notre signal, de sorte que nous avons choisi des résistances de  $3k\Omega$  pour ne pas modifier le courant dans le circuit de sonde. Le boxcar permet de mesurer le signal à l'intérieur d'une porte temporelle de 10 ns qui peut être déplacée de manière continue par rapport au signal de synchronisation. Afin de réduire le bruit statistique, le signal est moyenné sur 30 impulsions laser. La lecture est effectuée sur l'afficheur digital du Boxcar.

### 3) Test de validité du diagnostic

#### a) Authenticité du phénomène de photodétachement

Avant tout, nous avons vérifié que le signal mesuré était bien dû au phénomène de photodétachement. Pour cela, nous avons effectué quelques tests simples afin de nous en assurer. Tout d'abord, un premier test impliquait un plasma d'argon pur. Dans ce cas, aucun courant n'a été collecté par la sonde, ce qui nous permet d'affirmer qu'il n'y a pas de phénomène photoélectrique impliquant le matériau de la sonde. Le deuxième test a consisté à mener la même expérience dans du chlore neutre (c'est à dire sans puissance micro-onde injectée). L'absence de signal collecté nous permet de conclure qu'il n'y a pas de phénomène de photoionisation du chlore neutre (Figure II.1). A la lumière de ces deux tests, nous pouvons donc raisonnablement considérer que le signal observé dans un plasma de chlore est bien dû au seul phénomène de photodétachement, du moins en deçà d'un certain seuil de densité d'énergie comme nous le verrons plus tard.

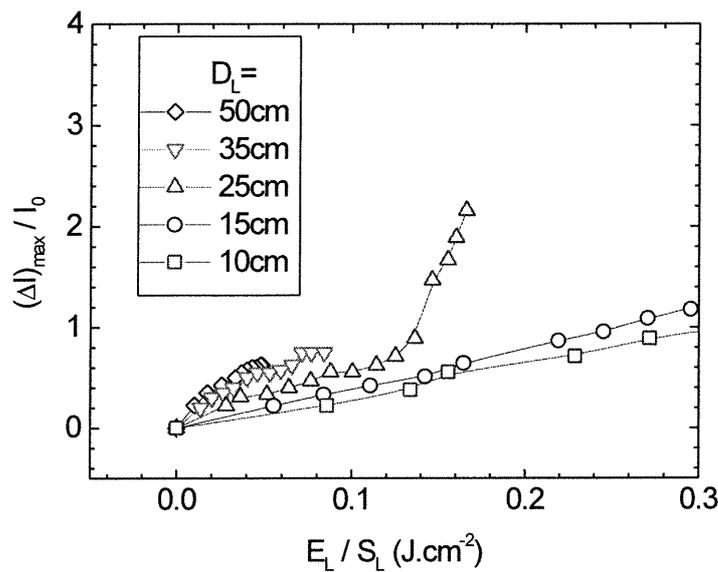


**Figure II.11. Courant de saturation électronique collecté par une sonde plane.**

### b) Influence de la densité d'énergie du laser

Afin de nous placer dans des conditions opératoires optimales pour l'observation du phénomène de photodétachement, nous avons procédé à une série de mesures de signaux de photodétachement en fonction des paramètres  $E_L$  et  $D_L$  pour deux pressions de gaz (0.1 et 1 mTorr). L'étude de l'effet de la défocalisation est importante car cette dernière détermine l'aire  $S_L$  du faisceau du laser et nous permet donc de déterminer la densité d'énergie  $E_L/S_L$  au voisinage de la sonde.

Nous présentons sur la Figure II.12 la valeur maximale du courant attribué aux électrons photodétachés  $\Delta I_e$  divisée par le courant à l'état stationnaire  $I_0$  en fonction de la densité d'énergie  $E_L/S_L$  du laser, pour plusieurs valeurs de  $D_L$ . Notons que  $\Delta I_e$  est la différence entre la valeur maximale du courant attribué aux électrons photodétachés et le courant mesuré  $I_0$  en l'absence du faisceau laser.



**Figure II.1. Rapport du courant maximal attribuable aux électrons photodétachés sur le courant stationnaire en fonction de la densité d'énergie de l'impulsion du laser pour un plasma de chlore à une pression de 0.1 mtorr et un champ magnétique d'intensité 800 gauss.**

Pour estimer la surface du faisceau laser à l'endroit de la sonde, nous avons fait un calcul d'optique géométrique, où l'on tient compte du diamètre de la lentille, de sa longueur focale, de la divergence du faisceau laser et de la défocalisation  $D_L$ . Pour  $D_L = 10, 15, 25, 35, 50$  cm, on trouve  $S_L = 0.15, 0.25, 0.50, 1.0, 1.5 \text{ cm}^2$  respectivement. Ces valeurs sont voisines de la superficie estimée (15% d'erreur environ) en comparant le diamètre du faisceau à la sortie du réacteur avec le diamètre de l'ombre formée par la sonde.

La Figure II.1 montre que  $\Delta I_e / I_0$  croît avec la densité d'énergie, quelle que soit la valeur de  $D_L$ . Pour des valeurs de  $D_L$  de 10 et 15 cm, on observe une augmentation constante de ce rapport. Pour  $D_L = 25, 35$  et 50 cm, les points se regroupent quasiment autour de la même courbe, et nous remarquons pour  $D_L = 25$  cm, l'existence d'un plateau pour le rapport de courant puis d'une augmentation de celui-ci pour des valeurs de la densité d'énergie supérieures à  $0.12 \text{ J.cm}^{-2}$ , qui pourrait être attribuable à un phénomène de photoionisation des espèces neutres du plasma. La Figure II.1 permet donc de définir les conditions opératoires

pour l'observation du phénomène de photodétachement. Une énergie de  $0.1 \text{ J.cm}^2$  est suffisante pour détruire tous les ions négatifs dans le volume de collection de la sonde plane.

Puisque  $\Delta I_e/I_0$  est égale à  $\Delta n_-/n_e$ , la Figure II.1 donne l'évolution du rapport des ions négatifs détachés par rapport la densité électronique.

En multipliant l'équation (10) par  $n_-/n_e$ , on obtient

$$\frac{\Delta n_-}{n_e} = \frac{n_-}{n_e} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{E_L \sigma_p}{S_L h\nu_L}\right) \right] \quad 13.$$

Nous avons effectué un lissage des courbes, qui d'après nous, sont les plus représentatives du phénomène de photodétachement, soit les courbes correspondant à des valeurs de  $D_L$  de 25, 35, et 50cm, ) à l'aide d'une fonction de la forme de l'équation (13). Le meilleur ajustement conduit à  $n_-/n_e = 0.73 \pm 0.06$  et  $\frac{\sigma_p}{h\nu_L} = 24.51 \pm 5.85 \text{ J}^{-1}.\text{cm}^2$ . Connaissant  $h\nu_L$ , on trouve alors, comme valeur expérimentale de la section efficace de photodétachement:

$$\sigma_p = 1.58 \pm 0.3 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$$

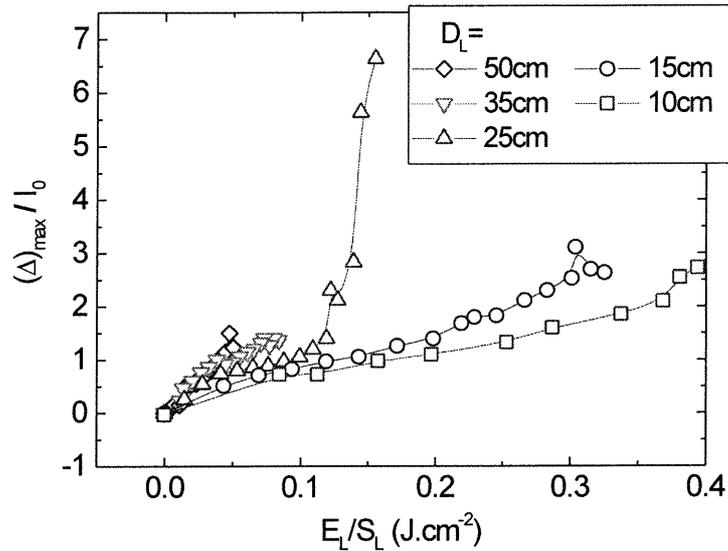
Le Tableau 1 compare cette valeur à celles recensées dans la littérature:

Cl <sub>2</sub>	Présente expérience	Clodius et al(1976)	Wang et Lee(1988)	Mandl(1976)	Robinson et Geltman(1967)
$\sigma_p \text{ (cm}^2\text{)}$	$1.58 \cdot 10^{-17}$	$1.6 \cdot 10^{-17}$	$1.0 \cdot 10^{-17}$	$1.4 \cdot 10^{-17}$	$1.7 \cdot 10^{-17}$

**Tableau 1 . Sections efficaces de photodétachement.**

Comme on peut le constater, l'accord est plutôt satisfaisant.

Nous avons également effectué des tests pour une pression de Cl<sub>2</sub> de 1 mtorr. Nous présentons dans la **Figure II.2**, la variation du rapport du courant maximal dû aux électrons photodétachés sur le courant à l'état stationnaire, en fonction de la densité d'énergie de l'impulsion du laser.



**Figure II.2 .Rapport du courant attribuable aux électrons photodétachés sur le courant à l'état stationnaire, en fonction de la densité d'énergie de l'impulsion du laser pour une pression de 1 mtorr et un champ magnétique de 800 gauss.**

Nous pouvons constater sur la **Figure II.2**, le même comportement du rapport de courant qu'à 0.1 mtorr. Le lissage des points expérimentaux avec une fonction de la forme de l'équation (13) conduit à:  $n/n_e = 1.21 \pm 0.06$ .

$$\sigma_p = 2.25 \pm 0.4 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2.$$

Nous pouvons constater que  $n/n_e$  est plus important qu'à 0.1 mtorr. Quand à la section efficace de photodétachement, elle concorde tout de même en tenant compte des incertitudes de mesures, avec celle déterminée à 0.1 mtorr.

En conclusion, l'ensemble des expériences nous a permis de définir les conditions opératoires pour l'observation optimum du phénomène de photodétachement, grâce à la vérification de son authenticité, entre autres par le biais de la détermination de la section efficace de photodétachement qui présente un assez bon accord avec les valeurs publiées dans la littérature.

### III.) *Étude de la propagation d'ondes acoustiques ioniques.*

#### 1) Introduction

La technique de référence pour la mesure de la concentration d'ions négatifs dans un plasma est la méthode de photodétachement induit par laser, précédemment présentée. Cette méthode permet la détection directe des ions négatifs, mais sa mise en œuvre est assez complexe, nécessitant le recours à un laser de puissance.

Dans ce paragraphe, nous allons exposer une méthode pouvant se substituer au photodétachement, celle de la propagation d'ondes acoustiques ioniques.

Dans les plasmas électropositifs, la propagation d'ondes acoustiques permet, par détermination de la vitesse de phase de ces ondes, d'obtenir la température électronique. En effet, la vitesse de phase de l'onde ionosonore est proportionnelle à  $T_e^{1/2}$ . Dans un gaz électronégatif, comme l'ont montré D'angelo et al [30] la vitesse de phase dépend aussi de la proportion des ions négatifs dans le plasma ( $n/n_+$ ). Notre but est d'étudier la propagation des ondes acoustiques ioniques dans un plasma comportant des ions négatifs, au moyen d'une méthode d'interférométrie, telle qu'appliquée à l'étude d'un plasma comportant des ions négatifs  $C_{60}^-$  par Sato et al [31].

L'équation de dispersion des ondes acoustiques peut être obtenue par une approche soit hydrodynamique soit cinétique, ce qui permet d'obtenir l'expression de l'amortissement spatial dans le cas où cet amortissement est non collisionnel (amortissement Landau). Nous allons établir l'équation de dispersion des ondes acoustiques ioniques pour le cas d'un plasma électronégatif, par une approche hydrodynamique pour sa plus grande simplicité, puis nous reviendrons par la suite plus en détail sur l'expression de l'amortissement .

## 2) Équation de dispersion

### a) Approche hydrodynamique

Dans le cadre de cette théorie [32], on considère le plasma comme étant macroscopique et on assigne aux ions une vitesse moyenne. De ce fait, on ne tient pas compte des interactions ondes-particules (amortissement Landau). De plus, nous supposons que toutes les quantités physiques A d'intérêt ont la forme de Fourier, c'est-à-dire

$$A(r,t) = A_0 + A_1 \exp[i(k.r - \omega t)] \quad 14.$$

Nous considérons alors les équations suivantes : L'équation de conservation de masse pour chaque espèce m du plasma :

$$\frac{\partial n_m}{\partial t} + \nabla \cdot (n_m v_m) = 0 \quad 15.$$

et l'équation de conservation de quantité de mouvement :

$$n_m m_m \left( \frac{\partial v_m}{\partial t} + v_m \cdot \nabla v_m \right) = n_m q_m (E_1 + v_m \times B_0) - \nabla P_m \quad 16.$$

où  $\nabla P_m$  est le gradient de pression.

En linéarisant ces équations et en considérant une compression adiabatique, le gradient de pression a pour expression :

$$\nabla P_m = \gamma_m \kappa T_m \nabla n_{1m} \quad 17.$$

où  $\gamma_m$  est le coefficient de compression adiabatique,  $\kappa$  la constante de Boltzmann,  $T_m$  la température, et  $n_{1m}$  la perturbation de densité due à l'onde.

On obtient donc un système de deux équations à trois inconnues. L'équation de Maxwell  $\nabla \times H$  permet d'obtenir une troisième équation indépendante, soit

$$\nabla \times H = \frac{\partial(\epsilon_0 \mathbf{E})}{\partial t} + J \quad 18.$$

Après linéarisation, et transformation de Fourier en temps (ou de Laplace en supposant qu'il n'y a pas de perturbation au temps  $t=0$ ), nous obtenons un système de trois équations indépendantes linéarisées. A partir des équations de conservation de masse et de quantité de mouvement, nous pouvons déterminer la perturbation de densité  $n_{1m}$  pour chaque espèce, soit:

$$n_{1m} = \frac{q_m n_{0m}}{m_m} \frac{ikE_1}{(\omega - kv_{0m})^2 - k^2 V_m^2} \quad 19.$$

où  $V_m$  est la vitesse thermique des espèces  $m$  définie par  $V_m = \left( \frac{\gamma_m k T_m}{m_m} \right)^{1/2}$

En substituant  $n_{1m}$  dans l'équation de Poisson linéarisée (obtenue à partir de l'équation de Maxwell), nous obtenons l'équation :

$$D(k, \omega) E_1 = 0 \quad 20.$$

où

$$D(k, \omega) = 1 - \sum_{m=1}^n \frac{\omega_{pm}^2}{(\omega - kv_{0m})^2 - k^2 V_m^2} \quad 21.$$

où  $\omega_{pm} = (n_m q_m^2 / \epsilon_0 m_m)^{1/2}$  est la pulsation de plasma des espèces  $m$ .

On voit donc, d'après l'équation (20) que pour obtenir une solution non triviale pour  $E_1$ , il faut que le coefficient  $D(k, \omega)$  soit nul.

Ainsi, nous obtenons l'équation de dispersion générale d'une onde longitudinale

$$1 - \sum_{m=1}^n \frac{\omega_{pm}^2}{(\omega - kv_{0m})^2 - k^2 V_m^2} = 0 \quad 22.$$

Considérons maintenant un plasma composé de trois composants, des électrons, des ions positifs et des ions négatifs. Nous désignerons respectivement par les indices e, +, - les électrons, et les ions positifs et négatifs.

L'équation (22) conduit à la relation

$$-k\lambda_D^2 = 1 - \frac{n^-}{Mv^2 - \gamma\tau} - \frac{n^+}{v^2 - \gamma\tau}$$

avec  $M = M_-/M_+$  ;  $\tau = T_i/T_e$  ;  $\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 kT_e}{(1-\epsilon)e^2 n_0}}$  23.

$\epsilon = n_i^-/n_i^+$  ;  $v = \omega/kc_s$  ;  $c_s = \sqrt{\frac{kT_e}{M_+}}$

Dans l'approximation des grandes longueurs d'ondes ( $k\lambda_D \ll 1$ ), la vitesse de phase a pour expression

$$v_\phi = c_s \sqrt{\frac{1 + \epsilon/M}{1 - \epsilon} + 3\tau} \quad 24.$$

On voit donc qu'on peut déterminer  $\epsilon$  à partir de la vitesse de phase  $V_\phi$ . sous réserve que l'on connaisse  $T_e$ ,  $T_i$ ,  $M_+$  et  $M_-$ .

Dans cette théorie, on considère le plasma comme macroscopique et on assigne aux ions une vitesse moyenne. Par ce fait, on ne tient pas compte des interactions ondes-particules (amortissement Landau). Afin de déterminer l'expression de l'amortissement spatial non-collisionnel de l'onde acoustique (effet Landau), il faut utiliser une description cinétique qui sera l'objet du paragraphe suivant.

## b) Approche cinétique

A cette fin [32], on utilise l'équation de Poisson et l'équation de Vlasov .

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial x} = 4\pi q \int f dv \quad 25.$$

$$\frac{\partial f}{\partial t} + v \frac{\partial f}{\partial x} + \frac{q}{m} E \frac{\partial f}{\partial v} = 0 \quad 26.$$

f étant la fonction de distribution du plasma donnée par

$$f(v, r, t) = f_0(v) + f_1(r, v, t) \quad 27.$$

La densité initiale est alors définie par

$$n_0 = \int_{-\infty}^{+\infty} f_0(v) dv \quad 28.$$

De la même manière que pour l'approche hydrodynamique, nous linéarisons, transformons par transformée de Fourier, puis appliquons une transformée de Laplace dans le temps, pour obtenir l'équation de dispersion pour l'espèce j

$$\varepsilon_p(\omega, k) = 1 + \sum_{j=e,+, -} \frac{2\omega_{pj}^2}{k^2 v_{thj}^2} \left[ 1 + \frac{\omega}{k v_{thj}} Z \left( \frac{\omega}{k v_{thj}} \right) \right] \quad 29.$$

où les indices j=e, +, - font référence respectivement aux électrons, aux ions positifs, et aux ions négatifs ; k est le nombre d'onde (complexe),  $\omega_{pj}$  la fréquence angulaire de plasma pour l'espèce j,  $v_{thj}$  la vitesse thermique de l'espèce j, et Z la fonction de dispersion de Fried et Conte [33]. Par ailleurs,  $\frac{\omega_{pj}^2}{v_{thj}^2} = \frac{1}{2\lambda_{Dj}^2}$  où  $\lambda_{Dj}$  est la longueur de Debye pour l'espèce j

$$\left( \lambda_{Dj}^2 = \frac{\varepsilon_0 k_B T_j}{n_j e^2} \right), T_j \text{ et } n_j \text{ étant la température et la densité de l'espèce j}.$$

En général, la vitesse de phase mesurée  $v_\phi'$  est la somme de la vitesse de phase réelle  $v_\phi$  et de la vitesse dirigée U des ions dans la direction d'observation ( $v_\phi' = v_\phi \pm U$ ). La vitesse dirigée U introduit un accroissement ou une diminution de la vitesse de phase apparente selon que l'onde se propage dans la direction identique ou opposée à celle de la dérive des particules. Ainsi, U peut être déterminée expérimentalement en excitant l'onde ionosonore dans deux

directions opposées. On peut développer l'équation (29) en faisant les approximations,  $\lambda_D = \lambda_{De}$ ,  $T_e \gg T_+ \approx T$ . et en considérant un domaine de vitesse de phase tel que  $v_{th+} \ll v_\phi \ll v_{the}$ , ce qui permet d'utiliser le développement asymptotique de la fonction Z. La solution de la partie réelle de l'équation (29) conduit à l'équation de dispersion de l'onde (donc sa vitesse de phase), soit

$$1 + k_D^2 \lambda_D^2 = \frac{1}{1 - \varepsilon} \frac{1 - \frac{9\tau_+^2}{v^4}}{v^2 - 3\tau_+} + \frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon} \frac{\frac{1}{\tau} - \frac{9\tau_+^2 T}{M^2 v^4}}{\frac{Mv^2}{T} - 3\tau_+} \quad 30.$$

Cette équation permet de trouver l'expression de  $v_\phi$  dans le cas le plus général où  $\tau_+ \neq 0$ ,  $T \neq 1$ , et  $M \neq 1$ . On voit d'après l'équation (30) qu'en présence d'ions négatifs, deux modes peuvent se propager, un mode lent qui correspond à l'onde présente dans un plasma électropositif et un nouveau mode rapide. Il a été montré [30] que lorsque la proportion d'ions négatifs augmente, la vitesse de phase de l'onde rapide augmente et l'onde est de moins en moins atténuée, tandis que l'onde lente se propage de plus en plus lentement et subit un amortissement Landau important. Ainsi, en présence d'ions négatifs, le mode rapide est plus facilement détectable.

Dans le cas du chlore, comme le montreront les résultats présentés dans le chapitre III, on peut considérer que les masses et les températures des ions positifs et négatifs sont similaires. Si de plus on considère que  $T_+ \ll T_e$ , un seul mode subsiste. Sa vitesse de phase apparente (c'est-à-dire mesurée), dans la limite des grandes longueurs d'ondes de Vlasov est donnée par

$$v_\phi = c_s \sqrt{\frac{1 + \varepsilon}{1 - \varepsilon} + 3\tau_+} \pm U \quad 31.$$

Comme nous l'avons déjà mentionné, en mesurant la vitesse de phase de l'onde acoustique ionique dans deux directions opposées, on peut déterminer la vitesse dirigée U des ions. Cette vitesse est égale à la différence des deux vitesses de phases apparentes divisée par deux. La vitesse de phase réelle  $v_\phi$ , elle, est égale à la somme des deux vitesses de phase apparentes divisées par deux, c'est-à-dire

$$v_\phi = \frac{v_\phi^+ - v_\phi^-}{2} = c_s \sqrt{\frac{1 + \varepsilon}{1 - \varepsilon} + 3\tau_+} \quad 32.$$

### 3) Amortissement

Nous pouvons maintenant définir l'expression de l'amortissement spatial non collisionnel de l'onde acoustique par effet Landau. Soit  $\Omega = \omega_s + i\gamma$ , et  $k = k_r + ik_i$ . Le coefficient d'amortissement  $k_i$ , dans l'approximation d'un faible taux d'amortissement de l'onde ( $k_i \ll k_r$ ) est donné par [34].

$$k_i = \frac{|\gamma|}{v_g \Omega = \omega_s} \quad 33.$$

où  $v_g$  est la vitesse de groupe et  $\gamma$  l'amortissement temporel, donné par

$$\gamma = - \frac{\text{Im}(\varepsilon_p)}{\frac{\partial}{\partial \omega} \text{Re}(\varepsilon_p)_{\Omega = \omega_s}} \quad 34.$$

$\varepsilon_p$  étant donné par l'équation (29). Dans la limite de Vlasov,  $v_g = v_\phi$  et l'on trouve avec les mêmes approximations que dans la section précédente ( $M = T = 1$  et  $T_+ \ll T_e$ ),

$$\frac{k_i}{k_r} = \sqrt{\frac{\pi}{8}} \sqrt{\frac{1+\varepsilon}{1-\varepsilon}} \left\{ \sqrt{\frac{m_e}{M_+}} + \frac{1}{\tau_+^{3/2}} \left( \frac{1+\varepsilon}{1-\varepsilon} \right) \exp \left[ - \frac{1}{2\tau_+} \left( \frac{1+\varepsilon}{1-\varepsilon} + 3\tau_+ \right) \right] \right\} \quad 35.$$

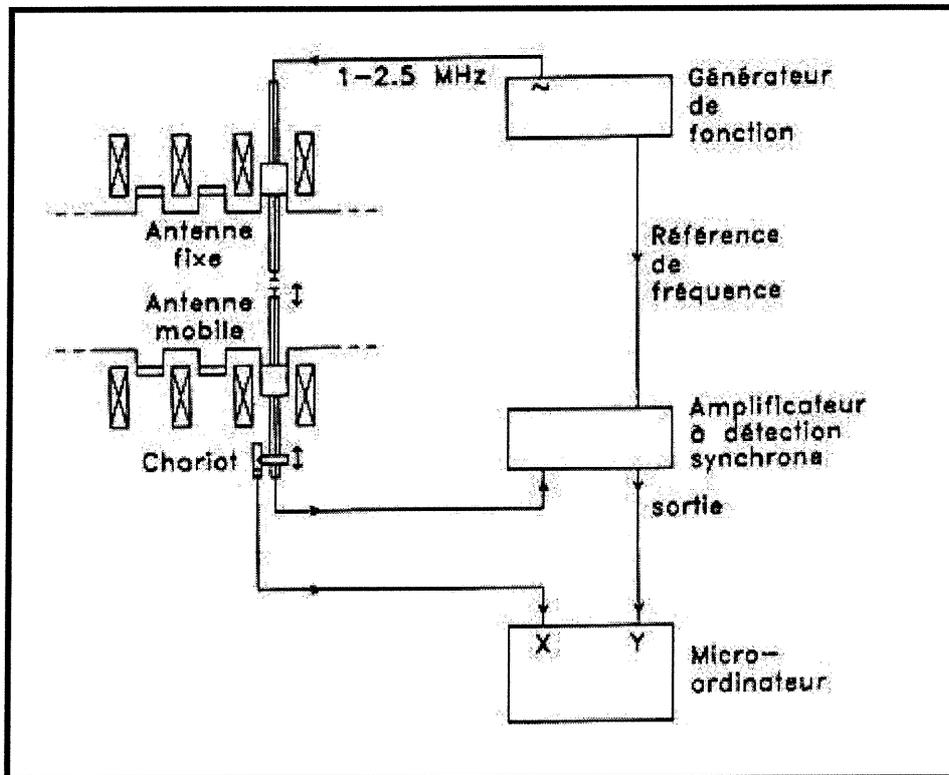
Dans le traitement précédent, nous n'avons pas tenu compte de l'amortissement collisionnel. Cependant, il peut être estimé et a pour expression [35]:

$$\alpha_c = \frac{v_i}{2v_\phi} \quad 36.$$

où  $\alpha_c$  est le coefficient d'amortissement spatial collisionnel, et  $v_i$  est la fréquence de collision ionique effective (tenant compte des collisions ion-neutre et ion-ion).

### 4) Description du montage expérimental et de la méthode d'analyse

L'excitation et la détection de l'onde acoustique ionique sont effectuées à l'aide de deux antennes placées face à face suivant l'axe transversal du réacteur (c'est à dire perpendiculairement au champ magnétique). Chaque antenne est constituée d'un disque de tantale d'un diamètre de 5 mm. Une des antennes est fixe et l'autre se déplace, grâce à un chariot motorisé, sur une distance de 1.5 cm de part et d'autre de l'axe longitudinal de l'enceinte. Ainsi, il est possible d'observer plusieurs périodes d'oscillation afin d'accroître la précision de la mesure. On supposera qu'en première approximation, les caractéristiques du plasma (et en particulier le rapport  $\frac{n_-}{n_+}$ ) sont les mêmes sur cette distance de 1.5 cm. La longueur d'onde est déterminée comme étant la moyenne des longueurs d'ondes mesurées sur cet intervalle. La Figure II.1 présente un schéma du montage expérimental pour l'excitation et la détection des ondes acoustiques ioniques.

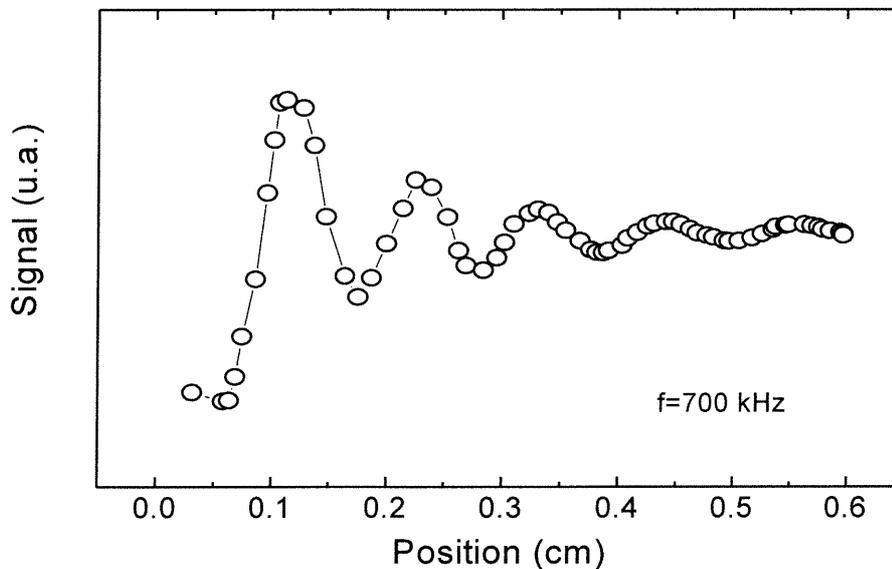


**Figure II.1. Schéma du montage expérimental pour l'excitation et la détection des ondes acoustiques ioniques.**

Le signal reçu par l'antenne collectrice est envoyé à un détecteur synchrone qui sélectionne la composante de même fréquence que celle du signal d'excitation. Le signal de sortie du

détecteur synchrone est transmise à un ordinateur pour la saisie automatique des données. La position de l'antenne mobile est communiquée à l'ordinateur par le signal électrique provenant d'un potentiomètre couplé au moteur du chariot. Etant donné qu'il y a une possibilité de dérive des ions (due à la diffusion), on a étudié la propagation de l'onde dans les deux sens opposés en intervertissant les connexions électriques des deux antennes.

La vitesse de phase apparente est mesurée grâce à une technique d'interférométrie. Celle-ci consiste à exciter l'onde acoustique ionique en appliquant un signal sinusoïdal dont la fréquence est de quelques kHz (typiquement autour de 700 kHz) et la tension de quelques volts à l'une des antennes. L'onde excitée se propage et le signal est recueilli par la seconde antenne dont la position varie sur une distance de 1.5 cm. Le signal a donc l'allure d'un interférogramme tel qu'illustré sur la Figure II.2.



**Figure II.2. Exemple d'interférogramme pour une onde acoustique ionique d'une fréquence de 700 kHz. Cet interférogramme a été obtenu pour un plasma dans le chlore à  $z=40$ cm et une pression de 2.5 mtorr et un champ magnétique de 875 gauss**

Le choix de la fréquence est dicté par plusieurs facteurs. D'une part, la fréquence doit être très supérieure à la fréquence cyclotronique ionique afin de pouvoir considérer l'influence du champ magnétique sur l'équation de dispersion de l'onde négligeable. D'autre part, la fréquence ne doit pas être trop voisine de la fréquence de plasma ionique afin de demeurer

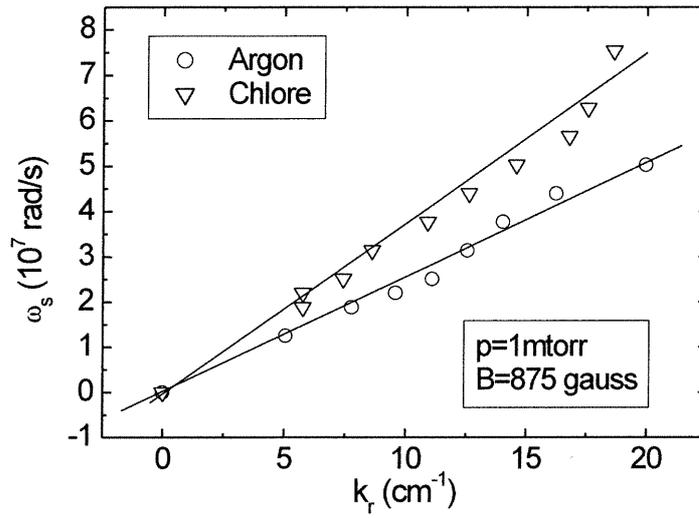
dans l'approximation des grandes longueurs d'ondes. En outre, lorsqu'on s'approche trop de la fréquence de plasma ionique, l'amortissement Landau devient très important et l'onde est atténuée sur une très courte distance. La longueur d'onde est déterminée comme étant deux fois la moyenne des distances mesurées entre deux extréma consécutifs.

L'amortissement spatial de l'onde acoustique  $\alpha_s$ , que l'on peut identifier soit à  $k_i$  ou à  $\alpha_c$  selon que l'amortissement est entièrement résonnant ou entièrement collisionnel, est déterminé en supposant que l'amplitude de l'onde varie spatialement selon

$$A(r) = A_0 \exp(-\alpha_s r) \quad 37.$$

La valeur absolue de l'intensité de chaque extrémum est tracée sur un diagramme semi-logarithmique; la pente de la droite résultante est alors égale à  $\alpha_s$ . Cette procédure nécessite bien sûr de déterminer avec précision la ligne de base de l'interférogramme. En effet, à l'interférogramme de l'onde acoustique se superpose un signal dû au couplage capacitif entre les deux antennes (création d'un champ électrostatique entre les deux antennes). Celui-ci fausse la valeur des extréma en décalant la ligne de base (zéro d'amplitude). Les interférogrammes sont donc corrigés en leur soustrayant une fonction polynomiale, déterminée par méthode graphique avant d'entreprendre l'analyse.

La Figure II.3 montre la courbe de dispersion de l'onde pour une pression de 1 mtorr, deux gaz différents, l'argon et le chlore. On constate que les courbes sont approximativement linéaires et donc permettent de déterminer à partir de leur pente une vitesse de phase. D'après la Figure II.3, on trouve que la vitesse de phase est d'environ  $2,6 \cdot 10^4 \text{ m.s}^{-1}$  pour l'argon et  $3,7 \cdot 10^4 \text{ m.s}^{-1}$  pour le chlore.



**Figure II.3. Courbes de dispersion expérimentale d'une onde acoustique ionique, pour deux gaz différents. Les conditions expérimentales étaient  $z=40\text{cm}$ ,  $p=1\text{mtorr}$  et  $B_0=875\text{ gauss}$ .**

#### **IV.) Etude spectroscopique de la composition en atomes et molécules neutres du plasma de $Cl_2$ .**

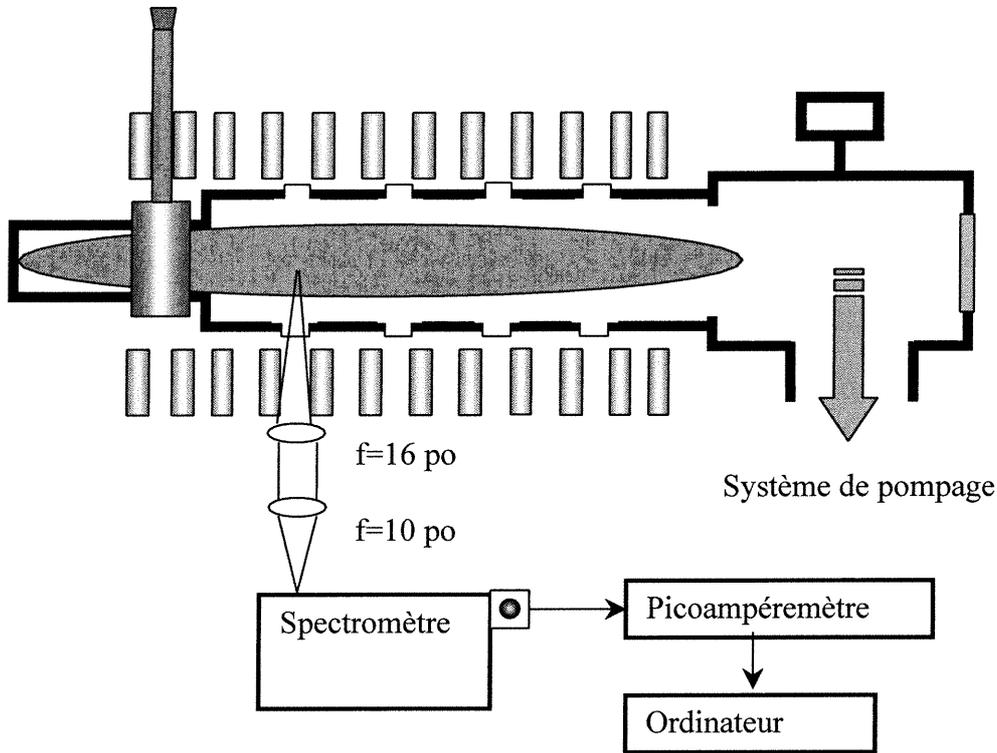
##### **1) Introduction**

Une des techniques optiques les plus utilisées pour l'étude des décharges, est la spectroscopie d'émission. C'est sans doute la forme la plus ancienne et la plus simple de la spectroscopie. L'émission lumineuse du plasma nous fournit de l'information, le plus souvent qualitative, sur les diverses espèces présentes dans nos plasmas. On l'utilise généralement pour répertorier les espèces présentes dans le plasma et pour évaluer de manière grossière leurs concentrations relatives. Pour obtenir des informations plus quantitatives sur les populations d'espèces, une technique utilisée est l'actinométrie, une variante de la spectroscopie d'émission permettant de suivre l'évolution des espèces neutres en fonction des conditions opératoires. Nous avons eu recours à cette technique pour étudier le comportement de deux espèces neutres, en particulier, le chlore atomique et moléculaire. Le chlore atomique est considéré comme l'agent de gravure principal dans le cas de la gravure de l'aluminium. Quant à la population de chlore moléculaire, elle nous fournit d'importantes informations sur le taux de dissociation de notre décharge.

Nous avons utilisé la technique dite d'*actinométrie* pour déterminer les valeurs absolues des concentrations de chlore atomique et moléculaire, tout en assumant bien sûr sa faible résolution spatiale.

2) Etude de la composition du plasma dans le chlore par spectroscopie d'émission

a) Montage expérimental



**Figure II.1. Schéma expérimental pour la spectroscopie d'émission.**

Nous avons obtenu le spectre d'émission de notre plasma au moyen d'un spectromètre 1681 de chez Spex, d'une distance focale de 0.22 m. Il est muni d'un réseau de 1200 traits/mm. L'arrangement expérimental est présenté à la Figure II.1. Il s'agira du même montage pour la technique d'actinométrie (présentée par la suite). La lumière émise par le plasma est collectée à travers un hublot de silice fondue, prenant place sur l'une des ouvertures latérales de l'enceinte métallique. La lumière est ensuite focalisée dans le plan de la fente d'entrée du spectromètre à l'aide de deux lentilles de silice fondue. La première lentille d'une longueur focale de 40.6 cm (16 po) collecte le signal. La deuxième d'une longueur focale de 25.4cm (10 po) est placée à une trentaine de centimètres de la deuxième et focalise le signal dans le plan de la fente d'entrée du spectromètre. Les valeurs nominales des longueurs focales des lentilles, telles que fournies par le manufacturier, sont pour le bleu.

Dans le rouge, les distances focales diminuent d'environ 5cm. Nous avons donc tenu compte de cette différence dans l'alignement et l'optimisation de notre montage optique. La lumière recueillie est sélectionnée en longueur d'onde par le réseau du spectromètre. Un moteur pas-à-pas permet une rotation automatique et à vitesse variable du réseau. La lumière est finalement détectée par un photomultiplicateur de marque Hamamatsu du type R955 (pour les expériences d'actinométrie, à cause de son gain élevé) ou du type R636. Le courant généré par le photomultiplicateur est mesuré par un picoampèremètre Keithley 486, et une tension proportionnelle à l'intensité du courant, par rapport à l'échelle sélectionnée, est envoyée ensuite à l'ordinateur faisant la saisie des spectres.

### 3) Spectre d'émission du plasma de chlore.

#### a) Processus de collisions dans un plasma de chlore

Nous présentons dans ce qui suit une liste non exhaustive des divers processus de collisions et leurs produits dans un plasma de chlore. Nous considérons que les collisions sont essentiellement électroniques.

Interactions  $e^-$ -Cl<sub>2</sub>.

Cl<sub>2</sub>(v) : excitation vibrationnelle (seuil à 0.0689 eV)

Cl<sub>2</sub><sup>\*</sup> : excitation (seuils à 2.49 eV (B<sup>3</sup>Π) et 9.25 eV (2<sup>1</sup>Π et 2<sup>1</sup>Σ))

Cl : dissociation (seuil à 3.12 eV)

Cl<sub>2</sub><sup>+</sup> : ionisation (seuil à 11.47 eV)

Cl<sup>+</sup> : ionisation dissociative (seuil à 15.48 eV)

Ou formation d'une paire Cl<sup>+</sup>-Cl<sup>-</sup> (seuil à 11.87 eV)

Cl<sup>-</sup> : attachement dissociatif (seuil à 0 eV)

Du fait de la production de chlore atomique, nous devons tenir compte des interactions  $e^-$ -Cl.

Interactions  $e^-$ -Cl.

$Cl^*$  : excitation (seuil à 8.9 eV (4s), 10.4 eV (4p), 10.9 eV (3d), 11.8 eV (5p), 12.0 eV (4d), 12.4 eV (5d))

$Cl^+$  : ionisation (seuil à 12.99 eV)

$Cl^{++}$  : ionisation de  $Cl^+$  (seuil à 23.80 eV)

Des réactions de recombinaison peuvent aussi se produire entre les divers ions (positifs et négatifs) ou deux chlore atomique.

Nous pouvons donc considérer comme espèce dans nos décharges, les espèces neutres atomiques (Cl) et moléculaires ( $Cl_2$ ) du chlore et les espèces chargées  $Cl_2^+$ ,  $Cl^+$ ,  $Cl^-$  (on peut négliger la formation de  $Cl^{++}$  qui a un seuil élevé de 23.8 eV), mais aussi les espèces excitées  $Cl_2(v)$ ,  $Cl_2^*$  et  $Cl^*$ .

### **b) Spectroscopie d'émission optique**

La spectroscopie d'émission est l'une des techniques les plus utilisées dans la caractérisation des plasmas de gravure. La méthode consiste à détecter l'émission des espèces du plasma se trouvant dans des états électroniques excités [<sup>36</sup>]. En ce qui concerne les espèces atomiques, l'excitation électronique peut être due à de nombreuses réactions, comme l'excitation par impact électronique (qui est la plus répandue), la dissociation par impact électronique, mais aussi par impact ionique. Les espèces moléculaires peuvent également être excitées par ces trois réactions, mais aussi par des réactions de recombinaison [<sup>37</sup>].

La spectroscopie d'émission nécessite un équipement peu sophistiqué et facile à installer. A partir des spectres d'émission optique, il est usuel d'identifier les espèces en présence et de suivre leur évolution en fonction de la variation de divers paramètres extérieurs à la décharge tels que la puissance, la fréquence d'excitation, etc. Cependant, la majorité des espèces sont dans un état non radiatif (i.e. fondamental ou métastable) et ne contribuent donc pas au spectre d'émission. Il est donc essentiel de mettre au point des méthodes donnant accès à ces espèces. Malheureusement, la relation entre l'émission optique et la concentration des espèces dans l'état fondamental est complexe. Par exemple, si on considère l'excitation par impact électronique, l'intensité d'émission des espèces au niveau x est proportionnelle à la

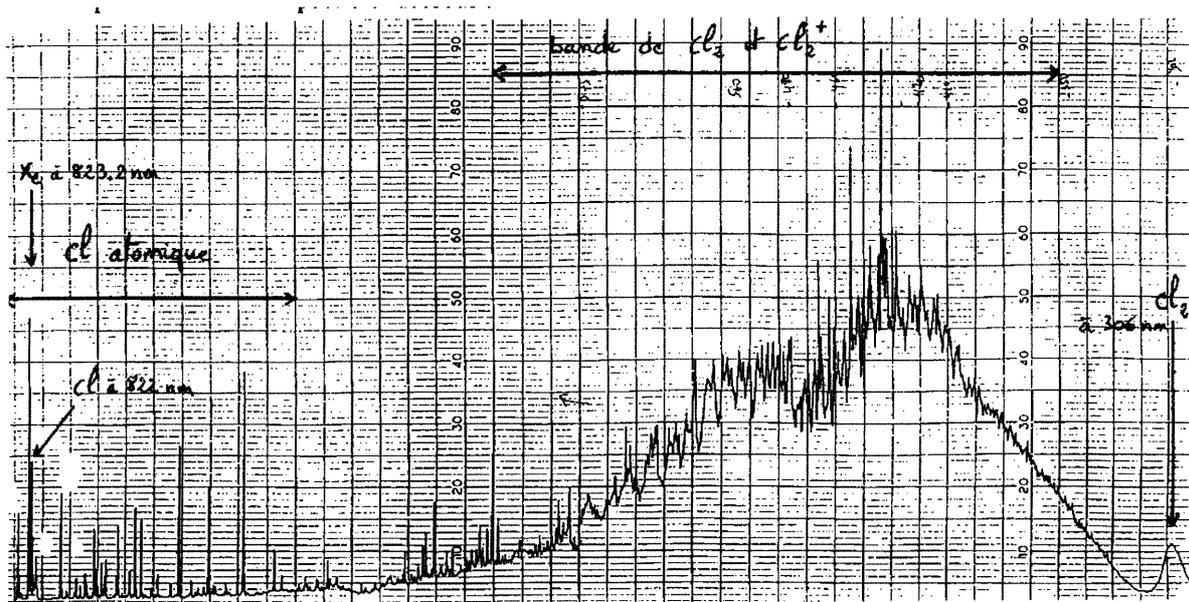
densité d'espèces excitées qui elle-même est fonction de la section efficace d'excitation et de la fonction de distribution en énergie des électrons.

$$I_x = a n_e N \int_0^{\infty} \sigma(V, X) V^3 f_e(V) dV \quad 38.$$

où  $\sigma(V, X)$  est la section efficace d'excitation par impact électronique, à une vitesse  $V$  de l'électron,  $f_e(V)$  est la fonction de distribution en vitesse des électrons,  $n_e$  et  $N$  respectivement la densité électronique et la densité du plasma et  $a$  est une constante de proportionnalité.

Dans la plupart des décharges, la fonction de distribution en vitesse des électrons est complexe (i.e. non maxwellienne), et n'est pas facile à mesurer ou à calculer. La *spectroscopie d'émission optique* ne sert alors qu'à répertorier les espèces et à suivre *grossièrement* leur évolution dans le temps ou l'espace.

Dans le chlore pur, les diverses espèces dont on peut retrouver la signature dans le spectre sont le chlore moléculaire  $\text{Cl}_2$  (258 /306 nm), l'ion positif moléculaire (350-550 nm), le chlore atomique neutre et ionisé (400-900nm).



**Figure II.1. Spectre d'émission du magnétoplasma de chlore à  $p=1\text{mTorr}$ , une puissance de 270 W, à une position axiale de 20 cm et un champ magnétique de 875 gauss.**

#### 4) Principe de la méthode d'actinométrie

Comme nous l'avons précisé dans le paragraphe précédent, l'intensité d'une raie d'émission d'un atome, si ce dernier est excité principalement par collision électronique directe à partir de son état fondamental, est proportionnelle à

- *La concentration d'atomes de cet état;*
- *La densité électronique;*
- *La fraction de la population d'électrons possédant une énergie adéquate pour exciter l'atome (cette information étant incluse dans la fonction de distribution en énergie des électrons).*

Or, nous voudrions nous affranchir de la densité électronique et de la fonction de distribution en énergie des électrons, afin de pouvoir relier l'intensité d'émission à la concentration d'atomes de l'espèce étudiée. Pour ce faire, Coburn et Chen en 1980 [38], ainsi qu'Agostino et al [39] ont proposé une technique dite *d'actinométrie*. La technique consiste à introduire dans la décharge une petite quantité de gaz inerte, dit *actinomètre*, et à comparer l'émission d'un des niveaux excités de l'espèce à laquelle on s'intéresse à celle d'un état excité de l'actinomètre. Le *rapport des deux intensités* est proportionnel au *rapport des concentrations des espèces dans leur état fondamental*, pour peu qu'un certain nombre de conditions soient respectées :

- *L'excitation doit résulter d'un impact électronique direct sur le niveau fondamental dans les deux cas ;*
- *Pour les deux atomes, les sections efficaces doivent être voisines en termes de dépendance sur l'énergie des électrons ;*
- *Pour les deux atomes, les niveaux d'énergie doivent être voisins afin d'impliquer des électrons de même énergie dans le mécanisme d'excitation.*

On a donc la relation définissant l'intensité lumineuse d'une raie d'émission

$$I_{ia} \propto k_i \cdot n_e \cdot [i] \quad 39.$$

avec  $n_e$  la densité électronique,  $[i]$  la concentration des espèces  $i$  et  $k_i$  le coefficient d'excitation du niveau  $i$  défini par la relation :

$$k_i = \int_0^{\infty} v(\varepsilon) \cdot \sigma_i(\varepsilon) \cdot f(\varepsilon) \cdot d\varepsilon \quad 40.$$

où  $\varepsilon$  est l'énergie des électrons,  $f(\varepsilon)$  est la fonction de distribution en énergie des électrons,  $\sigma_i(\varepsilon)$  la section efficace de collision pour l'excitation par impact électronique directe du fondamental au niveau excité  $i$  et  $v(\varepsilon)$  la vitesse des électrons.

La première hypothèse permet d'écrire le rapport d'intensité des raies comme suit :

$$\frac{I_i}{I_j} = \frac{n_e \cdot k_i \cdot [i]}{n_e \cdot k_j \cdot [j]} \quad 41.$$

où  $k_i$ ,  $k_j$  sont respectivement les coefficients d'excitation électronique des espèces  $i$  et  $j$  menant à l'émission des raies d'intensité  $I_i$ ,  $I_j$ ,  $[i]$ ,  $[j]$ , étant leurs concentrations.

Les deux dernières hypothèses signifient que ce sont les électrons appartenant à la même portion de la fonction de distribution en énergie des électrons qui participent à l'excitation des deux atomes ; on peut donc supposer que  $k_i$  et  $k_j$  sont proportionnels l'un à l'autre de sorte que leur rapport ne varie pas avec les conditions de décharge. Les densités électroniques se simplifiant également, on a finalement :

$$[i] \propto \frac{I_i}{I_j} \cdot [j] \quad 42.$$

Selon cette équation, la mesure du rapport d'intensité permet de remonter à la concentration relative de l'espèce  $i$  pourvu que celle de l'espèce  $j$  soit connue ou qu'elle soit constante.

5) Etude des populations du chlore atomique et moléculaire par actinométrie (revue bibliographique).

Les hypothèses inhérentes à la technique d'actinométrie en font une méthode controversée dans le cas de l'étude du chlore atomique.

