



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



UNIVERSITÉ FRÈRES MENTOURI CONSTANTINE 1
Faculté des Sciences de la Technologie
DÉPARTEMENT D'ELECTRONIQUE
Laboratoire Microsystèmes et Instrumentation

N° d'ordre :
Série :

THÈSE

Présentée pour obtenir le diplôme de Doctorat 3^{ème} cycle
En **Électronique**

Option : **Micro et Nanotechnologies**

Par

SIARI KHADIDJA

***Etude et simulation d'une décharge plasma à
couplage inductif***

Soutenue le : 25/07/2021

Devant le jury :

Président : Mr Azzeddine BELLEL

Prof. Université frères Mentouri, Constantine 1

Rapporteur : Mme Saida REBIAI

Prof. Université frères Mentouri, Constantine 1

Examineurs :

Mme Farida HOBAR

Prof. Université Larbi Ben Mhidi, Oum el Bouaghi

Mr. Ahmed KAHLOUCHE

M.C.A. Université Mohamed Boudiaf de M'sila

Mme Amel LABBANI

M.C.A. Université Frères Mentouri Constantine 1

Invitée :

Mme Zehira ZIARI

Prof. Université frères Mentouri, Constantine 1

REMERCIEMENTS

Je remercie '**ALLAH**' le tout puissant qui m'a éclairé le bon chemin et m'a donné la force pour le suivre, De par sa grâce, j'ai commencé et terminé cette thèse avec toutes les épreuves et difficultés traversées dans la quête du savoir.

Tout d'abord je remercie sincèrement Mme **Saïda REBIAI**, professeur à l'Université frères Mentouri, Constantine 1, ma directrice de thèse, qui a su encadrer et diriger ce travail avec beaucoup de compétences, de sympathie, de patience et de pédagogie.

Je tiens à exprimer mes sincères remerciements à monsieur **Salah SAHLI**, professeur à l'Université frères Mentouri, Constantine 1, directeur du Laboratoire L.M.I. pour m'avoir accueillie dans son laboratoire.

Je voudrais remercier également monsieur **Azzeddine BELLEL**, professeur à l'Université Frères Mentouri, Constantine 1, pour l'intérêt qu'il a témoigné en acceptant de présider mon jury.

Je remercie les membres de mon jury de thèse pour le temps qu'ils m'ont consacré

J'adresse mes sincères remerciements à madame **Farida HOBAR**, Professeur à l'université Larbi Ben M'hidi, Oum El Bouaghi et madame **Amal LABBANI**, MCA à l'université Frères Mentouri, Constantine 1, pour avoir accepté d'examiner ce travail de thèse. Je leur suis particulièrement reconnaissant de l'intérêt qu'elles lui ont accordé.

J'exprime mes sincères remerciements à Monsieur **Ahmed KAHLOUCHE** MCA à l'université Mohamed Boudiaf de M'Sila, pour m'avoir fait l'honneur d'examiner ce travail.

J'exprime toute ma gratitude à mademoiselle **Zehira ZIARI**, Professeur à

l'université Frères Mentouri, Constantine 1, pour ses encouragements et l'intérêt qu'elle a porté à ce travail.

Je voudrais remercier aussi, tous mes collègues, amis pour leurs encouragements et leurs aides. Mes remerciements vont particulièrement à **Mme H. BAHOUH, Dr. F. BOUANAKA, Mme A. BERKANE et Mme R. ABIDAT.**

A mes parents

A mon mari et à ma chère fille DANA

A mes sœurs et mon frère

A toute ma famille

Je dédie ce travail.

SOMMAIRE

Introduction Générale.....	1
Références bibliographiques de l'introduction.....	5
Chapitre I : Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.	
I-1 Introduction.....	7
I-2 Définition d'un plasma.....	7
I-3 Paramètres de base d'un plasma.....	9
I-3-1 Degré d'ionisation.....	9
I-3-2 Oscillation plasma.....	10
I-3-3 La longueur de debye.....	11
I-3-4 Le libre parcours moyen.....	13
I-3-5 La quasi neutralité macroscopique.....	13
I-3-6 La fonction de distribution	14
I-4 Différents types des collisions.....	16
I-4-1 Collisions élastiques.....	17
I-4-2 Collisions inélastiques.....	17
I-4-2-a Collision inélastique conservative	18
I-4-2-b Collision de transfert de charge.....	18
I-5 Classification des plasmas.....	21
I-5-1 classement des plasmas selon la température.....	22
I-5-1-a Les plasmas chauds	22
I-5-1-b Les plasmas froids	22
I-5-2 Selon la pression du gaz.....	24
I-5-3 Selon la fréquence d'excitation.....	25
I-5-3-a Plasma produit par une décharge continue (DC)	25
I-5-3-b Plasma produit par une décharge en régime alternatif (AC).....	27
I-6 Décharges plasma radiofréquences RF.....	28
I-6-1 Les principales applications des décharges RF.....	29
I-6-2 Les réacteurs RF.....	29
I-6-3 Régime de fonctionnement dans les plasmas CCP.....	30