Gottscho et al [40], ont établi que l'actinométrie donne des mesures inexactes de la densité de chlore atomique quand l'émission provient des gaines, mais est par contre valable au centre de la décharge. Pour le montrer, ils ont étudié la forme des spectres d'émission de chlore atomique et de l'actinomètre, en l'occurrence de l'argon, pour un mélange de 60% d'argon et 40% de chlore. Ils ont mesuré l'émission à 837.6 nm pour le chlore atomique et à 826.4 nm pour l'argon et constaté que les spectres sont élargis au niveau des gaines. Cet élargissement tend à prouver que la création de l'état excité ne se fait pas par impact électronique direct, en contradiction avec une des hypothèses de l'actinométrie, mais plutôt par des réactions d'attachement dissociatif ou d'excitation dissociative.

Richards et al [41] ont montré que la détermination de la concentration de chlore atomique à l'aide de l'actinométrie était non valide. Ils ont utilisé les raies du Cl à 837.6 nm, de l'argon à 811.5 nm, mais aussi des raies du xénon à 823.16 et 834.68 nm, et cela dans un mélange de 95% de chlore et 5% d'actinomètre. L'actinométrie à l'aide du xénon a donné des résultats comparables à ceux fournis à l'aide de l'argon. Ils ont étudié la dépendance en puissance, en fréquence et en pression de la concentration de chlore atomique en comparant les prédictions de l'actinométrie et des mesures d'absorption infrarouge. Ils ont alors attribué l'erreur de l'actinométrie à la création de l'état excité de chlore atomique par dissociation électronique du chlore moléculaire.

Plus récemment, Donnelly [42] a proposé une nouvelle méthode de mesure de la densité absolue de chlore moléculaire  $\text{Cl}_2$ , en utilisant une technique *d'actinométrie calibrée par extrapolation des signaux optiques à puissance absorbée nulle* (Annexe B). Pour cela, il suffit de mesurer le rapport  $\frac{I_{\text{Cl}_2}}{I_{\text{Xe}}}$  en fonction de la puissance dans un mélange de 95% de chlore et 5% d'un mélange constitué en égales proportions d'hélium, d'argon, de néon, de krypton et de xénon, en étendant les mesures à des niveaux de puissance très faibles. En

extrapolant ces mesures à une puissance nulle, il est alors possible de déterminer le coefficient de proportionnalité entre le rapport des intensités d'émission et le rapport des densités d'espèces. Les raies utilisées par Donnelly sont celles du chlore moléculaire à 306 nm et du xénon (actinomètre) à 823.2 nm. Cette technique présente l'avantage d'être plus facile à implanter que la fluorescence induite par laser, ou la spectrométrie de masse. Elle donne accès à la densité de chlore moléculaire, la densité de chlore atomique étant alors accessible à l'aide d'une équation de masse. En appliquant cette technique à un plasma résonateur hélicoïdal, Donnelly a mis en évidence de forts degrés de dissociation à basse pression, même à de faibles densités de puissance. Ce résultat confirme ceux obtenus auparavant dans le cadre d'autres études expérimentales ou numériques.

Dans le prochain chapitre, nous nous référerons à cette méthode pour la mesure de la densité absolue de chlore atomique et moléculaire.

## Listes des figures du Chapitre II

- √ Figure I.1. Distribution radiale de l'intensité de la composante axiale du champ électrique de l'onde pour deux valeurs de  $\nu / \omega$ ,  $r_{\text{plasma}}=1.3$  cm 34
- √ Figure I.1. Effet de  $\omega_{ce}/\omega$  sur la distribution radiale de l'intensité du champ électrique total pour le mode HE01 (a) et le mode HE11 (b) [6]. 36
- √ Figure I.2. Profil radial de l'intensité de la composante axiale du champ électrique de l'onde, pour deux épaisseurs de la gaine, un champ magnétique nul et  $(\omega/\omega_p)_{\text{extérieur}}=100$  (air) (cas1). 38
- √ Figure I.3. Profil radial du champ électrique axial pour un champ magnétique de  $B=204$  gauss, une densité électronique de  $4.5 \cdot 10^{10}$  cm<sup>-3</sup> et un rapport  $(\omega/\omega_p)$  du plasma interne égal à 0.1. 38
- √ Figure I.5. Schéma illustrant l'ensemble du réacteur à plasma. 39
- √ Figure I.6. Distribution axiale de l'intensité du champ magnétique. La position  $z$  est mesurée par rapport à l'interstice de lancement de l'excitateur d'onde de surface. 40
- √ Figure I.7. Schéma du lanceur d'onde Ro-box. 42
- √ Figure II.1. Caractéristique de courant-tension d'une sonde électrostatique. 43
- √ Figure II.1. Schéma de la sonde électrostatique. 47
- √ Figure II.2. Schéma du circuit permettant la mesure du courant collecté par la sonde. 48
- √ Figure II.3. Montage électrique pour la compensation RF [23]. 48
- √ Figure II.1. Caractéristique de sonde  $I=f(V)$  et sa première dérivée  $dI/dV$ . 51
- √ Figure II.2. Fonction de distribution en énergie des électrons, normalisée pour un plasma de chlore à 1mTorr et en absence de champ magnétique. 52
- √ Figure II.1. Schéma global du montage expérimental servant au diagnostic de photodétachement. 55
- √ Figure II.2. Schéma de la sonde plane. 57
- √ Figure II.3. Positionnement de la sonde dans le faisceau laser. 57
- √ Figure II.4. Schéma du circuit permettant la mesure et le traitement du courant collecté par la sonde électrostatique lors du photodétachement induit par laser. 58

- √ Figure II.1. Courant de saturation électronique collecté par une sonde plane. 60
- √ Figure II.1. Rapport du courant maximal attribuable aux électrons photodétachés sur le courant stationnaire en fonction de la densité d'énergie de l'impulsion du laser pour un plasma de chlore à une pression de 0.1 mtorr et un champ magnétique d'intensité 800 gauss. 61
- √ Figure II.2. Rapport du courant attribuable aux électrons photodétachés sur le courant à l'état stationnaire, en fonction de la densité d'énergie de l'impulsion du laser pour une pression de 1 mtorr et un champ magnétique de 800 gauss. 63
- √ Figure II.1. Schéma du montage expérimental pour l'excitation et la détection des ondes acoustiques ioniques. 71
- √ Figure II.2. Exemple d'interférogramme pour une onde acoustique ionique d'une fréquence de 700 kHz. Cet interférogramme a été obtenu pour un plasma dans le chlore à  $z=40$ cm et une pression de 2.5 mtorr et un champ magnétique de 875 gauss 72
- √ Figure II.3. Courbes de dispersion expérimentale d'une onde acoustique ionique, pour deux gaz différents. Les conditions expérimentales étaient  $z=40$ cm,  $p=1$ mtorr et  $B_0=875$  gauss. 74
- √ Figure II.1. Schéma expérimental pour la spectroscopie d'émission. 76
- √ Figure II.1. Spectre d'émission du magnétoplasma de chlore à  $p=1$ mTorr, une puissance de 270 W, à une position axiale de 20 cm et un champ magnétique de 875 gauss. 79

## Bibliographie du Chapitre II.

<sup>1</sup> Trivelpiece, A.XW. et Gould, R.W. (1959), *Space charge waves in cylindrical columns*, J.Appl.Phys.30, 1784-1793.

<sup>2</sup> J.Margot et M.Moisan, *Physics of surface-wave discharges*, NATO ASI on plasma processing of semiconductors.

<sup>3</sup> Tamir.T. and Oliner.A.A. (1963) *The spectrum of electromagnetic waves guided by a plasma layer*, Proc IEEE 51,317-332.

<sup>4</sup> M.Moisan, C.Beaudry, et P.Leprince, IEEE Trans. Plasma. Sci. 3,55 (1975).

<sup>5</sup> C.M.Ferreira, J.Phys.D, **14**, 1811, (1981).

<sup>6</sup> J.Margot et M.Moisan, Les ondes de surface électromagnétiques pour une nouvelle approche de l'étude des plasmas produits à la résonance cyclotronique électronique (RCE), J.Phys.D, **24**, 1765, (1991)

<sup>7</sup> J.Margot, M.Moisan, et M.Fortin, *Power required to maintain an electron in a discharge: its use as a reference parameter in magnetized high frequency plasmas*, J.Vac.Sci.Technol.A, **13**, 6, 2890,(Nov/Dec1995).

<sup>8</sup> I.Pérès, M.Fortin, et J.Margot, *The power balance of a magnetically confined surface-wave plasma column*, Plasmas. Sources. Sci. Technol, **5**, 653(1996).

<sup>9</sup> M.Nagatsu, G.Xu, M.Yamaga, M.Kanok et H.Sugai, *Optical emission and microwave field intensity Measurements in Surface Wave-excited planar plasma*, Jpn.J.Appl.Phys, **35**,2, L431, Mars 1996.

<sup>10</sup> C.M.Ferreira, et M.Moisan, *Microwave discharges : Fundamentals and applications*, Nato séries b :Physics Vol 302, Plenum Pub, (1993).

<sup>11</sup> J.Margot et M.Moisan, *Physics of surface-wave discharges*, Nato Chateau de Bonas, (juin 1996)

<sup>12</sup> J.Margot-Chaker, M.Moisan, M.Chaker, V.M.M.Glaude, P.Lauque, J.Paraszczak et G.Sauvé, *Tube diameter and wave fequency limitations when using the electromagnetic surface wave in the  $m=1$  (dipolar) mode to sustain a plasma column*, J.Appl.Phys, **66**, 4134-4148, (1989).

<sup>13</sup> E.Bluem, S.Béchu, C.Boisse-Laporte, P.Leprince et J.Marec, *Spatial investigation of a large diameter microwave plasma*, J.Phys.D, **28**, 1529-1533, (1995).

<sup>14</sup> J.Margot, L.Stafford et T.W.Jonhston, *Propagation of surface waves in two-plasma systems bounded by a metallic enclosure*, 52 nd Gaseous Electronics Conference, Virginia, (October 5-8 1999).

<sup>15</sup> M.Moisan et Z.Zakrzewski, J. Phys. D, **24**, 1025 (1991).

<sup>16</sup> Chen .F.F. (1965) *Plasma Diagnostics Techniques* (R.H.Huddlestone and S.L.Leonard, eds) Academic Press, New York, p.113.

<sup>17</sup> Cherrington, B.E. (1982). *Plasma Chemistry and Plasma Processing* 2, 113.

<sup>18</sup> Swift.J.D and Schwar.M.J » (1969), *Electrical probes for plasma diagnostics*, American Elsevier, New York.

<sup>19</sup> J.G.Laframboise et J.Rubinstein, Phys.Fluids 19, 1900 (1976)

<sup>20</sup> E.P.Szuszczewicz et P.Takacs, Phys.Fluids 22, 2424 (1979)

- <sup>21</sup> A.Boschi et F.Magistrelli, *Nuovo cimento*, **29**, 487-499, (1963).
- <sup>22</sup> N.St.J.Braithwaite, N.M.P.Benjamin et J.E.Allen , *An electrostatic probe technique for RF plasma*. *J.Phys.E: Sci.Instrum.***20**, 1047-1049, (1986)
- <sup>23</sup> T.I.Cox, V.G.I.Deshmukh, D.A.O.Hope, A.J.Hydes, N.St.J.Braithwaite et N.M.P.Benjamin, *The use of langmuir probes and optical emission spectroscopy to measure electron energy distribution functions in Rf-generated argon plasmas*. *J.Phys.D: Appl.Phys.***20**,820-831, (1987)
- <sup>24</sup> J.E.Allen, R.L.F.Boyd et P.Reynolds, *Proc.Phys.Soc.B*, **70**,p 820, (1957).
- <sup>25</sup> L.St-Onge, *Physico-chimie d'un magnétoplasma de SF<sub>6</sub>*, Thèse (université de Montréal), 1996.
- <sup>26</sup> E.Quandt et H.F.Döbele, *Measurements of negative ion densities by absorption spectroscopy*, *Appl.Phys.Letters*, **72** (19), 2394-2396, 11 May 1998
- <sup>27</sup> G.A.Hebner, *Negative ion density in inductively coupled chlorine plasmas*, *J.Vac.Sci.Technol.A* **14** (4), 2158-2162, (jul/aug 1996).
- <sup>28</sup> T.Ishikawa, D.Hayashi, K.Sasaki et K.Kadota, *Determination of negative ion density with optical spectroscopy in oxygen afterglow plasmas*, *Appl.Phys.Letters*, **72** (19), 2391-2393, 11 May 1998.
- <sup>29</sup> T.H.Ahn, K.Nakamura et H.Sugai, *Negative ion measurements and etching in a pulsed-power inductively coupled plasma in chlorine*, *Plasma.Sources.Sci.Technol*, **5**, 139-144, 1996.
- <sup>30</sup> N.D'Angelo, S.von.Goeler, et T.Ohe, *Phys.Fluids* **3**, 1605 (1996).
- <sup>31</sup> N.Sato, T.Mieno, T.Hirata, Y.Yagi, R.Hataheyama, et S.Iizuka, *Phys.Plasmas*, **1**, 3480 (1994).

- <sup>32</sup> N.A.Krall, et A.W.Trivelpiece, « *Principles of plasma physics* », New York :McGraw-Hill, 1973.
- <sup>33</sup> B.D.Fried et S.D.Conte, *the plasma dispersion function*, (academic, New york, 1961).
- <sup>34</sup> P.Brodeur, *Thèse de doctorat*, Université de Montréal, (1984).
- <sup>35</sup> G.M.Sessler et G.A.Pearson, Phys.Rev, **162**, 108 (1967).
- <sup>36</sup> R.W.Dreyfus, J.M.Jasinki, R.E.Walkup et G.S.Selwyn, *Optical diagnostics of low pressure plasmas*, Pure & Appl. Chem, **57** (9), 1265-1276, (1985).
- <sup>37</sup> V.M.Donnely, *Optical diagnostics studies in plasma and plasma processing*, Materials research society symposium processing; **68**, (1986).
- <sup>38</sup> J.W.Coburn et M.Chen, J.Appl.Phys,**51**, 3134 (1980).
- <sup>39</sup> R.D'Agostino, F.Cramarossa, S.D.Benedictis et G.Ferraro, J.Appl.Phys, **52**, 1259 (1981).
- <sup>40</sup> R.A.Gottscho et V.M.Donnely, *Optical emission actinometry and spectral lines shapes in rf glow discharges*, J.Appl.Phys. **56** (2), 245-250, (15 juillet 1984).
- <sup>41</sup> A.D.Richards, B.E.Thompson, K.D.allen et H.H.sawin, *Atomic chlorine concentration measurements in a plasma etching reactor. A comparison of infrared absorption and optical emission actinometry*, J.Appl.Phys. **62** (3), 792-798, (1 août 1987).
- <sup>42</sup> V.M.Donnely, *A simple optical emission method for measuring percent dissociations of feed gases in plasmas : Application to Cl<sub>2</sub> in a high-density helical resonator plasma*, J.Vac.Sci.technol.A **14** (3), 1076-1087, (Mai/juin 1996).



## Sommaire du Chapitre III

Sommaire du Chapitre III .....	91
Etude expérimentale du plasma de chlore : physico-chimie.....	93
I. Introduction.....	93
II. Caractérisation électrique du plasma dans le chlore .....	93
I) Distribution spatiale des caractéristiques du plasma.....	93
II) Influence des conditions opératoires sur les caractéristiques du plasma. ....	97
1) Influence de la pression du gaz.....	97
2) Influence du champ magnétique .....	103
3) Influence de la puissance HF .....	105
III. Etude de la population des ions négatifs.....	108
I) Validation de la technique des ondes ionosonores .....	109
1) Influence de la pression du gaz de Cl <sub>2</sub> .....	109
2) Influence de l'intensité du champ magnétique .....	110
II) Influence de la pression du gaz.....	113
III) Influence de l'intensité du champ magnétique .....	115
IV) Distribution radiale de la proportion d'ions négatifs.....	117
V) Discussion.....	118
1) Mécanismes de formation et de perte des espèces chargées dans les plasmas de chlore.....	118
(i)attachement .....	119
(ii) Détachement électronique.....	119
(iii) Recombinaison ion-ion .....	119
(iv) Ionisation.....	120
2) Equations d'équilibre :.....	120
IV. Population électronique .....	123

I)	Etude de l'influence de la pression .....	123
II)	Etude de l'influence de l'intensité du champ magnétique .....	124
V.	Bilan de puissance de notre décharge .....	125
I)	Influence de la pression du gaz de Chlore .....	125
II)	Influence de l'intensité du champ magnétique .....	127
VI.	Etude spectroscopique de la composition en atomes et molécules neutres du plasma de Cl <sub>2</sub>	131
I)	Etude de la population relative de chlore atomique par actinométrie sur le chlore atomique.....	131
1)	Influence de la pression .....	131
II)	Etude absolue de la population de chlore moléculaire (actinométrie du chlore moléculaire) .....	132
1)	Comparaison entre les techniques d'actinométrie du chlore atomique et du chlore moléculaire.....	133
a)	Effet de la pression.....	133
b)	Effet du champ magnétique .....	134
2)	Influence de la dilution du Cl <sub>2</sub> par de l'argon .....	135
3)	Influence de la pression du gaz de Cl <sub>2</sub> sur le degré de dissociation. ....	136
4)	Influence de l'intensité du champ magnétique sur le degré de dissociation .....	137
5)	Influence de la puissance HF sur le degré de dissociation.....	138
VII.	Conclusion sur la physico-chimie de notre plasma dans le chlore .....	140
	Liste des figures du Chapitre III .....	143
	Bibliographie du Chapitre III.....	148

## Etude expérimentale du plasma de chlore : physico-chimie

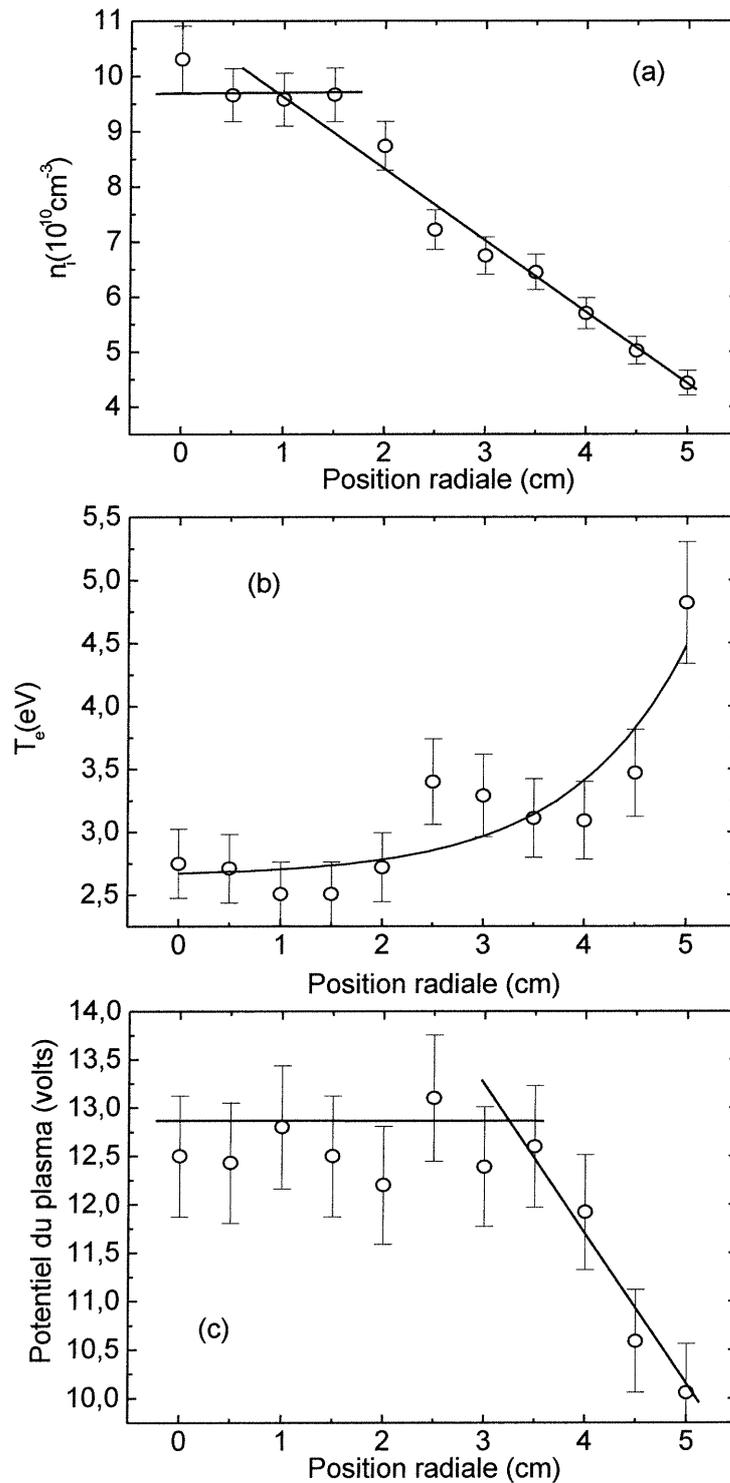
### I. Introduction

Dans ce chapitre, nous allons nous concentrer sur la caractérisation expérimentale du plasma de chlore. Nous allons étudier la relation entre les paramètres extérieurs tels que la pression, la puissance incidente et l'intensité du champ magnétique sur les paramètres du plasma comme la densité d'ions positifs et négatifs, la température électronique, le potentiel du plasma et le degré de dissociation du chlore moléculaire. Pour cela, nous appliquerons les diagnostics présentés dans le chapitre II.

### II. Caractérisation électrique du plasma dans le chlore

#### *1) Distribution spatiale des caractéristiques du plasma*

Nous avons étudié les caractéristiques électriques ( $n_i$ ,  $V_p$ ,  $T_e$ ) du plasma à deux positions axiales différentes, tout d'abord dans le tube de quartz où est créé le plasma ( $z=6\text{cm}$ ), puis dans l'enceinte métallique. La Figure II.1 montre les profils radiaux de  $n_i$ ,  $T_e$ ,  $V_p$  à  $z=6\text{cm}$  pour une pression de 1 mtorr et un champ magnétique de 875 gauss. On constate sur la Figure II.1 a) que la densité d'ions positifs présente un plateau à  $1.10^{11} \text{ cm}^{-3}$  sur une distance de 2 cm autour de l'axe, pour ensuite décroître linéairement en s'approchant des parois du tube et s'établir à  $0,5.10^{11} \text{ cm}^{-3}$  à deux centimètres du bord du tube de quartz. Par ailleurs, la Figure II.1 b) et la Figure II.1 c) montrent que la température électronique et le potentiel du plasma sont uniformes sur une distance de 3 cm environ. Au delà, la température électronique augmente lorsqu'on s'approche de la paroi du tube, tandis que le potentiel du plasma décroît. La température électronique s'établit autour de 2.7 eV dans la région du plateau, pour augmenter jusqu'à 5 eV en s'approchant des parois, tandis que le plateau du potentiel du plasma s'établit à 12.5 volts pour ensuite diminuer aux alentours de 10 volts. Un tel profil de température est couramment observé dans les décharges créées par onde de surface, et résulte d'un accroissement de l'intensité du champ électrique de l'axe vers la paroi du tube de quartz.



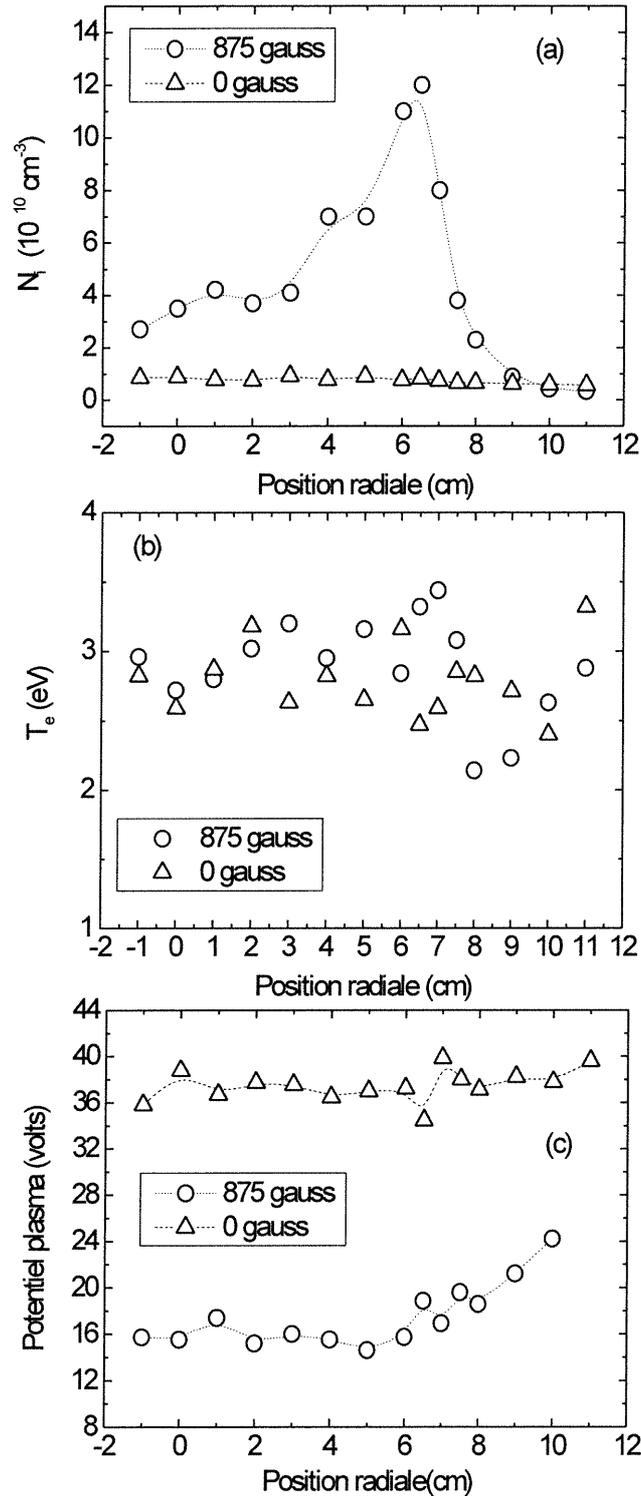
**Figure II.1. Profils radiaux de la densité d'ions positifs (a), de la température électronique (b), et du potentiel plasma (c), à  $z=6\text{cm}$ . La pression de gaz de chlore était de 1mTorr, le champ magnétique de 875 gauss et la puissance absorbée de 250 W.**

Il est intéressant de comparer les profils radiaux dans la source avec ceux obtenus dans l'enceinte métallique. Nous constatons en effet que ceux-ci sont très différents. La Figure II.2 montre les profils radiaux de la densité d'ions positifs, de la température électronique et du potentiel plasma à une position axiale de  $z=44\text{cm}$  pour une pression de 1 mtorr et deux valeurs de l'intensité du champ magnétique, 875 gauss et 0 gauss.

A 0 gauss, le profil de la densité d'ions positifs est uniforme et s'établit à une valeur de  $10^{10}\text{ cm}^{-3}$ . A 875 gauss, le profil de densité est uniforme sur une distance d'environ 3cm, puis présente ensuite un pic ( $1.10^{11}\text{ cm}^{-3}$ ) autour de  $r=7\text{ cm}$ . Le profil de température électronique est quant à lui uniforme pour les deux valeurs de l'intensité du champ magnétique (incertitude sur les mesures de l'ordre de 10%), s'établissant autour de 2.7 eV, pour ensuite croître en s'approchant des parois. On constate toutefois qu'à 875 gauss, il existe, comme pour la densité d'ions positifs, un pic s'établissant à 3.5 eV à  $r=7\text{ cm}$ . Le profil du potentiel du plasma est, pour 0 gauss, uniforme et voisin de 36 volts. Pour la mesure à 875 gauss, le profil du potentiel du plasma reste uniforme (16 volts) sur environ 6 cm, pour ensuite croître linéairement à partir de  $r=7\text{cm}$  pour atteindre 20 volts à 3 cm des parois métalliques de l'enceinte. Les mesures indiquent que l'énergie des ions demeure assez uniforme radialement, mais est plus faible en présence d'un champ magnétique, et inférieure au seuil de pulvérisation de la plupart des matériaux.

On constate par ailleurs, visuellement, un maximum d'intensité lumineuse du plasma à  $r=7\text{ cm}$ , ce qui suggèrent l'existence d'un maximum de champ électrique à cet endroit, ce qui correspondrait à une distribution de champ typique d'une onde de surface utilisant l'interface plasma-diélectrique comme support de propagation. Ainsi, on peut supposer que le maximum de température observé à  $r=7\text{cm}$ , résultant d'un maximum de champ électrique, mène à une plus grande fréquence d'ionisation du gaz dans cette région. Les particules chargées ainsi produites diffusent alors vers l'axe et les parois du réacteur. La perte de ces particules peut se faire en volume par des pertes en attachement (pour les électrons) et de recombinaison dissociative ou sur les parois par neutralisation mutuelle des charges.

Nous pouvons de plus, à l'aide de la valeur absolue de la densité d'ions positifs, estimer le degré d'ionisation du plasma, et justifier ainsi son appellation de source à haute densité. Au centre de la décharge dans le tube de quartz, pour une pression de 1 mtorr, il s'établit à 0.3% environ, tandis que dans l'enceinte métallique pour une intensité du champ magnétique de 875 gauss, le degré d'ionisation est de 0.12 % sur un rayon de 0 à 5 cm, et de 0.3% à l'emplacement du pic de densité à 7 cm.



**Figure II.2. Profils radiaux de la densité d'ions positifs (a), de la température électronique (b) et du potentiel du plasma (c) à une position axiale de  $z=44\text{cm}$ , et une pression de gaz de chlore de 1 mtorr. On considère ici deux valeurs de l'intensité du champ magnétique, 875 et 0 gauss. La puissance absorbée est de 250 W.**

## II) *Influence des conditions opératoires sur les caractéristiques du plasma.*

Comme les propriétés du plasma sont à peu près uniformes sur un diamètre de 8 à 10 cm comme nous venons de le montrer, nous allons maintenant nous attarder à l'étude du plasma seulement sur l'axe (c'est à dire à  $r=0$  cm). Les prochains paragraphes auront pour l'objet l'étude de l'évolution des paramètres du plasma en fonction des conditions opératoires, à savoir la pression, le champ magnétique et la puissance absorbée par le plasma.

### 1) Influence de la pression du gaz

La **Figure II.1** présente les variations en fonction de la pression, du potentiel du plasma (a), celui-ci étant mesuré par rapport au potentiel flottant, de la température électronique (b) et de la densité d'ions positifs (c), pour un champ magnétique de 875 gauss et à une position axiale de  $z=44$ cm.

Sur la **Figure II.1(a)**, on constate une diminution du potentiel plasma de 14 Volts environ à 0.1 mtorr à 10 Volts entre 1 et 3 mtorr. Ce résultat montre que le bombardement ionique est très faible comparativement aux décharges capacitatives, où l'énergie libérée lors du bombardement peut être de quelques centaines d'électronvolts.

Sur la **Figure II.1(b)**, on constate que  $T_e$  diminue de 3.5 à 2.5 eV entre 0.1 et 1 mtorr environ, puis augmente légèrement par la suite. Le fait que la température électronique diminue lorsque la pression croît est typique des plasmas contrôlés par diffusion. L'accroissement de  $T_e$  observé au-dessus de 1 mtorr indique que les pertes de particules chargées résultent d'autres mécanismes que la diffusion, à savoir la recombinaison en volume et l'attachement. La température électronique tend à adopter une valeur qui permet à la fréquence d'ionisation d'égaliser la fréquence d'attachement.

La densité d'ions positifs augmente, quant à elle, de 0.1 à 0.5 mtorr où on observe que le nombre d'ions passe par un maximum ( $7.5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ ), pour ensuite diminuer malgré un apport plus grand de molécules neutres. Dans le cas des ions positifs, les pertes sont régies soit par la diffusion, soit par la recombinaison (plus importantes à pression élevée) avec les électrons ou avec les ions négatifs. Nous observons donc que pour de pressions inférieures à 1 mtorr environ, les pertes d'ions positifs sont principalement régies par la diffusion tandis qu'à des pressions supérieures à 1 mtorr, les pertes des ions positifs sont régies principalement par les phénomènes de recombinaison. Une telle diminution de la densité

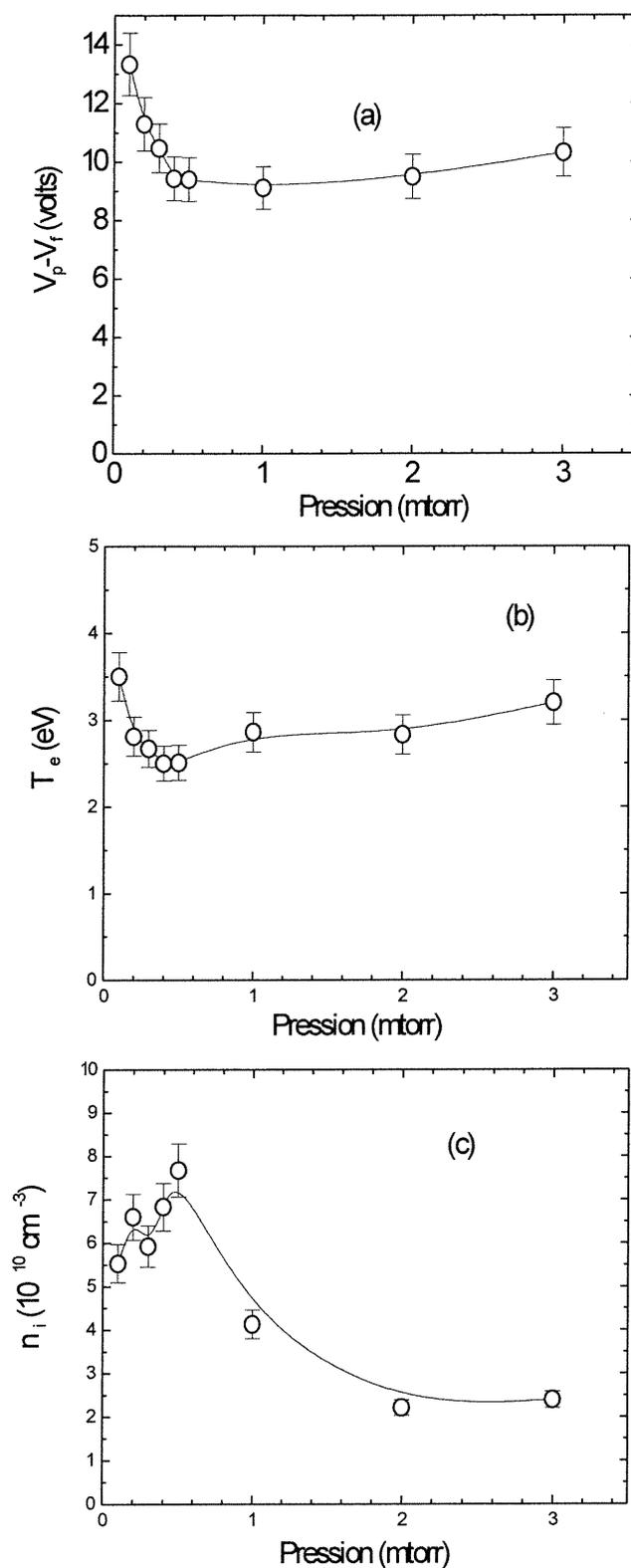
d'ions positifs, avec l'augmentation de la pression dans un plasma de chlore, a déjà été rapporté dans la littérature scientifique.

Ono et al [1] ont déterminé la densité ionique, la température électronique et les potentiels du plasma et flottant, pour une décharge RCE opérant à 2.45 GHz dans le chlore, à l'aide d'une sonde plane placée perpendiculairement au champ magnétique. Ils ont observé une augmentation de la densité ionique avec la décroissance de la pression de 10 à 1 mtorr. De plus, les mesures du potentiel du plasma et du potentiel flottant ont permis d'estimer le potentiel de gaine à environ 20 eV.

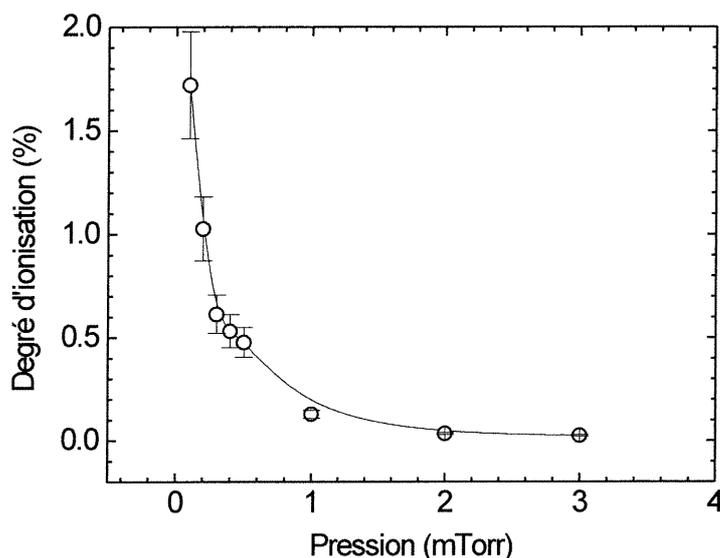
Ono et al [2], sur le même réacteur, ont mis en évidence une diminution de l'intensité de la raie d'émission des ions positifs de chlore atomique ( $\text{Cl}^+$ :413.2 nm) et moléculaire ( $\text{Cl}_2^+$ : 454.9 nm) entre 0.2 et 10 mtorr.

L'ensemble de ces articles montrent que dans des réacteurs de conception très différente, mais qui ont en commun de fonctionner à basse pression en présence d'un champ magnétique (des sources à haute densité), on observe le même comportement des paramètres du plasma, et avec des ordres de grandeurs équivalentes. Ceci ne fait que confirmer les résultats obtenus dans notre réacteur non conventionnel, et ainsi montrer que la décharge fonctionne de façon similaire aux autres décharges haute densité et basse pression.

Finalement, nous pouvons estimer le degré de d'ionisation du gaz de chlore dans notre réacteur haute densité. La **Figure II.2** présente l'évolution du degré d'ionisation sur l'axe du plasma en fonction de la pression, pour un champ magnétique de 875 gauss et une puissance de 270 Watts à une position axiale de  $z=44\text{cm}$ . Nous constatons que le degré d'ionisation décroît avec l'augmentation de la pression, passant de 1.7% à 0.1 mTorr pour atteindre 0.12% à 1 mTorr et moins de 0.1% au delà.



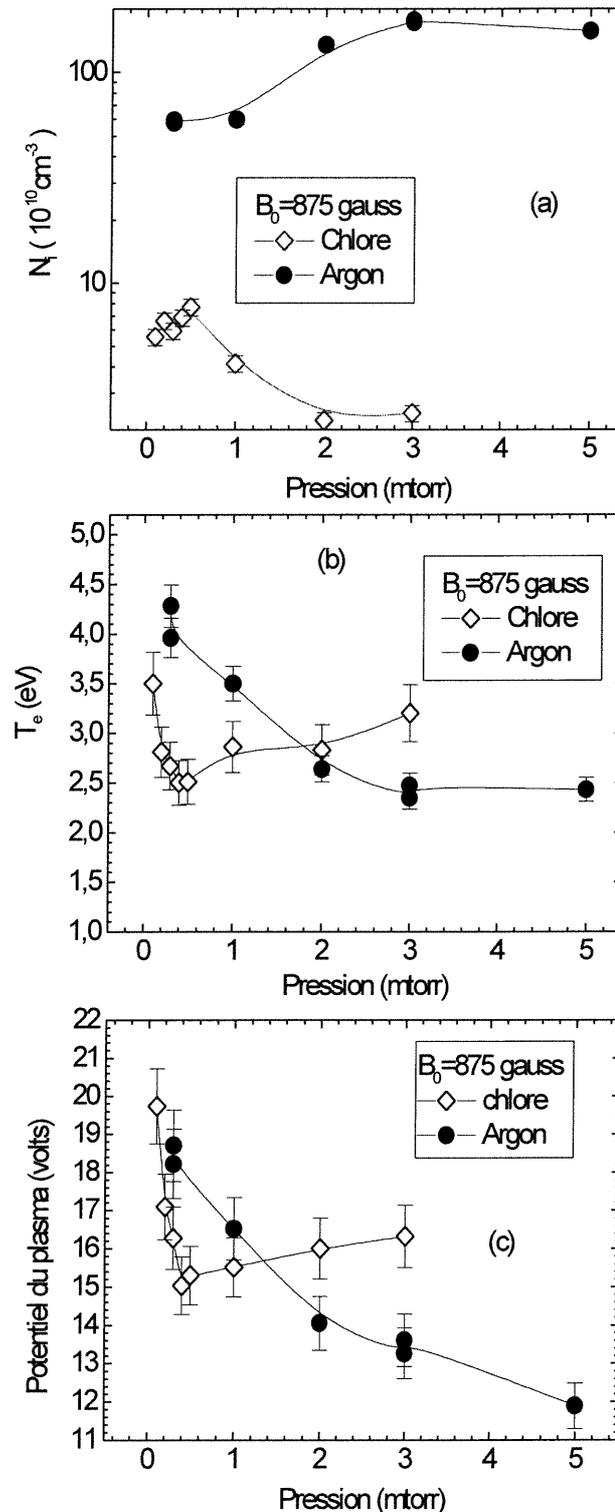
**Figure II.1. Evolution de l'énergie des ions (a), de la température électronique (b) et de la densité d'ions positifs (c) en fonction de la pression. Le champ magnétique est de 875 gauss et la mesure est prise à  $r=0\text{cm}$  et  $z=44\text{cm}$ . La puissance absorbée par la plasma est de 250 watts.**



**Figure II.2. Variation du degré d'ionisation en fonction de la pression à une position de  $r=0\text{cm}$  et  $z=44\text{cm}$ , pour un champ magnétique de 875 gauss, et une puissance absorbée de 250 W dans un plasma de chlore.**

Parce qu'il est évident que les caractéristiques d'un gaz électronégatif diffèrent de celles d'un gaz électropositif, nous allons maintenant comparer ces mêmes caractéristiques électriques entre le plasma de chlore et celui d'argon. La Figure II.3 présente les profils de la densité d'ions positifs (a), de la température électronique (b) et du potentiel du plasma (c) pour le chlore et l'argon en fonction de la pression. Le comportement de la densité d'ions positifs est totalement différent dans les deux gaz. Pour le chlore, elle décroît avec la pression, sous l'effet de pertes additionnelles à la diffusion comme l'attachement, pour passer de  $7.10^{10}\text{ cm}^{-3}$  pour 0.5 mtorr, à  $2.10^{10}\text{ cm}^{-3}$  pour 3 mtorr. Par contre, dans le cas de l'argon,  $n_i$  augmente avec la pression pour passer de  $6.10^{11}\text{ cm}^{-3}$  à  $1.7\ 10^{12}\text{ cm}^{-3}$ . La Figure II.3(b) présente l'évolution de la température électronique pour les deux gaz en fonction de la pression. La température électronique dans le cas du chlore est plus faible que pour l'argon ce qui peut être attribué aux plus grandes sections efficaces de collisions inélastiques dans le cas de la molécule de chlore [3] comparativement à l'argon. Elle diminue de 3.5 eV pour 0.1 mtorr, à 2.5 eV pour 1 mtorr, pour ensuite remonter à 3 eV à 3 mTorr. Pour l'argon, la température électronique décroît avec la pression, ce qui est caractéristique d'un plasma contrôlé par la diffusion, les pertes par diffusion variant comme  $\frac{1}{p}$ . Il en résulte que la fréquence d'ionisation, diminue comme  $\frac{1}{p}$ . La température électronique varie de 4.2 eV à 0.3 mtorr, jusqu'à 2.5 eV pour 5 mtorr. Nous constatons que pour les basses pressions le potentiel du plasma est plus faible

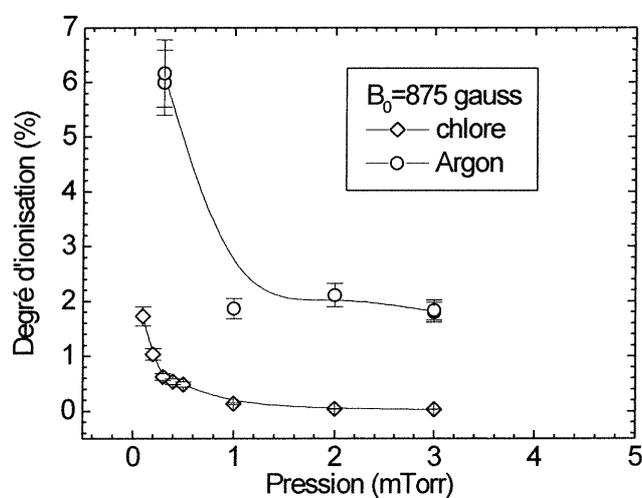
pour le chlore que l'argon. Le potentiel plasma diminue avec l'augmentation de la pression de 20 volts à 15 volts pour le chlore, pour ensuite légèrement remonter autour de 16 volts à 3 mtorr et diminue de 19 à 12 volts pour l'argon.



**Figure II.3. Profils de la densité d'ions positifs (a), de la température électronique (b), du potentiel du plasma (c) en fonction de la pression et pour un gaz d'argon et de chlore. Le champ magnétique était de 875 gauss et la puissance absorbée par le plasma de 250 W.**

Nous remarquons que, pour les conditions de pression étudiées, les variations du potentiel du plasma suivent celles de la température électronique, c'est-à-dire que le rapport du potentiel du plasma sur la température électronique demeure à peu près constant, s'établissant aux alentours de 5 pour l'argon et de 6 pour le chlore. En absence de champ magnétique et d'ions négatifs, les théories de sonde montrent que ce rapport est fonction de l'inverse de la racine carrée de la masse ionique. En nous servant des mesures faites dans l'argon, nous pouvons estimer la masse ionique dans le cas des mesures dans le chlore, à l'aide de ce rapport. En considérant un rapport du potentiel du plasma sur la température électronique de 6, nous obtenons une masse ionique d'environ 28 uma. Cette valeur est bien sûr inférieure à la masse de l'ion atomique (35.5 uma). Néanmoins, comme la masse ionique calculée est assez voisine de celle du chlore atomique, on peut supposer que l'ion majoritaire est le  $\text{Cl}^+$ . La différence observée est représentative de la contribution du champ magnétique et de la présence d'ions négatifs.

Comme précédemment, la valeur absolue de la densité d'ions positifs donne une indication du degré d'ionisation de notre plasma, donc donne une justification à l'appellation de source à haute densité. La Figure II.4 présente le degré d'ionisation au sein de notre réacteur pour les deux gaz, argon et chlore. Nous constatons que pour les deux types de gaz, le degré d'ionisation décroît avec l'augmentation de la pression. Il est plus faible toutefois dans le chlore passant de 1.7% à 0.1 mtorr pour atteindre 0.12% à 1 mtorr et moins de 0.1% au delà. Dans l'argon, il est de 6% à 0.3 mtorr et diminue à 2% pour une pression de 3 mtorr.



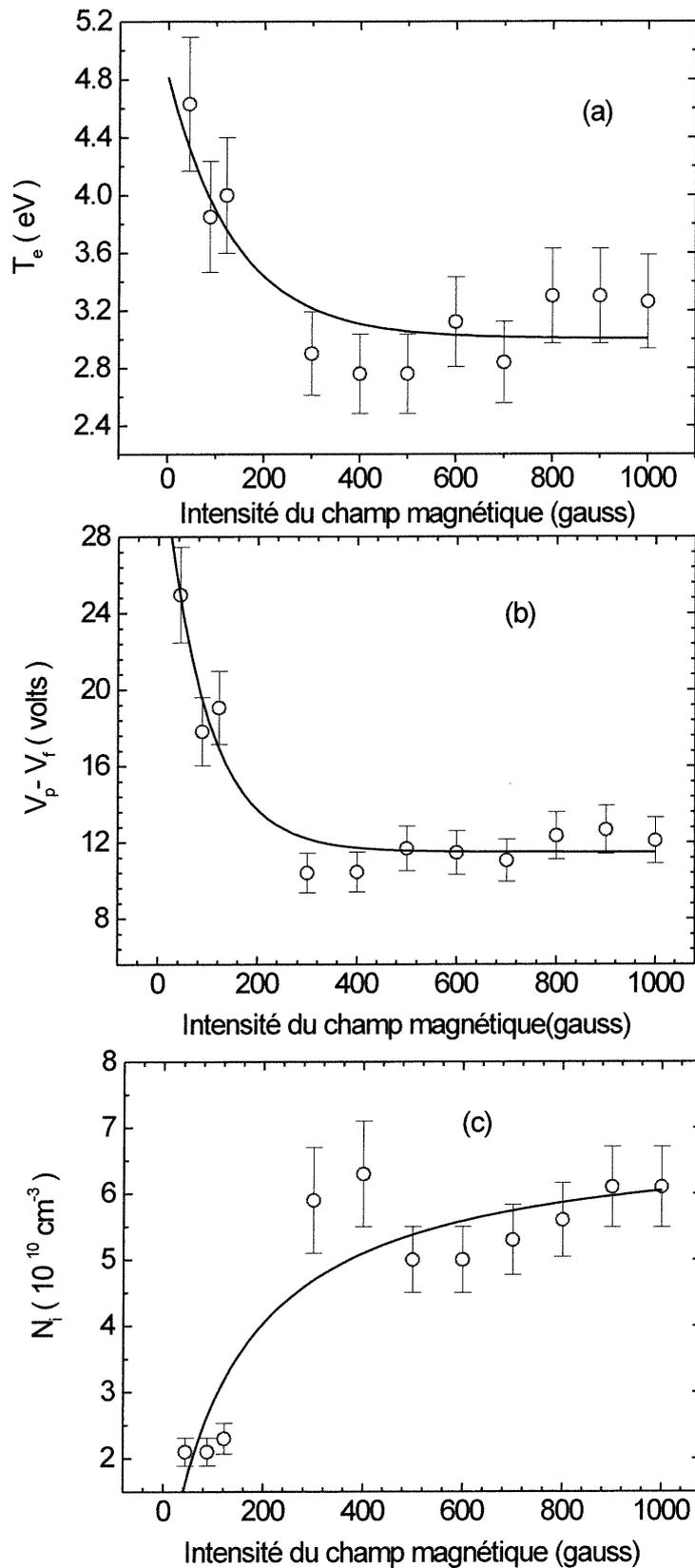
**Figure II.4. Variation du degré d'ionisation en fonction de la pression pour un plasma de chlore et un plasma d'argon.**

## 2) Influence du champ magnétique

Comme nous l'avons dit dans le chapitre 2, notre réacteur offre une grande souplesse en ce qui concerne les conditions opératoires. Nous pouvons travailler dans une grande gamme de pressions, mais aussi de champ magnétique puisque l'intensité de celui-ci peut être variée de zéro à 1000 gauss. Ceci nous permet donc d'étudier l'effet de l'intensité du champ magnétique sur les caractéristiques du plasma.