I-6-4 Régime de fonctionnement dans les plasmas ICP.....	31
I-7 Le dépôt de films de silicium	35
I-7-1 Les techniques de dépôt des couches minces de silicium.....	35
I-7-1-a l'épitaxie.....	36
I-7-1-b Dépôt physique en phase vapeur (PVD)	36
I-7-1-c Dépôt chimique en phase vapeur (CVD)	36
I-7-2 Procédé de dépôt par PECVD	37
1-7-2-a Influence des paramètres de la décharge sur la croissance du film de silicium.....	39
i- Effet de la puissance de la décharge.....	39
ii- Influence de la pression du gaz.....	39
iii- Influence du débit de silane.....	40
I-7-2-b Rôle de l'hydrogène additif au silane.....	40
I-7-2-c Vitesse de croissance des films déposés.....	40
I-8 Conclusion.....	41
Références bibliographiques du chapitre I.....	42

Chapitre II : [Modèle traité et système d'équations \(plasma, écoulement et dépôt de couches de silicium \(réactions chimiques\)\).](#)

II-1 Introduction	49
II-2 Modélisation numérique des plasmas.....	49
II-2-1 Modèle particulière.....	50
II-2-2 Modèles hybrides.....	50
II-2-3 Modèle fluide.....	51
II-2-3-a Approximation du champ local (ACL)	52
II-2-3-b Approximation de l'énergie locale (AEL)	52
II-3 Systèmes d'équations.....	53
II-3-1 Équation de continuité.....	53
II-3-2 Équation de conservation de la quantité de mouvement.....	54
II-3-3 Équation de conservation de l'énergie.....	55
II-3-4 Équation de Poisson.....	55
II-3-5 Equations de Maxwell.....	55

II-3-6 Équations de Navier-Stokes.....	58
II.3-6-a Équation de conservation de masse ou équation de continuité.....	58
II.3-6-b Équation de Conservation de la Quantité de Mouvement.....	58
II-3-7 Dynamique des ions négatifs.....	59
II-4 Méthodes de résolution.....	62
II-4-1 La méthode des différences finies (MDF)	63
II-4-2 La méthode des volumes finis (MVF).....	63
II-4-3 La méthode des éléments finis (MEF)	63
II-5 Logiciel de simulation COMSOL multiphysiques.....	64
II-6 régimes de fonctionnement d'une décharge inductive	65
II-6-1 Le mode capacitif (E)	66
II-6-2 Le mode inductif (H)	66
II-6-3 La transition E-H.....	67
II-7 Mécanisme de croissance du silicium amorphe hydrogéné.....	67
II-7-1 L'argon (Ar)	68
II-7-2 Le Silane (SiH ₄)	69
II-7-3 L'hydrogène (H ₂)	69
II.8 Conclusion.....	69
Références bibliographiques du chapitre II.....	71

Chapitre III : Modélisation d'un plasma à couplage inductif pour un mélange argon oxygène à basse pression.

III-1 Introduction.....	78
III-2 Présentation du modèle de la décharge ICP du mélange O ₂ /Ar.....	79
III-2-1 Critère de convergence.....	80
III-2-2 Conditions initiales et aux limites.....	80
III-2-3 les paramètres standards de la décharge.....	81
III-2-4 Chimie du plasma.....	81
III-3 Résultats et discussions.....	82
III-3-1 Influence des paramètres opératoires sur la décharge inductive....	87
III-3-1-a Influence du débit d'oxygène.	88

III-3-1-b Influence de la puissance appliquée.....	91
III-3-1-c Influence de la pression.....	96
III-4 Conclusion.....	99
Références bibliographiques du chapitre III.....	100

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

IV-1 Introduction.....	102
IV-2 Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD.....	103
IV-2-1 Modèle numérique.....	103
IV-2-2 Conditions aux limites.....	104
IV-2-3 Chimie du plasma.....	105
IV-2-4 les paramètres standards de la décharge.....	106
IV-2-5 Critère de convergence.....	107
IV-2-6 Présentation du modèle de décharge inductif	107
IV-3 Résultats et discussions.....	108
IV-3-1 Les résultats de la simulation de la décharge.....	108
IV-3-2 Taux de réaction.....	112
IV-3-3 Influence des paramètres de la décharge sur les propriétés du plasma.....	113
IV-3-3-a Influence de la puissance appliquée.....	114
IV-3-3-b Influence de la pression.....	116
IV-3-4 Effet des paramètres de décharge sur le taux de dépôt du film de silicium.....	119
IV-3-4-a Influence de la puissance appliquée et de la pression.....	119
IV-3-4-b Influence de l'hydrogène additif.....	121
IV-4 Conclusions.....	122
Références bibliographiques du chapitre IV.....	123
Conclusion Générale.....	127

Introduction Générale

INTRODUCTION GENERALE

INTRODUCTION GENERALE

Environ 99% de la matière observable dans l'univers se trouve sous la forme de plasma naturel (étoiles, ionosphère, matière interstellaire,...). Le plasma est un gaz ionisé, composé d'ions, d'électrons, de neutres (molécules ou atomes) qui peuvent être excités et de photons. «Ioniser» signifie enlever ou ajouter des électrons à un atome ou une molécule qui en perdant ou gagnant des charges n'est plus électriquement neutre. On parle alors d'ion négatif ou positif. Si on chauffe un élément de la matière à son état solide, à mesure que la température augmente, les molécules changent de configuration, s'éloignent et deviennent plus énergétiques. Ceci entraîne une transformation de la matière dans la séquence: état solide, état liquide, état gazeux et enfin état plasma, ce qui justifie l'appellation du plasma «quatrième état de la matière» [1-2]. L'ensemble des concepts, des méthodes et résultats propres à l'étude de cet état de la matière constitue la physique des plasmas. Les plasmas froids sont généralement produits par des décharges électriques, ou encore dans les milieux industriels comme les torches et les réacteurs. L'intérêt porté à l'étude des plasmas froids est dû à son importante application dans différents domaines de la technologie telle que la gravure de puces semi-conductrices avancées, le revêtement ou traitement des surfaces, le dépôt de couches minces,...etc. [3-5].

Les décharges radiofréquences (RF), de quelques dizaines de KHz à une centaine de MHz, sont souvent utilisées dans les réacteurs de dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma (PECVD) à cause de l'avantage qu'elle est de créer des espèces chimiques actives dans un gaz à basse température. Elles peuvent être couplées de manière capacitive (CCP) ou inductive (ICP). Le champ électromagnétique dans les décharges RF-ICP est induit par une bobine inductive. La décharge ICP peut être considérée comme un transformateur augmentant la tension et le courant, ce qui lui permet d'atteindre un courant élevé et une forte densité électronique [6].

Les plasmas à couplage inductif sont des sources fonctionnant à basse pression (inférieure à 50 mTorr) pour améliorer l'uniformité des couches minces, et réduire la contamination, et des densités de plasma élevées (supérieures à 10^{12} cm⁻³) pour produire des flux ioniques élevés à la surface du substrat résultant en des taux d'attaque élevés et des énergies de bombardement modérées (1-200 eV) [7]. En

INTRODUCTION GENERALE

général, de nombreux gaz réactifs et inertes sont largement utilisés dans la formation du plasma. Par exemple, l'argon est un composant majeur du traitement par plasma. Des décharges d'oxygène sont appliquées dans la gravure de la résine photosensible et la croissance des films minces d'oxydes[8]. Les décharges RF dans le mélange argon - oxygène avec couplage inductif trouvent clairement un intérêt croissant [8-10]. Les gaz électronégatifs tels que CF_4 , SF_6 , Cl_2 et O_2 sont généralement utilisés dans les processus de gravure et de dépôt [10, 11].

La croissance de couches minces à partir des techniques PECVD présente un grand intérêt pour de nombreuses applications. Le silicium amorphe est peu coûteux et peut être déposé sur de grandes surfaces de différents substrats tels que des verres, des métaux, des polymères et des céramiques [6]. Les films de silicium amorphe sont déposés avec des mélanges d'argon, d'hydrogène et de silane [12-13].

Par ailleurs, l'étude des plasmas tient une part importante dans le domaine de la modélisation numérique. Elle a nécessité des efforts importants dans le domaine de la simulation et bénéficie de la puissance des calculateurs actuels. La simulation numérique s'avère être un complément indispensable à l'analyse expérimentale. Elle permet d'étudier les différents types de décharges plasmas et de prédire leurs comportements pour des conditions données et de guider des études expérimentales afin de trouver des conditions optimales de fonctionnement du procédé plasma envisagé.

Le travail présenté dans cette thèse rentre dans le cadre des travaux sur la modélisation des phénomènes physiques qui interviennent dans les décharges radiofréquences à couplage inductif générées à basse pression. L'objectif est d'établir des modèles de simulation pour ce type de décharges plasma, créées dans un réacteur de type cellule de référence GEC « Gaseous Electronics Conference ».

Les modèles de la décharge sont élaborés à partir de la résolution des équations de Boltzmann. Il s'agit de l'équation de transport, l'équation de la quantité de mouvement et l'équation de l'énergie électronique. Le système est couplé avec l'équation de Poisson. Le logiciel de commerce COMSOL multiphysics est utilisé à cette fin. Ce dernier permet, grâce au module « plasma » la résolution des équations aux dérivées

INTRODUCTION GENERALE

partielles qui régissent le comportement de la décharge, par la méthode des éléments finis. De plus, avec le couplage à d'autres modules (dynamique des fluides et/ou thermique, par exemple), il permet de tenir compte des différents phénomènes physiques qui interviennent lors de la décharge ICP. Les deux modèles présentés dans ce manuscrit concernent la simulation de décharges plasmas RF créées dans un réacteur GEC-ICP à basse pression, dans le cas d'un mélange Ar/O₂ puis dans le cas de dépôt de couches de silicium hydrogéné à partir du mélange SiH₄/Ar/H₂

Le manuscrit de cette thèse s'organise en quatre chapitres :

Dans le premier chapitre, nous ferons une synthèse bibliographique sur les notions fondamentales des plasmas à basse pression, leurs propriétés physiques et les décharges plasmas radiofréquences. Par la suite, nous présenterons les différents types de générateurs de dépôts de couches minces, ainsi que leurs domaines d'applications. Nous achèverons le chapitre par un rappel succinct des différentes techniques de dépôts de couches de silicium.

Le deuxième chapitre est dédié à la modélisation des plasmas. Nous exposerons, dans un premier temps, les trois modèles physiques utilisés pour décrire la décharge électrique dans le plasma. Par la suite nous présenterons le système d'équations du modèle fluide qui régissent le fonctionnement de la décharge électrique dans le cas de plasmas faiblement ionisés ainsi que les approximations appliquées pour simplifier ces équations ainsi que les différentes méthodes de résolution. Nous terminerons le chapitre par un bref rappel des étapes de dépôt du silicium amorphe hydrogéné par PECVD.