Des expériences ont été réalisées à une position axiale de  $z=44\text{cm}$  et  $z=16\text{cm}$  pour deux pressions de 0.5 et 1 mTorr pour les deux positions axiales. Les profils obtenus présentant les mêmes tendances, nous présentons à la Figure II.1, les variations avec l'intensité du champ magnétique de la température électronique (a), du potentiel du plasma par rapport au potentiel flottant (b) et de la densité d'ions positifs (c), pour une pression de 0.5 mTorr et une position axiale de  $z=16\text{ cm}$ . C'est à cette pression que nous obtenons la densité d'ions positifs la plus importante comme nous l'avons vu dans le paragraphe 1).

Nous observons donc une diminution de la température électronique de 4.8 eV à 50 gauss jusqu'à environ 3 eV pour des valeurs de champ magnétique de 400 à 1000 gauss. Nous observons par ailleurs le même profil pour l'énergie des ions [ $e(V_p-V_f)$ ] qui diminue d'une vingtaine d'électronvolts à 50 gauss jusqu'à une dizaine d'électronvolts entre 400 et 1000 gauss. Le rapport de l'énergie des ions sur la température électronique reste constant pour les différentes valeurs de l'intensité du champ magnétique autour de 4. La diminution de la température électronique avec l'intensité du champ magnétique est dû au moindre pertes d'électrons par diffusion sur les parois. Le champ magnétique contraint les électrons à suivre une trajectoire hélicoïdale axiale et limite ainsi leur transport radial. On constate par contre l'apparition d'un plateau autour de 3 eV à partir d'un champ magnétique de 400 gauss environ. Ce plateau indique qu'à partir de cette valeur de l'intensité du champ magnétique, ce sont les pertes par diffusion axiales qui régissent les pertes électroniques. Ainsi, l'augmentation de l'intensité du champ magnétique au-delà de 400 gauss ne modifie plus l'évolution de la température électronique puisqu'elle ne contrôle que les pertes par diffusion radiale. Quand au profil de la densité d'ions positifs, il augmente pour ensuite présenter un plateau (en tenant compte de l'erreur de mesure estimée à 15 %) entre 400 et 1000 gauss. La densité  $n_i$  est d'environ  $2.10^{10}\text{ cm}^{-3}$  pour 50 gauss et le plateau se trouve autour de  $5.10^{10}\text{ cm}^{-3}$  entre 400 et 1000 gauss. L'évolution du profil de densité des ions positifs est attribuée directement à l'évolution de la température électronique puisque la création d'ions positifs se fait principalement par collisions électroniques.



**Figure II.1. Profils de la densité d'ions positifs (a), de la température électronique (b), et du potentiel du plasma se référant au potentiel flottant, en fonction de l'intensité du champ magnétique. Les mesures étaient prises à  $z=16$  cm pour une pression de 0.5 mTorr et une puissance absorbée de 250 W.**

### 3) Influence de la puissance HF

La Figure II.1 présente les variations en fonction de la puissance de la température électronique (a), du potentiel du plasma par rapport au potentiel flottant (b) et de la densité d'ions positifs (c) pour un champ magnétique de 700 Gauss et une pression de 0.5 mTorr. Nous observons une décroissance très marquée de la température électronique et de l'énergie des ions avec la puissance. La température électronique passe de 4.5 eV à 50 watts, à 2.2 eV à 600 watts. Quant à l'énergie des ions  $[e(V_p - V_f)]$ , elle diminue, passant de 15 eV à 50 watts, à 8 électronvolts pour 600 watts.

La présence d'ions négatifs modifie le transport des charges. En effet, la diffusion ambipolaire classique n'est plus valable. Le fait que le plasma ait des dimensions finies axialement, induit un gradient de densité axial et donc un flux de particules vers les parois défini par

$$\phi = -D\bar{\nabla}n \quad 1.$$

Le coefficient de diffusion est inversement proportionnel à la masse des particules ; le flux d'électrons vers les parois est donc plus important que celui des ions, donc leurs pertes plus grandes. Aussi, pour conserver l'électroneutralité du plasma, un champ de charge d'espace se crée de façon à ralentir les électrons et accélérer les ions positifs. Dans le cas d'un plasma électronégatif, les ions négatifs ayant une vitesse proche de celle des ions positifs, le gradient de champ de charge d'espace est moins important.

De plus, la présence des ions négatifs modifie le critère de Böhm. Le mouvement thermique est plus important pour les électrons que pour les ions. Pour la même raison que la diffusion, une gaine électrique se crée autour de tout conducteur présent dans le plasma. La présence d'ions négatifs limite l'accélération nécessaire et donc modifie les paramètres de la gaine. Les ions ont une vitesse à l'entrée de la gaine  $v_s$  définie par

$$v_s = \sqrt{\frac{eT_e}{M_i}} \quad 2.$$

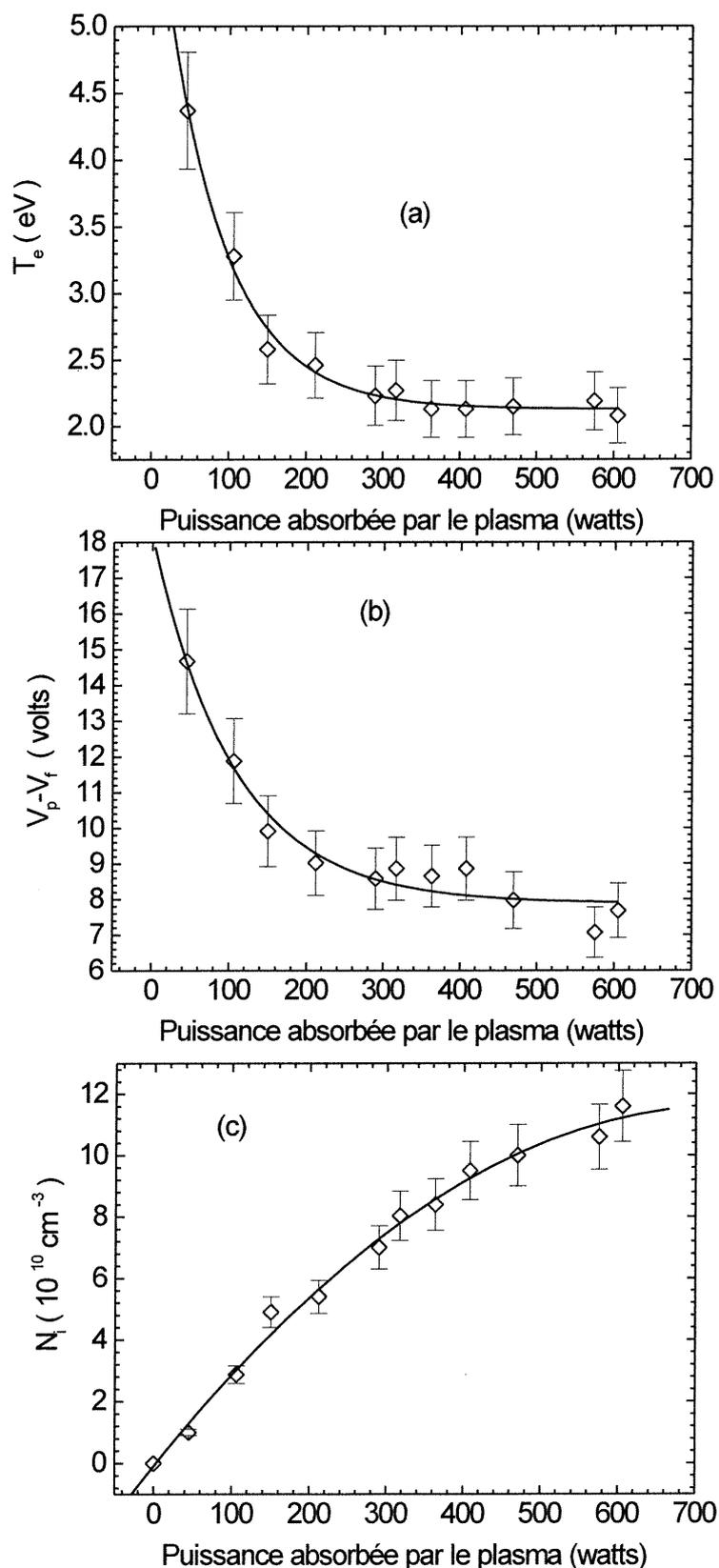
En présence d'ions négatifs, cette vitesse (critère de Bohm) est modifiée et devient

$$v_s = \sqrt{\frac{eT_e(1 + \alpha_s)}{M_i(1 + \alpha_s\gamma)}} \quad 3.$$

avec  $\alpha_s = n/n_e$  et  $\gamma = T_e/T_i$ , la densité des ions négatifs pouvant être importante, ainsi que le rapport des températures  $\gamma$ , la vitesse des ions positifs à l'entrée de la gaine est donc moins importante que dans un plasma électropositifs, ce que corrobore nos résultats en fonction de la puissance HF. Nous constatons bien une diminution de l'énergie des ions collectés par notre sonde électrostatique. La température des électrons est, quant à elle, plus faible car avec l'augmentation de la puissance, les pertes électroniques diminuent (i.e. moins d'ions négatifs à haute puissance). En effet, celle-ci diminue avec l'augmentation de la puissance, pour atteindre un plateau à partir d'environ 300 watts. On assiste, *a priori*, à la transition entre un régime dominé par l'attachement à faible puissance et un régime dominé par les pertes par diffusion à haute puissance (température alors indépendante de la puissance).

La densité d'ions positifs augmente de manière quasi-linéaire dans la gamme de puissance étudiée, atteignant pour 600 watts une valeur de  $1.10^{11} \text{ cm}^{-3}$ . On observe donc que plus la puissance absorbée est grande, plus la densité d'ions positifs est grande, ce qui s'explique par un meilleur taux de dissociation du gaz dans la source, à pression constante.

On peut donc dire que l'augmentation de la puissance peut permettre d'avoir une plus grande densité d'ions positifs, mais que ça ne se traduit pas par de plus grands dommages du matériau dûs à une énergie des ions trop importante. En effet, même pour des puissances de près de 600 watts, l'énergie des ions ne dépasse pas une dizaine d'électronvolts.



**Figure II.1. Profils de la densité des ions positifs (a), de la température électronique (b), et de l'énergie des ions (c), en fonction de la puissance absorbée par le plasma. Le champ magnétique avait pour valeur 700 gauss et la pression 0.5 mtorr. La mesure était à  $r=0$  cm et  $z=44$ cm.**

### III. Etude de la population des ions négatifs

Le chlore est un gaz fortement électronégatif, il est donc raisonnable de penser que la densité des ions négatifs puisse être importante dans notre expérience. La configuration orbitale du chlore atomique dans son état fondamental est  $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^5$ , ce qui correspond en couplage L.S au doublet  $^3P_{3/2,1/2}$ . Il ne manque qu'un électron pour que sa sous-couche 3p soit complète. Par conséquent, le chlore possède une grande affinité électronique, ou électronégativité : il capture facilement un électron. L'énergie libérée par cet attachement électronique, sous forme de radiation ou emportée par un tiers corps, est égale à la somme de l'énergie d'affinité électronique du chlore, soit 3.617 eV, [6] et de l'énergie cinétique de l'électron incident.

Nous allons dans le cadre du prochain paragraphe étudier l'importance de la population des ions négatifs, ainsi que l'influence des diverses conditions opératoires extérieures sur ceux-ci. Pour cela, nous avons utilisé deux diagnostics, tout d'abord le photodétachement induit par laser (qui est le diagnostic de référence pour l'étude des ions négatifs), puis les ondes ionosonores qui permettent d'accéder à la population des ions négatifs avec une plus grande simplicité du point de vue pratique que le photodétachement.

Avant de présenter l'étude de l'évolution de la population des ions négatifs en fonction des conditions opératoires, nous allons nous attarder sur la validation de la technique d'ondes ionosonores dans le prochain paragraphe. En effet, celle-ci a d'ores et déjà été utilisée pour l'étude d'un magnétoplasma de  $SF_6$  par Louis.St.Onge [5]. Comme nous l'avons montré dans le cadre du chapitre II, la théorie des ondes ionosonores nécessite la connaissance de la température électronique, de la température ionique, mais aussi de la masse des ions positifs et des ions négatifs. La complexité de la molécule de  $SF_6$ , rend complexe l'estimation des masses effectives des ions positifs et négatifs, et conduit à une incertitude quant à la validité de la technique des ondes acoustiques pour l'étude du gaz de  $SF_6$ . Ces masses avaient été estimées à l'aide des expériences effectuées par Petit et Pelletier dans un réacteur RCE multipolaire travaillant à 0.1 mtorr dans un gaz de  $SF_6$  [4]. Dans le cas de notre plasma de chlore moins complexe dans sa composition, dans la gamme de pressions étudiées, les expériences de spectroscopie optique et plus particulièrement la technique d'actinométrie, mettent en évidence un fort taux de dissociation dans notre réacteur. Cette constatation permet

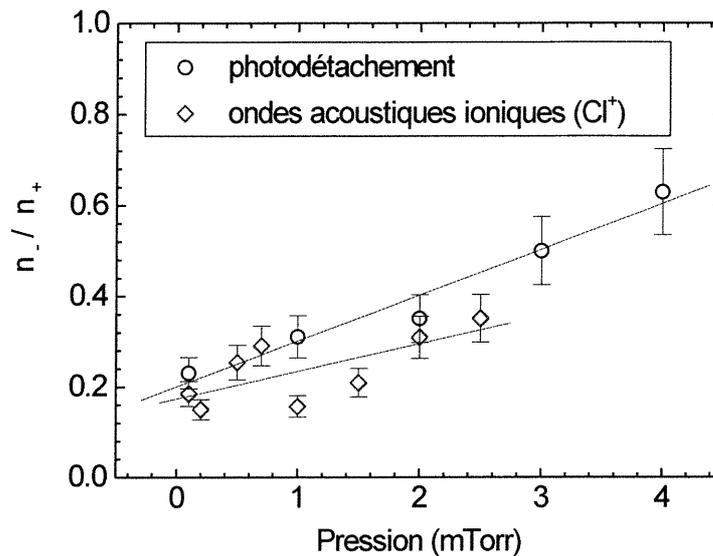
raisonnablement de supposer que l'ion majoritaire est l'ion  $\text{Cl}^+$  de masse égale à 35.45 uma, pour analyser les ondes ionosonores.

### ***l) Validation de la technique des ondes ionosonores***

Afin de valider la technique de propagation des ondes acoustiques, nous avons procédé à l'étude de l'évolution du rapport  $n_-/n_+$  en fonction tant de la pression que de l'intensité du champ magnétique à l'aide de la technique de photodétachement (le diagnostic de référence de l'étude des ions négatifs) et avons comparé les résultats obtenus par les deux techniques pour les mêmes conditions opératoires.

#### **1) Influence de la pression du gaz de $\text{Cl}_2$**

La Figure III.1 montre l'évolution du rapport  $n_-/n_+$  en fonction de la pression, pour un champ magnétique de 875 gauss et une puissance absorbée de 250 watts. Cette figure montre à la fois les résultats obtenus au moyen des ondes acoustiques et du photodétachement par laser. Dans la gamme de pression explorée à l'aide de la technique de propagation d'ondes acoustiques ioniques, nous constatons que les résultats sont en assez bon accord avec la technique de photodétachement induit par laser. Les mesures d'ondes ionosonores n'ont pu être faites que jusqu'à une pression de 2.5 mTorr. En effet, pour des pressions supérieures, l'onde acoustique était beaucoup trop amortie. Même si nous privilégions la technique de photodétachement pour l'étude de la population des ions négatifs, puisqu'elle est plus directe, il n'en reste pas moins que les deux méthodes révèlent le même comportement qualitatif de  $n_-/n_+$ .

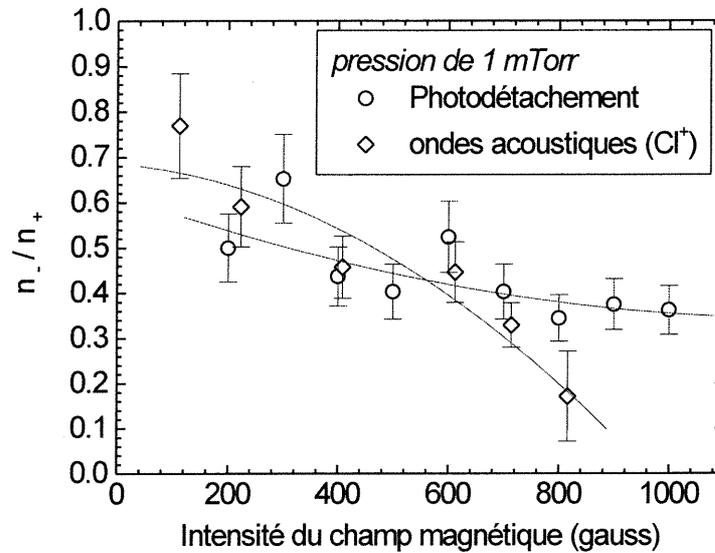


**Figure III.1. Influence de la pression du gaz de Cl<sub>2</sub> sur le rapport  $n_- / n_+$ , pour les techniques de photodétachement et d'ondes ionosonores à une position axiale de  $z=40\text{cm}$  et radiale  $r=0\text{cm}$ , pour une champ magnétique de 875 gauss et une puissance absorbée de 250 watts.**

## 2) Influence de l'intensité du champ magnétique

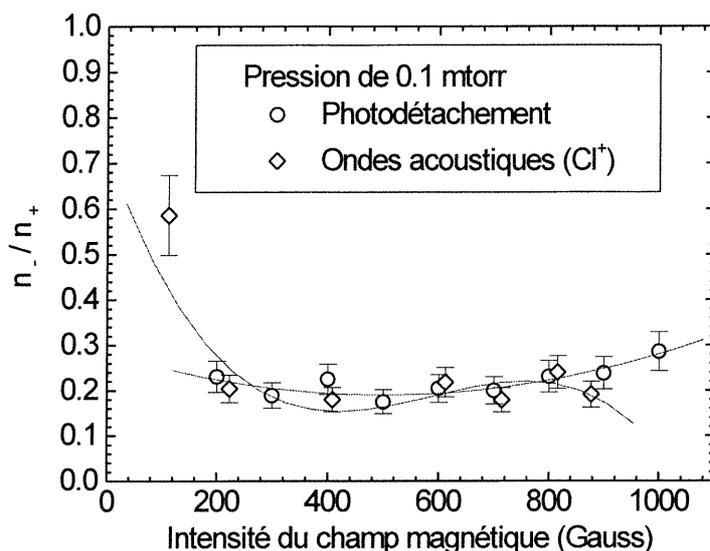
Comme pour l'étude de l'influence de la pression, des expériences menées en fonction de l'intensité du champ magnétique ont permis de valider la technique de propagation d'ondes acoustiques en comparaison avec la méthode de référence qu'est le photodétachement. Sur la Figure III.1, nous pouvons constater que pour des intensités de champ magnétique comprises entre 200 et 700 gauss, l'accord entre les deux techniques est bon. Pour les valeurs plus faibles du champ magnétique, nous n'avons pas pu faire de mesure avec la technique de photodétachement parce que le courant collecté par la sonde était trop faible. Nous ne pouvons donc pas vérifier l'accord entre les deux méthodes, même si la tendance semble être la bonne. Pour les valeurs de champ magnétique supérieures à 700 gauss, les ondes acoustiques semblent donner une proportion plus faible d'ions négatifs que la méthode de photodétachement. La proportion d'ions négatifs serait donc de 80 % pour un champ magnétique de 100 Gauss pour passer à 30 % environ pour 1000 gauss. La différence entre les deux diagnostics pour des valeurs de champ magnétique supérieures à 700 gauss peut être

attribuée à une mauvaise mesure dans le cas de la technique d'ondes acoustiques, puisque la proportion d'ions négatifs mesurés diminue d'un facteur 2 entre 700 et 800 gauss.



**Figure III.1. Influence de l'intensité du champ magnétique sur le rapport  $n_-/n_+$  par deux méthodes, le photodétachement et les ondes ionosoniques. La mesure était prise à  $z=40$  cm et  $r=0$  cm, pour une pression de 1 mtorr et une puissance absorbée de 250 watts.**

La même expérience a été effectuée à une pression de 0.1 mtorr. Les résultats sont présentés sur la Figure III.2. Dans la gamme de champ magnétique commune aux deux méthodes, l'accord est très bon.



**Figure III.2. Influence de l'intensité du champ magnétique sur le rapport  $n_-/n_+$  par deux méthodes, le photodétachement et les ondes ionosonores. La mesure était prise à  $z=40$  cm et  $r=0$  cm, pour une pression de 0.1 mTorr et une puissance absorbée de 250 Watts.**

Nous voyons donc qu'en général la technique des ondes ionosonores est en bon accord avec la technique de photodétachement dans la gamme de pression et d'intensité du champ magnétique étudié. Le désaccord observé à 1 mTorr pour une intensité de champ magnétique élevé peut être attribué à une erreur de mesure dans le cas de la technique d'ondes acoustiques.

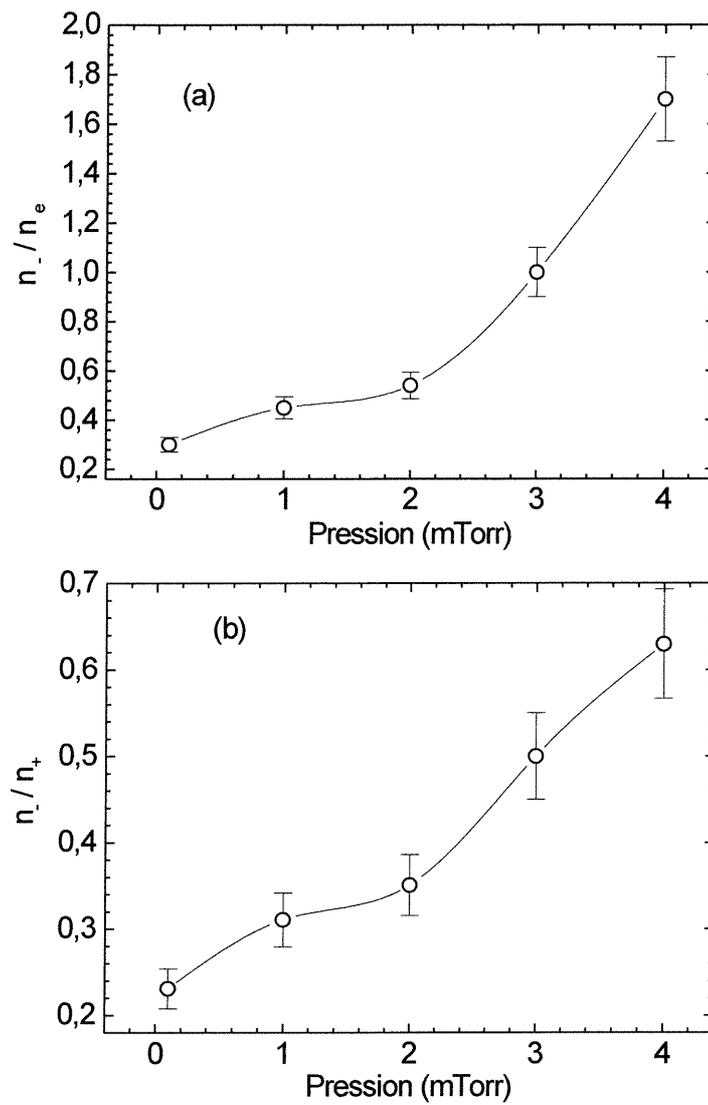
Nous allons, dans le paragraphe suivant, présenter les résultats obtenus d'une part par la méthode de photodétachement en ce qui concerne l'évolution de la population d'ions négatifs en fonction des paramètres extérieurs et par la technique des ondes ionosonores pour l'étude spatiale de la proportion d'ions négatifs. Même si la résolution spatiale de ces mesures reste plus faible que celle de photodétachement (un interférogramme couvrant une distance de 1.5 cm), nous avons préféré cette technique pour effectuer une étude spatiale, d'une part pour sa plus grande facilité de mise en œuvre et d'autre part parce qu'elle nous permettait de couvrir une plus grande distance radiale que la technique de photodétachement (limitée par le diamètre du tube de quartz).

**II) Influence de la pression du gaz**

Nous avons tout d'abord étudié l'influence de la pression  $p$  du gaz de  $\text{Cl}_2$  sur la densité relative des ions négatifs. La Figure III.1 présente la variation en fonction de la pression des rapports  $n_-/n_e$  (a) et  $n_-/n_+$  (b) à une position axiale de  $z=40$  cm, pour  $r=0$  cm et une intensité du champ magnétique de 875 gauss. On trouve que  $n_-/n_e$  augmente avec la pression. Compte tenu des incertitudes de mesures, cette augmentation est quasi-linéaire avec une pente de  $0.34 \text{ mTorr}^{-1}$ . Nous nous bornerons par la suite à présenter les résultats sous la forme du rapport  $n_-/n_+$ , tel qu'illustré à la Figure III.1(b). En effet, Le rapport  $n_-/n_+$  ne peut prendre que des valeurs comprises entre 0 et 1, à cause de l'hypothèse de quasi-neutralité du plasma ( $n_+ = n_- + n_e$ ). Il indique donc la proportion d'ions négatifs parmi l'ensemble de la population de charges négatives (c'est-à-dire,  $n_-/(n_- + n_e)$ ).

$$\frac{n_-}{n_+} = \frac{1}{1 + \left(\frac{n_-}{n_e}\right)^{-1}} \quad 4.$$

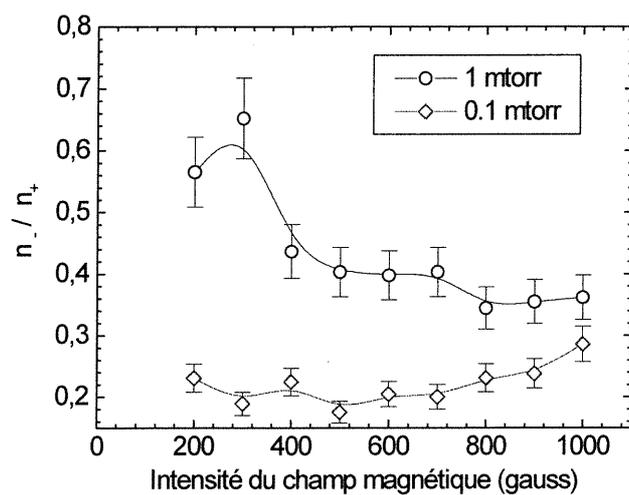
Dans le cadre d'une étude portant sur le  $\text{SF}_6$ , L.St.Onge [5] a montré qu'à 0.5 mtorr, plus de 60 % des charges négatives sont sous la forme d'ions négatifs, pour atteindre jusqu'à 80% à 5 mtorr. Nos résultats illustrent le caractère nettement moins électronégatif du chlore, puisque les ions négatifs représentent un peu moins de 30 % des charges négatives à 0.5 mtorr et 60 % à 4 mtorr. Nous constatons donc que les ions négatifs, dans nos conditions de décharge, ne deviennent majoritaires qu'à des pressions supérieures à 3 mtorr.



**Figure III.1. Influence de la pression du gaz de  $\text{Cl}_2$  sur les rapports,  $n_-/n_e$  (a) et  $n_i/n_+$  (b), à une position axiale de  $z=40\text{cm}$  et radiale  $r=0\text{cm}$ , pour une champ magnétique de 875 gauss et une puissance absorbée de 250 watts.**

### III) *Influence de l'intensité du champ magnétique*

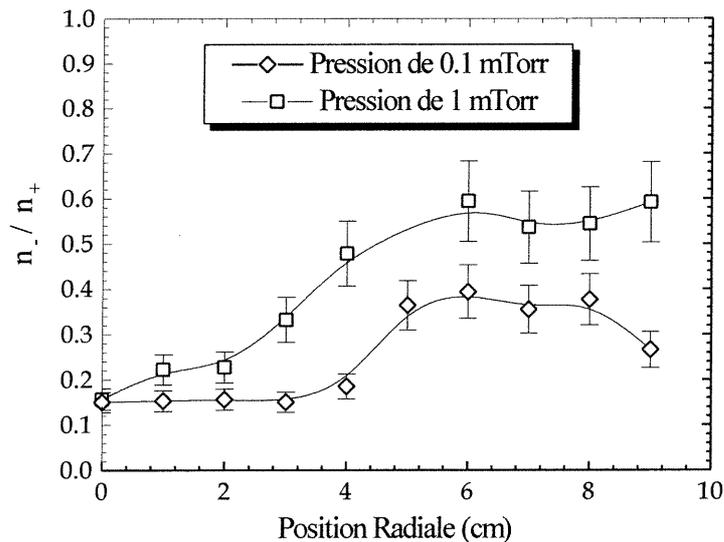
Comme nous l'avons déjà mentionné, la grande souplesse d'utilisation de notre réacteur de gravure nous a permis d'étudier l'influence de l'intensité du champ magnétique sur les caractéristiques du plasma et, en particulier, la population des ions négatifs. Si on représente le rapport  $n/n_+$  en fonction de l'intensité du champ magnétique, tel que montré sur la Figure III.1, on trouve que pour une pression de 0.1 mTorr la proportion d'ions négatifs dans la décharge reste à peu près constante malgré l'augmentation de l'intensité du champ magnétique. La proportion d'ions négatifs s'établit autour de 20 % des charges négatives. Cela peut s'expliquer certainement par la faible proportion d'ions négatifs dans la décharge, à cette pression donnée. Par contre, à 1 mTorr, on constate une diminution de la proportion d'ions négatifs avec l'augmentation de l'intensité du champ magnétique. Cela peut s'expliquer en termes de pertes électroniques par diffusion sur les parois. En effet, l'utilisation du champ magnétique est justifiée afin de limiter les pertes par diffusion des électrons et donc des particules chargées en général. Pour de faibles valeurs du champ magnétique, les pertes électroniques par diffusion sont plus importantes, et favorisent ainsi, afin de respecter l'hypothèse de quasi-neutralité, l'augmentation de la proportion d'ions négatifs dans la décharge. On constate tout de même (comme pour les autres paramètres du plasma), l'apparition d'un plateau dans le profil du rapport  $n/n_+$  à partir de 400 gauss, ce qui impliquerait que, pour des intensités du champ magnétique supérieures à 400 gauss (toujours pour une pression de 1 mTorr), la proportion d'ions négatifs reste quasi-constante.



**Figure III.1. Influence de l'intensité du champ magnétique sur le rapport  $n_e/n_+$ . La mesure était prise à  $z=40$  cm, et pour une puissance absorbée de 250 watts.**

#### IV) Distribution radiale de la proportion d'ions négatifs

La Figure III.1 montre pour deux pressions, le profil radial de  $n_-/n_+$  à  $z=40$  cm, pour un champ magnétique de 875 Gauss. On trouve que le rapport  $n_-/n_+$  augmente avec la position radiale, définissant ainsi deux régions de plasmas différentes suivant la position radiale. En effet, entre 0 et 4 cm pour une pression de 1 mTorr, le plasma reste principalement électropositif, c'est-à-dire  $n_e \approx n_+$ , pour ensuite passer, entre 4 et 9 cm (c'est à dire en s'approchant des parois), à un plasma électronégatif où les ions négatifs sont les charges négatives majoritaires. Cette relative importance de la proportion des ions négatifs en s'approchant des parois, résulte du lent transport radial des électrons. En effet, sous l'effet du champ magnétique, les électrons suivent les lignes de champs, imposant ainsi aux ions négatifs une faible vitesse de diffusion radiale. Cet inhomogénéité du transport radial des électrons favorisent un plasma divisé en deux parties, une à composante majoritairement électropositive et l'autre majoritairement électronégative. Mais les propriétés du plasma restent tout de même uniforme sur une assez grande région ( $r \leq 3$ cm), au centre de celui-ci.



**Figure III.1. Profil radial du rapport  $n_-/n_+$  pour deux pressions de 1 et 0.1 mTorr, à une position de  $z=40$  cm. L'intensité du champ magnétique était de 875 gauss et la puissance absorbée de 250 watts.**

**V) Discussion**

1) Mécanismes de formation et de perte des espèces chargées dans les plasmas de chlore.

Les processus régissant l'équilibre des *ions négatifs* sont:

- ✓ *L'attachement électronique*, c'est-à-dire la capture d'un électron par une molécule ou un atome possédant une affinité électronique positive.
- ✓ *Le détachement électronique*, la réaction inverse de l'attachement où, en fournissant une énergie suffisante, on peut arracher un électron à l'ion négatif.
- ✓ *La recombinaison ion-ion*, c'est à dire la neutralisation mutuelle d'un ion négatif et d'un ion positif.
- ✓ *La diffusion*, c'est à dire les pertes par diffusion vers les parois.

La diffusion correspond à la perte des ions négatifs sur les parois du réacteur (par recombinaison ion-ion), les particules chargées se neutralisant sur la paroi. Bien sûr, ce mécanisme de perte est fonction de la pression, des dimensions du réacteur, du champ magnétique, ainsi que de la proportion d'ions négatifs dans la décharge.

Le processus de formation de l'ion  $\text{Cl}^-$  qui est l'ion négatif majoritaire puisque l'ion  $\text{Cl}^{2-}$  est trop instable, est l'attachement électronique. Bien qu'il existe deux sortes d'attachement électronique (dissociatif et non dissociatif), seul l'attachement dissociatif forme l'ion  $\text{Cl}^-$ .

Les processus régissant l'équilibre des *électrons* sont :

- *L'ionisation*, création d'un ion positif et d'un électron.
- *L'attachement* (voir précédemment).
- *Le détachement* (voir précédemment).
- *La diffusion*, c'est-à-dire les pertes par diffusion vers les parois.

Les processus régissant l'équilibre des *ions positifs* sont :

- L'ionisation (voir précédemment).
- *La recombinaison ion-ion* (voir précédemment).
- *La diffusion*.

(i) attachement

L'électron va être capturé par une molécule qui va se dissocier en formant un ion négatif. L'attachement est dissociatif (seuil en énergie à 11.87 eV):



(ii) Détachement électronique

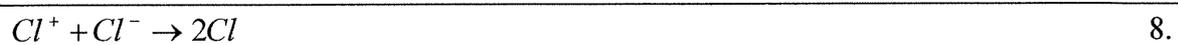
Il existe deux façons de détacher un électron

- ✓ L'autodétachement qui est la relaxation spontanée d'un état excité de l'ion négatif
- ✓ Le détachement collisionnel (seuil en énergie à 3.61 eV):



(iii) Recombinaison ion-ion

C'est l'interaction entre deux ions pour reformer une molécule ou des atomes.



(iv) Ionisation

C'est l'interaction entre un électron et une espèce neutre et la création d'une espèce chargée et d'un électron.



ou



ou aussi l'ionisation dissociative



2) Equations d'équilibre :

Nous pouvons donc écrire les équations d'équilibre pour chaque espèces chargées, c'est-à-dire respectivement les électrons, les ions positifs et les ions négatifs. Nous ne considérerons pas le processus de détachement pour simplifier les équations d'équilibre.

$$n_e k_i N = n_e k_a N + n_e \nu_{D_e} \quad 12.$$

$$n_e k_i N = n_- n_+ k_r + n_+ \nu_{D_+} \quad 13.$$

$$n_e k_a N = n_- n_+ k_r + n_- \nu_{D_-} \quad 14.$$

où  $k_i$ ,  $k_a$ ,  $k_r$ , sont respectivement les taux d'ionisation, d'attachement et de recombinaison,  $\nu_{D_e}$ ,  $\nu_{D_+}$ ,  $\nu_{D_-}$  étant les fréquences de perte par diffusion des électrons, des ions positifs et des ions négatifs. Les densités du gaz, des électrons, des ions positifs et des ions négatifs sont respectivement  $N$ ,  $n_e$ ,  $n_+$ ,  $n_-$ . Les taux d'ionisation et d'attachement varient en fonction de la

température électronique. Le taux d'ionisation augmente, tandis que celui d'attachement diminue avec l'augmentation de la température électronique.

Considérons l'équation d'équilibre des électrons, soit :

$$k_i = \frac{v_{D_e}}{N} - k_a \quad 15.$$

Examinons le comportement de l'équation (15) avec la pression. Lorsque celle-ci est faible, le terme de diffusion domine. Il en résulte que la température électronique diminue lorsque la pression croît. Lorsque la pression devient suffisamment élevée pour que le terme d'attachement devienne dominant, la température électronique devient alors indépendante de la pression et fixée uniquement par l'équilibre entre l'ionisation et l'attachement, d'où l'apparition d'un quasi-plateau de la température électronique à haute pression. L'accroissement de l'intensité du champ magnétique joue un rôle tout à fait similaire à celui de la pression puisqu'il fait diminuer le terme de diffusion. On observe toutefois un minimum tant en fonction de la pression que du champ magnétique qui ne peut être expliqué avec ce modèle. On pourrait l'attribuer à l'apparition d'autres canaux d'ionisation, mais aussi au phénomène de détachement qui peut être une source d'électrons non négligeable.

Considérons l'équation d'équilibre des ions positifs, soit à basse pression (les pertes sont principalement contrôlées par les pertes par diffusion) :

$$n_+ = \frac{n_e k_i}{v_{D_+}} N \quad 16.$$

Nous voyons donc que l'augmentation de l'intensité du champ magnétique va diminuer les pertes par diffusion des espèces ioniques (et la fréquence de pertes associées) et ainsi la densité d'ions positifs va augmenter. Nous observons en effet ce phénomène pour les valeurs de l'intensité du champ magnétique comprise entre zéro et 400 gauss environ. Par contre, au-delà de ces valeurs, notre observation tend à montrer que l'égalité (16) n'est plus contrôlée par la fréquence de pertes par diffusion, mais par le terme d'ionisation. En effet, nous avons précédemment montré qu'aux fortes valeurs de champ magnétique, la température électronique tendait vers une valeur critique fixée par l'égalité entre la fréquence d'ionisation et celle d'attachement.

Considérons maintenant l'équation d'équilibre des ions positifs, mais pour des pressions plus fortes (nous pouvons simplifier en négligeant les pertes par diffusion), soit :

$$n_+ = \frac{n_e k_i}{n_- k_r} N \quad 17.$$

Nous avons observé expérimentalement une diminution de la densité d'ions positifs avec l'augmentation de la pression, c'est-à-dire que la pente de  $n_p$  en fonction de  $N$  est négative.

$$\frac{dn_+}{dN} = \frac{n_e k_i}{n_- k_r} + N \left[ \frac{k_i}{k_r} \frac{d}{dN} \left( \frac{1}{n_- / n_e} \right) + \frac{n_e}{n_-} \frac{d}{dN} \left( \frac{n_-}{n_e} \right) \right] \quad 18.$$

En considérant la température électronique indépendante de  $N$ , la dérivée de  $k_i/k_r$  tend alors vers 0. De plus, on peut remplacer le terme  $\frac{n_e k_i}{n_- k_r}$  par  $n_+/N$  selon l'équation (17). A l'aide de l'équation d'équilibre des ions négatifs et en négligeant les pertes par diffusion comme pour les ions positifs, on obtient  $\frac{n_-}{n_e} = \frac{N k_a}{n_+ k_r}$ . De plus, nous avons observé expérimentalement que

la pente de  $n_-/n_e$  en fonction de  $N$  était constante, soit  $\frac{d(n_-/n_e)}{dN} = \frac{k_a}{n_+ k_r}$ .

En reportant l'ensemble de ces expressions dans l'équation (18), nous obtenons :

$$\frac{dn_+}{dN} = \frac{n_+}{N} \left[ 1 - \frac{k_i}{k_a} \right] \quad 19.$$

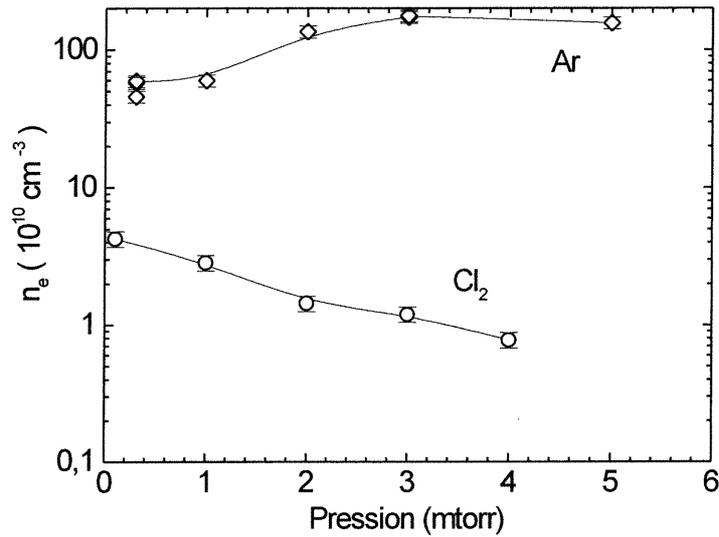
Or, nous avons vu que  $\frac{k_i}{k_a} \geq 1$ , donc nous avons bien  $\frac{dn_+}{dN} \leq 0$  : la densité d'ions positifs diminue avec une augmentation de la pression. A plus basse pression, l'expérience nous montre une augmentation de la densité d'ions positifs, qui serait mieux représentée par l'équation (16), où l'augmentation de la pression favorise une diminution de la fréquence de

perdes par diffusion, ainsi que l'augmentation de l'apport de neutres. Nous voyons donc que selon la gamme de pression considérée, nous pouvons reproduire la plupart des comportements observés avec une analyse des équations d'équilibre des particules chargées, l'équation (16) pour les basses pressions ( inférieure à 1 mtorr) et l'équation (19) au delà.

## IV. Population électronique

### 1) *Etude de l'influence de la pression*

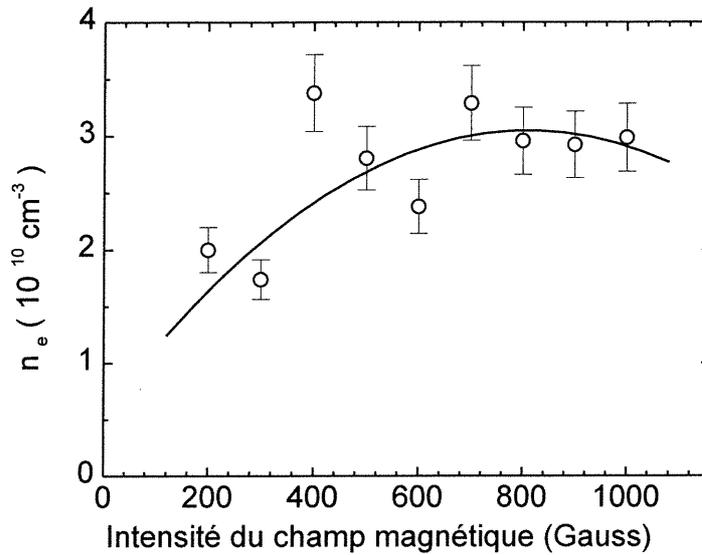
La densité  $n_+$  est connue grâce aux mesures de sondes électrostatiques. Par ailleurs, les mesures de photodétachement nous donnent accès au rapport  $n_-/n_+$ . La densité électronique est obtenue de ces deux grandeurs par la relation  $n_e = n_+ \left( 1 - \frac{n_-}{n_+} \right)$ . La Figure IV.1 présente la densité  $n_e$  que l'on calcule ainsi en fonction de la pression de gaz, à  $r=0\text{cm}$  et  $z=40\text{ cm}$ . Nous constatons le même comportement pour  $n_e$  que pour  $n_+$ . La densité électronique est nettement plus faible pour le chlore, que pour l'argon. Ainsi, pour une pression de 4 mtorr, la densité électronique est de deux ordres de grandeur plus faibles. Nous voyons donc, qu'en termes de production d'électrons, la source est globalement plus performante, dans l'argon que dans un gaz électronégatif tel que le chlore. Malgré la présence d'un champ magnétique limitant les pertes des électrons par diffusion, les pertes en volume par attachement conduisent à une diminution importante de la densité électronique.



**Figure IV.1. Profil en pression de la densité électronique pour le chlore et l'argon. Les mesures sont prises pour un champ magnétique de 875 gauss à une position de  $z=40$  cm, et une puissance absorbée de 250 W.**

## II) Etude de l'influence de l'intensité du champ magnétique

Nous avons également examiné l'évolution de la densité électronique en fonction de l'intensité du champ magnétique. La Figure IV.1 montre la variation de la densité électronique avec l'intensité du champ magnétique à  $r=0$  cm et  $z=40$  cm le chlore pur. Nous constatons que l'évolution de  $n_e$  avec le champ magnétique est similaire à celle de  $n_+$ . La densité électronique augmente de  $1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  à 200 Gauss, pour atteindre un plateau à  $3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  environ, entre 400 et 1000 Gauss. Ce plateau résulte du fait que les pertes par attachement et par diffusion axiale sont alors plus importantes que les pertes par diffusion radiale.



**Figure IV.1. Variation de la densité électronique en fonction de l'intensité du champ magnétique pour une pression de 1 mtorr à  $r=0\text{cm}$  et  $z=40\text{ cm}$ . La puissance absorbée était de 250 watts.**

## V. Bilan de puissance de notre décharge

### 1) Influence de la pression du gaz de Chlore

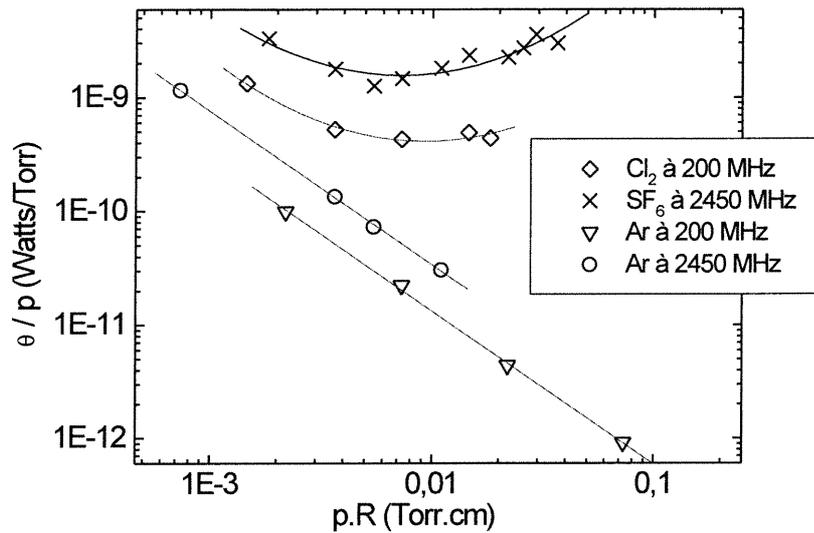
Ayant calculé la densité électronique, il nous est permis d'estimer ce que l'on appelle la puissance absorbée et dissipée par électron qui représente aussi la puissance requise pour maintenir un électron dans la décharge. En effet, le bilan de puissance joue un rôle important dans la caractérisation des décharges hautes fréquences. La puissance absorbée par le plasma peut être caractérisée par le paramètre  $\theta$ , qui représente la puissance absorbée par un électron dans le plasma. Plus la valeur de  $\theta$  est grande, plus le coût en puissance pour maintenir un électron dans la décharge est grand. L'intérêt majeur d'utiliser le paramètre  $\theta$  pour la caractérisation des décharges HF tient à la facilité de sa détermination expérimentale. En effet,  $\theta$  est simplement le rapport de la puissance totale absorbée et du nombre total d'électrons dans la décharge. Ce paramètre est défini par la relation :

$$\theta = \frac{P_a}{n_e V}$$

20.

où  $P_a$  est la puissance totale absorbée par la plasma,  $n_e$  la densité électronique moyennée sur le volume de plasma, et  $V$  le volume du plasma. Pour calculer ce volume, on se base sur le fait que le plasma est contenu en majeure partie dans un cylindre de rayon 7.3 cm (le rayon du tube diélectrique dans notre cas) et est long de 1m. Nous allons assigner à tout ce volume la valeur de densité électronique obtenue à  $r=0$ cm et  $z=40$  cm, une position à peu près centrale dans notre réacteur. Pour une puissance absorbée de 250 watts, et en utilisant les valeurs de  $n_e$  montrées à la Figure IV.1, on calcule  $\theta$  à la fois pour l'Argon et le Chlore. Nous présentons à la Figure V.1 les données sous la forme  $\theta/p$  en fonction de  $pR$  avec  $R=7.3$  cm. Nous présentons de plus, pour fin de comparaison, les résultats concernant le  $SF_6$  et l'argon, obtenue par l'étude de L.St.Onge, pour une décharge à 2450 MHz, et une puissance absorbée de 475 watts.

On remarque que  $\theta$  est plus élevé dans le chlore que dans l'argon ce qui peut s'expliquer en partie par la différence entre les sections efficaces d'excitation et d'ionisation de ces deux gaz. D'autre part, on remarque dans le cas du chlore une décroissance de  $\theta/p$  en fonction de  $pR$  comme dans l'argon, suivie par une remontée à partir de  $pR \approx 1.10^{-2}$  Torr.cm (c'est à dire  $p=1$  mtorr). Dans le cas de l'argon, la décroissance linéaire de  $\ln(\theta/p)$  en fonction de  $\ln(pR)$  est typique d'un plasma contrôlé par diffusion [6]. La croissance de  $\theta/p$  dans le cas du chlore, serait donc l'indice que nous avons atteint un régime contrôlé principalement par l'attachement et non la diffusion. Nous constatons de plus que le bilan énergétique est plus favorable dans le cas du chlore que le  $SF_6$  (calcul avec une puissance de 475 W dans le  $SF_6$ , et 250 W dans le  $Cl_2$ ), ce qui est certainement dû à la très forte électronégativité du  $SF_6$ . Nos résultats permettent enfin de constater que, dans l'argon, le bilan énergétique semble plus favorable pour une décharge fonctionnant à une fréquence de 200MHz, mais toutefois assez proche de celui obtenu à 2450 MHz.



**Figure V.1. Puissance absorbée par électron sur la pression en fonction de la pression du gaz multipliée par le rayon, dans l'argon, le chlore et le SF6. Dans l'argon et le SF6, la fréquence de l'onde est de 2450 MHz et pour l'argon et le chlore de 200 MHz. Le champ magnétique était de 875 gauss.**

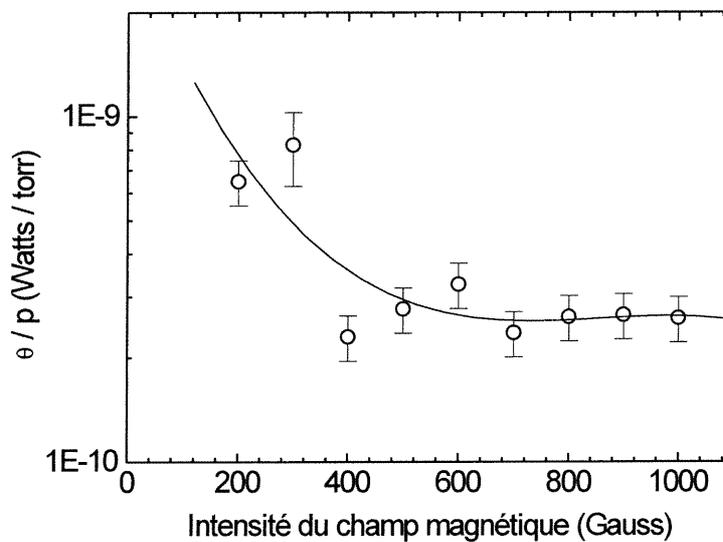
## II) Influence de l'intensité du champ magnétique

Nous pouvons obtenir, de même, le bilan de puissance de la décharge en fonction de l'intensité du champ magnétique. En principe, une détermination de la densité totale des électrons requiert une mesure sur l'ensemble de l'enceinte de celle-ci. Pour chaque condition expérimentale étudiée, cela représente un nombre considérable de mesures. Pour évaluer le bilan de puissance, nous avons donc préféré effectuer une mesure du profil radial à une seule position axiale ( $z=40$  cm) et pour trois valeurs de champ magnétique (1000, 300 et 0 Gauss), puis procéder par interpolation. A partir des mesures, nous avons calculé le rapport  $\rho$  entre la densité moyenne et celle sur l'axe en fonction de la valeur du champ magnétique. Nous avons supposé que ce rapport demeurerait constant dans tout le réacteur (i.e. selon  $z$ ). Nous avons donc également mesuré la distribution axiale de densité sur l'axe pour différentes valeurs du champ magnétique. Nous avons par la suite obtenu la nombre total d'électrons pour une

valeur de  $B_0$  donnée, en intégrant  $n_e$  selon  $z$  puis en multipliant cette valeur par le coefficient  $\pi R^2 \rho$ , soit

$$N_e = \pi R^2 \rho \cdot \int_0^z n_e(z) dz \quad 21.$$

La Figure V.1 présente la variation du paramètre  $\theta$  normalisé selon la pression en fonction de l'intensité du champ magnétique, pour une pression de 1 mtorr. Nous constatons une diminution du paramètre  $\theta$  avec l'augmentation du champ magnétique. Il passe de  $1.10^{-9}$  Watts/torr pour atteindre un plateau à partir de 400 Gauss environ, à une valeur de  $3.10^{-10}$  Watts/torr.



**Figure V.1. Puissance absorbée par électron sur la pression en fonction de l'intensité du champ magnétique, dans un gaz de Chlore pur. La pression était de 1 mtorr et la puissance incidente de 270 W.**

Pour comprendre le comportement du paramètre  $\theta$ , rappelons tout d'abord de quelle manière on le définit. Comme précisé précédemment,  $\theta$  représente la puissance absorbée (et dissipée) par électron. Si l'on néglige les pertes en surface,  $\theta$  a pour expression :<sup>[7]</sup>:

$$\theta = \frac{2m_e}{M} \langle v_c(u)u \rangle + \sum_n \langle v_j(u) \rangle eV_j + \langle v_i(u) \rangle eV_i \quad 22.$$

où  $v_c$ ,  $v_j$ ,  $v_i$  sont respectivement la fréquence de collision électron-neutre pour le transfert de quantité de mouvement, la fréquence d'excitation électron-neutre du niveau  $j$  et la fréquence d'ionisation respectivement ;  $m_e$  et  $M$  représentent la masse des électrons et des neutres,  $V_j$  l'énergie d'excitation pour le niveau  $j$ , et  $V_i$  l'énergie d'ionisation. En considérant une fonction de distribution des électrons maxwellienne, la relation (22) montre que  $\theta$  dépend de la température électronique ( $T_e$ ), ainsi que de la pression (au travers des fréquences de collisions). Le résultat montré sur la Figure V.1 peut être interprété de manière qualitative dans le cadre d'un modèle grossier. Pour un plasma à l'état stationnaire, et en considérant que le plasma est contrôlé uniquement par les pertes par diffusion, l'équation d'équilibre des particules peut être écrite sous la forme (dans le cas d'un champ magnétique) :

$$v_i = \frac{D_{\perp}}{\Lambda_{\perp}^2} + \frac{D_{\parallel}}{\Lambda_{\parallel}^2} \quad 23.$$

où  $D_{\perp}$  et  $D_{\parallel}$  sont les coefficients de diffusion perpendiculaire et parallèle aux lignes de champ magnétique et  $\Lambda_{\perp}$  et  $\Lambda_{\parallel}$  les longueurs de diffusion correspondantes. Nous pouvons noter que  $v_i$ ,  $D_{\perp}$  et  $D_{\parallel}$  sont fonction de la température électronique. A cause de la présence du champ magnétique, la diffusion au sein du plasma peut être fortement anisotrope. La longueur de diffusion le long des lignes de champ magnétique est  $\frac{L}{\pi}$  et perpendiculairement  $\frac{R}{2.405}$ , où 2.405 est le premier zéro de la fonction de Bessel  $J_0$ .  $D_{\perp}$  peut être exprimé en fonction de  $p$  et  $B_0$ , soit :

$$D_{\perp} = \frac{D_{\parallel}}{1 + a \left( \frac{B_0}{p} \right)^2} \quad 24.$$

où  $a$  est une constante fonction du gaz. En notant que  $v_i$  est proportionnelle à  $p$  tandis que  $D_{//}$  est proportionnelle à  $\frac{1}{p}$ , nous voyons à l'aide des relations (23) et (24) que la température électronique dépend de  $\frac{B_0}{p}$ ,  $pL$ ,  $pR$ .

Ainsi, lorsque le champ magnétique  $B_0$  est faible, la température électronique ne dépend que de  $pR$  et  $pL$  ; quand, de plus,  $L \gg R$ , alors  $T_e$  (c'est-à-dire  $\frac{\theta}{p}$ ) devient une fonction de  $pR$  uniquement. Par contre, pour le cas où le champ magnétique est fort, la diffusion transverse est alors fortement réduite, et le deuxième terme de la relation (23) domine. La température électronique dépend alors de  $pL$ . Il existe donc un champ magnétique critique à partir duquel les pertes sont essentiellement dues à la diffusion axiale. Le résultat présenté à la Figure V.1 peuvent être expliqué à l'aide de la précédente description. Pour de faibles valeurs de l'intensité du champ magnétique, la diminution des pertes par diffusion radiale est faible, donc la température électronique et par conséquent  $\theta$  ne dépend alors que de la pression du gaz neutre. Quand le champ magnétique augmente, le coefficient de diffusion radial est alors fortement réduit; la diffusion devient alors anisotrope de telle manière que le paramètre  $\frac{\theta}{p}$  dépende de  $B_0$ . En augmentant encore l'intensité du champ magnétique, il apparaît alors une valeur critique à partir de laquelle les pertes sont essentiellement dues à la diffusion axiale. Le paramètre  $\frac{\theta}{p}$  devient alors indépendant de  $B_0$  et ne dépend plus que de la longueur du réacteur, ce qui correspond au phénomène observé sur la Figure V.1. Bien que simpliste, cette interprétation s'avère raisonnable dans la gamme de pression que nous étudions ( $\leq 1$  mtorr), où le rôle des pertes en volume (par attachement et recombinaison en volume) ne joue pas un rôle significatif.

## **VI. Etude spectroscopique de la composition en atomes et molécules neutres du plasma de $\text{Cl}_2$**

La spectroscopie d'émission est sans doute la forme la plus ancienne et la plus simple de spectroscopie. Cette technique ne donnant que des informations relatives sur les diverses espèces présentes dans le plasma, nous utilisons donc la technique dites d'actinométrie. En premier lieu, nous allons comparer les deux techniques, indirecte et directe, afin de déterminer la validité de l'actinométrie pour le chlore.

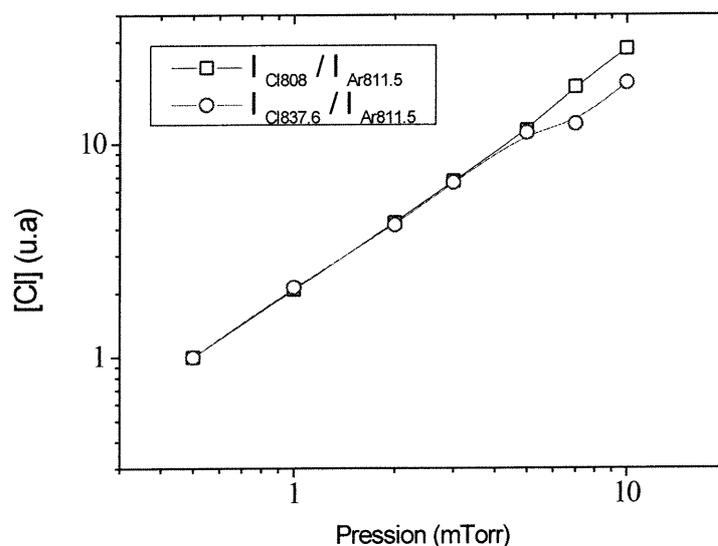
### **1) *Etude de la population relative de chlore atomique par actinométrie sur le chlore atomique***

Dans cette section, nous allons nous intéresser à un plasma de chlore où l'argon est l'actinomètre. Afin d'étudier la concentration du chlore atomique dans le chlore pur, l'actinomètre est introduit en très faibles quantités (2.5% de la pression totale).

#### **1) Influence de la pression**

En premier lieu, nous avons examiné le comportement de la concentration de chlore atomique en fonction de la pression pour un champ magnétique constant ( $B_0 \approx 875\text{G}$  et  $P_a = 250\text{W}$ ). Dans ce cas, nous avons seulement utilisé la raie d'argon à 811.5nm comme référence. Nous avons considéré deux raies d'émission du chlore atomique, les raies à 808 nm et 837.6 nm. La Figure VI.1 présente l'évolution de la densité relative de chlore atomique normalisée en fonction de la pression, pour un champ magnétique de 875 Gauss et une puissance absorbée de 250 Watts. On constate que les rapports de raies augmentent avec la pression. Ceux-ci croissent de manière linéaire avec la pression jusqu'à 5 mTorr, les deux raies d'émission du chlore atomique présentant les mêmes tendances dans cette gamme de pression. Pour des pressions supérieures ( $p > 5\text{mTorr}$ ), on constate une différence de comportement entre les deux raies. Cela peut être dû à une surestimation de la concentration de chlore atomique, obtenue à l'aide de la raie à 808nm. Une explication probable est le non respect d'une des conditions de l'actinométrie ( excitation direct du fondamental), et serait alors dû au fait que la raie d'émission à 808nm est peuplée soit par cascades radiatives de

niveaux d'énergie supérieures ou par la dissociation du chlore moléculaire (excitation dissociative).



**Figure VI.1. Concentration relative de chlore atomique dans un plasma de chlore pur en fonction de la pression du gaz. Les mesures ont été prises à  $z=20$  cm. La puissance absorbée était de 250 watts et l'intensité du champ magnétique de 875 gauss.**

L'écart à forte pression semble indiquer que la méthode d'actinométrie n'est alors plus valable. Par contre, pour les pressions plus faibles le diagnostic peut être valable. Nous allons par la suite comparer ces résultats avec la technique d'actinométrie sur le chlore moléculaire.

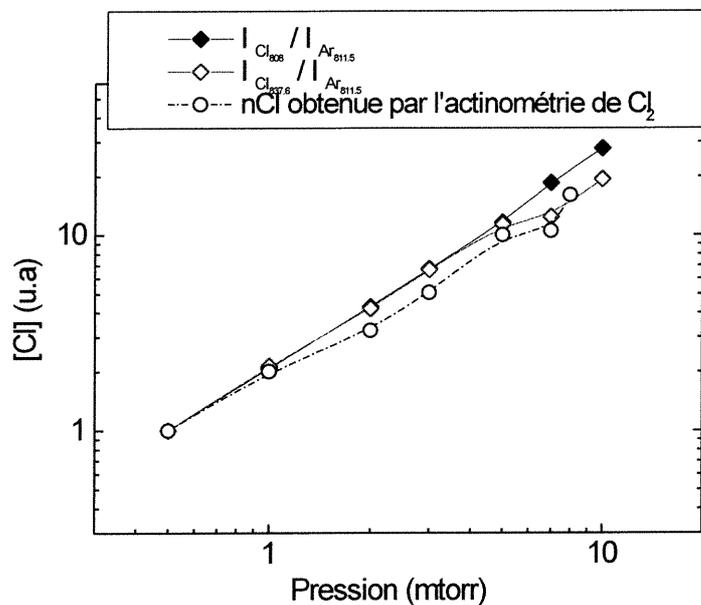
## **II) Etude absolue de la population de chlore moléculaire (actinométrie du chlore moléculaire)**

Le chlore offre la possibilité de mesurer la concentration absolue de chlore atomique grâce à une technique d'actinométrie sur le chlore moléculaire (raie à 306 nm), le xénon étant utilisé comme actinomètre (raie à 823.2 nm). La méthode a été proposée par Donnelly [8]. Cette technique dite de calibration à puissance nulle (présentée dans l'annexe B) nous permet de déterminer les concentrations absolues de chlore moléculaire.

1) Comparaison entre les techniques d'actinométrie du chlore atomique et du chlore moléculaire

a) Effet de la pression

Nous avons comparé les résultats obtenus par les différentes méthodes d'actinométrie en fonction de la pression. Sur la Figure VI.1, nous présentons les résultats obtenus tant par les méthodes d'actinométrie directe sur le chlore atomique utilisant les raies d'émission à 808 et 837.6 nm du chlore atomique, que la technique d'actinométrie indirecte du chlore moléculaire. Comme la technique d'actinométrie sur le chlore atomique ne donne que des valeurs relatives, les rapports d'intensité relatives pour les trois cas ont été normalisés à 1 pour  $p=0.5$  mtorr.



**Figure VI.1 . Evolution de la concentration relative de chlore atomique en fonction de la pression, à l'aide de trois différentes techniques d'actinométrie, pour un champ magnétique de 875 gauss et une puissance absorbée de 250 watts et une position  $z=20$  cm.**

Nous constatons que jusqu'à une pression de 5 mtorr environ, l'ensemble des trois techniques donne des résultats comparables. On retrouve, par contre, la différence déjà observé entre les deux mesures directes de la concentration de chlore atomique pour des pressions supérieures à

5 mtorr, l'actinométrie du chlore moléculaire donnant des résultats assez proches du rapport de la raie du chlore atomique à 837.6 nm à la raie d'argon à 811.5 nm. Pour des pressions inférieures à 5 mtorr, l'accord entre les différentes méthodes permet de conclure que l'actinométrie conduit à des résultats corrects.

Nos résultats montrent que la densité d'ions positifs décroît lorsque la pression augmente. Par ailleurs, la concentration de chlore atomique augmente avec la pression. En termes de procédé de gravure, on favorise donc la gravure chimique spontanée à haute pression et la gravure assistée par ions, à basse pression. Si l'on cherche à favoriser l'anisotropie de gravure en utilisant des flux d'ions relativement élevés, il est donc favorable de fonctionner à très basse pression, tel que suggéré par Nishikawa et al<sup>[9]</sup>.

#### **b) Effet du champ magnétique**

Nous avons également comparé les résultats obtenus en fonction de l'intensité du champ magnétique, pour un plasma de chlore, à  $z=20$  cm, pour une puissance absorbée de 250 watts, et une pression de 1 mtorr. La Figure VI.1 présente les résultats obtenus. On constate que l'accord est moins bon que celui obtenu lorsque la pression varie. La technique d'actinométrie indirecte par le chlore moléculaire se situe entre les deux mesures directes de la concentration relative de chlore. Cependant, en dépit des désaccords quantitatifs, les tendances observées sont les mêmes quelle que soit la technique utilisée. Nous observons dans tous les cas, une augmentation de la quantité de chlore atomique avec l'intensité du champ magnétique. On remarque aussi une saturation de la densité de Cl à partir d'environ 400 gauss, qui est attribuable au comportement similaire des espèces chargées, et particulièrement des électrons, qui contrôlent l'ensemble de la cinétique de la décharge.

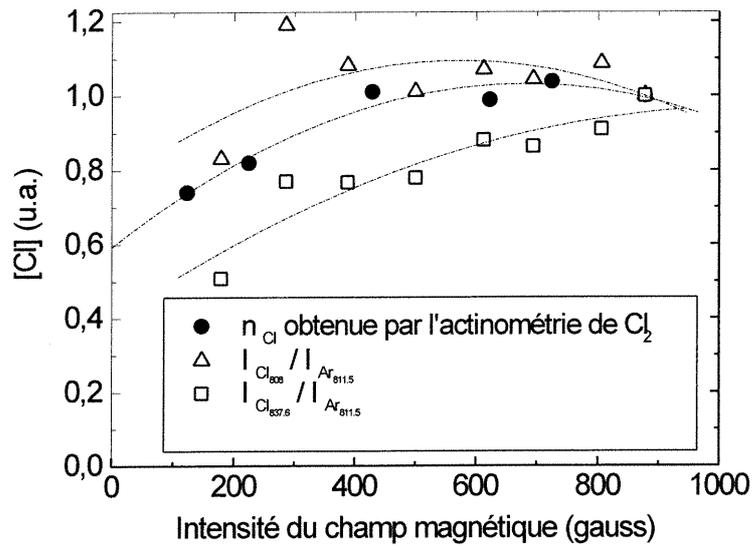
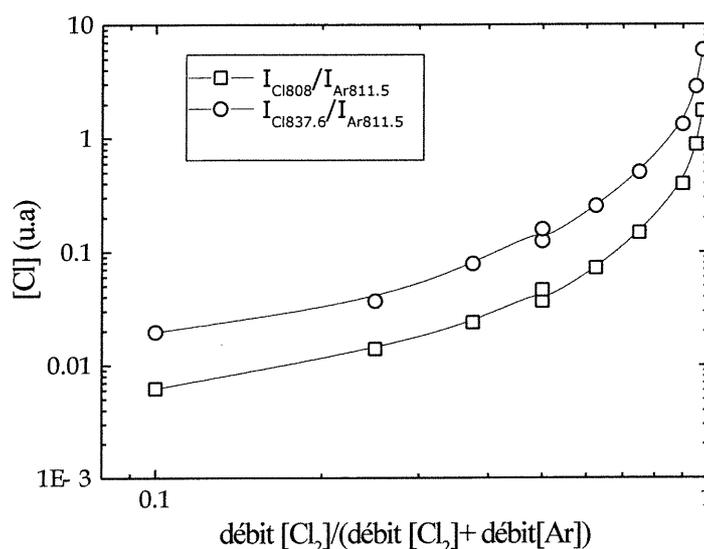


Figure VI.1. Variations de la concentration relative de chlore atomique avec l'intensité du champ magnétique. La puissance absorbée était de 250 watts et la position de mesure  $z=20$  cm.

## 2) Influence de la dilution du $Cl_2$ par de l'argon

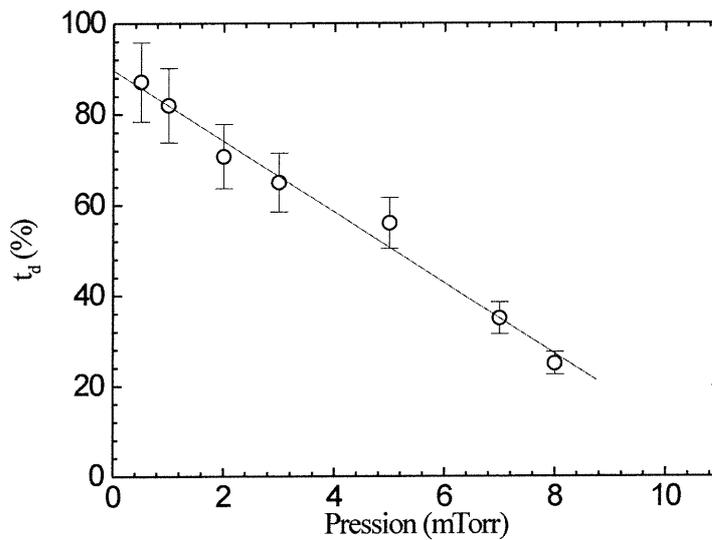
Dans le cadre de l'étude du chlore atomique, nous avons étudié comment la quantité d'argon affectait la population de chlore atomique dans les mélanges de  $Cl_2/Ar$ . En effet, les mélanges  $Cl_2/Ar$  sont souvent utilisés et favorisent une meilleure gravure du silicium, mais aussi des composés III-V. De la même manière que l'étude de l'influence de la pression, nous avons considéré les raies d'émission à 808nm et 837.6nm pour le chlore et la raie à 811.5 nm de l'argon. La Figure VI.1 présente l'évolution de la population relative de chlore atomique en fonction de sa dilution dans l'argon, pour une pression de 1 mtorr et une intensité de champ magnétique de 875 gauss. On constate que cette concentration croît à peu près linéairement avec le pourcentage de  $Cl_2$  jusqu'à environ 60% de  $Cl_2$ , et que la variation est plus rapide par la suite. Ces résultats peuvent s'interpréter par le fait que le taux de dissociation demeure à peu près constant jusqu'à 60% de  $Cl_2$  dans le mélange et augmente rapidement, par la suite. La concentration relative de chlore atomique augmente d'un ordre de grandeur entre 60 % et 90 % de chlore initial.



**Figure VI.1. Courbes de variation de la concentration relative de chlore atomique en fonction du mélange  $\text{Cl}_2/\text{Ar}$  pour une pression de 1mTorr, un champ magnétique de 875 gauss et une puissance absorbée de 250W.**

### 3) Influence de la pression du gaz de $\text{Cl}_2$ sur le degré de dissociation.

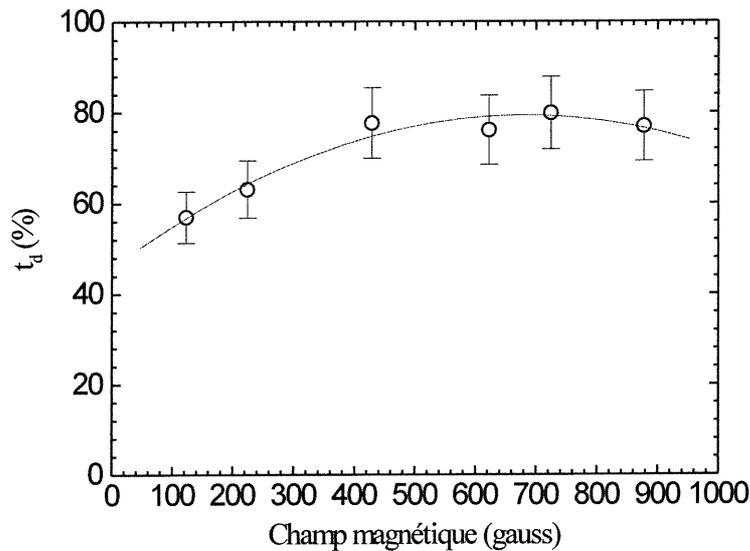
La technique d'auto-calibration décrite dans l'annexe B, nous permet d'obtenir la valeur absolue de la concentration de chlore atomique à partir des mesures d'actinométrie appliquées au chlore moléculaire. Cela nous a permis en particulier de déterminer le degré de dissociation des molécules de  $\text{Cl}_2$  en fonction des conditions expérimentales. Ce degré de dissociation mesuré en fonction de la pression du gaz de  $\text{Cl}_2$  pour une intensité du champ magnétique de 875 gauss et une puissance absorbée de 350 watts, est montré à la Figure VI.1. Comme nous pouvons le voir, il décroît linéairement avec la pression du gaz, passant de près de 90 % à 0.2 mtorr, à 20 % à 8 mtorr. Notre réacteur offre donc la possibilité d'obtenir un fort degré de dissociation à basse pression (près de 90 % à 0.5 mtorr).



**Figure VI.1. Degré de dissociation du chlore en fonction de la pression du gaz dans un plasma de chlore pur. Les mesures ont été faites à  $z=20$ cm pour une puissance absorbée de 350 watts et un champ magnétique de 875 gauss.**

#### 4) Influence de l'intensité du champ magnétique sur le degré de dissociation

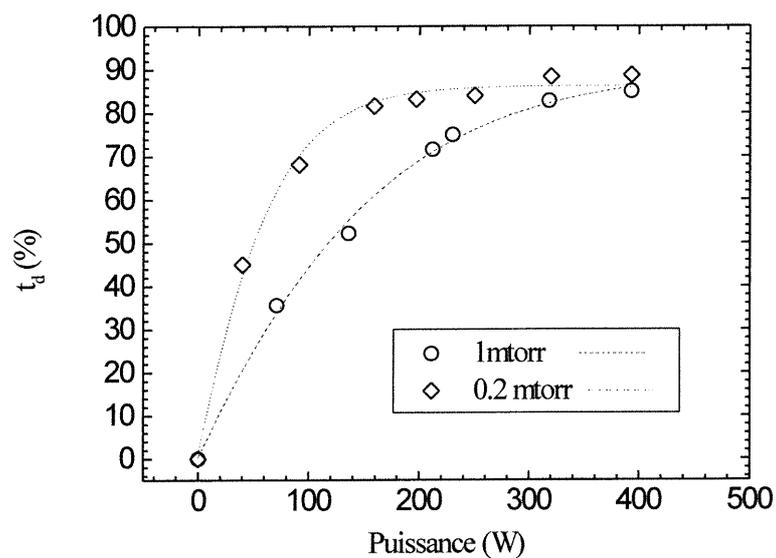
Nous avons également effectué une étude de l'influence du champ magnétique sur le degré de dissociation. En utilisant la même méthode indirecte par l'actinométrie du chlore moléculaire, nous avons obtenu l'évolution du degré de dissociation en fonction de l'intensité du champ magnétique à une pression de 1 mtorr, une puissance absorbée de 350 watts et à une position axiale de  $z=20$  cm., (voir Figure VI.1). Comme nous pouvons le constater, le degré de dissociation augmente avec la valeur de l'intensité du champ magnétique pour passer d'une valeur d'environ 60 % autour de 200 gauss, jusqu'à 80 % à 900 gauss. Nous constatons par ailleurs qu'entre ces deux valeurs, il s'établit entre 400 et 900 gauss, à 80 %. Cela nous permet de conclure que pour optimiser le degré de dissociation, il n'est pas nécessaire d'avoir recours à un champ magnétique dont l'intensité dépasse les 400 gauss, au moins pour ces conditions opératoires. Rappelons que la même observation a été faite pour d'autres paramètres du plasmas tels que la température électronique, l'énergie des ions positifs et la densité des ions positifs



**Figure VI.1. Evolution du degré de dissociation en fonction de l'intensité du champ magnétique pour une pression de 1 mtorr et une puissance absorbée de 350 W. Les mesures étaient prises à  $z=20$  cm.**

##### 5) Influence de la puissance HF sur le degré de dissociation

Enfin, nous avons examiné l'influence de la puissance absorbée par le plasma sur le degré de dissociation. Compte tenu des incertitudes sur la technique d'actinométrie pour des pressions supérieures à 5 mtorr, nous nous sommes contentés, pour cette étude, de déterminer le degré de dissociation pour des pressions de 0.2 et 1 mtorr, où nous avons pu valider la technique d'actinométrie. La Figure VI.1 présente le profil du degré de dissociation en fonction de la puissance absorbée par le plasma pour une intensité du champ magnétique de 875 gauss. Comme nous pouvons le voir, le degré de dissociation augmente avec l'apport de puissance au plasma, passant de 30 % pour une puissance de 50 watts environ, à 80/85% pour des puissances avoisinant les 400 watts. Nous remarquons la formation d'un plateau au delà d'environ 250 watts, ce qui nous montre qu'à cette valeur du champ magnétique, la dissociation est optimale.



**Figure VI.1. Profil du degré de dissociation en fonction de la puissance absorbée par le plasma, pour deux pressions, à une intensité du champ magnétique de 875 gauss et une position axiale de 20 cm.**

## VII. Conclusion sur la physico-chimie de notre plasma dans le chlore

Dans ce chapitre III, nous avons offert une description qualitative et quantitative de la source à haute densité que nous avons étudié. A l'aide de la méthode de sondes électrostatiques, nous avons entrepris la caractérisation des principales "propriétés" électriques de notre magnétoplasma de  $\text{Cl}_2$ . Nous avons constaté la différence existant entre les profils radiaux, selon la position (dans la source ou dans l'enceinte métallique). L'ensemble des "propriétés" électriques restent tout de même uniformes sur une distance de près de 3 cm. Sur l'axe du réacteur, nous avons constaté une diminution de la densité d'ions positifs suite à l'augmentation de la pression du gaz, comportement inverse à celui constaté dans l'argon. Nous avons pu ainsi estimer le degré d'ionisation de notre source, justifiant ainsi son appellation de source à haute densité et confirmer la nécessité de travailler à basse pression. La grande souplesse d'utilisation de notre réacteur nous a permis l'étude de l'influence de l'intensité du champ magnétique. Nous avons alors constaté une augmentation de la densité électronique et une diminution de la température électronique et de l'énergie des ions. Ces premiers résultats nous ont permis de mettre en évidence, qu'à une pression de 0.5 mTorr (environ) et un champ magnétique de 400 Gauss environ (maximum), nous offrons des conditions optimums de gravure. L'étude de l'impact de la puissance absorbée par le plasma a mis en évidence l'intérêt d'une forte puissance absorbée, sans pour autant induire de dommages importants au matériau. Même à basse pression, plusieurs comportements du plasma de  $\text{Cl}_2$  s'expliquent en invoquant le caractère électronégatif du gaz de  $\text{Cl}_2$ . Ceci a justifié une étude plus approfondie des populations d'ions négatifs. Nous avons donc utilisé deux méthodes permettant de mesurer la proportion d'ions négatifs dans les plasma de  $\text{Cl}_2$ . La première est celle du photodétachement induit par laser. Elle nous a permis de mettre en évidence de le caractère électronégatif de notre plasma, (toutefois moindre que la plasma de  $\text{SF}_6$ , précédemment étudié). Nous avons constaté une augmentation quasi-linéaire de la proportion d'ions négatifs, mettant en évidence la dépendance du taux d'attachement avec l'apport de molécules susceptibles de capturer un électron. De plus, l'impact de l'intensité du champ magnétique a mis en évidence la moindre proportion d'ions négatifs pour les fortes valeurs de champ magnétique (400 Gauss). Nous avons trouvé les mêmes résultats en faisant l'étude de la propagation d'ondes acoustiques ioniques. En effet, cette méthode permet aussi

de déterminer le rapport  $n/n_+$ , quoique de façon indirecte et avec une moins bonne résolution spatiale. L'ensemble des expériences ont mis en évidence le bon accord entre les deux techniques, validant par là même la technique d'ondes ionosonores, pour l'étude de nos magnétoplasmas électronégatifs de  $\text{Cl}_2$ . En combinant nos mesures de  $n_+$  et de  $n/n_+$ , nous avons pu ensuite calculer  $n_e$  en valeur absolue et effectuer un étude de  $\theta$ , la puissance requise pour maintenir un électron dans le plasma. Cette étude a révélé le passage d'un régime de diffusion à un régime d'attachement à une pression de  $\text{Cl}_2$  d'environ 1 mtorr. De plus, l'étude de l'évolution de  $\theta$  en fonction de l'intensité du champ magnétique, a mis en évidence le régime limite de diffusion atteint, ainsi que la valeur de l'intensité du champ magnétique correspondante. La comparaison entre les divers résultats concernant le  $\text{SF}_6$ , le  $\text{Cl}_2$  et l'argon ont mis en évidence la moindre électronégativité du chlore, mais aussi le bilan énergétique plus favorable offert par notre source travaillant à une fréquence d'environ 200 MHz, comparativement à une source ECR (travaillant à 2450 MHz). Après un travail de caractérisation concernant les particules chargées, nous nous sommes concentrés par la suite à l'étude des espèces neutres de notre décharge, et tout particulièrement le chlore atomique  $\text{Cl}$ , qui est parti prenante dans la gravure assistée par ions de l'aluminium. L'actinométrie nous a permis d'observer comment les conditions de décharge influençaient la concentration relative de chlore atomique. De plus la méthode indirecte d'actinométrie du chlore moléculaire nous a offert la possibilité d'étudier l'évolution du degré de dissociation en fonction des divers paramètres extérieurs de la décharge. Nous avons ainsi constaté la décroissance de ce degré de dissociation avec la pression, passant de 90 % à 0.2 mTorr, à 30 % à 8 mTorr. Par contre, l'augmentation de l'intensité du champ magnétique ainsi que de la puissance absorbée par le plasma favorise un plus grand taux de dissociation, même si pour des intensités de champ magnétique de plus de 400 Gauss et des puissances absorbées de plus de 300 Watts, celui-ci ne semble plus augmenté. L'ensemble de ces expériences ont permis d'estimer quelles sont les capacités de notre plasma de  $\text{Cl}_2$ , du point de vue du flux de neutres et d'ions. En effet, le paramètre d'importance pour la gravure par plasma est le rapport flux d'ions sur flux de neutres. Nous avons donc dans le cadre de cette première étude expérimentale estimé l'impact des paramètres extérieurs que sont la pression, la puissance absorbée mais aussi l'intensité du champ magnétique, sur la physique, mais aussi la chimie de notre magnétoplasma de chlore. Nous avons ainsi, pour notre réacteur non-conventionnel, estimé les conditions opératoires optimum pour le procédé de gravure sous-micrométrique. Les nombreux articles concernant les sources à haute densité et la grande corrélation entre leurs résultats et les notres, nous permettent de penser que ces résultats seront utiles à la compréhension des sources à hautes

densités en général fonctionnant à des pressions de gaz similaires, tout particulièrement en ce qui concerne l'influence de l'intensité du champ magnétique, qui est le paramètre opératoire majeur par sa grande souplesse d'utilisation dans le cadre de notre étude. Les influences des divers paramètres opératoires extérieurs ayant été étudié, nous nous sommes alors concentrés sur une étude concernant l'étude de la géométrie du réacteur. En effet, de nombreuses études portent sur la physico-chimie des plasmas de chlore, mais elles se font souvent dans des réacteurs proches de ceux utilisés dans l'industrie qui n'offrent pas de grand degré de liberté du point de vue de la géométrie.

**Liste des figures du Chapitre III**

- √ Figure II.1. Profils radiaux de la densité d'ions positifs (a), de la température électronique (b), et du potentiel plasma (c), à  $z=6\text{cm}$ . La pression de gaz de chlore était de 1mTorr, le champ magnétique de 875 gauss et la puissance absorbée de 250 W. 94
- √ Figure II.2. Profils radiaux de la densité d'ions positifs (a), de la température électronique (b) et du potentiel du plasma (c) à une position axiale de  $z=44\text{cm}$ , et une pression de gaz de chlore de 1 mtorr. On considère ici deux valeurs de l'intensité du champ magnétique, 875 et 0 gauss. La puissance absorbée est de 250 W. 96
- √ Figure II.1. Evolution de l'énergie des ions (a), de la température électronique (b) et de la densité d'ions positifs (c) en fonction de la pression. Le champ magnétique est de 875 gauss et la mesure est prise à  $r=0\text{cm}$  et  $z=44\text{cm}$ . La puissance absorbée par la plasma est de 250 watts. 99
- √ Figure II.2. Variation du degré d'ionisation en fonction de la pression à une position de  $r=0\text{cm}$  et  $z=44\text{cm}$ , pour un champ magnétique de 875 gauss, et une puissance absorbée de 250 W dans un plasma de chlore. 100
- √ Figure II.3. Profils de la densité d'ions positifs (a), de la température électronique (b), du potentiel du plasma (c) en fonction de la pression et pour un gaz d'argon et de chlore. Le champ magnétique était de 875 gauss et la puissance absorbée par le plasma de 250 W. 101
- √ Figure II.4. Variation du degré d'ionisation en fonction de la pression pour un plasma de chlore et un plasma d'argon. 102
- √ Figure II.1. Profils de la densité d'ions positifs (a), de la température électronique (b), et du potentiel du plasma se référant au potentiel flottant, en fonction de l'intensité du champ magnétique. Les mesures étaient prises à  $z=16\text{ cm}$  pour une pression de 0.5 mTorr et une puissance absorbée de 250 W. 104
- √ Figure II.1. Profils de la densité des ions positifs (a), de la température électronique (b), et de l'énergie des ions (c), en fonction de la puissance absorbée par le plasma. Le champ magnétique avait pour valeur 700 gauss et la pression 0.5 mtorr. La mesure était à  $r=0\text{ cm}$  et  $z=44\text{cm}$ . 107

- √ Figure III.1. Influence de la pression du gaz de Cl<sub>2</sub> sur le rapport  $n^-/n^+$ , pour les techniques de photodétachement et d'ondes ionosonores à une position axiale de  $z=40\text{cm}$  et radiale  $r=0\text{cm}$ , pour une champ magnétique de 875 gauss et une puissance absorbée de 250 watts. 110
- √ Figure III.1. Influence de l'intensité du champ magnétique sur le rapport  $n^-/n^+$  par deux méthodes, le photodétachement et les ondes ionosonores. La mesure était prise à  $z=40\text{ cm}$  et  $r=0\text{cm}$ , pour une pression de 1 mtorr et une puissance absorbée de 250 watts. 111
- √ Figure III.2. Influence de l'intensité du champ magnétique sur le rapport  $n^-/n^+$  par deux méthodes, le photodétachement et les ondes ionosonores. La mesure était prise à  $z=40\text{ cm}$  et  $r=0\text{cm}$ , pour une pression de 0.1 mTorr et une puissance absorbée de 250 Watts. 112
- √ Figure III.1. Influence de la pression du gaz de Cl<sub>2</sub> sur les rapports  $n^-/n_e$  (a) et  $n^-/n^+$  (b), à une position axiale de  $z=40\text{cm}$  et radiale  $r=0\text{cm}$ , pour une champ magnétique de 875 gauss et une puissance absorbée de 250 watts. 114
- √ Figure III.1. Influence de l'intensité du champ magnétique sur le rapport  $n^-/n^+$ . La mesure était prise à  $z=40\text{ cm}$ , et pour une puissance absorbée de 250 watts. 116
- √ Figure III.1. Profil radial du rapport  $n^-/n^+$  pour deux pressions de 1 et 0.1mTorr, à une position de  $z=40\text{ cm}$ . L'intensité du champ magnétique était de 875 gauss et la puissance absorbée de 250 watts. 117
- √ Figure IV.1. Profil en pression de la densité électronique pour le chlore et l'argon. Les mesures sont prises pour un champ magnétique de 875 gauss à une position de  $z=40\text{ cm}$ , et une puissance absorbée de 250 W. 124
- √ Figure IV.1. Variation de la densité électronique en fonction de l'intensité du champ magnétique pour une pression de 1 mtorr à  $r=0\text{cm}$  et  $z=40\text{ cm}$ . La puissance absorbée était de 250 watts. 125
- √ Figure V.1. Puissance absorbée par électron sur la pression en fonction de la pression du gaz multiplié par la rayon, dans l'argon, le chlore et le SF<sub>6</sub>. Dans l'argon et le SF<sub>6</sub>, la fréquence de l'onde est de 2450 MHz et pour l'argon et le chlore de 200 MHz. Le champ magnétique était de 875 gauss. 127
- √ Figure V.1. Puissance absorbée par électron sur la pression en fonction de l'intensité du champ magnétique, dans un gaz de Chlore pur. La pression était de 1 mtorr et la puissance incidente de 270 W. 128

- √ Figure VI.1. Concentration relative de chlore atomique dans un plasma de chlore pur en fonction de la pression du gaz. Les mesures ont été prises à  $z=20$  cm. La puissance absorbée était de 250 watts et l'intensité du champ magnétique de 875 gauss. 132
- √ Figure VI.1 . Evolution de la concentration relative de chlore atomique en fonction de la pression, à l'aide de trois différentes techniques d'actinométrie, pour un champ magnétique de 875 gauss et une puissance absorbée de 250 watts et une position  $z=20$  cm. 133
- √ Figure VI.1. Variations de la concentration relative de chlore atomique avec l'intensité du champ magnétique. La puissance absorbée était de 250 watts et la position de mesure  $z=20$  cm. 135
- √ Figure VI.1. Courbes de variation de la concentration relative de chlore atomique en fonction du mélange Cl<sub>2</sub>/Ar pour une pression de 1mTorr, un champ magnétique de 875 gauss et une puissance absorbée de 250W. 136
- √ Figure VI.1. Degré de dissociation du chlore en fonction de la pression du gaz dans un plasma de chlore pur. Les mesures ont été faites à  $z=20$ cm pour une puissance absorbée de 350 watts et un champ magnétique de 875 gauss. 137
- √ Figure VI.1. Evolution du degré de dissociation en fonction de l'intensité du champ magnétique pour une pression de 1 mtorr et une puissance absorbée de 350 W. Les mesures étaient prises à  $z=20$  cm. 138
- √ Figure VI.1. Profil du degré de dissociation en fonction de la puissance absorbée par le plasma, pour deux pressions, à une intensité du champ magnétique de 875 gauss et une position axiale de 20 cm. 139

## Bibliographie du Chapitre III

- 
- <sup>1</sup> K.Ono, T.Oomori, M.Tuda et K.Namba, *Measurements of the Cl atom concentration in radio-frequency and microwave plasmas by two-photon laser-induced fluorescence : Relation to the etching of Si*, J.Vac.Sci.Technol.A **10**(4), (Jul/Aug 1992) 1071-1079.
- <sup>2</sup> K.Ono, M.Tuda, H.Ootera, et T.Oomori, *Electron cyclotron resonance plasma etching of Si with Cl<sub>2</sub> : plasma chemistry and mechanisms*, Pure & Appl.Chem, **66**, 6, 1327-1334, (1994).
- <sup>3</sup> T.H.Ahn, K.Nakamura et H.Sugai, *Negative ion measurements and etching in a pulsed-power inductively coupled plasma in chlorine*, Plasma Sources Sci. Technol. **5**, (1996) 139-144.
- <sup>4</sup> B.Petit et J.Pelletier, Jpn.Appl.Phys, Part 1 **26**, 825 (1987).
- <sup>5</sup> L.St.Onge, Thèse de doctorat, université de Montréal, 1996.
- <sup>6</sup> I.Pérès, et J.Margot, *the power balance of a magnetically confiner surface-wave plasma column*, Plasma.Sources.Sci.Technol, **5**, 653, (1996).
- <sup>7</sup> J.Margot, M.Moisan, et M.Fortin, *Power required to maintain an electron in a discharge : Its use as a reference parameter in magnetized high frequency plasmas*, J.Vac.Sci.Technol.A **13** (6), (Nov/Dec 1995), 2890-2899.

<sup>8</sup> V.M.Donnely, *A simple optical emission method for measuring percent dissociations of feed gases in plasmas : Application to Cl<sub>2</sub> in a high-density helical resonator plasma*, J.Vac.Sci.technol.A **14** (3), 1076-1087, (Mai/juin 1996).

<sup>9</sup> K.Nishikawa, Y.Kusumi, T.Oomori, M.Hanazaki et K.Namba, *platinum etching and plasma characteristics in rf magnetron discharge electron cyclotron resonance plasmas*, Jpn.J.Appl.Phys.**32**, Part 1, N<sup>o</sup>.12B(décembre 1993), 6102-6108.



## Sommaire du Chapitre IV

Sommaire du Chapitre IV .....	149
Etude de l'influence de la géométrie du réacteur.....	151
I. Introduction.....	151
II. Résultats expérimentaux .....	152
I) Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la distribution radiale de la température électronique.....	152
II) Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur les profils radiaux de la densité d'ions positifs.....	155
III) Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension du réacteur sur la distribution axiale de la température électronique .....	157
IV) Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension du réacteur sur la distribution axiale de la densité d'ions positifs. ....	159
V) Influence de la pression sur les profils axiaux de la densité d'ions positifs .....	162
VI) Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la proportion d'ions négatifs dans la décharge. ....	164
VII) Bilan de puissance de la décharge de chlore.....	167
VIII) Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la chimie du plasma.....	168
1) Impact sur le degré de dissociation.....	169
2) Discussion .....	171
III. Conclusion. ....	173
Liste des figures du Chapitre IV .....	175
Bibliographie du Chapitre IV.....	177



## Etude de l'influence de la géométrie du réacteur

### I. Introduction

Les plasmas de haute densité ont été l'objet d'un intérêt grandissant ces dix dernières années, intérêt justifié par leur capacité de réponse aux impératifs de la microélectronique. Un des aspects à considérer pour le design des réacteurs est leur encombrement, que l'on veut le plus faible possible. A notre connaissance, il n'existe à ce jour, aucune étude systématique de l'influence simultanée de la dimension du réacteur et du champ magnétique sur les caractéristiques d'un plasma électronégatif. Nous avons toutefois contribué récemment à une étude semblable dans l'argon [1]. Cette étude est l'objet de ce chapitre. Notre réacteur non-conventionnel, de par sa grande souplesse d'utilisation, nous a permis d'étudier l'impact sur les paramètres du plasma de la géométrie de notre réacteur et plus particulièrement du rapport  $L/R$ ,  $L$  étant la longueur de l'enceinte métallique par rapport au lanceur d'onde et  $R$  son rayon.

## II. Résultats expérimentaux

### ***1) Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la distribution radiale de la température électronique.***

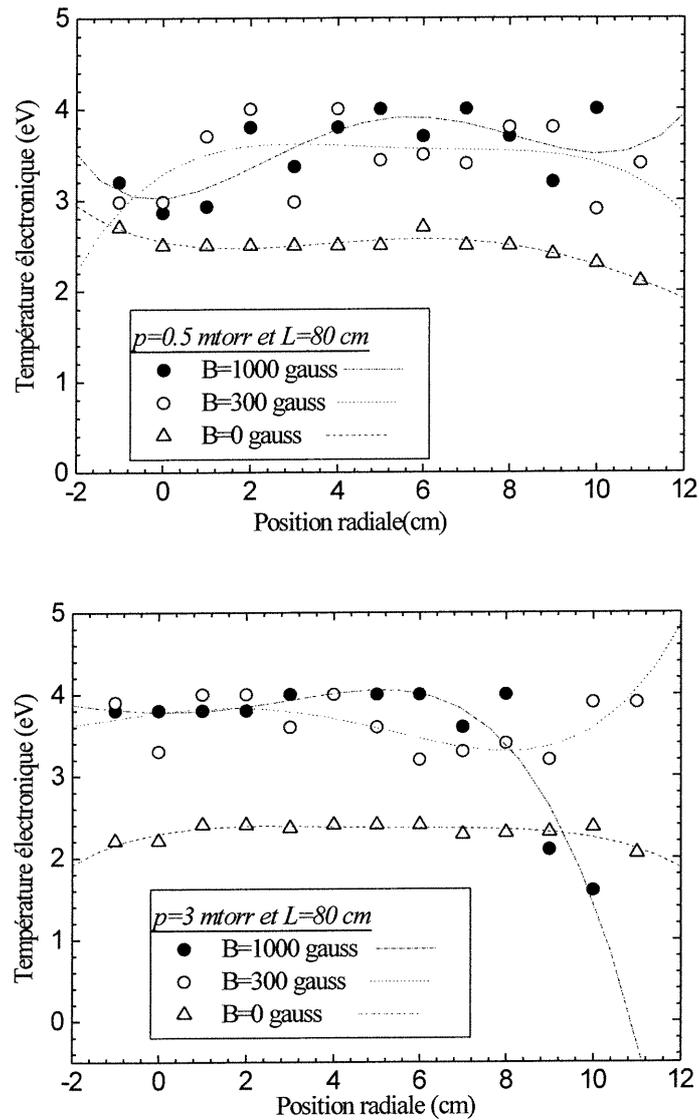
Tel que mentionné au chapitre II, une plaque métallique mobile introduite en bout de réacteur permet d'en faire varier la dimension axiale.

La Figure I.1 présente les profils radiaux de la température électronique pour des pressions de 0.5 et 3 mtorr, à une position axiale  $z=34\text{cm}$ , pour trois valeurs de champ magnétique 1000, 300 et 0 gauss et une dimension axiale du réacteur de 80 cm.

Pour une *pression de 0.5 mtorr*, nous constatons que la température électronique est plus faible pour un champ magnétique nul, s'établissant à 2.5 eV sur toute la distance radiale. Pour des valeurs de champ magnétique supérieures, la température électronique reste constante sur l'ensemble du rayon, autour de 3.5 eV (+/- 0.5 eV).

Pour une *pression de 3 mtorr*, les courbes suivent les mêmes tendances qu'à 0.5 mtorr lorsque le champ magnétique est de 0 et 300 gauss. Par contre, à un fort champ magnétique nous constatons une décroissance rapide de la température électronique au voisinage de la paroi métallique. La température électronique reste tout de même uniforme sur une région d'un diamètre équivalent à la source de notre réacteur (tube de quartz).