Le troisième chapitre sera consacré aux résultats de la simulation d'une décharge plasma à couplage inductif d'un mélange argon-oxygène dans un réacteur GEC. La décharge simulée est créée avec une fréquence RF de 13,56 MHz, une pression de 20 mTorr et une température du gaz de 500 K. Nous présenterons les résultats en termes de variation spatiale des densités électronique et ionique et de la température des électrons au centre de la décharge. L'étude faite sur l'effet du débit d'oxygène, la puissance appliquée et la pression du gaz sur l'évolution de la densité des charges, le rapport de la densité des ions négatifs à la densité du plasma, la température électronique, le potentiel électrique et l'électronégativité du plasma créera aussi

INTRODUCTION GENERALE

détaillée dans ce chapitre.

Le quatrième chapitre sera dédié aux résultats de la simulation du dépôt chimique en phase vapeur à couplage inductif assisté par plasma (ICP-CVD) de couches de silicium hydrogéné à partir d'un gaz composé d'un mélange de silane, d'argon et d'hydrogène à une fréquence radio de 13,56 MHz. Le réacteur considéré dans la simulation est de type GEC. Les résultats de la simulation concernent, d'une part, les propriétés du plasma tels que la densité électronique et la température ainsi que le potentiel électrique au centre de la décharge lors du dépôt de films de silicium, et, d'autre part, le taux de croissance des films déposés. L'étude des effets des paramètres externes, tels que la pression, la puissance appliquée et la dilution d'hydrogène, sur la vitesse de croissance des films de silicium déposés par ICP-CVD sera, par la suite, présentée.

Enfin, nous terminerons notre manuscrit de thèse par une conclusion générale qui synthétisera les résultats obtenus.

INTRODUCTION GENERALE

Bibliographie de l'introduction générale

- [1] Francis F. ChenJane P. Chang, «Principales of plasma processing», thèse de Doctorat de l'universite de California, Los Angeles, 2002.
- [2] Tsun-Hsu Chang, «Introduction to Plasma Physics», National Tsing Hua de l'universite, Taiwan. 2012.
- [3] Paul M. Bellan, « Fundamentals of Plasma Physics», Cambridge University Press, 2006.
- [4] Fridman, A. Alexande, Kennedy, A.Lawrence, «Plasma Physics and Engineering», Taylor & Francis Routledge, 2004.
- [5] J-L. DELACROIX, « physique des plasmas », Inter Edition, ETCNRS Edition p 5, 1994.
- [6] Alexander Fridman, «Plasma Chemistry», Cambridge University Press, 2008.
- [7] Debnath Raha, Debajyoti Das, «Nanocrystalline silicon thin films prepared by low pressure planar inductively coupled plasma», Applied Surface Science, 249–257, 2013.
- [8] Young-Kwang Lee, Ju-Hwan Ku and Chin-Wook Chung, « Measurements of the total energy lost per electron–ion pair lost in low-pressure inductive argon, helium, oxygen and nitrogen discharge », Plasma Sources Sci. Technol. 20,015005, 2011.
- [9] Rainer Hippler, Jana Kredl, VasileVartolomei,«Ion energy distribution of an inductively coupled radiofrequency discharge in argon and oxygen», Vacuum 83 , 732–737, 2009.
- [10] S. H. Lee, F. Iza, and J. K. Leeb, «Particle-in-cell Monte Carlo and fluid Simulations of argon-oxygen plasma: Comparisons with experiments and validation», physics of plasmas 13, 057102, 2006.

INTRODUCTION GENERALE

[11] Chang Seok Oh, Tai Hong Kim, Kee Young Lim and Jeon Wook Yang, «GaN etch enhancement in inductively coupled BCl_3 plasma with the addition of N_2 and SF_6 gas», *Semicond.Sci. Technol.*19, 172–175, 2004.

[12] KEBAILI Hadja Oum Keltoum, « Contribution à l'étude par la simulation numérique de Dynamique Moléculaire de la croissance des couches minces par procédé PECVD», Mémoire Présenté pour l'obtention du diplôme de MAGISTER, universite Kasdi Merbah – Ouargla, 2013.

[13] Amanda Thouvenin, « Dépôt et caractérisation de couches minces de $\text{SiC}_x\text{Ny}_y\text{H}_z$ par CVD assistée par plasma micro-ondes ECR avec précurseurs organosiliciés», thèse de doctorat de l'université de Lorraine, 2016.

Chapitre I

**Notions fondamentales
sur les décharges
plasma et les
générateurs de
dépôts de couches
minces**

I-1 Introduction

Le scientifique américain Irving Langmuir a supposé qu'un gaz ionisé, composé d'électrons énergétiques, d'ions et de molécules neutres, peut être considéré comme un milieu fluide pour lequel il a proposé le terme plasma [1]. Les plasmas se produisent naturellement, mais peuvent également être d'origine humaine. La génération et la stabilisation de plasma en laboratoire et dans les dispositifs industriels ne sont pas faciles, mais très prometteuses pour de nombreuses applications modernes. Le procédé plasma se situe en amont d'un vaste champ d'applications technologiques, par exemple dans les domaines des hautes technologies, plus de la moitié des opérations de fabrication des processeurs et mémoires sont actuellement effectuées dans des réacteurs plasmas. Particulièrement, les plasmas inductifs sont très utilisés dans les domaines de la spectroscopie analytique (ICP-SM : spectrométrie de masse avec plasma à couplage inductif), le dépôt de couches minces, le traitement de surfaces ou la gravure dans les procédés de transfert des motifs, à basses pressions et hautes densités, essentielle en microélectronique et optoélectronique. Ils sont aussi utilisés pour la fabrication des poudres nanométriques pour les fibres optiques ou pour la synthèse de silice de haute pureté. Dans ce chapitre, nous faisons une brève présentation sur les décharges plasmas à basse pression et leurs propriétés physiques, nous décrirons particulièrement les décharges radiofréquences à couplage inductif. Par la suite, nous donnerons quelques rappels sur le procédé de dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma à couplage inductif (ICP-CVD) avec son application dans le cas de dépôt de couches minces de silicium.