La plus faible température observée à champ magnétique nul malgré des pertes plus importantes, pourrait être attribuable à la présence d'électrons hyper thermiques. Nous n'avons pas à ce jour d'explication en ce qui concerne cette différence notable de comportement de la température électronique à champ magnétique nul. On peut donc penser qu'en fait la température électronique est quasi-identique entre 0 et 1000 gauss (comme observé dans le chapitre précédent). Cette condition doit être considéré avec prudence, mais les tendances observées, en fonction de la longueur de la chambre, reste tout de même identique pour les trois valeurs de champ magnétique



**Figure I.1. Profils radiaux de la température électronique pour deux pressions de 0.5 et 3 mtorr, à trois valeurs de l'intensité du champ magnétique 1000, 300 et 0 gauss. La puissance absorbée était de 250 watts et la mesure était prise à  $z=34$  cm. La dimension axiale du réacteur est de 80 cm.**

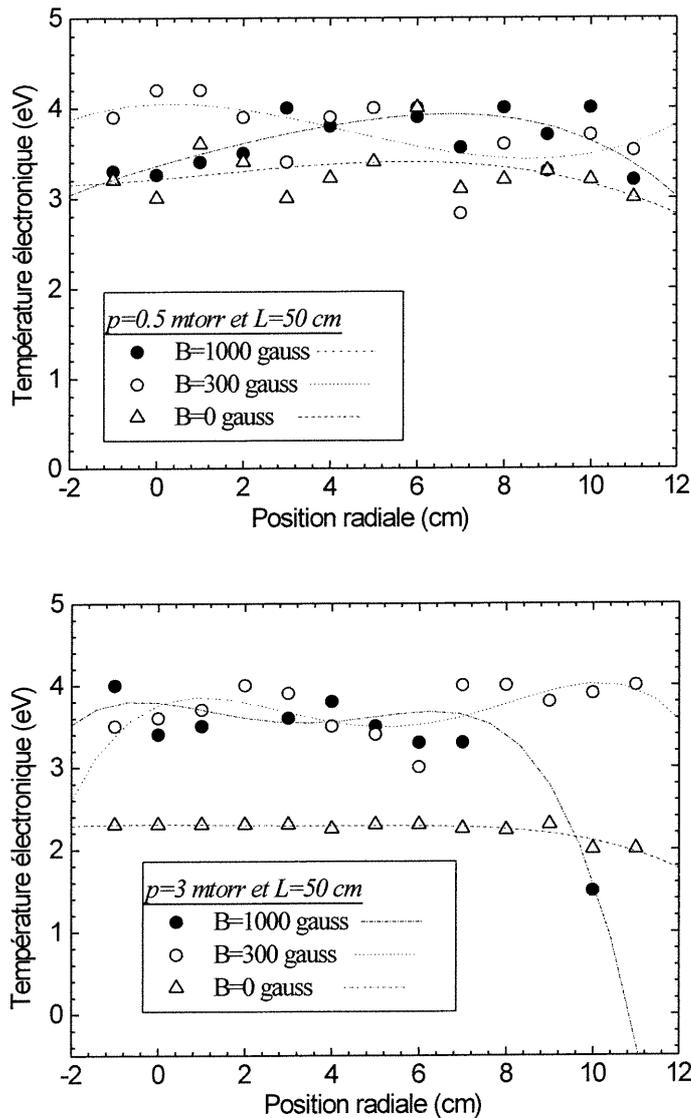
La Figure I.2 présente les profils de température électronique pour une pression de 0.5 et 3 mtorr, pour trois intensités du champ magnétique et une longueur de l'enceinte de 50 cm.

Pour une *pression de 0.5 mtorr*, les profils de température électronique sont uniformes sur tout le rayon ( $\pm 0.5$  eV), et s'établissent respectivement à 3.5 eV pour 1000 et 300 gauss

et à 3eV pour 0 Gauss. On constate comme auparavant que la température observée à champ magnétique nul est plus faible.

Pour une *pression de 3 mtorr*, nous observons les mêmes comportements et des valeurs similaires de la température électronique, que dans le cas de l'enceinte de longueur  $L=80$  cm.

Nous voyons donc que la modification de la longueur de l'enceinte n'a pas d'effet significatif (tant du point de vue de la forme que des valeurs de celle-ci) sur les profils radiaux de la température électronique.



**Figure I.2. Profils radiaux de la température électronique pour deux pressions de 0.5 et 3 mtorr, à trois valeurs de l'intensité du champ magnétique 1000, 300 et 0 gauss. La puissance absorbée était de 250 watts et la mesure était prise à  $z=34$  cm. La dimension axiale du réacteur est de 50 cm.**

## II) ***Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur les profils radiaux de la densité d'ions positifs.***

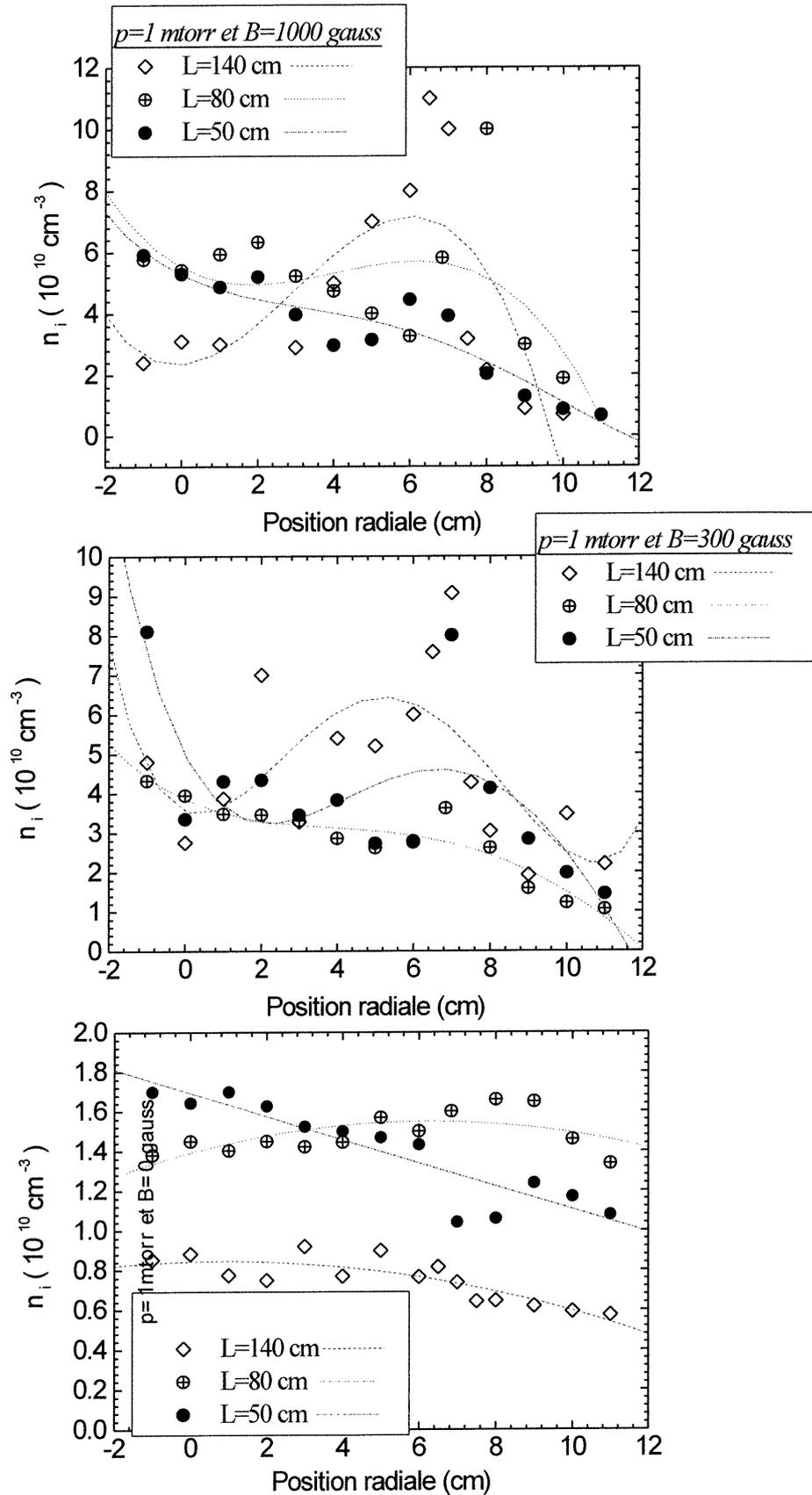
La Figure II.1 présente les profils radiaux de la densité d'ions positifs pour trois valeurs de l'intensité du champ magnétique et trois dimensions axiales du réacteur, à une pression de 1 mtorr et un puissance absorbée de 250 watts. L'incertitude sur les mesures des densités ioniques est de l'ordre de 15%.

*En champ magnétique fort (1000 gauss),* nous observons un profil uniforme sur une distance de 5 cm environ, puis l'apparition d'un pic à  $r \approx 6$  cm pour les trois longueurs d'enceinte (140 , 80 cm et 50 cm). Toutefois, l'amplitude de ce pic semble être moindre lorsque la longueur de l'enceinte diminue. Dans la zone uniforme, la densité d'ions positifs est d'environ  $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ , tandis que le pic varie de  $10 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  à  $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ . La plus faible valeur de la densité au pic, pour une longueur de 50 cm, pourrait être due à l'incertitude sur le positionnement radial de la sonde. En effet, la mesure de la sonde étant locale et le maximum assez pointu, il se peut que nous nous soyons positionnés à coté du maximum de densité d'ions positifs lors des expériences correspondant à  $L=50$  cm.

*Pour un champ magnétique intermédiaire (300 gauss),* nous observons les mêmes phénomènes qu'à fort champ, mais avec des amplitudes moindres. La densité d'ions positifs s'établit autour de  $4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  dans la zone uniforme et de  $8 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  pour le pic.

*En absence de champ magnétique (0 gauss),* le profil présente une décroissance monotone de l'axe du réacteur vers les parois (en tenant compte des incertitudes de mesures), et cela pour les trois dimensions axiales de l'enceinte. La densité d'ions positifs est d'environ  $1,4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ .

Le pic observé à  $r \approx 6-7$  cm, peut être attribué à un phénomène d'ionisation périphérique dans la source ( $r=7$  cm pour le tube de quartz). Le confinement radial important imposé par le champ magnétique impliquerait que la distribution radiale de la densité d'ions positifs dans l'enceinte métallique soit dictée par la distribution de l'ionisation dans la source. Cela a déjà été observé pour un plasma opérant à 2.45 GHz [2], et a été expliqué en considérant un modèle bidimensionnel de diffusion couplé avec une ionisation périphérique dans la source. Le fait que la diffusion radiale des particules chargées soit faible, préserve ainsi le profil radial d'ionisation de la source.



**Figure II.1. Profils radiaux de la densité d'ions positifs pour trois valeurs de l'intensité du champ magnétique 0, 300 et 1000 gauss et trois dimensions axiales du réacteur 140, 80 et 50 cm. La mesure était prise à  $z = 34 \text{ cm}$ , pour une pression de 1 mtorr.**

### **III) Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension du réacteur sur la distribution axiale de la température électronique**

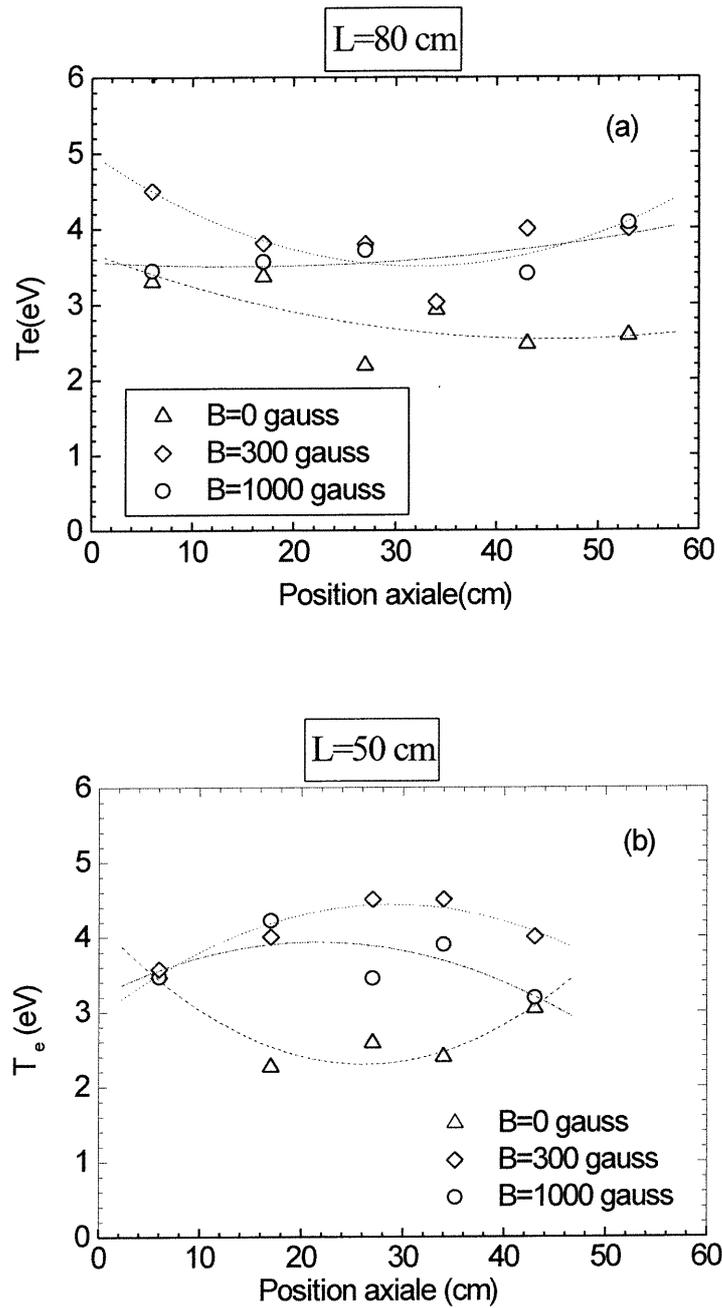
La Figure III.1 (a) et (b) présente le profil axial de la température électronique à  $r=0\text{cm}$ , pour trois valeurs de l'intensité du champ magnétique, une pression de 1 mtorr et deux positions de la plaque ( $z=50$  et  $z=80$  cm).

Selon l'intensité du champ magnétique, nous observons que pour un champ magnétique nul, la température électronique diminue de 3.5 à 2.5 eV. A 300 gauss, la température électronique passe de 4.5 à 4eV, tandis qu'à 1000 gauss, celle-ci reste constante sur l'ensemble de la dimension axiale étudiée autour de 3.5 eV.

Nous constatons une fois de plus que la température électronique mesurée à 0 gauss est plus faible que pour des intensités supérieures du champ magnétique, bien que les pertes particules chargées soient plus importantes.

Selon la longueur de l'enceinte, nous constatons à la Figure III.1 (b), que la diminution de la longueur de l'enceinte de  $L=80\text{cm}$  à  $L=50$  cm, n'implique pas de changements notoires de la température électronique, puisque les comportements et les valeurs de celle-ci sont identiques au cas  $L=80$  cm.

La diminution observée pour un champ magnétique nul peut se comprendre en rappelant que la position  $z=6$  cm correspond à une mesure prise dans le tube de quartz où se crée le plasma. Pour les valeurs plus importantes du champ magnétique, le profil de la température électronique est plus uniforme spatialement grâce au confinement magnétique des électrons, qui tend à conserver les caractéristiques du plasma créé dans le tube de quartz.



**Figure III.1. Profils axiaux de la température électronique pour une pression de 1 mtorr et une puissance absorbée de 250 watts. Nous considérons trois intensités du champ magnétique (0, 300 et 1000 gauss) et deux longueurs de l'enceinte ( $L=80$  cm (a) et  $L=50$  cm (b) )**

#### IV) ***Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension du réacteur sur la distribution axiale de la densité d'ions positifs.***

La Figure IV.1 (a) et (b) présente les profils axiaux de la densité d'ions positifs pour trois valeurs de l'intensité du champ magnétique et deux longueurs de l'enceinte ( $L=80$  cm et  $L=50$  cm) et une *pression de 0.1 mtorr*.

Selon l'intensité du champ magnétique, (Figure IV.1 (a)), nous voyons qu'à 0 gauss la densité d'ions positifs décroît lentement du tube de quartz jusqu'à la plaque métallique et s'établit autour de  $10^{10}$  cm<sup>-3</sup>. Pour de plus fortes valeurs du champ magnétique, la densité d'ions positifs présente un profil « bombé », avec un maximum à environ 35 cm du lanceur d'onde (de  $7.10^{10}$  cm<sup>-3</sup> à 1000 gauss et  $6.5.10^{10}$  cm<sup>-3</sup> à 300 gauss), puis décroît en s'approchant de la plaque.

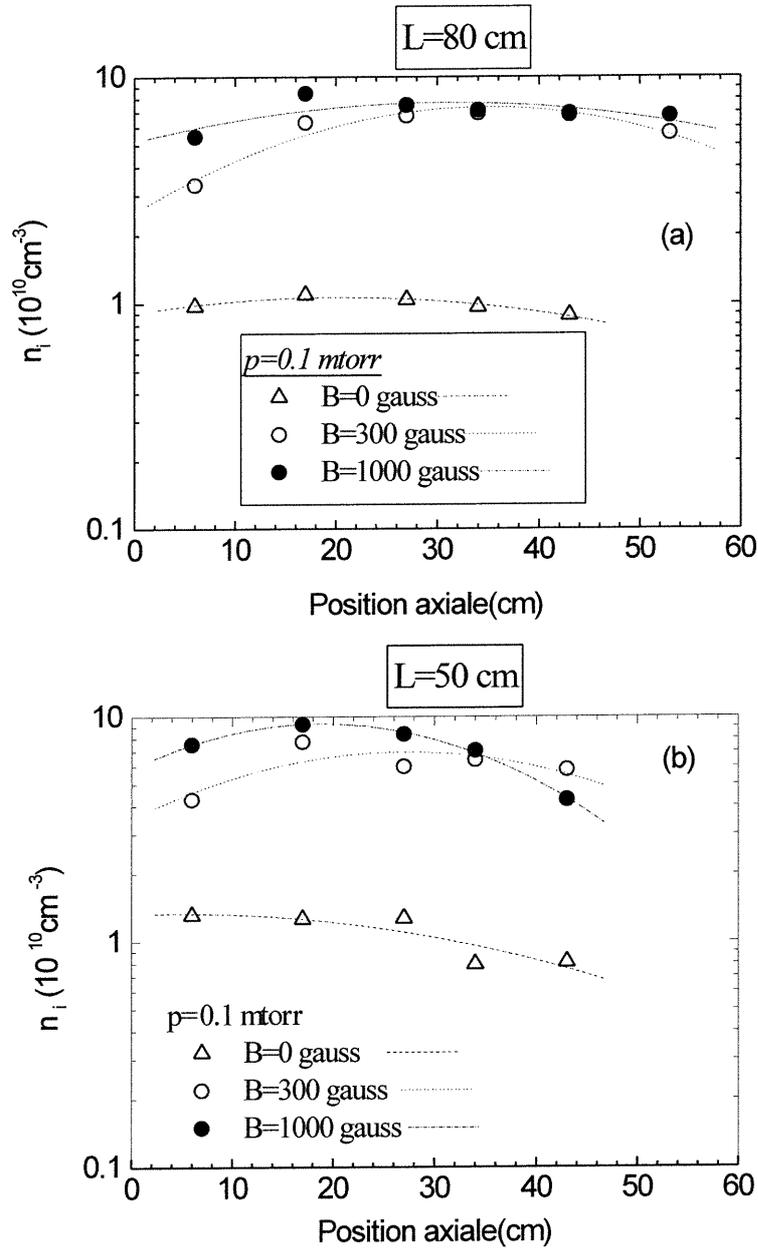
Selon la longueur de l'enceinte, (Figure IV.1 (b)), nous voyons qu'il n'y a pas de différence notable sur les valeurs de densité d'ions positifs lorsque l'on passe de  $L=80$  cm (a) à  $L=50$  cm (b), puisqu'elle s'établit autour de  $10^{10}$  cm<sup>-3</sup> pour un champ magnétique nul et autour de  $7.10^{10}$  cm<sup>-3</sup> à 300 gauss et  $8.10^{10}$  cm<sup>-3</sup> à 1000 gauss. Par contre, on constate que le maximum de densité se déplace à 20 cm environ pour  $L=50$  cm, au lieu de 35 cm pour  $L=80$  cm.

La Figure IV.2 (a) et (b) présente les profils axiaux de la densité d'ions positifs pour trois valeurs du champ magnétique et deux longueurs de l'enceinte ( $L=80$  cm et  $L=50$  cm) à une *pression de 1 mtorr*.

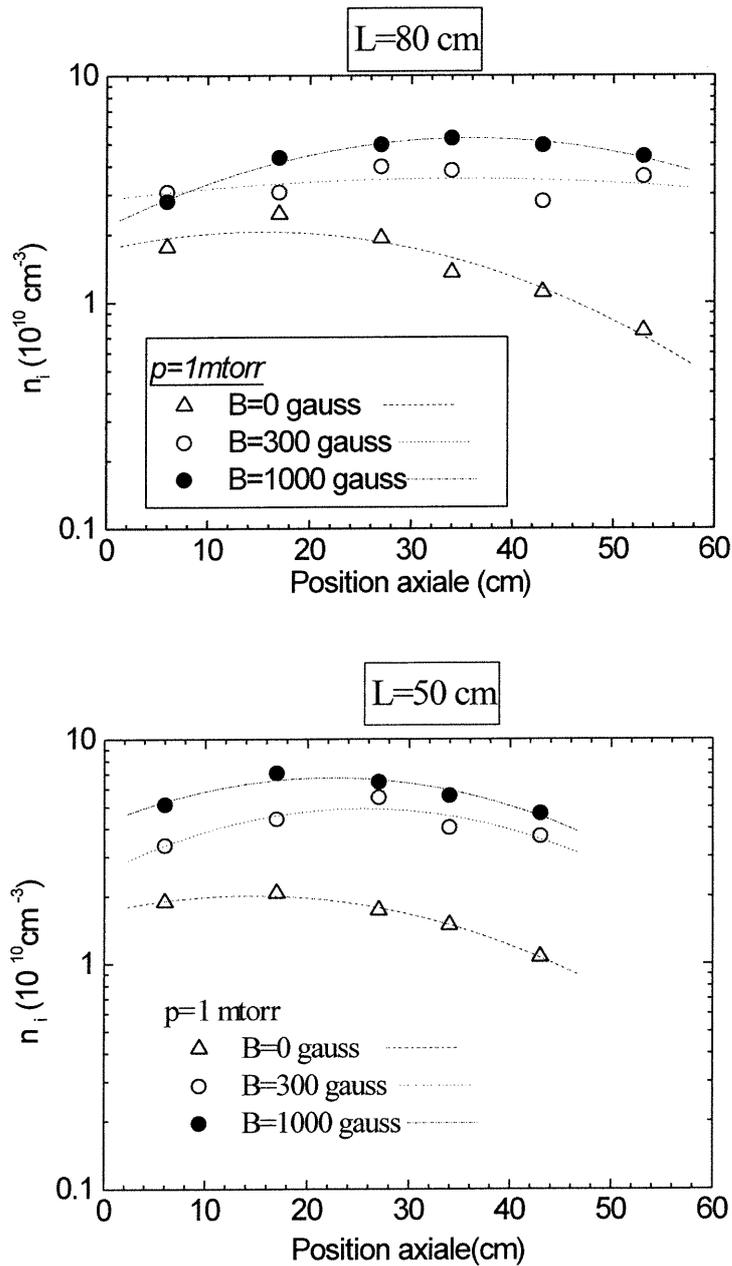
Selon l'intensité du champ magnétique, (Figure IV.2 (a)), nous voyons qu'à 0 gauss la densité d'ions positifs décroît rapidement à partir du tube de quartz ( $2.10^{10}$  cm<sup>-3</sup>) jusqu'à la plaque métallique, où elle s'établit autour de  $1.10^{10}$  cm<sup>-3</sup>. A 300 gauss, la densité d'ions positifs présente un profil plat autour de  $4.10^{10}$  cm<sup>-3</sup>, tandis qu'à 1000 gauss, le profil est plus « bombé », avec un maximum à environ 35 cm du lanceur d'onde (de  $5.10^{10}$  cm<sup>-3</sup>), puis décroît en s'approchant de la plaque.

Selon la longueur de l'enceinte, (Figure IV.2 (b)), nous observons de même que précédemment qu'il n'y a pas de différence notable sur les valeurs de densité d'ions positifs lorsque l'on passe de  $L=80$  cm (a) à  $L=50$  cm (b), puisqu'elle s'établit autour de  $2.10^{10}$  cm<sup>-3</sup>, pour décroître jusqu'à  $1.10^{10}$  cm<sup>-3</sup> pour un champ magnétique nul et autour de  $4.10^{10}$  cm<sup>-3</sup> pour 300 gauss et  $6.10^{10}$  cm<sup>-3</sup>, pour 1000 gauss. Par contre, on constate que le profil est différent pour une enceinte plus courte. En effet, on reconnaît toujours le profil bombé, mais

le maximum s'est déplacé de 35 cm à 20 cm environ. De plus ce maximum est nettement plus marqué mettant en valeur l'effet plus marqué de la longueur de l'enceinte sur les profils de densités d'ions positifs.



**Figure IV.1. Profils axiaux de la densité d'ions positifs pour une pression de 0.5 mtorr et une puissance absorbée de 250 watts. Nous considérons trois intensités du champ magnétique (0, 300 et 1000 gauss) et deux longueurs de l'enceinte ( $L=80 \text{ cm}$  (a) et  $L=50 \text{ cm}$  (b) )**



**Figure IV.2. Profils axiaux de la densité d'ions positifs à une pression de 1 mtorr et pour une puissance absorbée de 250 watts, pour trois valeurs de l'intensité du champ magnétique 0, 300 et 1000 gauss, et pour deux positions de la plaque (a)  $z=80 \text{ cm}$ , et (b)  $z=50$**

## V) *Influence de la pression sur les profils axiaux de la densité d'ions positifs*

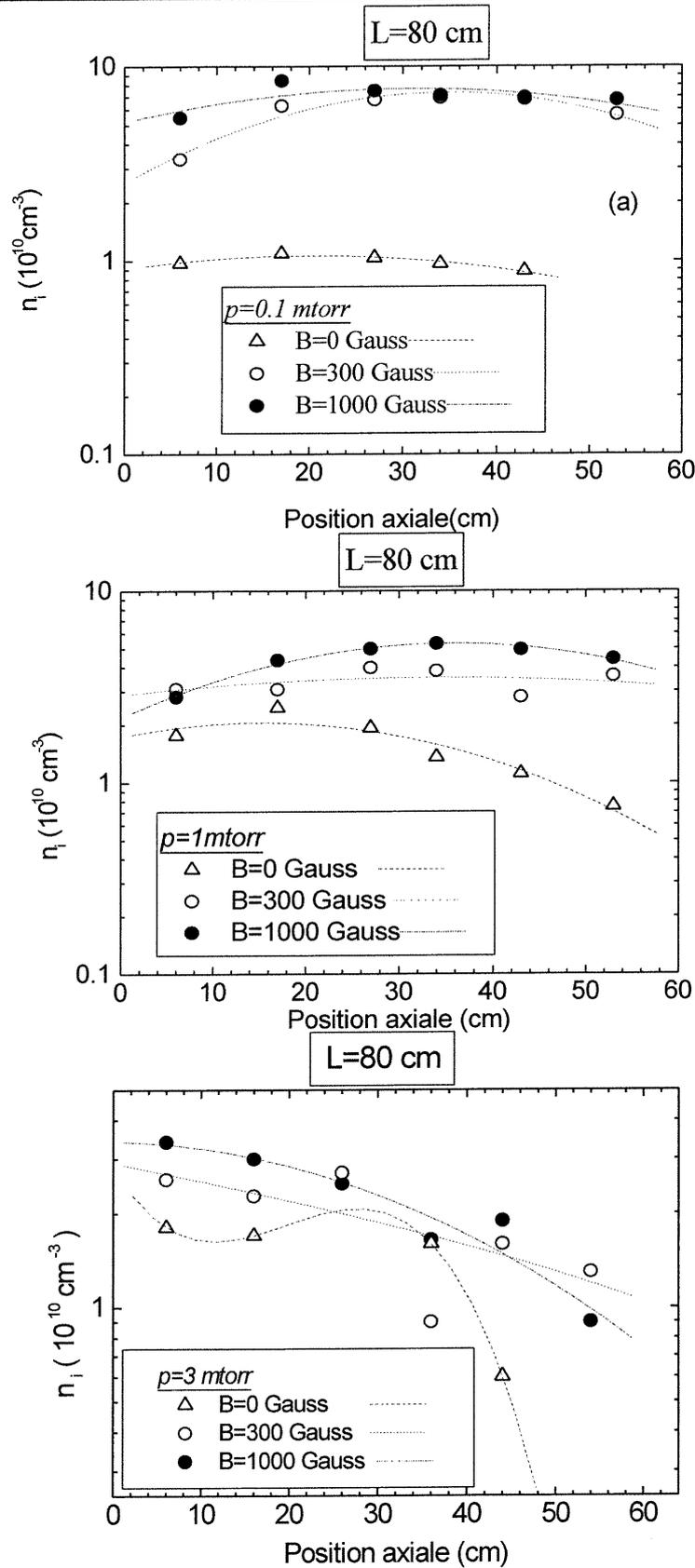
La Figure V.1 présente l'évolution des profils axiaux de la densité d'ions positifs pour une longueur de l'enceinte constante, pour trois intensités du champ magnétique, et pour trois pressions différentes (0.1, 1, 3 mtorr). Comme nous l'avons déjà montré dans le chapitre III (paragraphe V), nous avons constaté qu'à partir d'une certaine pression (1 mtorr environ) les pertes électroniques étaient principalement dues aux pertes par attachement. Nous avons donc voulu apprécier l'impact de ce phénomène sur les profils axiaux de la densité d'ions positifs.

Nous observons que la densité d'ions positifs pour 0.1 mtorr présente un profil avec un maximum autour de 35 cm et s'établit à une valeur de  $8.10^{10} \text{ cm}^{-3}$  à 1000 et 300 gauss, tandis qu'elle décroît lentement à 0 Gauss à partir de  $1.10^{10} \text{ cm}^{-3}$ .

A 1 mtorr, nous observons les mêmes tendances, la densité d'ions positifs présente un maximum autour de  $5.10^{10} \text{ cm}^{-3}$  à 1000 gauss et  $4.10^{10} \text{ cm}^{-3}$  à 300 gauss. De même, à 0 gauss, la densité décroît de  $2.10^{10} \text{ cm}^{-3}$  à  $8.10^9 \text{ cm}^{-3}$ .

A 3 mtorr, par contre on remarque que le profil de densité des ions positifs présente un maximum à 0 Gauss, mais décroît quasi linéairement pour des champs magnétiques non nuls.

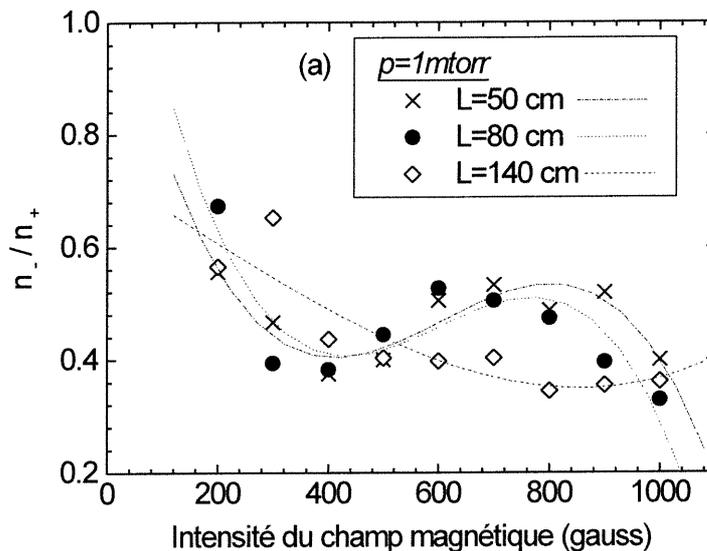
Nous observons donc que pour des pressions inférieures ou égales à 1 mtorr, les profils de densité d'ions positifs présentent des maximums suggérant que le plasma est contrôlé principalement par diffusion (profil de forme sinus) [1], [3]. Par contre, pour les pressions supérieures, où les pertes par attachement sont plus importantes, on observe alors que le profil axial de la densité d'ions positifs ne présente plus de maximum au sein de la chambre métallique, mais décroît de la source vers la fin de l'enceinte métallique.



**Figure V.1. Influence de la pression sur les profils axiaux de la densité d'ions positifs sur l'axe et à une puissance de 250 watts, et trois intensités du champ magnétique (0, 300, 1000 gauss).**

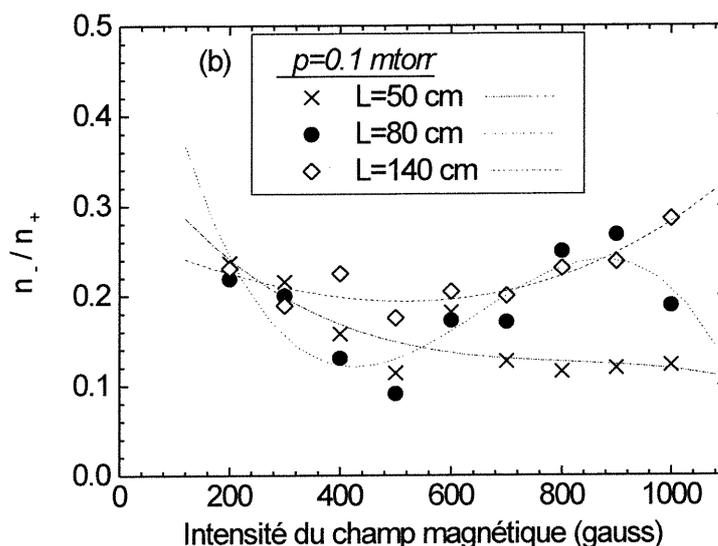
### VI) Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la proportion d'ions négatifs dans la décharge.

Comme nous le montre les mesures par la méthode de photodétachement par laser, présentées sur la Figure VI.1, nous constatons que la proportion d'ions négatifs augmente avec la diminution de l'intensité du champ magnétique. En effet, la proportion d'ions négatifs  $n_-/n_+$  est de 70 % pour des champs magnétiques faibles (200 gauss) puis décroît avec l'augmentation de l'intensité du champ magnétique pour présenter un plateau à partir de 400 gauss environ, à 40 %. De plus, nous constatons que quelle que soit la dimension axiale de l'enceinte, cette proportion reste la même, l'ensemble des profils pour  $L=140$ , 80 et 50 cm suivant les mêmes tendances, en remarquant toutefois la légère remontée observée pour  $L=50$  et 80 cm entre 400 et 700 gauss (de 0.4 à 0.5). Les mêmes mesures ont été faites à une position axiale de  $z=20$  cm, et nous avons trouvé les mêmes profils avec les mêmes valeurs pour la proportion d'ions négatifs. La proportion d'ions négatifs dans l'enceinte est donc aussi très uniforme dans la majeure partie de l'enceinte métallique.



**Figure VI.1. Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la proportion d'ions négatifs pour une pression de 1 mtorr à une position axiale  $z=40$  cm et radiale  $r=0$  cm. La puissance absorbée était de 250 watts.**

La Figure VI.2 présente les mêmes résultats que précédemment, mais pour une pression de 0.1 mtorr. Nous observons les mêmes phénomènes que pour une pression de 1 mtorr. La proportion d'ions négatifs reste quasi constante en fonction de l'intensité du champ magnétique, et s'établit autour de 20%. La longueur de l'enceinte, pour  $L=140$  et 80 cm, ne modifie pas notablement les variations de la proportion d'ions négatifs en fonction de l'intensité du champ magnétique. Par contre, on constate une décroissance plus marquée pour  $L=50$  cm (0.15 au lieu de 0.2 pour  $L=140$  et 80 cm).

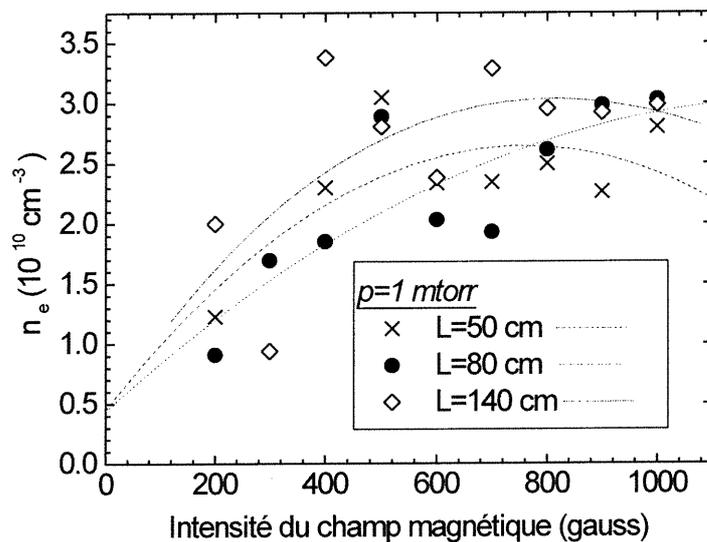


**Figure VI.2. Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la proportion d'ions négatifs pour une pression de 0.1 mtorr à une position axiale  $z=40$  cm et radiale  $r=0$  cm. La puissance absorbée était de 250 watts.**

Les résultats obtenus pour la densité d'ions positifs, et la proportion d'ions négatifs nous permettent de déduire le comportement des électrons en fonction de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur.

En ce qui concerne l'effet du dimensionnement de l'enceinte, nous avons constaté qu'il était peu important, tant pour les ions positifs que négatifs entre  $L=50$  et  $L=80$  cm. Nous ne sommes donc pas surpris de constater, compte tenu d'une incertitude sur la mesure de l'ordre de 10%, que l'effet du dimensionnement de la décharge sur la densité d'électrons est négligeable (Figure VI.3), même si pour des fortes valeurs du champ magnétique la densité électronique est plus forte pour les chambres de  $L=140$  et 80 cm. Celle-ci augmente avec

l'intensité du champ magnétique pour passer d'environ  $1.10^{10} \text{ cm}^{-3}$  à 200 gauss, pour atteindre  $3.10^{10} \text{ cm}^{-3}$  entre 400 et 1000 gauss et cela pour les trois longueurs d'enceinte considérées. On peut toutefois s'étonner de la faible différence entre la chambre de 140 cm et 80 cm, puisque le champ magnétique n'est uniforme que sur 80 cm. Pour la chambre de 140 cm, le champ magnétique est donc divergent sur une distance de 60 cm où les pertes sont vraisemblablement très importantes.



**Figure VI.3. Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la densité d'électrons pour une pression de 1 mtorr à une position axiale  $z=40 \text{ cm}$  et radiale  $r=0 \text{ cm}$ . La puissance absorbée était de 250 watts.**

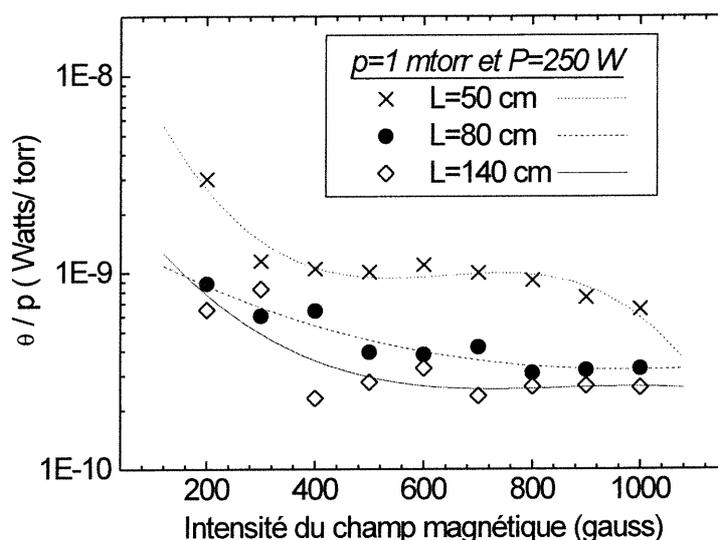
⇒ Dans le cas de l'argon, il a été trouvé que la dimension axiale de l'enceinte avait un impact sur la densité maximum dans la décharge [4]. Il a été montré que pour obtenir le meilleur bilan de puissance pour une puissance absorbée donnée, il était nécessaire d'utiliser une enceinte ayant un rapport  $L/R$  important avec un fort champ magnétique axial. Pour obtenir une densité du plasma équivalente dans un réacteur plus compact, il serait alors nécessaire d'augmenter la puissance injectée. Ainsi, dans le cas d'un gaz électropositif, l'influence de l'intensité du champ magnétique couplée à la dimension axiale du réacteur est importante pour l'optimisation du réacteur, puisque les propriétés électriques sont fortement modifiées.

⇒ *Dans le cas du chlore*, on constate, par les résultats précédents, que les *caractéristiques électriques ne sont que très peu modifiées par le dimensionnement de l'enceinte*. L'influence du champ magnétique reste tout de même importante. Malgré la grande complexité des réacteurs avec champ magnétique, il est nécessaire d'avoir recours à un champ magnétique et une puissance HF suffisamment élevées (400 gauss et 300 watts environ dans notre cas) afin d'obtenir de fortes densités d'ions positifs.

### **VII) Bilan de puissance de la décharge de chlore.**

En suivant le même principe de calcul qu'explicité au chapitre III, nous avons examiné les variations du bilan de puissance en fonction de l'intensité du champ magnétique, et cela pour différentes longueurs de l'enceinte.

La Figure VII.1 présente le résultat obtenu pour une pression de 1 mtorr. Nous représentons les valeurs de  $\theta$  normalisées selon la pression en fonction de l'intensité du champ magnétique, pour différentes positions de la plaque. Le comportement des courbes est similaire quelle que soit la position de la plaque. L'intensité du champ magnétique a une influence marquée. A faible valeur du champ magnétique, la puissance nécessaire pour maintenir un électron dans la décharge est élevée, puis elle diminue lorsque l'intensité du champ magnétique augmente, pour finalement atteindre un plateau. Ces variations, similaires à celles observées dans l'argon, suggèrent que la valeur minimale de  $\theta$  est déterminée par la prépondérance de la diffusion axiale dans l'équation d'équilibre des particules chargées, tel qu'indiqué au Chapitre III. Pour une pression de 1 mtorr, les valeurs de  $\theta/p$  s'établissent entre  $1 \cdot 10^{-9}$  watts/torr et  $4 \cdot 10^{-10}$  watts/torr pour  $L=80$  cm et entre  $3 \cdot 10^{-9}$  watts/torr et  $1 \cdot 10^{-9}$  Watts/torr pour  $L=50$  cm, tandis que pour  $L=140$  cm,  $\theta/p$  diminue de  $1 \cdot 10^{-9}$  watts/torr à  $3 \cdot 10^{-10}$  watts/torr. Le bilan de puissance est plus favorable pour une longueur de l'enceinte de 140 cm et 80 cm que de 50 cm, particulièrement à fort champ magnétique. En termes de densité moyenne, le bilan le plus favorable est obtenu à  $B=400$  gauss et  $L=140$  cm ou 80 cm.

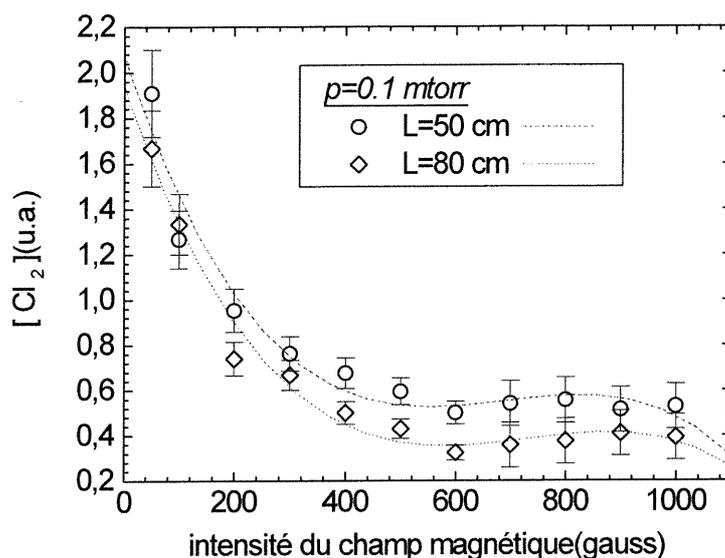


**Figure VII.1. Variation du paramètre  $\theta/p$  en fonction de l'intensité du champ magnétique pour une pression de 1 mtorr.**

Dans les paragraphes précédents, nous avons montré que la géométrie jouait un rôle significatif pour une longueur de 50 cm, même si les densités d'espèces chargées ne présentent pas de variations importantes dans la gamme de conditions étudiées. Le paragraphe suivant concerne plus spécifiquement la chimie de notre magnétoplasma, qui elle, présente des variations plus significatives avec la longueur de l'enceinte.

### **VIII) Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la chimie du plasma.**

Par l'actinométrie sur le chlore atomique aussi bien que moléculaire, nous avons étudié l'impact de la dimension axiale du réacteur sur les propriétés chimiques de notre décharge. Comme nous le montre la Figure VIII.1, la densité relative de chlore moléculaire décroît lorsque l'intensité du champ magnétique augmente, ce qui indique une meilleure dissociation. On constate que la dimension axiale du réacteur influence légèrement (mais systématiquement) la densité de  $\text{Cl}_2$ .

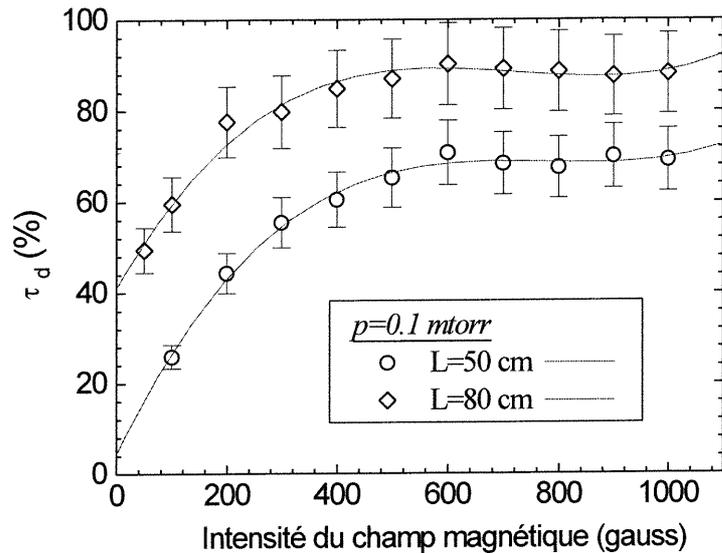


**Figure VIII.1. Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la densité relative de chlore moléculaire à une pression de 0.1 mtorr et une puissance absorbée de 250 watts. La mesure était prise à  $z=40$  cm.**

### 1) Impact sur le degré de dissociation

Ce résultat obtenu, nous a poussé à déterminer l'influence de l'intensité du champ magnétique et de la longueur du réacteur sur le taux de dissociation à l'aide de *l'actinométrie indirecte sur le chlore moléculaire*, afin de confirmer ce résultat. Pour cela, comme expliqué dans le chapitre II, nous avons utilisé la technique d'auto-calibration à puissance absorbée nulle afin d'estimer la valeur absolue de la densité de chlore moléculaire et ainsi remonter au taux de dissociation en fonction de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur. Les résultats obtenus sont présentés à la Figure VIII.1.

Nous constatons, de fait, une importante différence sur la valeur du taux de dissociation en faveur de la chambre à 80 cm. Nous observons une augmentation de celui-ci avec l'intensité du champ magnétique augmentant de 30 à 70 % pour  $L=50$  cm et de 50 à 85 % pour  $L=80$  cm.



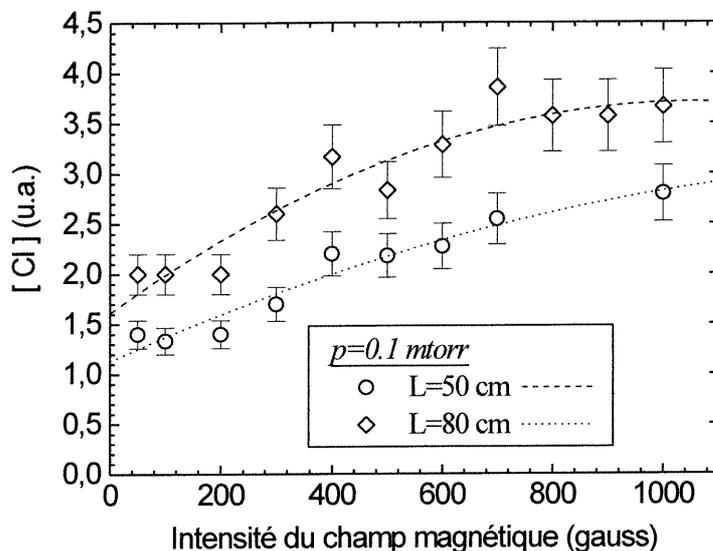
**Figure VIII.1. Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur le taux de dissociation du chlore. La pression était de 0.1 mtorr et la mesure prise à  $z=40\text{cm}$  pour une puissance absorbée de 250 watts.**

Afin de confirmer ce résultat, l'*actinométrie directe* sur le chlore atomique, à l'aide des raies à 837.6 nm pour le chlore atomique et 811.5 nm pour l'argon, nous a permis d'obtenir la densité relative de chlore atomique en fonction de l'intensité du champ magnétique et de la longueur de la chambre, comme nous le montre la Figure VIII.2. Nous constatons une augmentation de la densité relative de chlore atomique avec l'augmentation de l'intensité du champ magnétique résultant d'une meilleure dissociation du chlore avec l'augmentation du champ magnétique.

Par contre, nous constatons une forte différence en fonction de la longueur de l'enceinte. En effet, la densité de chlore atomique est plus importante pour la chambre de longueur 80 cm. On peut estimer la différence entre la chambre de 80 cm et de 50 cm, à une diminution de la densité relative de chlore atomique pour la chambre de 50 cm, d'un facteur 2 environ par rapport à l'enceinte de 80 cm.

Il est de plus important de noter que le même comportement a été observé à une position plus lointaine de la fin de l'enceinte, à  $z=20\text{cm}$ .

En comparant cette courbe avec la Figure VIII-2, nous constatons que le degré de dissociation est bien proportionnel à la densité relative de chlore atomique sur l'ensemble de la gamme d'intensité du champ magnétique étudiée. En effet la densité relative de chlore atomique peut être définie par la relation :  $[Cl]=2[Cl_2]_0 \cdot \tau_d$ , avec  $[Cl_2]_0$  constant.



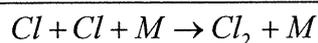
**Figure VIII.2. Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la densité relative de chlore atomique. La mesure était prise à  $z=40$  cm pour une pression de 0.1 mtorr et une puissance absorbée de 250 watts.**

## 2) Discussion

Pour résumer, nous avons donc constaté que pour de fortes valeurs de l'intensité du champ magnétique, plus la longueur de l'enceinte est grande, plus la densité de chlore atomique est importante.

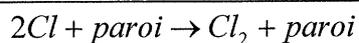
Les précédents paragraphes nous ont montré que les espèces chargées n'étaient que très peu influencées par le dimensionnement du réacteur. Les processus de création des particules chargées ne semblent donc pas particulièrement sensibles à la longueur de l'enceinte. Nous devons donc principalement considérer les processus de créations ou de pertes impliquant des espèces neutres.

Nous avons tout d'abord la recombinaison en volume :



1.

Mais aussi la recombinaison sur les parois :



2.

Deshmukh et al [<sup>5</sup>] ont étudié l'impact de la probabilité de recombinaison à la paroi et du rayon de l'enceinte sur la densité du chlore atomique. Ils ont constaté que l'augmentation de la probabilité de recombinaison aux parois induisait une diminution importante de la densité de chlore atomique. L'augmentation du rayon, par contre, semble favoriser une plus grande densité de Cl. Ils ont constaté que les pertes par recombinaison sur les parois restaient négligeables tant que leurs probabilités restaient inférieures à quelques  $10^{-4}$ .

Plus récemment, Meeks et al [<sup>6</sup>] ont étudié l'effet de la recombinaison sur les parois du chlore atomique, tant d'un point de vue expérimental que numérique. Ils ont étudié un réacteur TCP travaillant à 13.56 MHz et utilisé un modèle de chimie du chlore. Ils ont alors montré qu'une valeur de 0.15 pour la probabilité de recombinaison sur une surface en aluminium permettait d'obtenir un bon accord entre les expériences et le modèle.

Nous pouvons donc penser que cette diminution du taux de dissociation est attribuable aux plus grandes pertes du chlore atomique par recombinaison sur les parois, mais aussi à une plus grande recombinaison en volume, dans le cas d'un réacteur plus compact. Ces résultats nous montre que l'impact des pertes par recombinaisons n'est pas négligeable. En effet, la diminution du temps de résidence du gaz dans le plasma ainsi qu'une probabilité de recombinaison sur la paroi du chlore atomique pouvant atteindre une valeur de 0.1, favorise tant les pertes par recombinaison en volume que sur les parois.

### III. Conclusion.

En conclusion, nous observons que la *géométrie du réacteur a une influence* sur les caractéristiques du plasma, mais *principalement sur les propriétés chimiques* de la décharge.

*En effet, du point de vue des ions positifs et négatifs*, à rayon constant, le rapport L/R a une influence relativement *négligeable sur les propriétés électriques* de la décharge de chlore, puisque tant les densités d'ions positifs et négatifs que leurs profils spatiaux ne sont pas notablement influencés par la longueur de l'enceinte. Nous avons toutefois constaté une légère influence pour L=50 cm.

*Du point de vue des électrons*, nous aboutissons à la *même conclusion*. En effet, la température électronique ainsi que la densité d'électrons ne sont que peu influencées par le dimensionnement de l'enceinte puisque nous retrouvons (à pression et champ magnétique constant) des valeurs similaires quelle que soit la longueur de l'enceinte.

Nous avons vu que les caractéristiques électriques de la décharge sont contrôlées par l'intensité du champ magnétique. Toutefois, une intensité du champ magnétique de 300/400 gauss suffit à obtenir une densité du plasma importante dans la gamme de pression que nous avons étudiée. Le milieu de l'industrie a en effet une réticence importante à utiliser des champs magnétiques, synonymes de coût et d'encombrement importants. Notre étude nous permet de montrer qu'à la fréquence de 200 MHz, où les conditions opératoires sont souples, une intensité du champ magnétique de 400 gauss est suffisante, ce qui est bien moins important que les intensités de champ magnétique requises pour le fonctionnement du réacteur à haute densité le plus utilisé pour les procédés, qu'est le réacteur RCE (875 gauss à 2450 MHz).

*Du point de vue chimique*, nous avons constaté que *l'intensité du champ magnétique* jouait *un rôle important* sur le taux de dissociation du chlore. Mais nos résultats ont montré, une nouvelle fois, qu'un champ magnétique d'une intensité de 400 gauss suffisait à obtenir le maximum de dissociation à une pression donnée.

*Par contre, le comportement chimique de notre décharge est influencé par la taille de notre réacteur.* Nous avons constaté que pour obtenir une densité de chlore atomique importante, il était nécessaire d'avoir une chambre de grande dimension. En effet, la diminution du volume de l'enceinte en réduisant le temps de résidence du gaz dans le plasma, accentue apparemment les pertes tant par recombinaison sur les parois que par recombinaison en volume.

En résumé, pour une décharge dans un gaz électronégatif, l'utilisation *d'un champ magnétique de faible intensité suffit* à obtenir une densité du plasma importante, tout en favorisant une forte anisotropie. Quant au *rapport L/R, il n'a que peu d'influence sur les paramètres électriques de la décharge.*

*Par contre, il intervient lorsqu'il s'agit d'optimiser la chimie du plasma, pour limiter les pertes par recombinaison du chlore atomique.*

## Liste des figures du Chapitre IV

- ✓ Figure I.1. Profils radiaux de la température électronique pour deux pressions de 0.5 et 3 mtorr, à trois valeurs de l'intensité du champ magnétique 1000, 300 et 0 gauss. La puissance absorbée était de 250 watts et la mesure était prise à  $z=34$  cm. La dimension axiale du réacteur est de 80 cm. 153
- ✓ Figure I.2. Profils radiaux de la température électronique pour deux pressions de 0.5 et 3 mtorr, à trois valeurs de l'intensité du champ magnétique 1000, 300 et 0 gauss. La puissance absorbée était de 250 watts et la mesure était prise à  $z=34$  cm. La dimension axiale du réacteur est de 50 cm. 154
- ✓ Figure II.1. Profils radiaux de la densité d'ions positifs pour trois valeurs de l'intensité du champ magnétique 0, 300 et 1000 gauss et trois dimensions axiales du réacteur 140, 80 et 50 cm. La mesure était prise à  $z=34$  cm, pour une pression de 1 mtorr. 156
- ✓ Figure III.1. Profils axiaux de la température électronique pour une pression de 1 mtorr et une puissance absorbée de 250 watts. Nous considérons trois intensités du champ magnétique (0, 300 et 1000 gauss) et deux longueurs de l'enceinte ( $L=80$  cm (a) et  $L=50$  cm (b) ) 158
- ✓ Figure IV.1. Profils axiaux de la densité d'ions positifs pour une pression de 0.5 mtorr et une puissance absorbée de 250 watts. Nous considérons trois intensités du champ magnétique (0, 300 et 1000 gauss) et deux longueurs de l'enceinte ( $L=80$  cm (a) et  $L=50$  cm (b) ) 160
- ✓ Figure IV.2. Profils axiaux de la densité d'ions positifs à une pression de 1 mtorr et pour une puissance absorbée de 250 watts, pour trois valeurs de l'intensité du champ magnétique 0, 300 et 1000 gauss, et pour deux positions de la plaque (a)  $z=80$  cm, et (b)  $z=50$  161
- ✓ Figure V.1. Influence de la pression sur les profils axiaux de la densité d'ions positifs sur l'axe et à une puissance de 250 watts, et trois intensités du champ magnétiques (0, 300, 1000 gauss). 163
- ✓ Figure VI.1. Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la proportion d'ions négatifs pour une pression de 1 mtorr à une position axiale  $z=40$  cm et radiale  $r=0$  cm. La puissance absorbée était de 250 watts. 164

- ✓ Figure VI.2. Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la proportion d'ions négatifs pour une pression de 0.1 mtorr à une position axiale  $z=40$  cm et radiale  $r=0$  cm. La puissance absorbée était de 250 watts. 165
- ✓ Figure VI.3. Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la densité d'électrons pour une pression de 1 mtorr à une position axiale  $z=40$  cm et radiale  $r=0$  cm. La puissance absorbée était de 250 watts. 166
- ✓ Figure VII.1. Variation du paramètre  $\theta/p$  en fonction de l'intensité du champ magnétique pour une pression de 1 mtorr. 171
- ✓ Figure VIII.1. Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la densité relative de chlore moléculaire à une pression de 0.1 mtorr et une puissance absorbée de 250 watts. La mesure était prise à  $z=40$  cm. 168
- ✓ Figure VIII.1. Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur le taux de dissociation du chlore. La pression était de 0.1 mtorr et la mesure prise à  $z=40$  cm pour une puissance absorbée de 250 watts. 170
- ✓ Figure VIII.2. Influence de l'intensité du champ magnétique et de la dimension axiale du réacteur sur la densité relative de chlore atomique. La mesure était prise à  $z=40$  cm pour une pression de 0.1 mtorr et une puissance absorbée de 250 watts. 171

## Bibliographie du Chapitre IV.

---

<sup>1</sup> F.Vidal, T.W.Johnston, J.Margot, M.Chaker et O.Pauna, *Diffusion Modelling of an HF Argon Plasma Discharge in a Magnetic Field*, IEEE.Trans.Plasma.Science, **27**, (3), 727-745, June 1999.

<sup>2</sup> L.St.Onge, J.Margot, et M.Chaker, *Characteristics of a large volume SF<sub>6</sub> magnetoplasma source based on surface-wave propagation*, Plasma.Sources.Sci.Technol, **7**, p 154, (1998).

<sup>3</sup> M.A.Lieberman, A.J.Lichtenberg, *Principles of plasma discharges and materials processings (Chap 5)*, Wiley-Interscience, 412, (1994).

<sup>4</sup> J.Margot, F.Vidal, M.Chaker, T.W.Johnston, A.Aliouchouche, M.Tabbal, S.Delprat, O.Pauna et D.Benhabib, *Comparison of experimental results for number and power balance for an argon magnetoplasma with a simple two-dimensionnal isothermal model*, en soumission à Plasma.Sources.Sci.Technol.

<sup>5</sup> S.Deshmukh et D.J.Economou, *Factors affecting the Cl density in a chlorine discharge*, J.Appl.Phys, **72**, (10), 4597-4607, 15 Nov 1992.

<sup>6</sup> E.Meeks et J.W.Shon, Y.Ra et P.Jones, *Effects of atomic wall recombination: Comparison of a plasma chemistry model with experiment*, J.Vac.Sci.Technol.A, **13**, (6), 2884-2889, (Nov/dec 1995).



**Sommaire du Chapitre V**

<b>SOMMAIRE DU CHAPITRE V.....</b>	<b>179</b>
<b>MODÉLISATION DES DÉCHARGES.....</b>	<b>181</b>
I.) INTRODUCTION.....	181
II.) EQUATION DE BOLTZMANN.....	184
III.) DESCRIPTION DE L'APPROCHE FLUIDE.....	186
1) <i>Hypothèses sur la forme de la fonction de distribution.....</i>	<i>188</i>
2) <i>Hypothèses simplificatrices de l'équation de transport de quantité de mouvement.....</i>	<i>190</i>
3) <i>Fréquence de collisions effective.....</i>	<i>191</i>
4) <i>Champ magnétique axial uniforme.....</i>	<i>192</i>
IV.) ETUDE DE LA DIFFUSION DES PARTICULES.....	193
1) <i>Définitions et signification physique de la mobilité et de la diffusion.....</i>	<i>193</i>
2) <i>Dérivation à partir de l'équation de transport de quantité de mouvement.....</i>	<i>193</i>
3) <i>Diffusion ambipolaire.....</i>	<i>194</i>
V.) ETUDE DE LA DIFFUSION DES PARTICULES EN PRÉSENCE D'UN CHAMP MAGNÉTIQUE.....	195
1) <i>Diffusion ambipolaire en présence d'un champ magnétique.....</i>	<i>197</i>
2) <i>Théorie de Bohm.....</i>	<i>198</i>
3) <i>Théorie de Simon.....</i>	<i>199</i>
4) <i>Théorie de Liebermann et Lichtenberg.....</i>	<i>201</i>
VI.) TEMPS CARACTÉRISTIQUES DU PLASMA.....	202
1) <i>Temps caractéristiques des collisions.....</i>	<i>202</i>
a) Electrons.....	202
b) Ions.....	202
c) Temps de diffusion ambipolaire.....	202
d) Temps caractéristiques de l'interaction plasma-champ électrique.....	203
e) Représentation des différents temps caractéristiques.....	204
VII.) MODÈLE FLUIDE 2D.....	205
1) <i>Description générale.....</i>	<i>205</i>
2) <i>Hypothèses du modèle.....</i>	<i>205</i>
3) <i>Equations du modèle.....</i>	<i>206</i>
4) <i>Conditions aux limites.....</i>	<i>206</i>

## Chapitre V. Modélisation des décharges

---

a) Flux aux parois .....	206
b) Potentiel .....	207
5) <i>Schéma numérique adopté et discrétisation des équations du modèle</i> .....	207
a) Equation de continuité .....	207
b) Equation de Poisson .....	210
c) Couplage des équations de transport et de l'équation de Poisson .....	210
VIII.) ETUDE NUMÉRIQUE DU COEFFICIENT DE DIFFUSION PERPENDICULAIRE.....	214
1) <i>Temps de diffusion</i> .....	214
2) <i>Diffusion dans un gaz électropositif soumis à un champ magnétique uniforme</i> .....	216
Théorie de Liebermann .....	219
Théorie de Simon .....	219
<b>CONCLUSION</b> .....	<b>227</b>
<b>LISTE DES FIGURES DU CHAPITRE V</b> .....	<b>228</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE V</b> .....	<b>229</b>

## Modélisation des décharges

### *1.) Introduction*

Les caractéristiques des procédés par plasma dépendent des propriétés de la décharge, qui elle-même, est fonction de la configuration de la chambre et des paramètres d'opération. Une bonne compréhension de la décharge est donc essentielle au contrôle et à l'amélioration des procédés par plasma. On peut distinguer trois parties dans un réacteur, la source (où est créée la décharge), la post-décharge (où sont transportées les diverses espèces entrant en jeu pour le procédé) et le substrat. On cherche, bien sûr, à contrôler ce qui se passe au niveau du substrat. Cependant, le corps de la décharge, que ce soit la source ou la post-décharge, joue un rôle important dans les caractéristiques des particules neutres et chargées qui se retrouvent au voisinage de la gaine autour du substrat. Une étude de la décharge en elle-même est ainsi essentielle afin de définir les propriétés de la gaine. C'est pour cette raison que nous allons concentrer notre étude sur le plasma proprement dit.

Le design et le contrôle du plasma pour les procédés de gravure par plasma se sont grandement complexifiés sous l'effet des contraintes de plus en plus sévères imposées à la réalisation des microcircuits. L'optimisation des réacteurs par la seule étude expérimentale représente une dépense importante à cause des délais mis en jeu. Ceci a stimulé le développement de simulations numériques de l'ensemble des phénomènes physico-chimiques dans les réacteurs à plasma. Les modèles présentés dans la littérature ont pour but soit de tenter d'expliquer les résultats de gravure obtenus expérimentalement, soit de décrire les processus contrôlant les décharges (par exemple, dans le chlore) ou encore de caractériser un réacteur particulier.

L'avènement de l'outil informatique a permis depuis quelques années de mieux décrire le comportement des décharges et des phénomènes physiques mis en jeu. Les avantages de cet outil, comparé aux dispositifs expérimentaux étant un gain très souvent considérable en termes de moyens financiers et de temps, on a assisté à l'essor de la modélisation dans le monde de la recherche scientifique, au point où l'on assiste de nos jours à une quasi-dépendance entre l'expérimentateur et le modélisateur. Le souci de l'expérimentateur étant de confirmer ses observations expérimentales par l'accès à des grandeurs et paramètres qui lui

sont difficilement accessibles par les mesures. Le théoricien, quant à lui, trouvera en l'expérience un moyen d'obtenir les données de base de son modèle et une validation de son code de calcul.

L'élaboration d'un modèle numérique de notre post-décharge spatiale de diffusion a pour but la description de l'évolution des caractéristiques du plasma (espèces chargées, processus de gain et de pertes, interaction entre particules...) au vu des conditions de fonctionnement de celui-ci. Cette description peut se faire soit de manière macroscopique en étudiant les grandeurs moyennes du plasma, on parle alors de « Modèles fluides »<sup>[1, 2, 3]</sup>, soit de manière microscopique et on parle alors de « Modèles particuliers »(PIC : Particle In Cell) <sup>[4, 5]</sup>.

Bien évidemment, chacune de ces techniques présentent des inconvénients et des avantages. Pour les méthodes particulières, aucune hypothèse n'est à établir sur la forme de la fonction de distribution des espèces chargées du plasma, l'inconvénient majeur étant le temps de calcul important, très souvent nécessaire avant d'atteindre le régime permanent de la décharge. Avec les modèles fluides <sup>[6, 7, 8]</sup>, par contre, ce temps de calcul est bien moins important ; cependant il est indispensable de formuler certaines hypothèses simplificatrices pour l'élaboration de ce type de modèles. Les paramètres de transport des espèces chargées du plasma étant des données du modèle et déduites de la fonction de distribution des électrons, une des hypothèses principales du modèle concerne la forme de cette fonction de distribution. Des méthodes de description combinant les deux moyens sont aussi utilisées dans des modèles dits « hybrides »<sup>[9, 10, 11]</sup>, dans des conditions de décharges telles que les espèces du plasma peuvent être séparées en deux ou plusieurs groupes pouvant être décrits par différentes méthodes et/ou hypothèses.

*A l'aide d'une approche numérique*, nous avons voulu répondre en partie à la question de l'ordre de grandeur du *coefficient de diffusion perpendiculaire* dans le cas simple d'un gaz électropositif soumis à un champ magnétique uniforme. De nombreuses théories ont été élaborées depuis le début des années 50, mais toutes reposent sur des approximations plus ou moins valables. Nous avons donc voulu résoudre le système d'équations décrivant la diffusion, mais sans approximation. Pour cela, nous résolvons le système auto-cohérent d'équations comprenant les deux premiers moments de l'équation de Boltzmann et l'équation de Poisson.

Dans le cadre de ce chapitre V, nous présentons la structure des modèles fluides en général. Cette approche consiste à décrire le plasma par des grandeurs moyennes. Ces grandeurs moyennes interviennent dans un ensemble d'équations décrivant le transport des particules chargées, constitué théoriquement par une infinité de moments de l'équation de

Boltzmann. Une telle représentation étant impossible, nous présenterons les hypothèses simplificatrices imposées afin de limiter ce système d'équations. Nous présentons ensuite un rappel général, tout d'abord sur la diffusion dans le cadre d'un plasma non-magnétisé puis sur les diverses théories concernant la détermination du coefficient de diffusion perpendiculaire aux lignes de champ magnétique.

Nous décrivons par la suite le modèle fluide élaboré dans le cadre de ce projet. Les grandes lignes du modèle bidimensionnel seront données, avec le système d'équations résolues, les hypothèses considérées ainsi que le mode de couplage des équations de transport et de l'équation de Poisson utilisé.

Et enfin, nous présenterons l'étude numérique que nous avons effectuée, visant à estimer l'ordre de grandeur du coefficient de diffusion perpendiculaire dans le cas d'un plasma électropositif entouré par des parois métalliques et soumis à un champ magnétique axial uniforme.

## II.) Equation de Boltzmann

Pour le type de décharges auxquelles nous nous intéressons, le plasma est faiblement ionisé et dominé par les collisions entre particules chargées et neutres. En effet, en mécanique classique, les particules sont caractérisées par leurs vecteurs position  $\vec{r}$  et vitesse  $\vec{v}$ . on ne peut pas connaître les paramètres de toutes les particules à chaque instant. On caractérise donc l'ensemble des particules par leur fonction de distribution  $f$ . L'équation de Boltzmann régit alors le transport des particules.

La forme générale de l'équation de Boltzmann est :

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla}_r + \frac{\vec{F}}{m} \cdot \nabla_v\right) f(\vec{r}, \vec{v}, t) = S = \left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{coll} \quad 1.$$

Dans cette équation, la fonction de distribution  $f$  est décrite dans l'espace des phases  $(\vec{r}, \vec{v}, t)$ . La quantité  $f_s(\vec{r}, \vec{v}, t) d^3r d^3v$  représente donc le nombre de particules de type  $s$  ayant leur position  $r$  et leur vitesse  $v$  dans l'élément de volume  $d^3r d^3v$  de l'espace des phases, autour de la position  $(r, v)$ , à l'instant  $t$ . Le premier terme du membre de gauche représente l'évolution temporelle de la fonction de distribution, le second l'effet de la diffusion spatiale des particules et le troisième l'action des forces extérieures (champ électrique, magnétique...) sur ces particules. Le terme de droite est communément appelé « terme de collision » et il traduit l'effet des collisions sur la redistribution en vitesse des espèces chargées de la décharge.

A l'aide de la fonction de distribution, on a accès à toutes les grandeurs macroscopiques caractérisant les particules à un instant donné  $t$ , sachant que la grandeur moyenne  $Y_s$  de l'espèce  $s$  est donnée par :

$$Y_s(r, t) = \frac{1}{n_s(r, t)_v} \int Y \cdot f_s(r, \vec{v}, t) d^3\vec{v} \quad 2.$$

où  $n_s(r, t)$  est la densité moyenne de l'espèce  $s$ , définie par :

$$n_s(r, t) = \int_v f_s(r, \vec{v}, t) d^3\vec{v} \quad 3.$$

Bien que la résolution numérique de l'équation de Boltzmann soit envisageable, elle reste tout de même relativement complexe. Ils existent alors deux alternatives pour décrire de manière plus simple la cinétique des particules chargées du plasma.

La première approche consiste à décomposer l'équation de Boltzmann en plusieurs moments. Pour cela, on multiplie l'équation (1) par 1,  $\vec{v}$ ,  $(\vec{v} \cdot \vec{v})$ , ..., et on l'intègre dans l'espace des vitesses. On obtient ainsi un nombre de moments théoriquement infini. On se doit alors de réduire ce système composé d'une part, par un nombre limité de moments en formulant diverses hypothèses (sur lesquelles nous reviendrons plus loin) et d'autre part des équations relatives aux contraintes extérieures tel que les champs électriques et magnétiques. C'est le principe de *l'approche fluide*.

Par cette approche, nous caractérisons notre plasma par des grandeurs moyennées dans l'espace des vitesses, sur l'ensemble de la fonction de distribution. Après l'intégration de l'équation de Boltzmann dans l'espace des vitesses, l'équation générale de transport d'une grandeur physique  $Y(\vec{v})$  s'écrit :

$$\frac{\partial n\bar{Y}}{\partial t} + \nabla_r \cdot n\bar{Y}\vec{v} - n\bar{a}\nabla_v Y = \int_v Y \left( \frac{\partial f}{\partial t} \right)_{coll} d^3\vec{v} \quad 4.$$

Avec  $\vec{a}$  l'accélération de la particule

La grandeur  $Y$  peut-être un scalaire (comme la densité), un vecteur (quantité de mouvement) ou un tenseur (énergie).

La seconde alternative consiste à suivre dans l'espace des phases  $(r,v,t)$ , le mouvement individuel d'un échantillon de particules soumises à une accélération due aux champs électriques et magnétiques, et aux collisions avec les autres particules. Avec cette description, on parle de « *modèles particulaires* ». Nous avons considéré, pour l'étude de notre post-décharge de diffusion, une *approche fluide*. Nous allons, dans le paragraphe suivant en faire une description plus détaillée.

### III.) Description de l'approche fluide

Dans l'approche fluide, le plasma est décrit par des grandeurs macroscopiques. Les caractéristiques obtenues du plasma (densité, vitesse, énergie...) représentent alors des valeurs moyennes sur une fonction de distribution, qui est supposée ne dépendre que des moments considérés et dont la forme est fixée (maxwellienne, par exemple). Comme nous l'avons précisé précédemment, les équations décrivant le transport des particules chargées représentent les moments de l'équation de Boltzmann, obtenus en multipliant celle-ci par les grandeurs 1,  $\vec{v}$ ,  $(\vec{v} \cdot \vec{v})$ , ..., et en l'intégrant sur l'espace des vitesses. Généralement, on ne considère que les trois premiers moments, en établissant des hypothèses sur les moments d'ordre supérieur.

En remplaçant la grandeur Y par 1 dans l'équation (4), on obtient l'équation de continuité :

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \nabla_r \cdot n \vec{v} = \int_v \left( \frac{\partial f}{\partial t} \right)_{coll} = S \quad 5.$$

Les deux termes du membre de gauche de l'équation de continuité représentent la dérivée temporelle de la densité et la divergence du flux. Le terme de droite, quant à lui, représente le terme source, qui caractérise les gains et les pertes, par unité de volume et unité de temps, par collisions de l'espèce considérée.

On définit alors des fréquences de création et de pertes des particules chargées, qui sont fonction de la nature du gaz considéré, de la fonction de distribution des espèces et de la pression.

Dans le cas d'un gaz électropositif, on aura donc

*Gaz électropositif*

$$S_e = \overline{\nu_i n_e} \quad \text{pour les électrons}$$

$$S_p = \overline{\nu_i n_e} \quad \text{pour les ions positifs}$$

De la même façon, on obtient *l'équation de transfert de quantité de mouvement* en considérant Y égal à  $m\bar{\mathbf{v}}$  dans l'équation (4), soit :

$$\frac{\partial nm\bar{\mathbf{v}}}{\partial t} + nm(\bar{\mathbf{v}} \cdot \nabla_r)\bar{\mathbf{v}} + \bar{\mathbf{v}}(\nabla_r \cdot nm\bar{\mathbf{v}}) + \nabla_r \bar{P} - n\bar{\mathbf{F}} = \int_v m\bar{\mathbf{v}} \left( \frac{\partial f}{\partial t} \right)_{coll} d^3\bar{\mathbf{v}} \quad 6.$$

Avec :

- ✓  $\bar{\mathbf{F}}$  la force totale exercée sur la particule (électrique, magnétique)
- ✓ m : la masse de la particule,  $\bar{\mathbf{v}}$  la vitesse de la particule,  $\bar{\mathbf{v}}$  sa valeur moyenne
- ✓  $\bar{P}$  le tenseur de pression cinétique

Le membre de gauche de l'équation (6) représente la variation totale, par unité de temps de la quantité de mouvement, sous l'effet des forces extérieures  $\bar{\mathbf{F}}$  et de la pression cinétique  $\bar{P}$ . Le terme de droite traduit l'effet des collisions sur le transport de la quantité de mouvement. On le simplifie généralement en l'écrivant  $nm\nu_m\bar{\mathbf{v}}$  où  $\nu_m$  est la fréquence moyenne de transfert de quantité de mouvement.

Le troisième moment de l'équation de Boltzmann est *l'équation de transport de l'énergie*, obtenue en remplaçant la grandeur Y par  $\frac{1}{2}m\bar{\mathbf{v}}^2$ , soit :

$$\frac{1}{2} \frac{\partial nm\bar{\mathbf{v}}^2}{\partial t} + \nabla_r \left[ \frac{1}{2} nm(\bar{\mathbf{v}} \cdot \bar{\mathbf{v}})\bar{\mathbf{v}} \right] - n\bar{\mathbf{F}} \cdot \bar{\mathbf{v}} = \int_v \frac{1}{2} m\bar{\mathbf{v}}^2 \left( \frac{\partial f}{\partial t} \right)_{coll} d^3\bar{\mathbf{v}} \quad 7.$$

Nous voyons donc le premier terme du membre de gauche qui représente l'évolution temporelle de l'énergie, le second terme traduit sa variation spatiale et le troisième terme les pertes ou les gains d'énergie dûs aux forces extérieures. Le membre de droite, quant à lui, traduit le terme de perte ou de gains d'énergie dû aux collisions avec les autres espèces.

Dans notre approche, nous avons considéré seulement les deux premiers moments de l'équation de Boltzmann afin de réduire les temps de calculs et simplifier notre modèle. Il est évident que les deux premiers moments ne forment pas un système fermé, pour les trois raisons suivantes :

- ✓ Le terme de gradient de pression fait intervenir l'énergie moyenne.
- ✓ La fréquence d'échange de quantité de mouvement dépend de la forme de la fonction de distribution des électrons (FDE).
- ✓ La fréquence moyenne d'ionisation dépend aussi de la FDE.

Néanmoins, le système peut être fermé par l'hypothèse de « l'équilibre local ». L'hypothèse de l'équilibre local suppose que le gain d'énergie dû au champ électrique est compensé localement (dans l'espace et dans le temps) par les pertes dues aux collisions. Dans ce cas, la fonction de distribution normalisée des particules ne dépend que du champ local et peut être tabulée préalablement. Ainsi les diverses fréquences d'ionisation, de transfert de quantité de mouvement ainsi que l'énergie moyenne sont des fonctions du champ électrique local. Cette hypothèse permet d'éviter de résoudre une équation d'énergie complète.

Dans le cas plus général où l'on souhaite résoudre une équation d'énergie, il est nécessaire afin de fermer complètement le système de supposer que les fréquences de collisions  $\nu_i$ ,  $\nu_m$  ne dépendent que de l'énergie moyenne des électrons. Ces fréquences ne dépendant que de la FDE, nous devons formuler des hypothèses sur la forme de la FDE.

### 1) Hypothèses sur la forme de la fonction de distribution

Pour la connaissance des divers taux de collisions, en particulier les termes sources des équations de continuité, on doit faire une hypothèse sur la forme de la fonction de distribution des particules. On suppose, en général, que la partie isotrope de la fonction de distribution en vitesse des électrons (FDVE) ne dépend que de l'énergie moyenne de ces derniers. Ainsi les diverses fréquences ne dépendent que de l'énergie moyenne des électrons. On considère souvent que la FDE a une forme Maxwellienne, on peut alors déduire le coefficient  $k_i$  (relation (9)) relatif au processus  $i$  considéré en utilisant l'équation (8)

$$f(\varepsilon) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{\varepsilon^{1/2}}{(kT_e)^{3/2}} \exp\left(\frac{-\varepsilon}{kT_e}\right) \quad 8.$$

$$k_i = \int_0^{\infty} \left(\frac{2}{m_e}\right)^{1/2} \sigma_i(\varepsilon) \varepsilon^{1/2} f(\varepsilon) d\varepsilon \quad 9.$$

La fréquence moyenne  $\nu_i$  relative au processus considéré est ensuite tabulée en fonction de l'énergie (sachant que  $\nu_i = Nk_i$ ) ; pour plusieurs valeurs de la température afin d'être par la suite utilisée dans le modèle. L'hypothèse d'une fonction de distribution Maxwellienne est sans doute plus justifiée à basse pression (typiquement <100 mtorr), mais est rarement exacte dans un plasma hors équilibre.

On peut aussi utiliser une forme analytique des divers taux de collisions, donnée par l'expression d'Arrhenius<sup>[12]</sup>:

$$\nu_i = Nk_{i0} \exp\left(\frac{-E_{ia}}{kT_e}\right) \quad 10.$$

Avec:

- ✓  $E_{ia}$  : énergie d'activation du processus collisionnel i.  $k_{i0}$  facteur pré-exponentiel
- ✓  $k$  : constante de Boltzmann,  $N$  densité des neutres,  $T_e$  température des électrons.

La forme d'Arrhenius est un cas particulier d'une forme Maxwellienne, plus générale, où la section efficace est constante pour le processus considéré. Des calculs dans l'argon et l'hélium<sup>[13]</sup>, afin de comparer les différences entre l'approche Maxwellienne, Arrhenius et Swarm, ont mis en évidence que dans les conditions de décharges qui nous intéressent, les expressions analytiques de type Maxwellienne ou d'Arrhenius sont très semblables, donnant ainsi des fréquences de collisions très semblables.

2) Hypothèses simplificatrices de l'équation de transport de quantité de mouvement.

En reprenant l'équation (6), et en y injectant l'équation de continuité, on obtient :

$$nm \left[ \frac{\partial}{\partial t} + (\bar{\mathbf{v}} \cdot \nabla_r) \right] \bar{\mathbf{v}} = n \bar{\mathbf{F}} - \nabla_r \bar{\mathbf{P}} + A - Sm \bar{\mathbf{v}} \quad 11.$$

On simplifie généralement le terme de collision A de l'équation de transport de quantité de mouvement en l'écrivant  $nm \nu_m \bar{\mathbf{v}}$  ( $\nu_m$  est la fréquence moyenne de transfert de quantité de mouvement). De plus, on considère souvent, en première approximation que le tenseur de pression cinétique est diagonal et isotrope. Le terme de pression se réduit alors au gradient de la pression scalaire :

$$p = nkT \text{ (où } p \text{ est la pression scalaire) et } \nabla \cdot \bar{\mathbf{P}} = \nabla p.$$

Par rapport aux divers temps caractéristiques du plasma (que nous présenterons dans le prochain paragraphe), plusieurs hypothèses sont envisageables pour simplifier ce deuxième moment. On étudie souvent des phénomènes qui varient lentement vis à vis du temps caractéristiques entre collisions, de l'ordre de  $\frac{1}{\nu_m}$  ; on peut alors négliger le terme en  $\frac{\partial}{\partial t}$  dans l'équation de transport de quantité de mouvement vis à vis du terme de collision de cette équation ;

$$\frac{\partial(n\bar{\mathbf{v}})}{\partial t} \ll \nu_m n \bar{\mathbf{v}} \quad 12.$$

Une seconde simplification est de négliger l'énergie dirigée devant l'énergie thermique, ce qui est raisonnable dans des régions où le champ électrique reste faible (volume du plasma). Par contre, dans les régions où le champ électrique est important, typiquement dans les gaines, l'énergie dirigée des électrons est au moins comparable à l'énergie thermique et cette simplification n'est plus valable. Cependant si la gaine est peu collisionnelle, à basse pression notamment, la fréquence  $\nu_m$  doit contenir une fréquence effective de collision tenant compte de l'interaction entre les électrons et les gaines dans les plasmas HF<sup>[14, 15]</sup>.

Les trois approximations citées permettent d'écrire l'équation de transfert de quantité de mouvement sous une forme simple, définissant l'approche classique connue sous le nom d'équation de « *dérive-diffusion* » :

$$n_{\alpha} \bar{\mathbf{v}} \approx -n_{\alpha} \frac{e}{m_{\alpha} v_m} \vec{E} - \frac{1}{m_{\alpha} v_m} \nabla_r [n_{\alpha} k T_{\alpha}] \approx -n_{\alpha} \mu_{\alpha} \vec{E} - \nabla_r [D_{\alpha} n_{\alpha}] \quad 13.$$

Avec :  $\mu_{\alpha} = \frac{e}{m_{\alpha} v_m}$  : la mobilité de l'espèce chargée  $\alpha$ ,  $D_{\alpha} = \frac{k T_{\alpha}}{m_{\alpha} v_m}$  : le coefficient de diffusion de l'espèce  $\alpha$ .

### 3) Fréquence de collisions effective

A basse pression, les électrons de basse énergie piégés par les gaines de Debye peuvent effectuer davantage de collisions avec les gaines (échange de quantité de mouvement) qu'avec les atomes.

Pour prendre en considération le changement de la quantité de mouvement électronique induit par les collisions électrons-gaines, dans le modèle fluide, nous tenons compte d'une fréquence effective de collisions pour les électrons,  $\nu_{eff}$ , comprenant la fréquence  $\nu_m$  (échange de quantité de mouvement, liée au chauffage ohmique des électrons) et une fréquence tenant compte de l'interaction électrons-gaines [<sup>14</sup>, <sup>15</sup>] :

$$\nu_{eff} = \nu_m + 2 \cdot \frac{v_{th}}{L} \quad 14.$$

Avec :

- L : dimension caractéristique du plasma=D-2S
- S : largeur moyenne des gaines (sur une période RF)
- $v_{th}$  est la vitesse thermique des électrons
- D : diamètre de la décharge

Pour une pression de 20 mtorr, pour une cellule de diamètre égal à 8 cm, nous avons dans le cas d'un plasma d'hélium ( $T_e=2$  eV) une fréquence d'échange de quantité de mouvement de l'ordre de  $5.10^7$  s<sup>-1</sup>, tandis que la fréquence effective de collisions électrons-gaines est de l'ordre  $10^7$  s<sup>-1</sup>, pour une largeur de gaines de l'ordre de 0.1 mm.

C'est cette fréquence qui est utilisée dans l'évaluation de la mobilité dans l'équation (13).

#### 4) Champ magnétique axial uniforme

Comme nous l'avons présenté dans le chapitre II, notre réacteur se caractérise par l'existence d'un champ magnétique axial uniforme sur l'ensemble de l'enceinte. Lors de nos calculs, nous nous sommes restreints à l'étude du transport des particules chargées soumises à un champ magnétique axial uniforme sur l'ensemble de l'enceinte simulée. En présence d'un champ magnétique, la mobilité et le coefficient de diffusion des électrons dans la direction parallèle au champ magnétique sont données par les formules classiques :

$$\mu_e = \frac{e}{m_e \nu_{eff}} \quad \text{et} \quad D_e = \frac{kT_e}{m_e \nu_{eff}} \quad \text{où } e \text{ et } m_e \text{ sont respectivement la charge élémentaire et la}$$

masse de l'électron, et  $\nu_{eff}$  la fréquence effective de collision précédemment définie. Par contre, dans la direction perpendiculaire au champ magnétique la mobilité et le coefficient de diffusion sont donnés par l'expression classique collisionnelle :

$$\mu_{e\perp} = \mu_e \frac{1}{[\mu_e B]^2} = \frac{e}{m_e \nu_{eff}} \frac{1}{1 + \left(\frac{\omega_{ce}}{\nu_{eff}}\right)^2} \quad \text{et} \quad D_{e\perp} = D_e \frac{1}{[D_e B]^2} = \frac{kT_e}{m_e \nu_{eff}} \frac{1}{1 + \left(\frac{\omega_{ce}}{\nu_{eff}}\right)^2}$$

Avec  $\omega$  la pulsation cyclotron :  $\omega_{ce} = \frac{eB}{m_e}$

#### IV.) Etude de la diffusion des particules

##### 1) Définitions et signification physique de la mobilité et de la diffusion

Sous l'effet d'un champ électrique et des collisions, la vitesse moyenne des particules chargées tend à s'orienter dans la direction du champ ; si le champ est uniforme et stationnaire, la vitesse moyenne tend vers une constante, ne dépendant que du rapport  $E/N$  et parallèle au champ. Cette vitesse est appelée vitesse de dérive ; elle s'établit de sorte que le gain (par unité de temps) de quantité de mouvement des particules chargées soit exactement compensé par les pertes dues aux collisions. Le coefficient de proportionnalité entre la vitesse et le champ est la *mobilité* (celle-ci est souvent approximée par un constante indépendante du champ ; elle dépend en fait dans le cas général du rapport  $E/N$ ).

Si à un instant donné, la densité de particules d'un type donné présente une non-uniformité spatiale, les collisions vont tendre à diminuer l'amplitude de cette non-uniformité ; ce phénomène est appelé *diffusion libre*. Il en résulte un flux de particules, appelé flux de diffusion, proportionnel (et de sens opposé) au gradient de densité. Le coefficient de proportionnalité est appelé *coefficient de diffusion*.

##### 2) Dérivation à partir de l'équation de transport de quantité de mouvement

Comme nous l'avons vu précédemment, nous pouvons obtenir une forme simplifiée de l'équation de transport de quantité de mouvement qui est la suivante :

$$n\bar{v} = \frac{nq\vec{E}}{m\bar{v}_m} - \frac{kT}{m\bar{v}_m} \nabla[n] \quad 15.$$

La mobilité et le coefficient de diffusion se déduisent de cette équation :

$$\mu = \frac{|q|}{m\bar{v}_m} \quad D = \frac{kT}{m\bar{v}_m} \quad 16.$$

Ces expressions sont bien sur des expressions approchées. En utilisant la définition, de la

vitesse moyenne  $\bar{v} = \left( \frac{8kT}{\pi m} \right)^{1/2}$  et un libre parcours moyenne (pour une sphère dure)  $\lambda = \frac{\bar{v}}{v_m}$ ,

nous pouvons écrire le coefficient de diffusion sous la forme :

$$D = \frac{\pi}{8} \lambda^2 v_m \quad 17.$$

### 3) Diffusion ambipolaire

L'une des découvertes fondamentales de la physique des plasmas a été la théorie de Schottky<sup>[16]</sup> concernant la théorie classique de la diffusion. Il a découvert que dans un environnement sans champ magnétique les électrons et les ions diffusent avec le même taux « *ambipolaire* ». Lorsque les densités de particules chargées sont faibles, les particules diffusent indépendamment, la diffusion est alors libre. Si les densités de particules chargées sont « élevées », la séparation de charges induit un champ électrique qui retient les électrons et accélère les ions, c'est le phénomène de diffusion ambipolaire.

Considérons une géométrie unidimensionnelle pour simplifier, on peut écrire :

$$\begin{aligned} \varphi_e &= -en_e \mu_e E - D_e \frac{\partial n_e}{\partial x} \\ \varphi_p &= en_p \mu_p E - D_p \frac{\partial n_p}{\partial x} \end{aligned} \quad 18.$$

où  $\varphi_e$ ,  $\varphi_p$ ,  $n_e$  et  $n_p$  sont respectivement les flux d'électrons, d'ions, la densité d'électrons et d'ions et E le champ électrique.

En écrivant  $\varphi_e \approx \varphi_p \approx \varphi$  et  $n_e \approx n_p \approx n$  (densité du plasma) et en additionnant les deux équations précédentes après division par  $\mu_e$  et  $\mu_p$  respectivement, on obtient :

$$\varphi_e \approx \varphi_p \approx \varphi = -D_a \frac{\partial n}{\partial x} \quad \text{avec} \quad D_a = \frac{\mu_e D_p + \mu_p D_e}{\mu_e + \mu_p} \quad 19.$$

$D_a$  est le coefficient de diffusion ambipolaire. En raison du phénomène de diffusion ambipolaire, les électrons diffusent beaucoup moins vite et les ions diffusent plus vite que dans le cas de la diffusion libre.

Le coefficient ambipolaire peut être simplifié en notant que  $\mu_e \gg \mu_p$ , soit

$$D_a \approx D_p + \frac{\mu_p}{\mu_e} D_e \quad 20.$$

En utilisant la relation d'Einstein, on obtient :

$$D_a = D_p \left( 1 + \frac{T_e}{T_p} \right) \quad 21.$$

Nous voyons donc que la diffusion ambipolaire est contrôlée par l'espèce la plus lente, dans ce cas les ions, mais qu'elle augmente par un terme proportionnel au rapport des températures. On voit donc que dans le cas usuel des plasma faiblement ionisés hors équilibre, où  $T_e \gg T_p$ , les ions et les électrons diffusent à une vitesse identique qui dépasse de beaucoup la vitesse de diffusion libre des ions.

Dans le cadre de ces calculs, nous avons considéré le cas d'un plasma non-magnétisé. Dans un champ magnétique les trajectoires des électrons sont fortement confinées transversalement aux lignes de champ, c'est le propos du prochain paragraphe.

### V.) *Etude de la diffusion des particules en présence d'un champ magnétique*

Quand un électron suivant un mouvement giratoire le long des lignes de champ magnétique subit une collision, cela change sa direction, ce qui tendra à modifier son centre de giration par un rayon de giration  $r_{ce}$ . Ce phénomène est aléatoire et donc, de diffusion, mais en remplaçant la longueur de diffusion  $\lambda_e$  par le rayon de giration  $r_{ce}$ .

Considérons un champ magnétique uniforme selon la direction axiale et récrivons l'équation de transport de quantité de mouvement, soit :

$$n\bar{\mathbf{v}} = \frac{qn}{m\bar{v}_m} (\bar{\mathbf{E}} + \bar{\mathbf{v}} \times \bar{\mathbf{B}}) - \frac{kT}{m\bar{v}_m} [n] \quad 22.$$

Par souci de simplification, nous nous placerons dans une géométrie cartésienne. Les équations selon x et y, en utilisant les définitions de la mobilité et du coefficient de diffusion de la relation (16), s'écrivent :

$$\bar{v}_x = \pm\mu E_x - \frac{D}{n} \frac{\partial n}{\partial x} + \frac{\omega_c}{v_m} \bar{v}_y \quad 23.$$

$$\bar{v}_y = \pm\mu E_y - \frac{D}{n} \frac{\partial n}{\partial y} - \frac{\omega_c}{v_m} \bar{v}_x \quad 24.$$

où  $\omega_c$  est la fréquence cyclotronique définie par  $\omega_c = \frac{qB}{m}$ , avec B selon la direction y.

Les équations (23) et (24) doivent être résolues simultanément pour  $\bar{v}_x$  et  $\bar{v}_y$ , soit :

$$[1 + (\omega_c \tau_m)^2] \bar{v}_x = \pm\mu E_x - \frac{D}{n} \frac{\partial n}{\partial x} + (\omega_c \tau_m)^2 \frac{E_y}{B} - (\omega_c \tau_m)^2 \frac{kT}{qB} \frac{1}{n} \frac{\partial n}{\partial y} \quad 25.$$

$$[1 + (\omega_c \tau_m)^2] \bar{v}_y = \pm\mu E_y - \frac{D}{n} \frac{\partial n}{\partial y} + (\omega_c \tau_m)^2 \frac{E_x}{B} - (\omega_c \tau_m)^2 \frac{kT}{qB} \frac{1}{n} \frac{\partial n}{\partial x}$$

où  $\tau_m = \frac{1}{v_m}$ . En divisant par  $1 + (\omega_c \tau_m)^2$ , nous définissons les coefficients de diffusion et de mobilité perpendiculaires, soit les expressions :

$$\mu_{\perp} = \frac{\mu}{1 + (\omega_c \tau_m)^2} \quad D_{\perp} = \frac{D}{1 + (\omega_c \tau_m)^2} \quad 26.$$

En considérant le cas d'un fort champ magnétique, ainsi que l'expression de la vitesse

moyenne  $\bar{v} = \left( \frac{8kT}{\pi m} \right)^{1/2}$  et du rayon giratoire moyen  $\bar{r}_c = \frac{\bar{v}}{\omega_c}$ , on obtient :

$$D_{\perp} = \frac{\pi}{8} \bar{r}_c^2 v_m \quad 27.$$

En la comparant à l'expression, nous voyons que le rayon giratoire a pris la place du libre parcours moyen.

### 1) Diffusion ambipolaire en présence d'un champ magnétique

Si l'on suppose que le milieu est homogène dans la direction parallèle aux lignes de champ magnétique pour qu'il n'y ait pas de diffusion des électrons ou des ions dans cette direction, la diffusion a alors lieu uniquement perpendiculairement aux lignes de champ magnétique. De nouveau un champ électrique va se développer afin d'égaliser les flux d'ions et d'électrons, nous obtenons ainsi un coefficient de diffusion ambipolaire de forme identique au cas non-magnétisé, mais où les coefficients de diffusion et de mobilité sont remplacés par leur expression réduite par le facteur  $1 + (\omega_c \tau_m)^2$  : soit l'expression :

$$D_{a\perp} = \frac{\mu_{p\perp} D_{e\perp} + \mu_{e\perp} D_{p\perp}}{\mu_{p\perp} + \mu_{e\perp}} \quad 28.$$

Si le champ magnétique est suffisamment fort pour que  $\mu_{p\perp} \gg \mu_{e\perp}$ , alors nous obtenons un relation analogue à la relation (21) :

$$D_{a\perp} = D_{e\perp} \left( 1 + \frac{T_p}{T_e} \right) \quad 29.$$

Nous voyons que c'est de nouveau l'espèce la plus lente qui contrôle la diffusion ambipolaire. Dans les plasma usuels où  $T_e \gg T_p$ , la diffusion ambipolaire est alors proche de celle des électrons perpendiculairement aux lignes de champ.

Nous allons par la suite présenter les diverses théories et expériences concernant la diffusion en champ magnétique. En effet, les phénomènes de diffusion dans les plasma sont très dépendants de la géométrie et des conditions aux limites considérées, il est donc nécessaire de bien définir les conditions expérimentales afin de produire une interprétation correcte de nos résultats.

## 2) Théorie de Bohm

En appliquant le concept de la diffusion ambipolaire pour un plasma soumis à un champ magnétique, Bohm et al [17] ont trouvé des différences notoires avec les observations d'un plasma de laboratoire, introduisant ainsi le concept de diffusion anormale. Ces observations ont été faites lors de l'étude de la diffusion des ions perpendiculairement à un champ magnétique, pour un arc. La pression du gaz était de l'ordre du millimètre de mercure et le champ magnétique de 3000 Gauss. Un arc de quelques ampères (typiquement 0.5-1.5 ampères) est créé entre un filament et une anode. L'ionisation a lieu principalement dans le cœur de l'arc produisant des particules chargées qui diffusent radialement. Cela forme un plasma « secondaire » ayant une température de 2 eV environ et où les collisions électron-neutre et ion-neutre dominant. Ce plasma secondaire reste dans un état stationnaire, en partie par la diffusion le long des lignes de champ magnétique et en partie par la diffusion radiale perpendiculairement au champ magnétique. La longueur caractéristique  $x_0$ , par laquelle la densité du plasma décroît radialement dépend du rapport entre les coefficients de diffusion longitudinal et perpendiculaire aux lignes de champ magnétique. La valeur de  $x_0$  peut être obtenue en mesurant la distribution des ions positifs à l'aide de sondes. On peut ainsi remonter au coefficient de diffusion transverse.

Cette diffusion anormale a été attribuée à une fluctuation du champ électrique qui produit une diffusion plus importante dans la dimension transverse au champ magnétique, que celui donné par la théorie classique. Bohm a alors donné pour le coefficient de diffusion transverse au champ magnétique l'expression suivante :

$$D_{\perp}^{Bohm} \approx \frac{10^8 kT_e}{16 B} \text{ cm}^2 / \text{sec} \quad 30.$$

avec  $kT_e$  en électron-volts et  $B$  en Gauss. Cette loi est empirique et n'a jamais été démontrée. Toutefois, cette théorie ne devrait pas être applicable à nos conditions où les phénomènes d'instabilité ne devraient pas avoir lieu aux basses températures et hautes fréquences de collisions qui caractérisent nos décharges.