I-2 Définition d'un plasma

Le terme plasma est souvent désigné comme étant le quatrième état de la matière. Lorsque la température augmente, les molécules deviennent plus énergétiques et se transforment dans la séquence: solide, liquide, gaz et plasma. La Figure I-1 est une représentation schématique des différents états de la matière [1-2]. Un plasma se caractérise par un mélange d'électrons (de densité n_e), d'ions (de densité n_i) et de particules neutres (de densité n) excités ou pas, qui se déplacent dans des directions aléatoires et qui, en moyenne, est électriquement neutre, en plus de photons qui sont produits de la désexcitation des particules. De plus, les plasmas sont électriquement

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

conducteurs en raison de la présence de ces porteurs libres et peuvent atteindre des conductivités électriques plus grandes que celles de métaux tels que l'or et le cuivre [2].

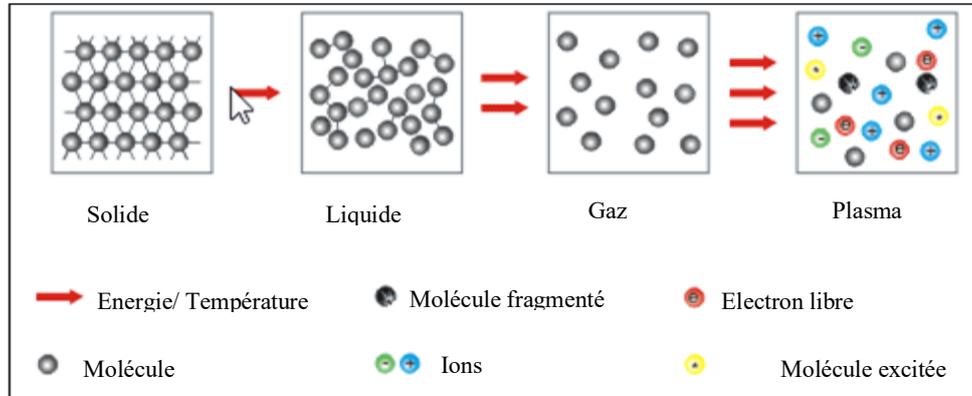


Figure I-1 : Représentation schématique des différents états de la matière [2].

Le plasma représente la majorité de l'univers: la couronne solaire, le vent solaire, la nébuleuse et l'ionosphère de la Terre sont tous des plasmas. Le phénomène de plasma naturel le plus connu dans l'atmosphère terrestre est la foudre.

Les plasmas naturels et artificiels (générés dans des décharges de gaz) se produisent dans une large gamme de pression, température et densité d'électrons. La figure I-2 présente un résumé des différents plasmas, caractérisés par leurs densités et leurs températures. Les températures des plasmas artificiels vont de légèrement supérieures à la température ambiante à des températures comparables à l'intérieur des étoiles, et la densité des électrons supérieure à 10^8 cm^{-3} . Cependant, la plupart des plasmas d'importance pratique ont une température électronique comprise entre 1 et 20 eV et une densité électronique comprise entre 10^6 et 10^{18} cm^{-3} [3].

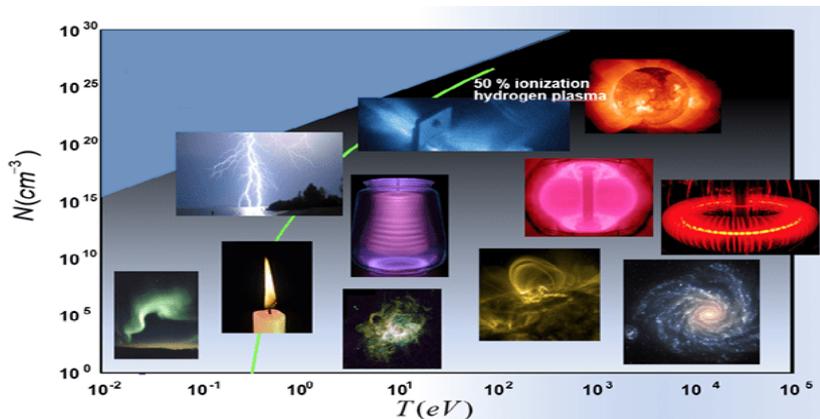


Figure I-2 : Différents plasmas trouvés dans la nature et artificiels [3].

I-3 Paramètres de base d'un plasma

La décharge dans les plasmas de laboratoire, plus particulièrement dans les procédés plasmas tels que les dépôts et la gravure est produite dans une enceinte sous vide, avec l'utilisation d'un système de pompage pour contrôler la basse pression (5...150 Pa, sachant que 1 Torr = 133.32 Pa) [4] avec le mélange gazeux utilisé. Les plasmas froids sont des gaz faiblement ionisés, ils contiennent des charges négatives (électrons et ions négatifs), des charges positives et des particules neutres. Ils sont caractérisés par des paramètres macroscopiques: degré d'ionisation, oscillation plasma, longueur de debye, le libre parcours moyen, quasi neutralité macroscopique et fonction de distribution [1-5].

Une brève définition de ces paramètres est donnée dans ce paragraphe.

I-3-1 Degré d'ionisation

Appelé aussi taux d'ionisation, le degré d'ionisation est défini comme étant le rapport entre le nombre d'électrons libres et le nombre de particules totales dans le plasma :

$$\alpha = \frac{n_e}{n_e + n} \quad (\text{I-1})$$

Où n_e est la densité d'électrons et n la densité des neutres.

On parle de plasmas faiblement ionisés lorsque $\alpha \leq 10^{-4}$ (les principales interactions sont de type collisions électron-neutre) comme dans le cas des plasmas industriels ou de l'ionosphère et, de plasmas partiellement, voire fortement, ionisés pour $\alpha > 10^{-4}$ lorsque les interactions coulombiennes ne sont plus négligeables (collision électron-électron ou électron-ion) [6-8].

Le degré d'ionisation pour les plasmas de décharge utilisés dans les laboratoires est compris entre 10^{-6} et 10^{-2} [9]. Les plasmas utilisés pour les dépôts par PECVD sont très faiblement ionisés ($\alpha \leq 10^{-4}$), le nombre de neutres étant très supérieur à celui des espèces chargées (ions, électrons) [5,8].

I-3-2 Oscillation plasma

L'oscillation du plasma, en physique est un mouvement organisé d'électrons ou d'ions dans le gaz plasmagène. Si on envoie une perturbation extérieure dans un plasma électriquement neutre, les électrons, plus légers et mobiles, vont se déplacer et une force électrostatique intense apparaît. Les électrons tendent à revenir à leur équilibre en oscillant autour des ions, dans le but de rétablir la quasi-neutralité. Ce phénomène est appelé « oscillation plasma ». Ainsi, le mouvement des électrons va s'accompagner d'oscillations autour de la position d'équilibre et la pulsation ω_p de ces oscillations plasma est donnée par la relation : [10].

$$\omega_p = \left(\frac{ne^2}{\epsilon_0 m_e} \right)^{1/2} \quad (\text{I-2})$$

Avec ω_p (rad/s) : la pulsation plasma électronique.

ϵ_0 : la permittivité du vide

m_e : la masse de l'électron

De cette expression, on déduit celle de la fréquence plasma électronique :

$$f_{pe} = \frac{\omega_{pe}}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{e^2 n_e}{\epsilon_0 m_e} \right)^{1/2} \approx 8980 \sqrt{n_e} \quad (\text{I-3})$$

Si maintenant nous considérons la masse finie des ions (particules lourdes), ils vont aussi osciller à une fréquence caractéristique appelée fréquence plasma ionique, donnée par :

$$f_{pi} = \frac{\omega_{pi}}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{e^2 n_i}{\epsilon_0 m_i} \right)^{1/2} \quad (\text{I-4})$$

Avec ω_{pi} (rad/s) la pulsation plasma ionique, n_i (cm^{-3}) la densité ionique et m_i la masse ionique.

La fréquence plasma est alors la somme des fréquences plasmas électronique et ionique :

$$f_p = \frac{1}{2\pi} (\omega_{pe} + \omega_{pi}) \quad (\text{I-5})$$

Cependant, comme la masse ionique est beaucoup plus importante que celle des électrons (plus de 2000 fois), la dynamique des électrons est donc la plus importante puisqu'ils sont bien plus rapides que les ions et leur fréquence plasma est à l'échelle de temps la plus fondamentale en physique des plasmas [11]

I-3-3 La longueur de Debye

La neutralité électrique de plasma est vraie de façon macroscopique. La protection d'un champ électrique externe de l'intérieur d'un plasma peut être considérée comme résultant d'une conductivité élevée du plasma. Lorsque le champ électrique d'une particule interagit avec des charges électriques des particules avoisinantes, le potentiel des espèces en interaction est écranté. La longueur propre après laquelle le potentiel d'une particule est « masquée » par les charges des particules autour est appelée la longueur de Debye λ_D [4,12], c'est une longueur d'écrantage ou longueur à partir de laquelle le champ électrique n'est plus ressenti.

Considérons une charge électrique positive immergée dans un plasma quasi-neutre. Cette charge créera un potentiel électrique dont l'expression dans le vide s'écrit [12-13]

$$V_0 = \frac{q}{4\pi\epsilon_0 r} \quad (\text{I-6})$$

Ce potentiel est affecté par les électrons et les ions du plasma et son expression est solution de l'équation de Poisson :

$$\Delta V = -\frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (\text{I-7})$$

Où r est la distance de séparation

ρ est la densité de charge du plasma donnée par :

$$\rho = e(n_i - n_e) + q\delta(r) \quad (\text{I-8})$$

$\delta(r)$ est la fonction de Dirac indiquant que la charge q est ponctuelle.

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

En supposant que les électrons sont en équilibre thermodynamique à la température T_e , alors leur densité est donnée par :

$$n_e = n_{e0} \exp\left(\frac{eV}{k_B T_e}\right) \quad (\text{I-9})$$

Où n_{e0} est la densité électronique dans le volume du plasma (loin de la perturbation). Dans l'approximation des petites perturbations ($eV \ll k_B T_e$) l'équation de Poisson prend la forme :

$$V(r) = \frac{q}{4\pi\epsilon_0 r} \exp\left(-\frac{r}{\lambda_D}\right) = V_0 \exp\left(-\frac{r}{\lambda_D}\right) \quad (\text{I-10})$$

Avec :

$$\lambda_D = \left(\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{n_{e0} e^2}\right)^{1/2} \quad (\text{I-11})$$

L'équation (I.11) montre que le plasma modifie le potentiel (V_0) d'une charge libre en provoquant son atténuation sur une distance caractéristique λ_D .