### 3) Théorie de Simon

A la suite de cette étude de nombreuses articles pour et contre la diffusion de Bohm ont été publiés. L'un des arguments les plus forts contre cette interprétation a été apporté par Simon [18] qui a montré que la diffusion ne pouvait être ambipolaire dans un plasma de dimension fini et délimité par des parois conductrices, mettant ainsi en évidence l'importance de la configuration expérimentale sur les phénomènes de transport des espèces chargées. En effet, Bohm et al [17] ont essentiellement négligé l'influence du mouvement longitudinal des ions. Considérons un plasma bidimensionnel dans une enceinte de longueur  $l$  et de largeur  $d$  (nous considérons que les dimensions caractéristiques du plasma sont plus grandes que le libre parcours moyen des particules, de telle manière que les particules diffusent tant le long que perpendiculairement aux lignes de champ magnétiques) où les lignes du champ magnétique sont selon la direction  $x$  [15]:

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = D_e \frac{\partial^2 n_e}{\partial x^2} + \mu_e \frac{\partial}{\partial x} (n_e E_x) + D_{e\perp} \frac{\partial^2 n_e}{\partial y^2} + \mu_{e\perp} \frac{\partial}{\partial y} (n_e E_y) \quad 31.$$

$$\frac{\partial n_p}{\partial t} = D_p \frac{\partial^2 n_p}{\partial x^2} - \mu_p \frac{\partial}{\partial x} (n_p E_x) + D_{p\perp} \frac{\partial^2 n_p}{\partial y^2} - \mu_{p\perp} \frac{\partial}{\partial y} (n_p E_y) \quad 32.$$

Si nous définissons  $V_{s\parallel}$  et  $V_{s\perp}$  les gradients de potentiels au travers des gaines parallèles et perpendiculaires et en considérant que le plasma est entouré par une paroi conductrice, le potentiel au centre peut être estimé par :

$$\Phi \approx V_{s\parallel} + \frac{1}{2} E_x l \sim V_{s\perp} + \frac{1}{2} E_y d \quad 33.$$

C'est à partir de ce résultat que Simon a élaboré la théorie du « court-circuit ». Ainsi, si les ions se déplacent plus rapidement transversalement, le champ électrique qui va alors se développer n'affectera que peu les courants transversaux. Ainsi, seuls des petits réajustements des courants vers les parois parallèles maintiennent la neutralité et permettent aux ions de se déplacer perpendiculairement aux lignes. C'est comme si il y avait un court-circuit le long des lignes de champ magnétique et jusqu'aux parois qui empêcherait l'apparition du champ de charge d'espace perpendiculaire.

Simon a alors considéré que l'on pouvait négliger les termes de mobilité selon y. Ainsi en multipliant l'équation (31) par  $\mu_i$  et l'équation (32) par  $\mu_e$  et en additionnant les deux équations, on obtient :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\mu_p D_e + \mu_e D_p}{\mu_p + \mu_e} \frac{\partial^2 n}{\partial x^2} + \frac{\mu_p D_{e\perp} + \mu_e D_{p\perp}}{\mu_p + \mu_e} \frac{\partial^2 n}{\partial y^2} \quad 34.$$

Le coefficient de diffusion selon x est alors le coefficient ambipolaire sans champ magnétique :

$$D_{a//} = \frac{\mu_p D_e + \mu_e D_p}{\mu_p + \mu_e} \quad 35.$$

Le coefficient de diffusion perpendiculaire aux lignes de champ magnétique est défini par :

$$D_{a\perp} = \frac{\mu_p D_{e\perp} + \mu_e D_{p\perp}}{\mu_p + \mu_e} \quad 36.$$

En considérant que  $\mu_e \gg \mu_p$  et que en présence 'un champ magnétique on peut considérer que  $D_{p\perp} \gg D_{e\perp}$ , on peut alors simplifier (36) :

$$D_{a\perp} \approx D_{p\perp} \quad 37.$$

Ce phénomène de « court-circuit » nécessite des parois conductrices et des travaux de Geissler [19] montrent une différence significative pour la diffusion en fonction de la nature des parois (conductrices ou diélectriques). D'autre part, des expériences sur le taux de pertes d'un plasma de diffusion entouré de parois conductrices séparées par des segments isolants [19], [20] (afin d'interrompre le phénomène de « court-circuit ») ont mis en évidence une diffusion toujours plus grande que celle prédite par la théorie classique. Même en rompant le circuit extérieur qui permet au phénomène de « court-circuit » de s'expliquer, la diffusion semble toujours plus importante que celle prédite par la théorie de Simon. La diffusion de Simon n'est donc pas l'unique explication de ce phénomène de diffusion perpendiculaire.

Une autre indication de ce transport « anormal » a été obtenue par des mesures par fluorescence induite par laser de la vitesse radiale des ions, par Liebermann et al [21]. Ces mesures montrent que les ions sont perdus transversalement avec une vitesse caractéristique de l'ordre de la vitesse de Böhm ( $(kT_e / m_i)^{1/2}$ ).

#### 4) Théorie de Liebermann et Lichtenberg

Face à ce résultat, Liebermann et al [15] ont repris les équations (23) et (24), mais ont considéré la limite inverse à celle de Simon qui est  $E_y d < T_p$ , en prenant ainsi la condition  $E_y d > T_p$ . En fait, ils ont pris un champ électrique radial de l'ordre de  $\frac{kT_e}{ed}$ . Ils ont ainsi estimé le flux d'ions perpendiculaire aux lignes de champ magnétique par :

$$\Gamma_{p\perp} \sim \mu_{p\perp} n T_e / d \quad 38.$$

Soit, en définissant  $D_{a\perp}$  par  $\Gamma_{p\perp} \equiv -D_{a\perp} \frac{dn}{dx}$ , ils obtiennent :

$$D_{a\perp} \sim \mu_{p\perp} T_e \quad 39.$$

soit

$$D_{a\perp} \sim D_{p\perp} \frac{T_e}{T_p} \quad 40.$$

Le coefficient perpendiculaire est alors plus grand d'un facteur  $T_e/T_p$  que celui donné par la théorie de Simon.

Les diverses théories ayant été maintenant présentées, nous allons dans les paragraphes suivants décrire de manière plus précise l'approche numérique utilisée pour mener à bien cette étude de la diffusion en champ magnétique dans un réacteur à parois métalliques et de géométrie cylindrique, en commençant par une présentation des temps caractéristiques du plasma..

## **VI.) Temps caractéristiques du plasma.**

### **1) Temps caractéristiques des collisions.**

#### **a) Electrons**

Dans les plasmas faiblement ionisés qui nous intéressent, les collisions prépondérantes sont celles qui se produisent entre les électrons et les neutres caractérisant les phénomènes d'ionisation et de transfert de quantité de mouvement. Ces interactions sont caractérisées par des fréquences de collision importantes pour le calcul des termes sources des équations de transport des particules chargées. Par résolution de l'équation de Boltzmann, grâce au code Bolsig [22], nous obtenons les fréquences d'ionisation et de transfert de quantité de mouvement pour l'argon [13]. On en déduit, typiquement pour une pression de 1 mtorr, que le temps caractéristique de transfert de quantité de mouvement est de l'ordre de  $0.1\mu\text{s}$  (pour une énergie moyenne des électrons typique de 4 eV).

#### **b) Ions**

Les fréquences réduites caractéristiques, pour l'échange de quantité de mouvement ions-neutres sont comprises dans la gamme  $[5.10^6-5.10^7]\text{s}^{-1}.\text{torr}^{-1}$ , on en déduit qu'à 1 mtorr  $\nu_m^{-1}$  est de l'ordre de 0.1ms. Dans le cas des gaz électronégatifs, nous devons de plus tenir compte des recombinaisons ions négatifs-positifs, le taux correspondant est de l'ordre de  $5.10^{-7}\text{cm}^{-3}.\text{s}^{-1}$ , soit pour une densité d'ions positifs de  $10^{11}\text{cm}^{-3}$ , un temps caractéristique de l'ordre de 0.02 ms.

#### **c) Temps de diffusion ambipolaire**

La fréquence de pertes des particules chargées par diffusion ambipolaire est de l'ordre de  $D_a/L^2$  ( $D_a$  est le coefficient de diffusion ambipolaire),  $L$  une dimension caractéristique du plasma). En utilisant une approximation du coefficient de diffusion ambipolaire, le temps caractéristique de diffusion ambipolaire peut être convenablement approximé par l'expression

$\left[ \frac{L_{cm}^2}{10^4 P_{torr}} \right] (s)$ , ce qui dans le cas de notre chambre d'une longueur de 140 cm, donne un temps

de 20 ms, ce qui représente un temps caractéristique de suivi de l'évolution de la décharge pour atteindre un régime stationnaire.

#### d) Temps caractéristiques de l'interaction plasma-champ électrique

Dans le cas d'un plasma, le courant total ( $J_T$ ) s'écrit comme la somme d'un courant de diffusion ( $J_{diff}$ ), d'un courant de conduction ( $J_{cond}$ ) et de déplacement  $J_d$ :

$$J_T = \varepsilon_0 \frac{\partial E}{\partial t} + J_e + J_p = \varepsilon_0 \frac{\partial E}{\partial t} + \sigma E + J_{diff} \quad 41.$$

Si on considère un plasma collisionnel et en négligeant les composantes de  $J_e$  et  $J_p$  dues à la diffusion libre, nous obtenons alors une équation différentielle du 1<sup>er</sup> ordre pour le champ électrique. La constante de temps est le temps de relaxation de Maxwell  $\tau_M$  :

$$\tau_M = \frac{\varepsilon_0}{\sigma} \quad 42.$$

Dans le cas où la conductivité électroniques est très supérieures à la conductivité ionique, le courant de conduction se réduit alors au courant de conduction des électrons, soit :

$$\tau_M = \frac{\varepsilon_0}{en_e \mu_e} \quad 43.$$

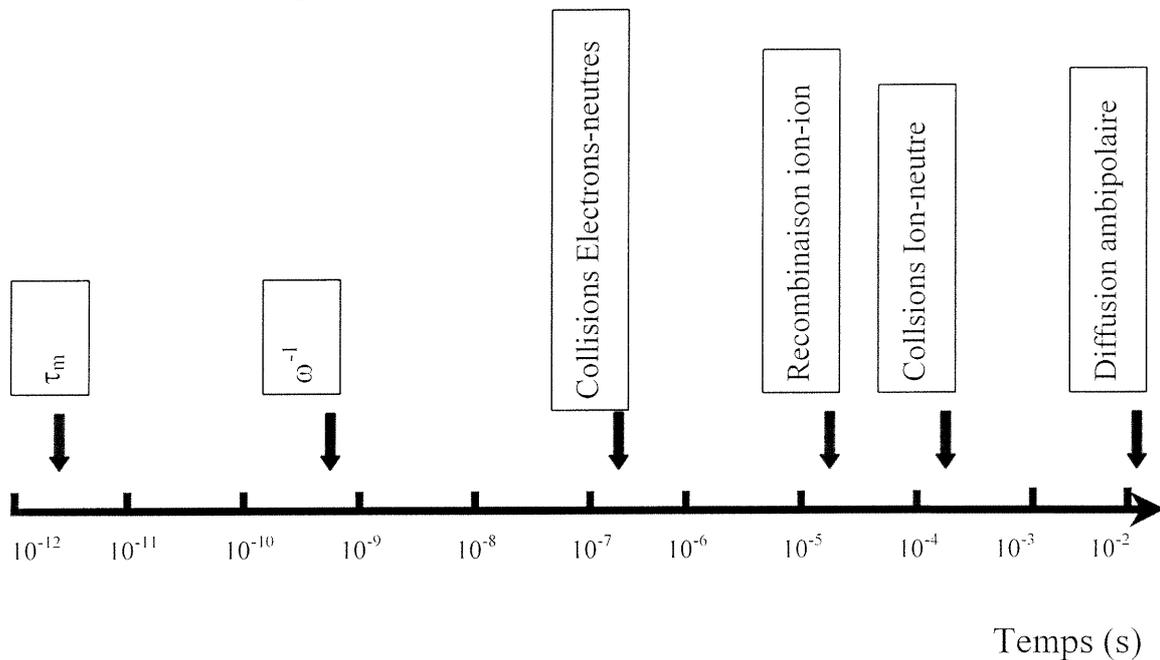
Le plasma est équivalent à une capacité en parallèle avec une résistance, et le temps caractéristique de ce circuit RC est  $\tau_M$ , c'est à dire le temps que le champ électrique relaxe à sa propre valeur avec une constante de temps  $\tau_M$  après une perturbation du courant total ou de la densité du plasma. On constate donc que ce temps augmente de manière importante si la densité du plasma ou la mobilité croît, c'est à dire à basse pression. Si le temps d'intégration du transport des particules chargées et de l'équation de Poisson est explicite (i.e. si le champ

électrique est recalculé à chaque  $\Delta t$  en supposant qu'il est constant pendant le transport des particules entre  $t^k$  et  $t^{k+1}$ ), le pas en temps d'intégration devra rester inférieur au temps de relaxation de Maxwell  $\tau_M$ . Cette contrainte devient d'autant plus pénalisante que la densité d'électrons est importante et/ou la pression faible. Nous en discuterons plus en détails dans la suite de ce chapitre.

### e) Représentation des différents temps caractéristiques

Par souci de clarté, nous avons représenté sur la Figure VI-1 les divers temps caractéristiques typiques pour un plasma de densité égale à  $10^{11} \text{ cm}^{-3}$ , une pression de 1 mtorr et nous considérons l'argon comme gaz porteur.

Nous constatons que les processus les plus lents et donc qui définiront notre temps de calcul sont la diffusion ambipolaire et la recombinaison. Il est donc très important de prendre en considération ces données pour l'élaboration d'un modèle physique de ces décharges.



**Figure VI-1. Temps caractéristiques d'un plasma d'argon, la densité électronique est de  $1.10^{11} \text{ cm}^{-3}$ , pour une pression de 1 mtorr ( $f=200 \text{ MHz}$ , dimension caractéristique pour  $D_a: 140 \text{ cm}$ ).**

Nous présentons maintenant, de manière détaillée le modèle fluide bidimensionnel élaboré.

## VII.) *Modèle fluide 2D*

### 1) Description générale

Ce modèle fluide bidimensionnel est basé sur la résolution du système d'équations formé par les équations de transport des particules chargées couplées à l'équation de Poisson. Tant pour les ions que pour les électrons, nous ne considérons que les deux premiers moments de l'équation de Boltzmann, soit l'équation de continuité et l'équation de transfert de quantité de mouvement (en utilisant la forme « dérive-diffusion »).

### 2) Hypothèses du modèle

Nous rappelons rapidement les hypothèses précédemment présentées :

- √ Nous supposons le tenseur de pression cinétique diagonal et isotrope.
- √ Nous négligeons l'énergie de dérive par rapport à l'énergie thermique
- √ Nous négligeons, dans les équations de transfert de quantité de mouvement, le terme en  $\frac{\partial}{\partial t}$  par rapport au terme source fonction de la fréquence d'échange de quantité de mouvement  $\nu_m$ .
- √ On suppose que les mobilités et les coefficients de diffusion satisfont à la relation d'Einstein :  $\frac{D_\alpha}{\mu_\alpha} = \frac{kT_\alpha}{e}$  ( $k$  : constante de Boltzmann,  $e$  : charge élémentaire,  $T_\alpha$  la température de l'espèce  $\alpha$ , la température de chaque espèce étant fixée.

### 3) Equations du modèle

Nous considérons deux géométries, une géométrie cartésienne et l'autre cylindrique. Les grandeurs physiques caractérisant la décharge dépendent des deux directions de l'espace, axiale  $x$  et radiale  $y$  pour la géométrie cartésienne et axiale  $z$  et radiale  $r$  pour la géométrie cylindrique.

**Equation de continuité :**

$$\Leftrightarrow \frac{\partial n_\alpha}{\partial t} + \nabla(n_\alpha \bar{\bar{v}}_\alpha) = S_\alpha \quad 44.$$

Avec :  $n_\alpha$ ,  $\bar{\bar{v}}_\alpha$  respectivement la densité et la vitesse moyenne de l'espèce  $\alpha$ .

**Equation de transfert de quantité de mouvement (« dérive-diffusion ») :**

$$\Leftrightarrow \phi_\alpha = s n_\alpha \mu_\alpha \bar{E} - D_\alpha \nabla(n_\alpha) \quad 45.$$

Avec  $s=-1$  pour les électrons et  $s=1$  pour les ions.

Avec :  $\bar{E}$  le champ électrique, et  $\phi_\alpha$  le flux de l'espèce  $\alpha$ ,  $\mu_\alpha$  et  $D_\alpha$  respectivement mobilité et coefficient de diffusion de l'espèce  $\alpha$ .

**Champ électrique**

Dans le cas d'un gaz électropositif :

$$\Leftrightarrow \nabla \bar{E} = -\Delta V = \frac{\rho}{\epsilon_0} = \frac{e}{\epsilon_0} (n_p - n_e) \quad 46.$$

### 4) Conditions aux limites

Les conditions aux limites concernent le flux des particules chargées sur les parois, ainsi que le potentiel auxquelles sont portées celles-ci et sont définies comme suit.

#### a) Flux aux parois

Le flux de particules chargées vers les parois a été écrit sous la forme :

$$\phi_{e,p} = An_{e,p}W_{e,p} + \frac{n_{e,p}\mathbf{V}_{th,e,p}}{4} \quad 47.$$

avec :  $W_{e,p} = \pm\mu_{e,p}E$

$n_{e,p}$  la densité d'électrons(e) ou d'ions(p) à la surface de la paroi,  $W_{e,p}$  la vitesse dirigée donc dans la direction du champ électrique et A un paramètre égal à 1 si  $W_{e,p}$  est dirigée vers la paroi, sinon A égale 0. Le deuxième terme représente le flux dû à l'agitation thermique.

## b) Potentiel

Les conditions aux limites du potentiel sont utilisées dans l'équation de Poisson. Dans le cadre de nos calculs nous simulons une chambre métallique de diffusion, nous avons donc imposé à toutes les parois d'être portées au potentiel de référence, c'est à dire la masse :  $V=0$ .

## 5) Schéma numérique adopté et discrétisation des équations du modèle

Les équations décrivant le transport des particules chargées et l'équation de Poisson forment un système d'équations non linéaires fortement couplées. Les difficultés de traitement numérique de ces équations sont dues à l'existence du plasma dont le champ électrique doit être calculé à partir des densités électronique et ionique très grandes et dont la différence est très faible. D'autre part, les gradients de concentration des particules chargées peuvent être importants, notamment dans la région de transition gaine-plasma.

### a) Equation de continuité

La résolution de l'équation de continuité est faite à partir de la méthode des différences finies basée sur le schéma de discrétisation de Shaffetter et Gummel [23]. Son principal avantage est lié à sa stabilité, et au fait qu'il peut rendre compte de façon continue de situations où soit le terme de dérive, soit le terme de diffusion des courants de particules

chargées est dominant. Ce schéma peut supporter des gradients de densité très élevés. Nous décrivons ci-dessous son principe.

Par souci de simplification, nous ne considérerons qu'une seule dimension, le principe étant le même pour la dimension radiale.

Les équations de transfert de quantité de mouvement et de continuité peuvent s'écrire.

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial \varphi}{\partial x} = S$$

$$\frac{\partial(nD)}{\partial x} - (nD)\frac{W}{D} = -\varphi$$

48.

Une solution analytique des ces équations est donnée par :

$$nD = \varphi \frac{D}{W} + B \exp\left(\frac{W}{D} x\right)$$

49.

si on suppose que le flux est constant entre deux points consécutifs  $i$  et  $i+1$  correspondant aux positions  $x_i$  et  $x_{i+1}=x_i+\Delta x$ , nous pouvons écrire :

$$n_i D_i = \varphi_{i+1/2} \frac{D_{i+1/2}}{W_{i+1/2}} + B \exp\left(\frac{D_{i+1/2}}{W_{i+1/2}} x_i\right)$$

$$n_{i+1} D_{i+1} = \varphi_{i+1/2} \frac{D_{i+1/2}}{W_{i+1/2}} + B \exp\left(\frac{D_{i+1/2}}{W_{i+1/2}} x_{i+1}\right)$$

50.

Si l'on soustrait les deux dernières équations, on obtient B :

$$B \exp\left(\frac{W_{i+1/2}}{D_{i+1/2}} x_i\right) = \frac{n_{i+1} D_{i+1} - n_i D_i}{\exp\left(\frac{W_{i+1/2}}{D_{i+1/2}} \Delta x\right) - 1}$$

51.

On reporte cette équation dans (49) et on considère que :

$$W_{i+1/2} \Delta x = s \mu_{i+1/2} E_{i+1/2} \Delta x = -s \mu_{i+1/2} (V_{i+1} - V_i) \quad 52.$$

Où  $s=1$  pour les ions positifs et  $-1$  pour les électrons et les ions négatifs :

$$z_{i+1/2} = -s \frac{\mu_{i+1/2}}{D_{i+1/2}} (V_{i+1} - V_i) \quad 53.$$

Nous obtenons alors l'expression du flux à  $i+1/2$  entre les deux points consécutifs  $i$  et  $i+1$  :

$$\varphi_{i+1/2} = \frac{1}{\Delta x} (n_i D_i \exp(z_{i+1/2}) - n_{i+1} D_{i+1}) \frac{z_{i+1/2}}{\exp(z_{i+1/2}) - 1} \quad 54.$$

$\varphi_{i+1/2}$  représente le flux entre les deux points  $i$  et  $i+1$  où sont définis les densités. Cette expression est reportée dans l'équation de continuité :

$$\frac{(n_i)^{k+1} - (n_i)^k}{\Delta t} + \frac{(\varphi_{i+1/2})^{k+1} - \varphi_{i-1/2}^{k+1}}{\Delta x} = (S_i)^k \quad 55.$$

Où  $\Delta t$  est le pas dans le temps et  $S_i$  le terme source au point  $i$ . Les indices supérieurs  $k$  et  $k+1$  correspondent aux instants  $t^k$  et  $t^{k+1}=t^k$ . D'où le système suivant :

$$\begin{aligned} & (n_{i-1})^{k+1} \left( -\frac{\Delta t}{\Delta x^2} D_{i-1} \frac{z_{i-1/2}}{\exp(z_{i-1/2}) - 1} \exp(z_{i-1/2}) \right) \\ & + (n_i)^{k+1} \left( 1 + \frac{\Delta t}{\Delta x^2} D_i \left( \exp(z_{i+1/2}) \frac{z_{i+1/2}}{\exp(z_{i+1/2}) - 1} + \frac{z_{i-1/2}}{\exp(z_{i-1/2}) - 1} \right) \right) \\ & + (n_{i+1})^{k+1} \left( -\frac{\Delta t}{\Delta x^2} D_{i+1} \frac{z_{i+1/2}}{\exp(z_{i+1/2}) - 1} \right) = (n_i)^k + \Delta t (S_i)^k \end{aligned} \quad 56.$$

Cette équation forme donc un système à matrice tridiagonale en  $n_{i-1}^{k+1}, n_i^{k+1}, n_{i+1}^{k+1}$  qui peut-être résolu par une méthode d'élimination de Gauss standard permettant de connaître ainsi la distribution des densités de particules chargées.

### b) Equation de Poisson

L'équation de Poisson discrétisée hors de l'axe de la décharge, à la position (i,j) et à l'instant  $t^k$  s'écrit :

$$(\nabla \cdot \vec{E})_{i,j}^k = (\nabla_x E_x)_{i,j}^k + (\nabla_r E_r)_{i,j}^k = \frac{\rho_{i,j}^k}{\epsilon_0} \quad 57.$$

$\rho_{i,j}$  est la densité de charge d'espace dans le volume considérée. Le champ est discrétisé de la même façon que le flux, où la composante axiale de la divergence du champ électrique s'écrira :

$$(\nabla_x E_x)_{i,j}^k = \frac{E_{i+1/2,j}^k - E_{i-1/2,j}^k}{\Delta x} \quad 58.$$

Enfin nous écrivons l'équation de Poisson en fonction du potentiel, sachant que :

$$E_{i+1/2,j}^k = \frac{V_{i+1,j}^k - V_{i,j}^k}{\Delta x} ; E_{i-1/2,j}^k = \frac{V_{i,j}^k - V_{i-1,j}^k}{\Delta x} ; E_{i,j+1/2}^k = \frac{V_{i,j+1}^k - V_{i,j}^k}{\Delta r} ; E_{i,j-1/2}^k = \frac{V_{i,j}^k - V_{i,j-1}^k}{\Delta r}$$

Nous présentons en détail dans l'annexe C la discrétisation de l'équation de Poisson.

### c) Couplage des équations de transport et de l'équation de Poisson

Comme nous l'avons dit précédemment ; dans les modèles fluides, les moments de l'équation de Boltzmann décrits précédemment sont couplés à l'équation de Poisson. Dans le cas d'un plasma, le courant total ( $J_T$ ) s'écrit comme la somme d'un courant de diffusion ( $J_{diff}$ ), d'un courant de conduction ( $J_{cond}$ ) et de déplacement  $J_d$  :

$$J_T = \epsilon_0 \frac{\partial E}{\partial t} + J_c + J_p = \epsilon_0 \frac{\partial E}{\partial t} + \sigma E + J_{diff} \quad 59.$$

Si on considère un plasma collisionnel et en négligeant les composantes de  $J_e$  et  $J_p$  dues à la diffusion libre, nous obtenons alors une équation différentielle du 1<sup>er</sup> ordre pour le champ électrique. La constante de temps est le temps de relaxation de Maxwell  $\tau_M$  :

$$\tau_M = \frac{\epsilon_0}{\sigma} \quad 60.$$

Un autre point important dans la modélisation fluide est donc le mode de couplage « en temps » entre le module formé par les moments de l'équation de Boltzmann et celui donnant la variation du champ électrique. Trois modes de couplage sont possibles :

➤ *Schéma explicite*

Si le temps d'intégration du transport des particules chargées et de l'équation de Poisson est explicite (i.e. si le champ électrique est recalculé à chaque  $\Delta t$  en supposant qu'il est constant pendant le transport des particules entre  $t^k$  et  $t^{k+1}$ ), les modèles fluides utilisant l'approximation « dérive-diffusion » sont stables si le pas en temps d'intégration reste inférieur au temps de relaxation de Maxwell  $\tau_M$ . Cette contrainte devient d'autant plus pénalisante que la densité est importante et/ou la pression faible. On constate donc que les schémas d'intégration explicites deviennent très coûteux pour des densités de plasma supérieures à  $10^9 \text{ cm}^{-3}$ .

➤ *Schéma implicite*

Le seconde possibilité est de regrouper les équations de transport et l'équation de Poisson en un seul bloc et de le résoudre successivement entre les instants  $t$  et  $t+\Delta t$ , on parle alors de schémas « implicites ». Cette méthode de couplage est plus efficace que la précédente pour les plasmas de forte densité, mais elle nécessite une linéarisation du système d'équations et une inversion de matrice à chaque pas en temp.

➤ *Schéma semi-implicite*

Il existe une alternative au schéma explicite trop lent et le schéma implicite trop « lourd », c'est le schéma « semi-implicite ».

La méthode semi-implicite de Ventzek et al. [24, 25, 26] est un bon compromis entre la méthode explicite et la méthode implicite (résolution simultanée des équations de transport-Poisson) car elle permet de conserver la simplicité de résolution d'une méthode explicite avec des pas en temps d'intégration beaucoup plus grands (près de deux ordres de grandeur) que le temps de relaxation de Maxwell. Le principe de cette méthode est, lorsqu'on résout l'équation de Poisson à l'instant  $t^k$ , d'utiliser une estimation de la charge d'espace  $\rho$  au temps  $t^{k+1}$ . Le transport des particules chargées entre  $t^k$  et  $t^{k+1}$  s'effectue en supposant que le champ électrique conserve la même valeur entre ces deux instants (comme dans une méthode explicite). Dans ces conditions, l'équation de Poisson devient :

$$\Delta V = \frac{-\left(\rho + \Delta t \frac{\partial \rho}{\partial t}\right)}{\epsilon_0} \quad 61.$$

En utilisant l'équation de continuité  $\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\nabla \cdot J_T$  avec  $J_T$  donnée par la relation (59),

l'expression ci-dessus devient :

$$\Delta V + \frac{\Delta t}{\epsilon_0} \nabla \cdot [\sigma \nabla V] = -\frac{\rho - \Delta t \nabla \cdot J_{diff}}{\epsilon_0} \quad 62.$$

Si nous considérons une conductivité constante, la raison pour laquelle nous pouvons utiliser un pas en temps supérieur au pas en temps de relaxation de Maxwell apparaît clairement puisque l'équation de Poisson devient dans ce cas :

$$\left[1 + \frac{\Delta t}{\tau_M}\right] \Delta V = -\frac{\rho - \Delta t \nabla \cdot J_{diff}}{\epsilon_0} \quad 63.$$

Les oscillations et instabilités numériques pour  $\Delta t > \tau_M$  sont dans ces conditions fortement réduites.

La description de l'approche de notre modèle fluide étant faite, nous nous proposons de présenter par la suite une étude effectuée à l'aide de ce modèle visant à estimer le coefficient de diffusion perpendiculaire dans le cas d'un plasma de diffusion. En effet depuis les années 50, de nombreuses théories ont été élaborées pour estimer le coefficient perpendiculaire. Il est reconnu que les conditions aux frontières (paroi diélectrique ou métallique) doivent être prises en compte car elles ont un impact important sur les phénomènes de diffusion. Dans le cadre de notre étude d'un magnétoplasma, nous nous sommes intéressés plus particulièrement à la chambre métallique où a lieu le procédé de gravure. Il nous a donc paru intéressant d'effectuer une étude du coefficient de diffusion perpendiculaire dans une chambre métallique. C'est le propos du prochain paragraphe

### VIII.) Etude numérique du coefficient de diffusion perpendiculaire

Comme nous l'avons présenté dans le paragraphe VII.), notre modèle est constitué des deux premiers moments de l'équation de Boltzmann, soit l'équation de continuité et de transport de quantité de mouvement, couplé à l'équation de Poisson nous donnant le champ de charge d'espace. Nous résolvons donc le système non linéaire correspondant aux équations (23) et (24), présentées dans le paragraphe V).

#### 1) Temps de diffusion

Notre étude a porté sur l'estimation du coefficient de diffusion perpendiculaire dans le cas d'un plasma de diffusion d'hélium, dans une enceinte métallique de géométrie cylindrique. D'une façon générale, si nous considérons notre post-décharge, nous devons donc résoudre l'équation aux dérivées partielles suivante:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D\nabla^2 n \quad 64.$$

Pour cela, il est commode de rechercher les fonctions propres  $n(\mathbf{r})$  de l'opérateur  $D\nabla^2 n$  définies par les deux conditions:

$$D\nabla^2 n = -vn \quad 65.$$

$n=0$  sur la surface.

Ce système définit une suite de fonctions propres  $n_i(\mathbf{r},t)$  avec les valeurs propres correspondantes  $v_i$ . Ces fonctions propres ou modes propres forment une suite complète de fonctions orthogonales, on peut donc développer la répartition de densité en une série dont les termes sont ces modes propres  $n_i$ , avec des coefficients  $a_i$  fonction du temps :

$$n(\vec{r}, t) = \sum_i a_i(t) n_i(\vec{r}) \quad 66.$$

Après avoir porté ce développement dans l'équation (65), on peut, par suite de l'orthogonalité des  $n_i$ , remplacer cette équation par le système :

$$\frac{\partial a_i}{\partial t} = -\nu_i a_i \quad 67.$$

dont la solution est :

$$a_i(t) = a_i(0)e^{-\nu_i t} \quad 68.$$

autrement dit, les  $\nu_i$  sont les fréquences de relaxation par diffusion des modes propres. On introduit pour chaque mode propre la quantité :

$$\Lambda_i = \left( \frac{D}{\nu_i} \right)^{1/2} \quad 69.$$

D'après l'équation (65), on appelle  $\Lambda_i$  la longueur de diffusion du mode  $i$ .

Dans le cas d'une cavité cylindrique  $(r,z)$  de rayon  $R$  et de longueur  $L$ , l'expression du mode propre fondamental et de sa longueur de diffusion sont :

$$n(r, z, t) = J_0 \left( \frac{2.405}{R} r \right) \cos \left( \frac{\pi}{L} z \right) e^{-\frac{t}{\tau}} \quad 70.$$

et

$$\frac{1}{\Lambda^2} = \left( \frac{2.405}{R} \right)^2 + \left( \frac{\pi}{L} \right)^2 \quad 71.$$

On peut donc définir le temps de diffusion de la densité par l'expression :

$$\frac{1}{\tau} = \left( \frac{2.405}{R} \right)^2 D_{\perp} + \left( \frac{\pi}{L} \right)^2 D_{\parallel} \quad 72.$$

A partir de l'équation (34), on peut donc définir le temps de diffusion par l'expression :

$$\frac{1}{\tau} = \left( \frac{2.405}{R} \right)^2 D_{a\perp} + \left( \frac{\pi}{L} \right)^2 D_{a\parallel} \quad 73.$$

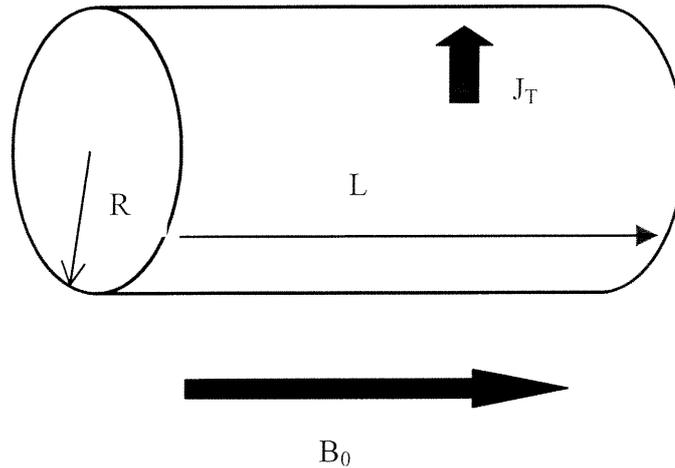
Le coefficient de diffusion perpendiculaire prendra les expressions définies par la théorie ambipolaire classique ( $D_{a\perp}$ ), la théorie de Bohm ( $D_B$ ), la théorie de Simon ( $D_S$ ) ou la théorie de Liebermann ( $D_l$ ). Quand au coefficient de diffusion parallèle, il sera défini par le coefficient de diffusion ambipolaire dans le cas d'un plasma non-magnétisé.

## 2) Diffusion dans un gaz électropositif soumis à un champ magnétique uniforme

Nous avons effectués une série de calcul pour un plasma d'hélium à une pression de 20 mtorr, en considérant une densité initiale uniforme de  $10^9 \text{ cm}^{-3}$ , une température électronique de 2 eV et une température ionique de 0.1 eV et cela pour trois rapports  $\frac{L}{R}$  (2,4 et 8). Pour l'hélium, nous avons considéré comme mobilité électronique  $\mu_e = 7.10^5/p \text{ cm}^2.V^{-1}.s^{-1}$  et comme mobilité ionique  $\mu_i = 5.10^3/p \text{ cm}^2.V^{-1}.s^{-1}$  avec p en torr.

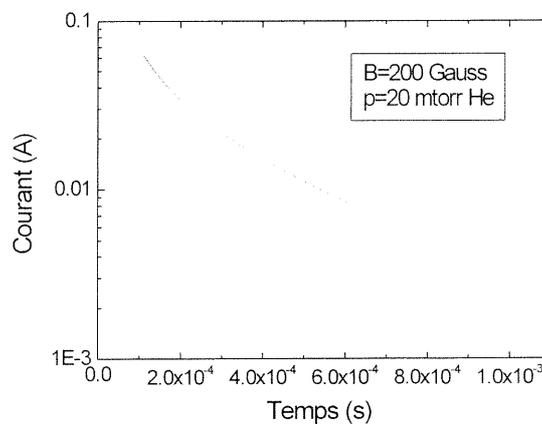
Comme nous l'avons dit précédemment, nous résolvons le système composé des équations (23) et (24) couplées de manière auto-cohérente avec l'équation de Poisson, dans le cas d'un plasma limité par des parois métalliques et soumis à un champ magnétique uniforme, et cela sans aucune autre hypothèse supplémentaire.

Afin d'estimer la valeur du coefficient de diffusion perpendiculaire, nous avons calculé la décroissance en fonction du temps du courant total sur la paroi parallèle aux lignes de champ magnétiques (voir Figure VIII-1), décroissance qui est donc significative des pertes radiales et de l'influence du champ magnétique sur celles-ci.



**Figure VIII-1. Schéma de la géométrie simulée.**

La Figure VIII-2 présente la décroissance en fonction du temps du logarithme du courant total sur la paroi pour un champ magnétique de 200 Gauss, pour un plasma d'hélium à 20 mtorr après un temps suffisamment long (entre 0.1 et 1 ms). Comme nous pouvons le constater, pour un temps suffisamment long, la distribution du courant total sur la paroi décroît exponentiellement avec le temps, en accord avec la distribution de densité dans le mode fondamental.



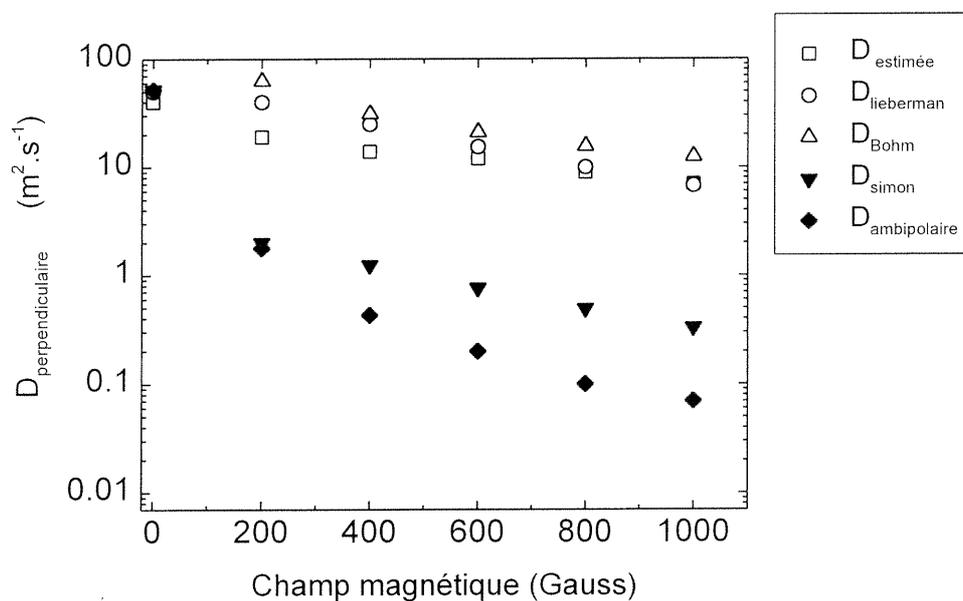
**Figure VIII-2. Dépendance en temps du courant total à la paroi, pour un plasma d'hélium à une pression de 20 mtorr et un champ magnétique d'une intensité de 200 Gauss.**

A partir de cette courbe, nous pouvons donc estimer le temps de diffusion :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{d(\ln J_r)}{dt} \quad 74.$$

Nous pouvons ainsi estimer le coefficient de diffusion perpendiculaire à l'aide de l'équation (74) et en considérant le coefficient de diffusion ambipolaire pour le coefficient de diffusion parallèle aux lignes de champ magnétique. Nous avons tout d'abord considéré une géométrie où la longueur est égale au diamètre.

Sur la Figure VIII-3, nous présentons les valeurs du coefficient de diffusion perpendiculaire pour le rapport L/R=2 estimées par notre calcul, ainsi que les valeurs obtenues à l'aide des théories de Bohm  $D_B$ , Simon  $D_S$ , Liebermann  $D_L$  et la théorie ambipolaire classique  $D_{a\perp}$ .



**Figure VIII-3. Coefficient de diffusion perpendiculaire pour une cellule dont la longueur est égale à 2 fois le rayon.**

Pour la gamme d'intensité du champ magnétique étudiée, nous constatons que les valeurs du coefficient de diffusion perpendiculaire sont en assez bon accord avec la théorie de Liebermann, la théorie de Bohm donnant des valeurs supérieures à celle que nous avons

obtenues. Le coefficient de diffusion perpendiculaire passe d'une valeur d'environ  $25 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  à 200 Gauss à une valeur de quelques  $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  à 1000 Gauss. En considérant la théorie ambipolaire, le coefficient de diffusion passe alors d'une valeur d'environ  $2 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  à 200 gauss, à environ  $0.1 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  à 1000 Gauss, ce qui est d'un ordre de grandeur inférieur à nos observations. Si maintenant nous considérons la théorie de Simon, qui le premier a mis en évidence le fait que la théorie ambipolaire n'était plus applicable au cas d'un plasma magnétisé entouré par des parois métalliques, nous voyons que le coefficient de diffusion varie entre  $2 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  à 200 Gauss et  $0.3 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ . Malgré la théorie du "court-circuit" de Simon, les coefficients de diffusion restent tout de même un ordre de grandeur plus faibles que celui que nous avons estimé. Ces calculs montrent donc que les coefficients de diffusion perpendiculaire sont, en général, supérieurs d'un ordre de grandeur à ceux déterminés par les théories de Simon ou par la théorie ambipolaire. De plus, la théorie élaborée par Liebermann semble être celle qui correspond le mieux au coefficient de diffusion perpendiculaire que nous estimons par le calcul auto-cohérent.

Au vu de ce résultat, nous avons voulu vérifier que la loi de Liebermann décrivait mieux les variations du coefficient de diffusion. Afin de vérifier cette théorie, nous avons considéré la relation définie par la théorie de Liebermann et de Simon, soit:

*Théorie de Liebermann*

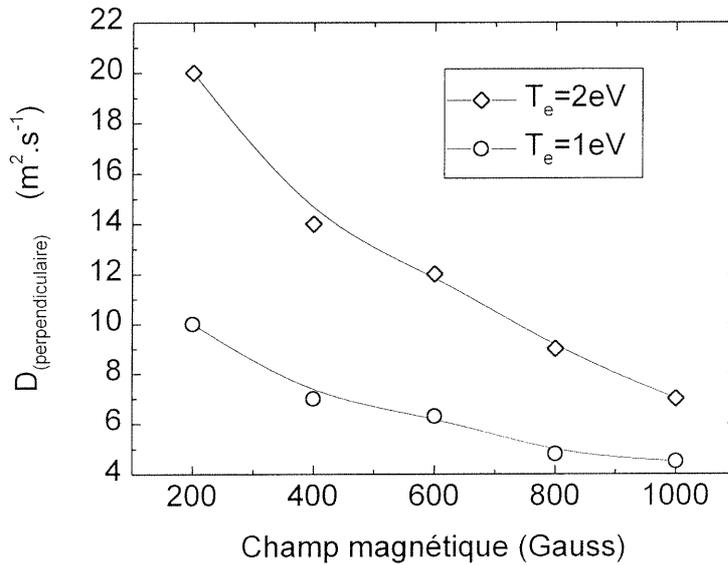
$$D_{a\perp} \sim D_{p\perp} \frac{T_c}{T_p} \quad 75.$$

*Théorie de Simon*

$$D_{a\perp} \approx D_{p\perp} \quad 76.$$

Nous voyons que le coefficient de diffusion prédit par Liebermann est plus grand d'un facteur  $\frac{T_c}{T_i}$  que celui prédit par la théorie de Simon. La théorie de Simon décrit, en fait, un coefficient de diffusion invariant en fonction de la température électronique.

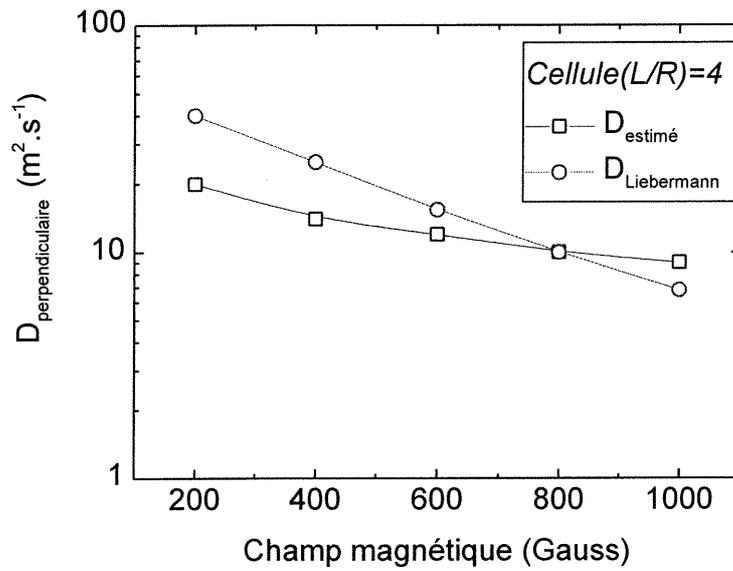
Nous avons donc voulu observer l'impact de la température électronique sur notre estimation du coefficient de diffusion. Nous représentons à la Figure VIII-4 des calculs dans les mêmes conditions que la Figure VIII-3 , mais pour une température électronique de 1 eV. Nous représentons, pour fin de comparaison, les calculs effectués à une température électronique de 2 eV.



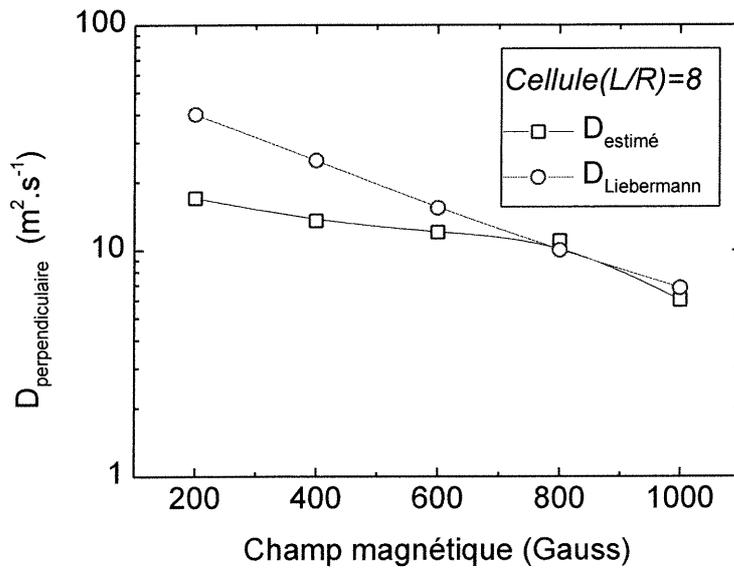
**Figure VIII-4. Variation en fonction de l'intensité du champ magnétique du coefficient de diffusion perpendiculaire pour une pression de 20 mtorr et une température électronique de 2 et 1 eV. (la longueur égale deux fois le rayon)**

Nous constatons que le coefficient que nous estimons par le calcul suit une loi proportionnelle à la température électronique, en effet la diminution d'un facteur 2 de celle-ci induit une diminution d'un même facteur du coefficient de diffusion perpendiculaire. Ce résultat montre que la théorie de Liebermann semble le mieux estimer le coefficient de diffusion perpendiculaire. En effet, si nous considérons la théorie de Simon, le coefficient de diffusion perpendiculaire serait égal à celui des ions donc uniquement dépendant de la température des ions. Or nos calculs montrent une dépendance en fonction de la température électronique.

Afin d'élargir notre étude, nous avons effectué une série de calculs dans les mêmes conditions que précédemment, mais pour des cellules dont le rapport  $\frac{L}{R}$  est plus grand. La Figure VIII-5 et la Figure VIII-6 présentent les calculs effectués dans les mêmes conditions que la Figure VIII-3 , mais pour des rapports  $L/R$  égaux à 4 et 8.



**Figure VIII-2. Variation du coefficient de diffusion perpendiculaire en fonction du champ magnétique, pour une cellule dont la longueur est égale à 4 fois le rayon.**



**Figure VIII-3. Variation du coefficient de diffusion perpendiculaire en fonction du champ magnétique, pour une cellule dont la longueur est égale à 8 fois le rayon.**

Nous constatons, comme pour le cas  $L/R=2$ , que les coefficients sont un ordre de grandeur plus grand que ceux estimés par la théorie de Simon ou ambipolaire. De plus, ils correspondent, de nouveau, de manière satisfaisante à la théorie Liebermann. Le coefficient de diffusion perpendiculaire varie d'environ  $20 \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$  à 200 Gauss jusqu'à quelques  $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$  à 1000 Gauss. De plus, quelque soit le rapport  $\frac{L}{R}$ , le coefficient de diffusion que nous observons reste le même, mettant ainsi en évidence que les dimensions de l'enceinte n'ont pas d'impact significatif sur le coefficient de diffusion perpendiculaire aux lignes de champ magnétique. Nous observons que même pour des faibles intensités du champ magnétique, l'accord reste satisfaisant avec la théorie de Liebermann (l'estimation est seulement deux fois plus faible que les valeurs prédites par la théorie de Liebermann). Pour des valeurs supérieures du champ magnétique, l'accord est satisfaisant, puisqu'à 600 Gauss nous obtenons une valeur d'environ  $13 \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$  pour une valeur estimée par la théorie de Liebermann d'environ  $15 \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ .

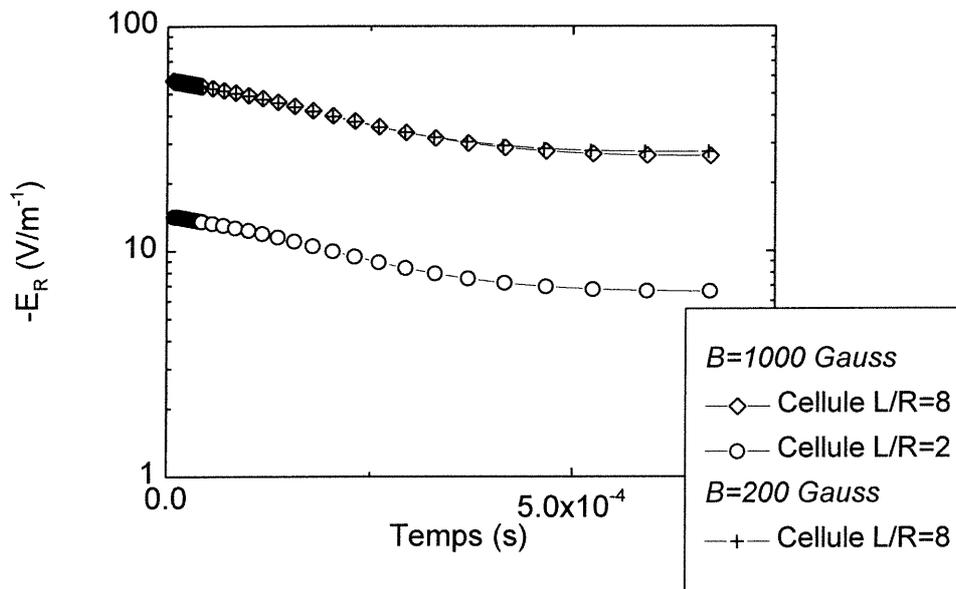
Pour un champ magnétique de 1000 Gauss, nous obtenons un coefficient de diffusion d'environ  $7 \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$  pour une valeur prédite par Liebermann de  $6.8 \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ . Il est évident que ces résultats sont applicables au cas particulier d'une colonne positive à basse pression. Ces résultats ne sont nullement applicables à l'ensemble des plasmas soumis à des champs magnétiques. On peut en effet citer le cas des décharges d'arcs étudiés par Simon, mais aussi Bohm, qui sont des plasmas à plus haute pression, auxquelles sont appliqués des champs magnétiques de l'ordre de quelques kGauss et où des phénomènes d'instabilité peuvent apparaître, ce qui n'est pas, a priori, le cas dans nos décharges à basse pression.