Le paramètre λ_D peut varier de quelques microns dans les plasmas de décharges (ou plasma denses) à plusieurs mètres dans les plasmas spatiaux [14].

Pour un plasma électronégatif, tel celui de la décharge à mélange oxygène/argon considérée dans notre étude, où la densité d'ions négatifs est non nulle, la longueur de Debye s'écrit :

$$\lambda_{D-} = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{n_{e0} e^2}} \cdot \sqrt{\frac{1+\alpha_n}{1+\gamma\alpha_n}} = \lambda_D \cdot \sqrt{\frac{1+\alpha_n}{1+\gamma\alpha_n}} \quad (\text{I-12})$$

Avec $\gamma = \frac{T_e}{T_{i-}}$ le rapport des températures des électrons T_e et des ions négatifs T_{i-} , et

$\alpha_n = \frac{n_n}{n_e}$ l'électronégativité du plasma donnée par le rapport entre la densité des ions négatifs n_n et celle d'électrons n_e . Pour un plasma fortement électronégatif, la valeur de α_n est très grande devant l'unité.

I-3-4 Le libre parcours moyen

Le libre parcours moyen (λ) est la distance moyenne qu'une particule (électron, ion, neutre, etc.) présente dans un gaz plasmagène, traverse entre deux collisions ou réactions successives. Sa valeur est conditionnée par la nature statistique des collisions et la vitesse des particules. Il peut généralement être décrit par l'équation suivante [15-17]:

$$\lambda = \frac{1}{\pi(r_1+r_2)^2 \times N} \quad (\text{I-13})$$

Où r_1 , r_2 sont les rayons des particules en collisions, N est la densité de particules. Si la densité du gaz est faible, cas de faibles pressions, le libre parcours moyen devient grand. Cela permet aux particules d'avoir plus de temps pour être accélérées par le champ électrique entre les collisions et ainsi fournir un plus grand transfert d'énergie lors de la collision, ce qui facilite l'ionisation et ainsi l'obtention d'un état plasma stable [15-18].

I-3-5 La quasi neutralité macroscopique

En l'absence de perturbation externe, un plasma est également neutre macroscopiquement. Cela signifie que dans un équilibre, en l'absence de forces externes, la charge électrique résultante dans un plasma est égale à zéro. Par conséquent, la condition de neutralité de charge à l'équilibre dans un plasma se lit comme suit: [12].

$$\sum q_i N_i = 0 \quad (\text{I-14})$$

Où q_i est la charge électrique et N_i la densité des différentes espèces chargées (i) présentes dans le plasma.

Pour interpréter plus rigoureusement la longueur de Debye et son rapport avec la quasi-neutralité, il est bon de distinguer deux situations :

- On peut montrer que si l'on place un excès de charge $+Q$ statique dans un plasma (par exemple un conducteur chargé qui peut être une sonde ou un mur d'enceinte), alors les charges du plasma forment autour une couche de charge

globale $-Q$ et d'épaisseur de l'ordre de λ_D , au delà de laquelle les effets de la charge $+Q$ sont absents. On parle alors d'écrantage [19].

- Considérons maintenant un plasma homogène (sans excès de charge) perturbé dynamiquement à une pulsation ω (on peut considérer un forçage, ou une onde). On peut montrer que la réponse du plasma garantit la neutralité à condition de moyenner spatialement les densités électroniques et ioniques sur des échelles supérieures à λ_D , et seulement si la pulsation ω est très inférieure à la pulsation plasma électronique. C'est la raison pour laquelle on parle de quasi-neutralité pour un plasma : la dynamique fait qu'aux grandes échelles tout excès de charge est écranté, mais ce n'est pas le cas à petite échelle. La longueur séparant ces deux domaines étant celle de Debye par ailleurs, la condition sur la fréquence indique que si le phénomène perturbateur est trop rapide, les électrons n'ont pas le temps de s'ajuster pour "suivre le mouvement" et ne parviennent pas à assurer la neutralité [19-20].

I-3-6 La fonction de distribution

A tout moment, chaque particule a une position et une vitesse spécifiques. On peut donc caractériser la configuration instantanée d'un grand nombre de particules en spécifiant la densité de particules en chaque point x, v de l'espace de phase. La fonction décrivant la densité instantanée de particules dans l'espace de phase s'appelle la fonction de distribution et est notée $f(x, v, t)$. Ainsi, $f(x, v, t) dx dv$ est le nombre de particules au temps t ayant des positions comprises entre x et $x + dx$ et des vitesses comprises entre v et $v + dv$. Comme le temps progresse, le mouvement et l'accélération des particules entraînent une modification du nombre de particules dans ces domaines x et v , et donc de $f(x, v, t)$. Cette évolution temporelle de $f(x, v, t)$ donne une description du système plus détaillée qu'une description fluide, mais moins détaillée que le suivi de la trajectoire de chaque particule. L'utilisation de l'évolution de la fonction de distribution $f(x, v, t)$ pour caractériser le système ne permet pas de suivre les trajectoires des particules individuelles, mais caractérise plutôt des classes de particules ayant les mêmes x, v [1].