Nous avons contribué à une précédente étude sur la résolution numérique d'une équation de diffusion bidimensionnelle d'un plasma HF d'argon soumis à un champ magnétique uniforme<sup>[27]</sup>. Celle-ci a alors mis en évidence, le bon accord obtenu avec les résultats expérimentaux à l'aide de la théorie de Liebermann. L'approche que nous venons de décrire, qui, comparativement à la précédente étude, est plus rigoureuse puisqu'elle consiste en une description séparée des espèces chargées et du champ électrique confirme donc qu'il est raisonnable de penser que la théorie de Liebermann est celle qui estime le mieux le coefficient de diffusion perpendiculaire, dans nos décharges à basse pression.

Dans sa théorie, Liebermann considère le cas opposé à celui de Simon en ce qui concerne le champ électrique radial. Il considère en fait un champ électrique radial de l'ordre

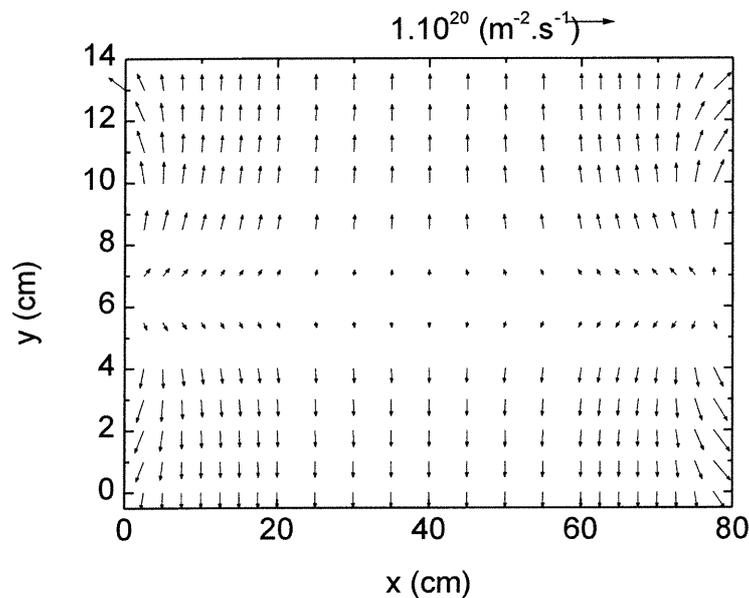
de  $\frac{kT_e}{eR}$ . Afin de vérifier cette approximation, nous avons calculé l'évolution en fonction du temps du champ électrique radial, dans le cas d'une cellule avec  $L/R=8$  et  $L/R=2$ . Nous avons considéré une température électronique de 2eV. Nous présentons à la Figure VIII-4 l'évolution en fonction du temps du champ électrique radial pour les deux cellules  $L/R=8$  et 2 pour un champ magnétique de 1000 Gauss ainsi que pour la cellule  $L/R=8$  mais pour un champ magnétique de 200 Gauss. Comme nous pouvons le constater le champ électrique radial est voisin de  $\frac{kT_e}{eR}$ , pour les trois cas considérés. Dans le cas  $L/R=8$ , le champ électrique radial est supérieur ou égal à environ  $30 \text{ V/m}^{-1}$ , comparativement à la valeur limite de Liebermann qui est de l'ordre  $25 \text{ V/m}^{-1}$  et cela aussi bien pour un champ magnétique fort de 1000 Gauss, que faible (200 Gauss).

Pour la cellule  $L/R=2$ , nous constatons de nouveau que le champ électrique radial est supérieur ou égale à  $7 \text{ V/m}^{-1}$ , à comparer avec la valeur limite de  $\frac{kT_e}{eR}$  de l'ordre de  $6 \text{ V/m}^{-1}$

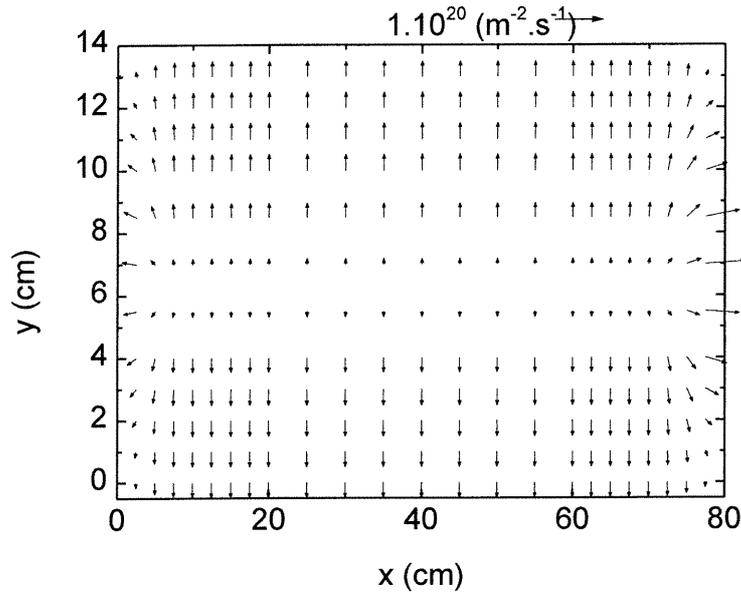


**Figure VIII-4. Variation en fonction du temps du champ électrique radial au centre de la cellule.**

Afin d'illustrer l'effet du champ magnétique sur la diffusion d'un plasma entouré par des parois métalliques, et tout particulièrement sur les flux d'électrons et d'ions, nous avons effectué des calculs, à l'état stationnaire concernant une colonne positive à une pression de 20 mtorr et pour deux valeurs de champ magnétique, soit  $B=0$  gauss et  $B=800$  gauss, dans le cas idéal d'une géométrie cartésienne. La Figure VIII-5 et la Figure VIII-9 présentent respectivement les vecteurs de flux des électrons et des ions dans le cas d'un champ nul. Comme nous le constatons (comme prédit par la théorie de Schottky), la diffusion est alors ambipolaire puisque pour les deux espèces que sont les électrons et les ions positifs, nous avons  $\varphi_e = \varphi_i = \varphi$ .

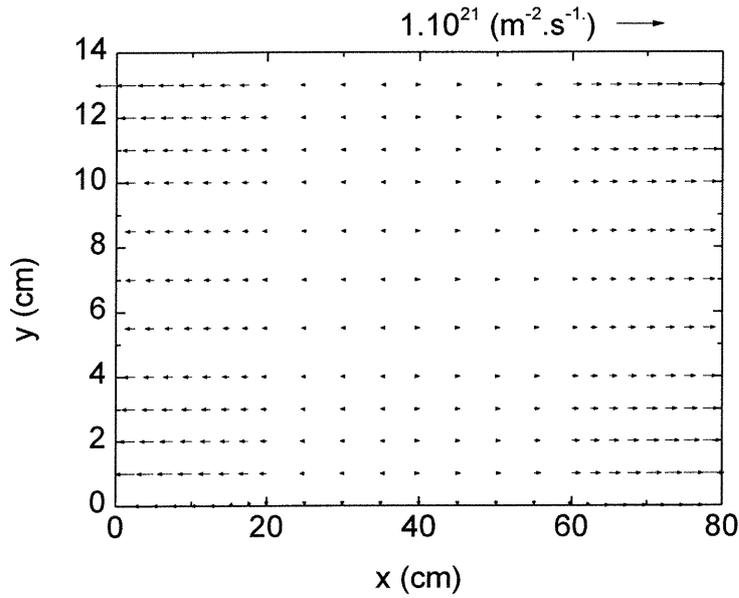


**Figure VIII-5. Vecteurs flux des électrons dans le cas où le champ magnétique est nul. La flèche indique la direction et la longueur l'amplitude du vecteur.**

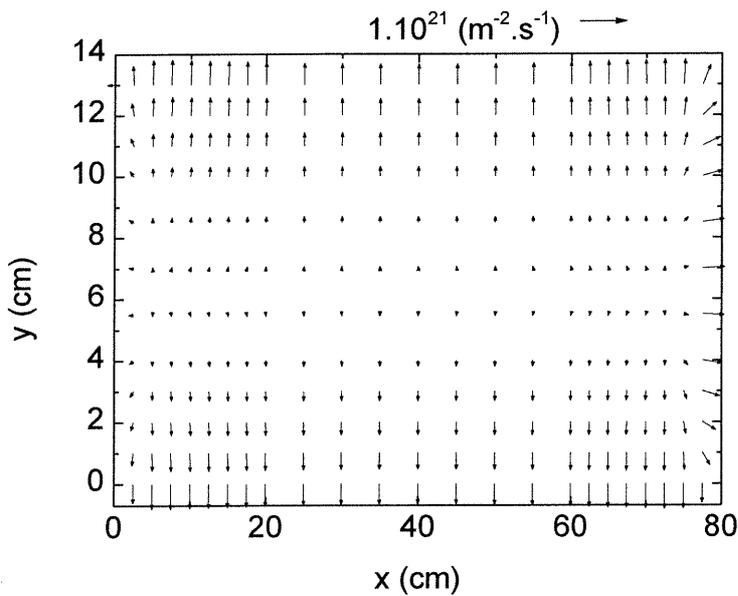


**Figure VIII-6. Vecteurs flux des ions dans le cas où le champ magnétique est nul. La flèche indique la direction et la longueur l'amplitude du vecteur.**

Si nous considérons le cas d'un plasma magnétisé, nous constatons alors que la théorie ambipolaire ne s'applique plus, puisque les flux électronique et ionique ne sont plus égaux en tout point de la cellule. Sur la Figure VIII-7 et la Figure VIII-11, nous présentons respectivement, les vecteurs de flux d'électrons et d'ions dans le cas où le champ magnétique uniforme est de 800 gauss. Comme nous pouvons le constater, une majorité des ions « court-circuitent » les électrons et diffusent perpendiculairement aux lignes de champ magnétique. La continuité du courant dans un tel système est alors assurée par les courants dans les parois. Les pertes électroniques sont principalement axiales, le rapport entre le flux d'électrons total sur la paroi transverse aux lignes de champ magnétique (correspondant à l'axe y) et le flux d'électrons total sur la paroi latérale (correspondant à l'axe x) est de l'ordre de  $10^4 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ . Par contre, les pertes latérales représentent 80% des pertes totales des ions positifs.



**Figure VIII-7. Vecteurs de flux des électrons dans le cas où le champ magnétique uniforme est égal à 800 Gauss. La flèche indique la direction et la longueur l'amplitude du vecteur.**



**Figure VIII-11. Vecteurs de flux ionique dans le cas d'un champ magnétique uniforme est égal à 800 Gauss. La flèche indique la direction et la longueur l'amplitude du vecteur.**

## Conclusion

Nous avons décrit dans ce chapitre le modèle fluide bidimensionnel décrivant notre plasma. Il comprend les deux premiers moments de l'équation de Boltzmann qui sont l'équation de continuité et l'équation de continuité de mouvement. Nous avons considéré l'approche dite de dérive-diffusion pour l'équation de quantité de mouvement, tant pour les électrons que pour les ions. Ces deux moments sont couplées de manière auto-cohérente avec l'équation de Poisson décrivant le champ de charge d'espace. Nous avons considéré pour l'ensemble de nos calculs une chambre métallique, en imposant aux parois d'être au potentiel de référence  $V=0$ . Pour la description du transport des électrons, nous avons considéré qu'ils étaient soumis à un champ magnétique axial uniforme en considérant un coefficient de diffusion et une mobilité réduite perpendiculairement au champ magnétique. Pour les basses pressions que nous étudions, nous avons considéré une fréquence d'échange de quantité de mouvement effective tenant compte des collisions des électrons avec les gaines. Le couplage de l'équation de Poisson et des équations de transport de particules chargées se fait de manière semi-implicite, le schéma semi-implicite consistant à introduire une évaluation de la densité électronique à l'instant  $t+dt$  dans l'équation de Poisson (au lieu de celle à l'instant  $t$ ) afin de tenir compte de la variation du champ électrique entre  $t$  et  $t+dt$ .

Ce modèle nous a permis, de conduire une étude non exhaustive sur le *coefficient de diffusion perpendiculaire* aux lignes de champ magnétique dans le cas d'un plasma électropositif soumis à un champ magnétique axial uniforme et dont les frontières sont délimitées par des *parois métalliques*. Cette étude a mis en évidence que ce coefficient était supérieur d'un ordre de grandeur à celui prédit par la théorie classique et par la théorie de Simon. Nous avons constaté que les variations du coefficient de diffusion perpendiculaire était bien représentées par la théorie de Liebermann, d'une part par leurs variations en fonction de la température électronique, ainsi que par l'existence d'un champ électrique radial de l'ordre ou supérieur à la valeur limite de  $\frac{kT_e}{eR}$ . De plus, nous avons illustré l'impact du champ magnétique sur les flux d'ions et d'électrons, mettant en évidence le transport non-ambipolaire des espèces chargées. Les électrons sont alors perdus majoritairement axialement tandis que les ions sont perdus majoritairement transversalement, la continuité du courant étant alors assumée par l'intermédiaire des parois métalliques.

**Liste des figures du Chapitre V**

- √ Figure VI-1. Temps caractéristiques d'un plasma d'argon, la densité électronique est de  $1.1011 \text{ cm}^{-3}$ , pour une pression de 1 mtorr ( $f=200 \text{ MHz}$ , dimension caractéristique pour  $D_a$ : 140 cm).  
204
- √ Figure VIII-1. Schéma de la géométrie simulée. 217
- √ Figure VIII-2. Dépendance en temps du courant total à la paroi, pour un plasma d'hélium à une pression de 20 mtorr et un champ magnétique d'une intensité de 200 Gauss. 217
- √ Figure VIII-3. Coefficient de diffusion perpendiculaire pour une cellule dont la longueur est égale à 2 fois le rayon. 218
- √ Figure VIII-1. Variation en fonction de l'intensité du champ magnétique du coefficient de diffusion perpendiculaire pour une pression de 20 mtorr et une température électronique de 2 et 1 eV. (la longueur égale deux fois le rayon) 220
- √ Figure VIII-2. Variation du coefficient de diffusion perpendiculaire en fonction du champ magnétique, pour une cellule dont la longueur est égale à 4 fois le rayon. 221
- √ Figure VIII-3. Variation du coefficient de diffusion perpendiculaire en fonction du champ magnétique, pour une cellule dont la longueur est égale à 8 fois le rayon. 221
- √ Figure VIII-4. Variation en fonction du temps du champ électrique radial au centre de la cellule. 223
- √ Figure VIII-5. Vecteurs flux des électrons dans le cas où le champ magnétique est nul. La flèche indique la direction et la longueur l'amplitude du vecteur. 224
- √ Figure VIII-6. Vecteurs flux des ions dans le cas où le champ magnétique est nul. La flèche indique la direction et la longueur l'amplitude du vecteur. 225
- √ Figure VIII-7. Vecteurs de flux des électrons dans le cas où le champ magnétique uniforme est égal à 800 Gauss. La flèche indique la direction et la longueur l'amplitude du vecteur. 226

**Bibliographie du chapitre V.**

---

<sup>1</sup> J.P.Bœuf, *A two dimensional model of dc glow discharges*, J.Appl.Phys.63(5), 1342-1349 (1988).

<sup>2</sup> M.Dalvie, M.Surendra, and G.S.Selwyn *Self-consistent fluid modeling of radio-fequency discharges in two dimensions*, Appl.Phys.Lett.62(24), 3207-3209, (1993).

<sup>3</sup> E.Gogolides, and H.H.Sawin, *Continuum modeling of radio frequency glow discharges. I Theory and results for electropositive and electronegative gases*, J.Appl.Phys. 72(9), 3971-3987, (1992).

<sup>4</sup> J.P.Bœuf, *Simulation Monte-Carlo des propriétés des espèces chargées dans la zone cathodique d'une décharge dans l'hélium*, Paris-sud (centre d'Orsay) (1981) (thèse).

<sup>5</sup> T.E.Nitschke, and D.B.Graves, *A comparison of particle in cell and fluid model simulations of low-pressure radio frequency discharges*, J.Appl.Phys.76, 5646-60, (1994).

<sup>6</sup> J.P.Bœuf, and L.C.Pitchford, *Two-dimensional model of a capacitively coupled rf discharge and comparisons with experiments in the GEC reference reactor*, Phys.Rev.E 51, 1376, (1995).

<sup>7</sup> J.P.Bœuf, and A.Merad, *Fluid and hybrid models of non equilibrium discharges*, Ed.P.F.Williams, Serie E : Applied Sciences-Vol 336 (NATO ASI on Plasma Processing of Semiconductors), 291-319, (1997).

<sup>8</sup> M.Meyappan, and T.R.Govindan, *Radio frequency discharge modeling : moment equations approach*, J.Appl.Phys.74(4), 2250-2259, (1993).

<sup>9</sup> A.Fiala, L.C.Pitchford, and J.P.Bœuf, *Two-dimensional Hybrid model of low-pressure glow discharges*, Physical review E 49(6), 5607-5622, (1994).

<sup>10</sup> N.Ouadoudi, *Simulation numérique de la phase d'initiation d'une décharge à cathode creuse de type pseudospark*, CPAT-UPS,Toulouse, (Mars 1994) (Thèse).

<sup>11</sup> A.Fiala, *Modélisation numérique bidimensionnelle d'une décharge luminescent à basse pression*, CPAT-UPS, Toulouse, (juin 1995), (thèse).

<sup>12</sup> C.Lee, M.A.Liebermann, *Global model of Ar, O<sub>2</sub>,Cl<sub>2</sub> high density plasma discharges*, J.Vac.Sci.Technol.A, **13**, (2),368-380, Mar/Apr 1995.

<sup>13</sup> A.Merad, *Modélisation fluide des décharges Radio-Fréquence Basse Pression, à couplage capacitif, et considération de la présence de poudres*, Thèse, Université de Paul-Sabatier de Toulouse, 1998.

<sup>14</sup> O.A.Popov, and V.A.Godyak, « Power dissipation in low pressure radio frequency discharge plasma », J.Appl.Phys 57(1), 53-58, (1985).

<sup>15</sup> M.A.Liebermann, A.J.Lichtenberg, « Principles of plasma discharge and materials processing », John Wiley & Sons, Inc, (1994).

<sup>16</sup> W.Schottky, Z.Physik **25**,635 (1924).

<sup>17</sup> D.Bohm, E.H.S.Burhop et H.S.W.Maddey, in *Characteristics of Electrical Discharges in Magnetic fields*, édité par A.Guthrie et R.K.Wakerling (McGraw-Hill Book Company, Inc, New-York, 1949).

<sup>18</sup> A.Simon, *An Introduction to Thermonuclear Research*, (Pergamon Press, Ltd, London, 1959), Chap IX.

<sup>19</sup> K.H.Geissler, *The problem of ambipolar diffusion of finite magnetoplasmas*, Phys.Fluids, **13**, pp935-940, (1970).

<sup>20</sup> A.P.Zhilinskii et L.D.Tsendin, « *Collisionnal diffusion of a partially ionized plasma in a magnetic field* », Sov.Phys.Usp, **23**, 331-353, 1980.

<sup>21</sup> M.A.Liebermann et R.A.Gottscho, « *Design of high-density plasma sources for materials processings* », in Physics of thin films, **18**, M.H.Francombe et J.L.Vossen, Eds New York, Academic, 1994.

<sup>22</sup> L.C.Pitchford, J.P.Bœuf, et W.L.Morgan, *a 2 term, user-friendly solver for the Electron Boltzmann Equation*, Kinema Research [siglo@kinema.com](mailto:siglo@kinema.com), Monument, CO, (1996).

<sup>23</sup> D.L.Sharfetter, et H.K.Gummel, *Large signal analysis of a silicon read diode Oscillator*, IEEE Trans.Electron.Devices ED-16, 64-77, (1969).

<sup>24</sup> P.L.G.Ventzek, T.J.Sommerer, R.J.Hoekstra, and M.J.Kushner, *Two-dimensional Hybrid model of Inductively Coupled Plasma Sources for Etching*, Appl.Phys.Lett. **63**, 605 (1995).

<sup>25</sup> P.L.G.Ventzek, R.J.Hoekstra, et M.J.Kushner, *Two-dimensional Modeling of High Plasma Density Inductively Coupled Sources for Materials Processings*, J.Vac.Sci.Technol.**B 12**, 461 (1994).

<sup>26</sup> S.Cany, *Rapport de thèse*, CPAT, (1997).

<sup>27</sup> F.Vidal, T.W.Johnston, J.Margot, M.Chaker, et O.Pauna, *Diffusion Modeling of an HF Argon Plasma Discharge in a Magnetic Field*, IEEE. Trans.Plasma.Sciences, **27**, 3, 727-745, June 1999.



## Conclusion générale

Cette thèse avait pour premier but d'étudier les *phénomènes physico-chimiques* intervenant dans un magnétoplasma de *chlore appliqué à la gravure sous-micrométrique*. Par physico-chimie, nous entendons l'ensemble des phénomènes physiques (ceux impliquant les particules chargées) et chimiques (impliquant les particules neutres) qui s'y déroulent. Eu égard à la complexité des plasmas de gravure, qui comprennent des atomes, radicaux, molécules, ions et électrons, nous nous sommes concentrés sur les espèces les plus pertinentes à la gravure, à savoir le chlore atomique neutre, ainsi que les ions positifs et négatifs correspondants.

Cette étude a été conduite de manière expérimentale à l'aide de divers diagnostics tels que les sondes électrostatiques, le photodétachement par laser, les ondes acoustiques ioniques et la spectroscopie d'émission. Nous avons ainsi constaté la différence existant entre les profils radiaux de densité d'ion positif, entre la source et l'enceinte métallique de notre réacteur. Nous avons de plus étudié *l'impact des conditions opératoires* sur les caractéristiques du plasma de chlore, mettant en évidence la diminution de la densité d'ions positifs avec la pression. Nous avons également estimé le degré d'ionisation de notre source, justifiant ainsi son appellation de source à haute densité et confirmé l'importance du travail à basse pression. La grande souplesse d'utilisation de notre réacteur nous a permis de faire une étude de *l'influence de l'intensité du champ magnétique*. Nous avons alors constaté l'augmentation de la densité d'ions positifs et une diminution de la température électronique et de l'énergie des ions, avec l'augmentation de  $B_0$ . L'étude de l'impact de la puissance absorbée par le plasma a mis en évidence l'intérêt d'une forte puissance absorbée, sans pour autant induire de dommages importants au matériau. Nous avons par la suite étudié la population des *ions négatifs*. Pour cela, nous avons utilisé deux méthodes, tout d'abord le *photodétachement par laser*, puis la *propagation d'ondes acoustiques ioniques*. Nous avons mis en évidence une augmentation quasi-linéaire avec la pression de la proportion d'ions négatifs. De plus, l'impact de l'intensité du champ magnétique a mis en évidence la moindre

proportion d'ions négatifs avec de fortes valeurs de champ magnétique. Cette étude de la population d'ions négatifs a de plus permis de valider la technique des ondes ionosonores, pour l'étude de nos magnétoplasmas de Cl<sub>2</sub>. En combinant l'ensemble des résultats de la densité d'ions positifs et de la proportion d'ions négatifs, nous avons pu ensuite conduire une étude de la **population électronique et de  $\theta$**  (la puissance absorbée par électron).

L'étude de l'impact des conditions opératoires sur ces paramètres a mis en évidence le passage à environ 1 mtorr, d'un passage de diffusion à un passage d'attachement. De plus, l'évolution du paramètre  $\theta$  en fonction de l'intensité du champ magnétique, a mis en évidence le régime limite atteint, ainsi que la valeur de l'intensité du champ magnétique correspondante. La comparaison avec les résultats concernant le SF<sub>6</sub>, le Cl<sub>2</sub> et l'argon nous a permis de constater la moindre électronégativité du chlore, mais aussi que le bilan énergétique est plus favorable pour notre source travaillant à 200 MHz, comparativement à une source ECR (travaillant à 2450MHz).

Après cette étude des particules chargées, nous nous sommes concentrés plus particulièrement sur la **chimie** de notre magnétoplasma. A l'aide de la méthode indirecte d'actinométrie du chlore moléculaire, nous avons constaté la décroissance du degré de dissociation en fonction de la pression, passant de 90% à 0.2 mtorr, à 30% à 8 mtorr. Par contre, l'augmentation de l'intensité du champ magnétique ainsi que de la puissance absorbée par le plasma favorise un plus grand degré de dissociation, même si pour des intensités du champ magnétique de plus de 400 Gauss et des puissances absorbées de plus de 300 Watts, celui-ci ne semble plus augmenté. Les résultats obtenus seront certainement très utiles à la compréhension des sources à haute densité en général, fonctionnant à des pressions de gaz similaires, tout particulièrement en ce qui concerne l'influence de l'intensité du champ magnétique, qui est le paramètre opératoire majeur de par sa grande souplesse dans le cadre de notre étude.

*Dans un deuxième temps*, le design du réacteur jouant un rôle crucial dans l'optimisation des plasmas de gravure, nous nous sommes intéressés à ***l'impact simultané de la dimension de l'enceinte métallique et de l'intensité du champ magnétique*** tant sur les ***espèces chargées que les espèces neutres*** de notre magnétoplasma de chlore. Nous avons donc constaté qu'il n'est pas nécessaire d'utiliser de fort champ magnétique pour optimiser les propriétés électriques d'un réacteur de gravure (même si sa présence est tout de même nécessaire), mais que le paramètre le plus important à contrôler, par la suite, pour les réacteurs du futur est celui concernant le dimensionnement du réacteur.

En effet, l'impact du *rapport  $L/R$  sur les caractéristiques électriques* du plasma reste *négligeable*, par contre la *chimie*, et plus particulièrement *la densité de chlore atomique*, est *plus sensible* à ces variations. Il est en effet souhaitable, afin d'obtenir un bon rapport de flux de neutres sur flux d'ions, d'optimiser le design du réacteur afin de limiter les pertes des particules neutres (comme le chlore atomique).

En parallèle à ces études expérimentales, nous avons développé un modèle fluide bidimensionnel. Ce modèle résout de manière auto-cohérente les deux premiers moments de l'équation de Boltzmann avec l'équation de Poisson. L'approche semi-implicite considérée pour la résolution de l'équation de Poisson, nous a permis de mener une étude non-exhaustive sur les phénomènes de diffusion dans un plasma électropositif, entouré par des parois métalliques et soumis à un champ magnétique axial uniforme. Cette approche avait pour but d'estimer la valeur du coefficient de diffusion perpendiculaire dans le cas d'un plasma électropositif à basse pression. Nous avons ainsi pu constater que le *coefficient de diffusion perpendiculaire* que nous estimons correspond de manière satisfaisante à celui prédit par la théorie de Liebermann, où le champ électrique radial est supérieur ou égal à  $\frac{kT_e}{eR}$ . En effet, cette étude a mise en évidence que le coefficient de diffusion perpendiculaire est *supérieur d'un ordre de grandeur* à celui estimé par la *théorie classique ou même la théorie de Simon*. De plus, nous avons illustré le caractère non ambipolaire du transport des électrons et des ions dans un plasma entouré par des parois métalliques et soumis à un champ magnétique axial uniforme. En effet, dans le cas d'un champ magnétique non nul, la continuité est alors assurée par les parois métalliques de l'enceinte.

En regard des résultats que nous venons de présenter, les travaux futurs devront s'orienter selon deux axes.

Tout d'abord, dans toutes les expériences menées dans ce travail, nous n'avons pas considéré l'influence du substrat polarisé, sur les caractéristiques du plasma de chlore et plus particulièrement à l'entrée de la gaine. Un prolongement de ces études consisterait donc à étudier l'impact de la présence d'un substrat sur les paramètres du plasma, et particulièrement sur le rapport des flux d'ions sur les flux de neutres. En parallèle à ces études, des expériences de gravure de l'aluminium, mais aussi du cuivre peuvent être conduites en profitant des résultats obtenus dans le cadre de ce travail afin de choisir les conditions optimums pour la gravure.

Le deuxième axe consisterait à développer un modèle bidimensionnel se basant sur celui d'ores et déjà développé, mais en y incluant une description du dépôt de puissance plus réaliste. Cette description serait possible par le couplage de ce modèle avec les équations de Maxwell décrivant le dépôt de puissance HF. Pour les procédés de gravure, il apparaît clair que le profil de dépôt de puissance est un paramètre capital qui contrôle en grande partie l'uniformité du procédé. L'objectif de cette approche numérique serait alors de pouvoir estimer de la manière la plus précise, la distribution des flux d'ions à la frontière du substrat, afin d'être à même de définir les conditions optimums à la gravure sous-micrométrique.

---

**ANNEXES**

---



---

**ANNEXE A**

**Etude de la fonction de distribution en énergie des  
électrons**

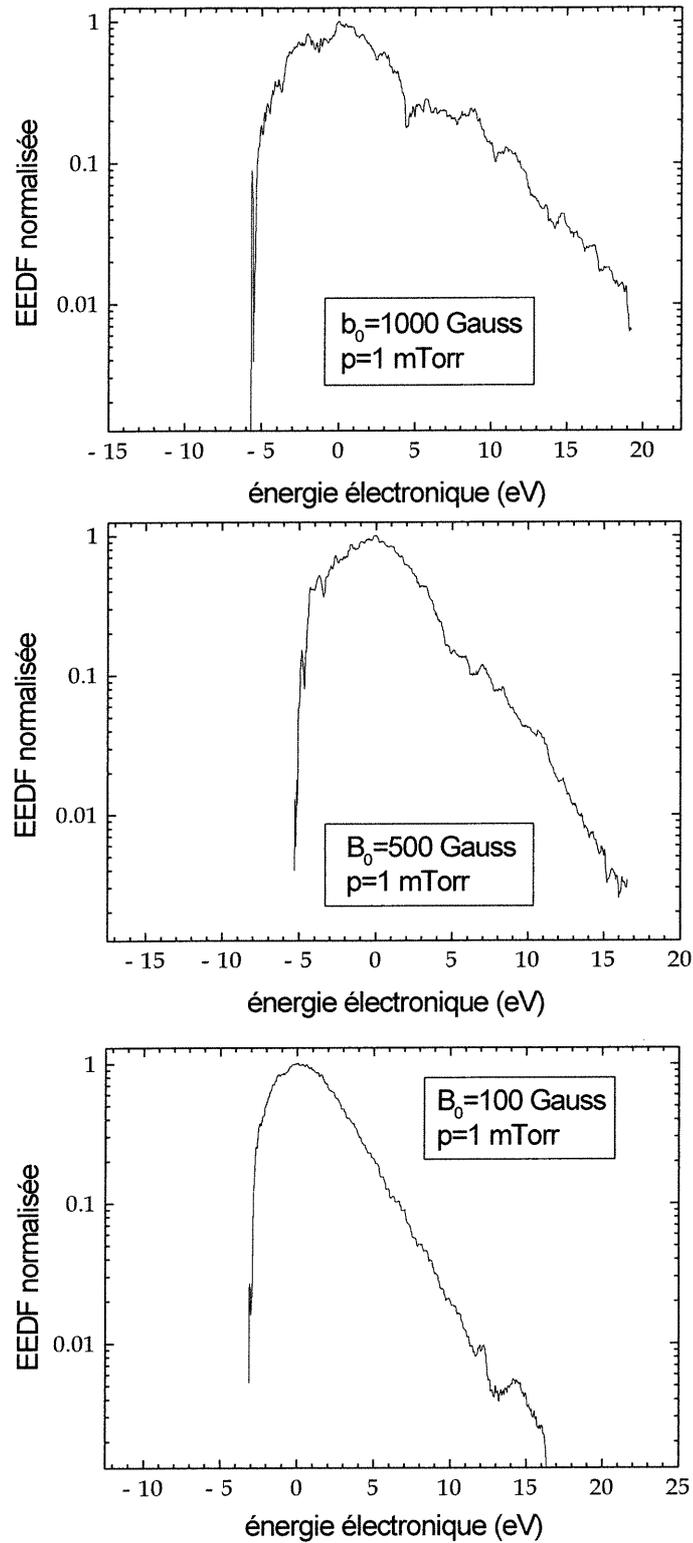
---

## Etude de la fonction de distribution en énergie des électrons

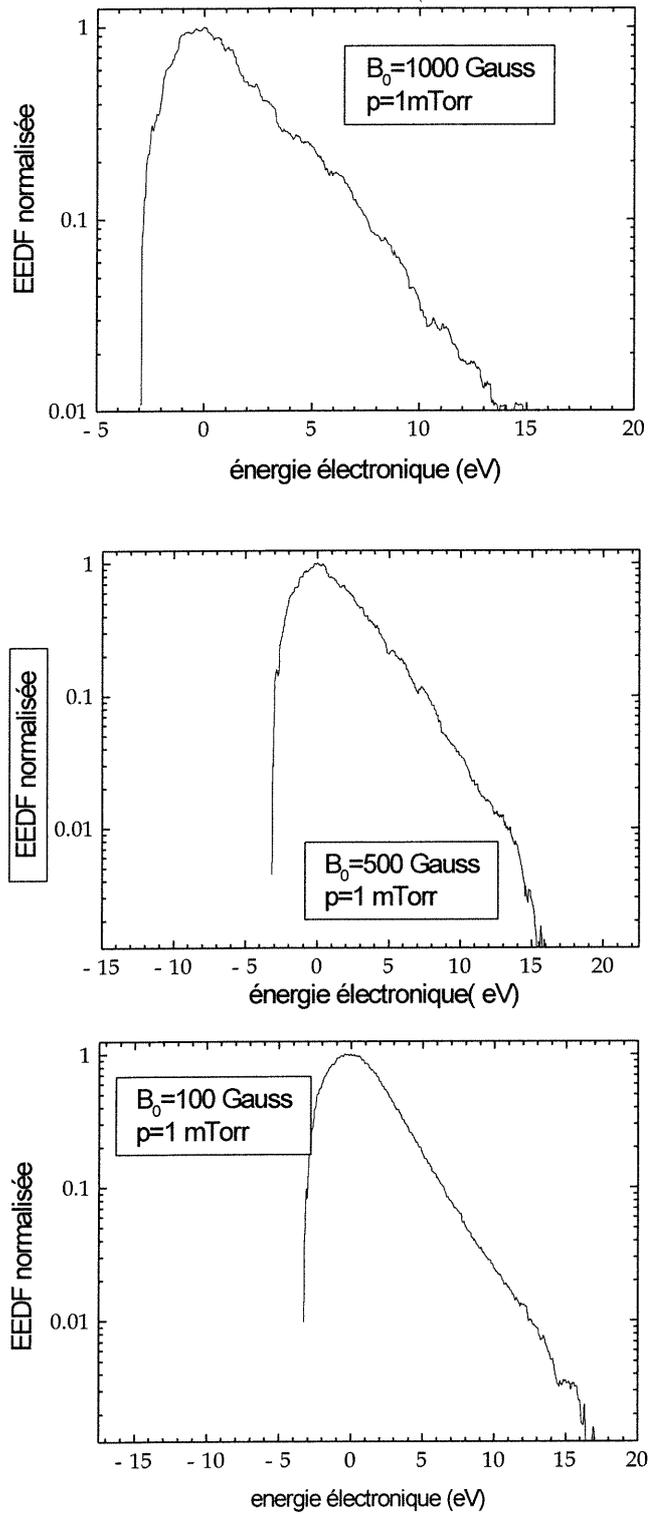
Le diagnostic de sonde électrostatique nous a permis grâce à la méthode de double dérivation graphique (présentée dans le chapitre II), d'estimer la fonction de distribution en énergie des électrons normalisée pour différents gaz et conditions opératoires.

La Figure 0.1 présente les fonctions de distribution en énergie normalisée pour un gaz de chlore pur, à une pression de 1 mTorr et trois intensités du champ magnétique, 100, 500 et 1000 Gauss. Malgré les basses pressions de travail, on constate que ces fonctions sont quasi-maxwelliennes. De plus, l'augmentation de l'intensité du champ magnétique favorise la queue de la fonction de distribution en énergie des électrons, puisque celle-ci présente des électrons plus énergétiques. Nous devons toutefois considérer une incertitude supplémentaire quant à la description de la queue de la fonction de distribution en énergie des électrons (électrons à hautes énergies), car celle-ci est fortement perturbée par la présence du champ magnétique. Nous remarquons que pour la pression étudiée, la forme de la fonction de distribution en énergie des électrons change en fonction de l'intensité du champ magnétique mais reste de forme maxwellienne.

La même étude a pu être entreprise dans un plasma d'argon (Figure 0.2). Nous constatons, comme dans le cas du plasma dans le chlore, que les fonctions de distribution en énergie des électrons sont de forme maxwellienne. Par contre, l'effet de l'intensité du champ magnétique sur la queue de la fonction de distribution n'est pas aussi important. A notre connaissance, c'est la première fois qu'une étude de ce genre est menée sur un magnétoplasma de chlore. D'autres expériences devront certainement valider ces résultats, et s'intéresser plus particulièrement à l'impact de la position radiale sur la fonction de distribution, puisque des calculs ont été menés en ce qui concerne l'évolution axiale de la EEDF, et celle-ci ne semble pas évoluer de manière significative axialement. Par contre, l'évolution selon la position radiale devrait être elle plus importante, et de plus d'intérêt pour l'uniformité du procédé de gravure par plasma.



**Figure 0.1. EEDF normalisée pour un plasma de chlore pour à une pression de 1 mtorr et un champ magnétique de 1000, 500 et 100 Gauss.**



**Figure 0.2. EEDF pour un plasma d'argon pur à une pression de 1 mtorr et trois intensités de champ magnétique 100, 500 et 1000 Gauss.**

---

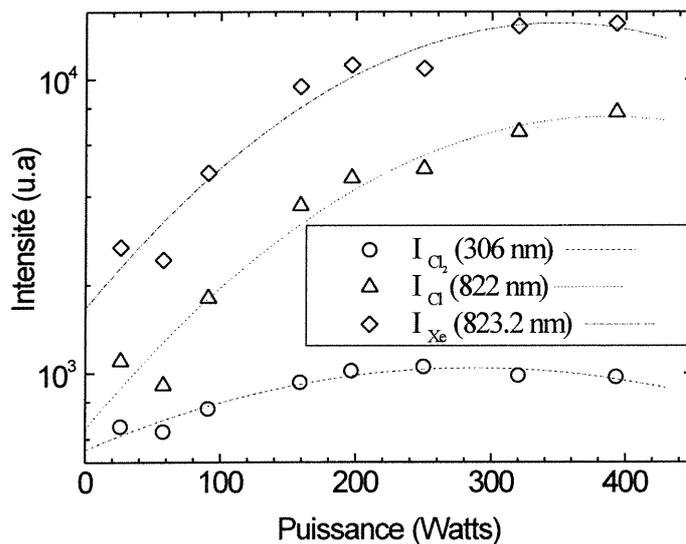
**Annexe B**

***Méthode d'auto-calibration pour le diagnostic  
d'actinométrie***

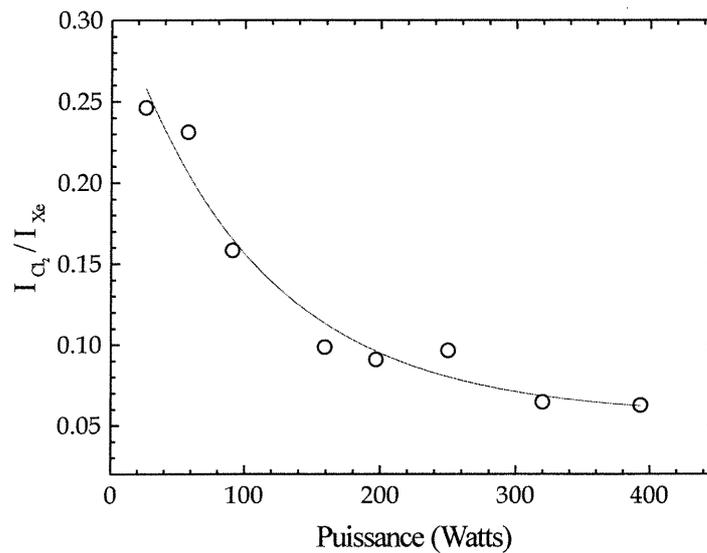
---

## Méthode d'auto-calibration pour le diagnostic d'actinométrie

Nous allons à travers ces expériences et la méthode de calcul détaillée ci-dessous, déterminer le facteur de calibration  $a_{Cl_2/Xe}$  que l'on définira ultérieurement, tracer le rapport des densités  $\frac{n_{Cl_2}}{n_{Xe}}$  puis déterminer le taux de dissociation de  $Cl_2$ . Pour un plasma de  $Cl_2$  pur à une certaine pression totale  $p_t$ , on fait varier la puissance de 50 à 400W. On dépouille les spectres afin d'obtenir les intensités  $I_{Cl_2}$ ,  $I_{Cl}$ ,  $I_{Xe}$  (Figure 0.3) ainsi que les rapports d'intensités  $\frac{I_{Cl_2}}{I_{Xe}}$  et  $\frac{I_{Cl}}{I_{Xe}}$  (Figure 0.4) pour les raies de  $Cl_2$  à 306nm, de  $Cl$  à 822nm et de  $Xe$  à 823.2nm avec comme niveau d'énergie supérieur entre 8.4eV et 9.2eV pour le  $Cl_2$  et de 9.8eV pour le  $Xe$ . On peut remarquer que l'écart entre les deux niveaux d'énergie supérieur est inférieur à 2eV, on peut donc appliquer la technique d'actinométrie.



**Figure 0.3. Intensité des raies de  $Cl_2$ ,  $Cl$  et  $Xe$  en fonction de la puissance pour un champ magnétique de 875 Gauss et une pression de 0.2 mTorr.**



**Figure 0.4. Rapport de  $I_{Cl_2}/I_{Xe}$  en fonction de la puissance à une pression de 0.2 mTorr et un champ magnétique de 875 Gauss.**

La suite du calcul se fait comme suit :

**1-** On calcule la pression partielle de  $Cl_2$  et de  $Xe$  ( $p_{Cl_2}$  et  $p_{Xe}$  respectivement) dans notre mélange :

$p_{Cl_2} = \frac{D_{Cl_2}}{D_t} \times p_t$	avec $D_{Cl_2}$ = débit de $Cl_2$ et $D_t = D_{Cl_2} + D_{Xe}$	1.
$p_{Xe} = \frac{D_{Xe}}{D_t} \times p_t$	avec $D_{Xe}$ = débit de $Xe$	2.

**2-** On détermine alors la densité de  $Cl_2$  et celle de  $Xe$  à la puissance 0W (plasma éteint) en utilisant la formule des gaz parfaits :  $p = nkT$

c'est à dire :	$p_{Cl_2} = n_{Cl_2}^0 \cdot k.T$	$\Rightarrow n_{Cl_2}^0 = \frac{p_{Cl_2}}{k.T}$	3.
	$p_{Xe} = n_{Xe}^0 \cdot k.T$	$\Rightarrow n_{Xe}^0 = \frac{p_{Xe}}{k.T}$	4.

avec  $n_{Cl_2}^0$ ,  $n_{Xe}^0$  les densités de  $Cl_2$  et de  $Xe$  à 0W,  $k = 1.38E^{-23} J.K^{-1}$  la constante de Boltzmann et  $T=300K$  la température du gaz.

**3- On trace le rapport  $\frac{I_{Cl_2}}{I_{Xe}}$  (mesuré expérimentalement) en fonction de la puissance et on**

extrapole de façon à déterminer sa valeur à la puissance 0W que l'on note  $\frac{I_{Cl_2}^0}{I_{Xe}^0}$ . De là, on peut

ainsi déterminer le facteur de calibration  $a_{Cl_2/Xe}$  que l'on tire de la formule d'actinométrie:

$$n_{Cl_2} = a_{Cl_2/Xe} \cdot n_{Xe} \cdot \left( \frac{I_{Cl_2}}{I_{Xe}} \right) \quad 5.$$

$$\Leftrightarrow a_{Cl_2/Xe} = \frac{n_{Cl_2}^0}{n_{Xe}^0} \cdot \frac{1}{\left( \frac{I_{Cl_2}^0}{I_{Xe}^0} \right)} \quad 6.$$

car celui-ci est constant quand la puissance varie.

**4- On détermine et on trace alors le rapport  $\frac{n_{Cl_2}}{n_{Xe}}$  en fonction de la puissance, sachant que :**

$$\frac{n_{Cl_2}}{n_{Xe}} = a_{Cl_2/Xe} \cdot \left( \frac{I_{Cl_2}}{I_{Xe}} \right) \quad 7.$$

**5- On peut finalement déterminer le rapport  $\frac{n_{Cl}}{n_{Cl_2}}$  et le taux de dissociation. En effet, on a les**

équations suivantes :

$$n_{Cl_2} + \frac{1}{2} n_{Cl} = n_{Cl_2}^0 \quad 8.$$

## Conclusion générale

---

$$\Leftrightarrow \frac{n_{Cl}}{n_{Cl_2}} = 2 \cdot \left( \frac{n_{Cl_2}^0}{n_{Cl_2}} - 1 \right) \text{ et on obtient ainsi } n_{Cl} = 2 \cdot (n_{Cl_2}^0 - n_{Cl_2})$$

La densité de  $Cl_2$  se détermine à partir de l'équation suivante :

$$n_{Cl_2} = \left( \frac{n_{Cl_2}}{n_{Xe}} \right) \cdot n_{Xe}^0 \quad 9.$$

On a alors le taux de dissociation  $\tau_d$  qui s'exprime de la manière suivante :

$$\tau_d = \frac{n_{Cl}}{2 \cdot n_{Cl_2}^0} = 1 - \frac{n_{Cl_2}}{n_{Cl_2}^0} \quad 10.$$



---

**ANNEXE C**

**Discretisation de l'équation de Poisson**

---

## Discretisation de l'équation de Poisson

Nous considérons une géométrie cylindrique, pour cela définissons le terme de divergence de l'équation de Poisson :

On a la divergence du champ électrique :

$$\iiint_V \operatorname{div} E \, dv = \oiint_S \vec{E} \cdot \vec{r} \, dS \quad (\text{Théorème de Green}) \quad 11.$$

soit

$$\operatorname{div} E = \frac{1}{\Delta V} \oiint_S \vec{E} \cdot \vec{r} \, dS \quad 12.$$

On a le volume défini par :

$$\begin{aligned} \Delta V &= \Pi(R_{j+1/2}^2 - R_{j-1/2}^2) \Delta x \\ \oiint_S \vec{E} \cdot \vec{r} \, dS &= 2\Pi r_{j+1/2} \Delta x E_{i,j+1/2} - 2\Pi r_{j-1/2} \Delta x E_{i,j-1/2} + \Pi(r_{j+1/2}^2 - r_{j-1/2}^2) E_{i+1/2,j} - \Pi(r_{j+1/2}^2 - r_{j-1/2}^2) E_{i-1/2,j} \end{aligned} \quad 13.$$

soit

$$\operatorname{div} E = \frac{2r_{j+1/2}}{(r_{j+1/2}^2 - r_{j-1/2}^2)} E_{i,j+1/2} - \frac{2r_{j-1/2}}{(r_{j+1/2}^2 - r_{j-1/2}^2)} E_{i,j-1/2} + \frac{E_{i+1/2,j}}{\Delta x} - \frac{E_{i-1/2,j}}{\Delta x} \quad 14.$$

Les pas en position sont définis comme suit :

$$\begin{aligned}
 dx(i) &= x(i+1) - x(i) \\
 dy(j) &= y(j+1) - y(j) \\
 dx_d(i) &= \frac{1}{2}(dx(i) + dx(i-1)) \\
 dy_d(j) &= \frac{1}{2}(dy(j) + dy(j-1))
 \end{aligned}
 \tag{15}$$

et

$$\begin{aligned}
 r_{j-1/2} &= y(j) - \frac{dy(j)}{2} \\
 r_{j+1/2} &= y(j) + \frac{dy(j)}{2}
 \end{aligned}
 \tag{16}$$

De plus, on définit les gradients spatiaux du champ électrique suivant :

$$\begin{aligned}
 E_{i,j+1/2} &= \frac{V_{i,j+1} - V_{i,j}}{dy(j)} \\
 E_{i,j-1/2} &= \frac{V_{i,j} - V_{i,j-1}}{dy(j-1)}
 \end{aligned}
 \tag{17}$$

Nous procédons de même pour la dimension selon x.

Nous discrétisons alors selon le schéma :

$$\text{div}E = a_{i,j}V_{i+1,j} + b_{i,j}V_{i-1,j} + c_{i,j}V_{i,j+1} + d_{i,j}V_{i,j-1} + e_{i,j}V_{i,j}
 \tag{18}$$

Soit les coefficients pour la matrice tridiagonale de l'équation de Poisson :

$$\begin{aligned}
 a_{i,j} &= \frac{1}{\frac{dx(i)}{dx(i)}} \\
 b_{i,j} &= \frac{1}{\frac{dx(i-1)}{dx(i)}} \\
 c_{i,j} &= \frac{[1 + \frac{dy(j)}{2y(j)}]}{[1 + \frac{(dy(j) - dy(j-1))}{4y(j)}] dyd(j)} * \frac{1}{dy(j)} \\
 d_{i,j} &= \frac{[1 + \frac{dy(j-1)}{2y(j)}]}{[1 + \frac{(dy(j) - dy(j-1))}{4y(j)}] dyd(j)} * \frac{1}{dy(j-1)} \\
 e_{i,j} &= -a_{i,j} - b_{i,j} - c_{i,j} - d_{i,j}
 \end{aligned}
 \tag{19}$$

Nous devons de plus définir l'expression des coefficients de cette matrice dans le cas de la singularité en  $r=0$  ( $j=1$ ).

Nous avons l'expression du volume en  $r=0, j=1$  :

$$\Delta V = \Pi dyd^2(j) dx(i)
 \tag{20}$$

avec  $dxd(j) = \frac{1}{2} dy(1)$  pour  $r=0, j=1$ .

Soit le terme de divergence pour l'équation de Poisson :

$$\oint_s \vec{E} \cdot \vec{r} \cdot dS = 2\Pi r^2_{j+1/2} \Delta x E_{i,j+1/2} + \Pi r^2_{1/2} E_{i+1/2,j} + \Pi r^2_{1/2} E_{i-1/2,j}
 \tag{21}$$

soit les coefficients pour la matrice tridiagonale :

$$a_{i,j} = \frac{1}{dx(i)dx(i)}$$

$$b_{i,j} = \frac{1}{dx(i-1)dx(i)}$$

$$c_{i,j} = \frac{2}{dy(j)dy(j)}$$

$$d_{i,j} = 0.$$

$$e_{i,j} = -a_{i,j} - b_{i,j} - c_{i,j} - d_{i,j}$$

22.