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

La fonction de distribution est la solution de l'équation de Boltzmann qui décrit la variation de la cinétique des espèces dans le plasma, elle est valide pour les plasmas faiblement ionisés, gouvernés par les collisions entre espèces neutres et particules chargées [16,21-22]. La majorité de modèles de décharge de gaz est établie à partir de cette équation. Cependant, l'équation de Boltzmann est difficile à manipuler et ne peut pas être résolue sans introduire des simplifications significatives, même pour une espèce simple. Une forme souvent utilisée de l'équation est donnée par l'expression I-15.

$$\frac{\partial f_i}{\partial t} + V_i \cdot \frac{\partial f_i}{\partial x} + a \cdot \frac{\partial f_i}{\partial v} = \left(\frac{\partial f_i}{\partial t} \right)_{COLLISIONS} \quad (I-15)$$

Avec:

$$a = \frac{q}{m} (E + V \times B) \quad (I-16)$$

Où E: représente le champ électrique.

V : la vitesse des particules chargées.

B : le champ magnétique.

Cette équation est composée de quatre termes, le premier $\frac{\partial f_i}{\partial t}$ représente l'évolution de la fonction de distribution en fonction du temps, t. $V_i \cdot \frac{\partial f_i}{\partial x}$ exprime le terme de convection de l'entité physique f_i , $a \cdot \frac{\partial f_i}{\partial v}$ représente les variations de vitesse des particules sous l'action des forces extérieures, le terme droite $\left(\frac{\partial f_i}{\partial t} \right)_{COLLISIONS}$ donne la variation de la fonction de distribution sous l'effet des collisions avec les neutres, c'est-à-dire la redistribution des particules (électrons ou ions) sous l'effet des collisions.

Pour une distribution de Maxwell Boltzmann (distribution maxwellienne) à la température T, la fonction f s'écrit sous la forme :

$$f(V) = n \left(\frac{m}{2\pi k_B T} \right)^{1/2} \exp \left(- \frac{mV^2}{2k_B T} \right) \quad (I-17)$$

Avec n la densité des particules.

La fonction de distribution f contient toutes les informations physiquement pertinentes sur l'espèce i . Ces informations sont obtenues en prenant les moments successifs de la fonction de distribution. A partir de l'intégration de la fonction de distribution sur l'espace des vitesses (∂^3V), on peut avoir accès à toutes les grandeurs macroscopiques moyennes de chaque espèce caractérisant le plasma telles que la densité, la vitesse moyenne et l'énergie moyenne.

La densité devient :

$$n = \int f(V) \partial^3V \quad (\text{I-18})$$

La vitesse moyenne devient :

$$\bar{V} = \frac{1}{n} \int V f(V) \partial^3V = \left(\frac{8k_B T}{\pi m} \right)^{1/2} \quad (\text{I-19})$$

Et l'énergie moyenne :

$$\bar{\varepsilon} = \frac{1}{n} \int \frac{1}{2} m V^2 f(V) \partial^3V = \frac{3}{2} k_B T \quad (\text{I-20})$$

I-4 Différents types des collisions

Lorsque deux particules initialement séparées par une distance d s'approchent l'une de l'autre, elles commencent à interagir et si, après cette interaction, quelque changement mesurable s'est produit, on dit qu'une collision a eu lieu [23]. Dans les plasmas, deux types de collisions peuvent avoir lieu ; les collisions dites élastiques, ce sont celles pour lesquelles l'énergie cinétique et la quantité de mouvement sont conservées après interaction, et celles dites inélastiques et, pour les quelles il n'y a pas de conservation de l'énergie cinétique totale.

La connaissance des deux types de collision est nécessaire pour mieux comprendre la physique des décharges. Les collisions élastiques affectent les coefficients de

conductivité, de mobilité, de diffusion et la forme de la fonction de distribution en énergie des électrons (FDEE). Cependant, les collisions inélastiques agencent les populations d'espèces chargées, les températures électroniques et même le rayonnement des espèces excitées [24].

I-4-1 Collisions élastiques

Les collisions entre particules sont considérées élastiques lorsque la somme des énergies cinétiques après collision est égale à la somme des énergies cinétiques avant collision. Durant une collision élastique, la vitesse des particules subit des changements qui seront suivis par des changements au niveau des énergies cinétiques et quantités de mouvement des particules mais de manière à conserver ce transfert d'énergie avant et après la collision [25, 26]. Les particules lourdes échangent facilement leur énergie par collision élastique, au cours d'une collision entre électron et une particule lourde, la fraction d'énergie est très faible. Pour cela l'électron devra donc subir plusieurs collisions élastiques pour perdre son énergie [15]. La figure I-6 représente une collision élastique électron-atome.

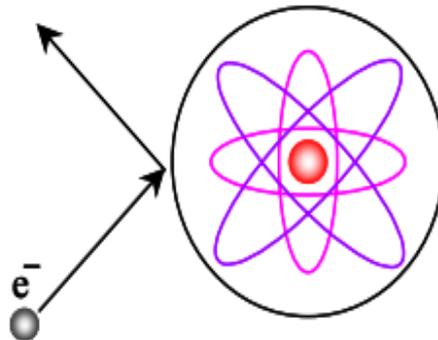


Figure I-6 : Représentation simplifiée d'une collision élastique électron-atome [10].

I-4-2 Collisions inélastiques

Deux types de collisions inélastiques doivent être considérés : les collisions inélastiques où seul l'état interne des particules est modifié et les collisions réactives où la nature des particules est modifiée à l'issue de la collision [26].

I-4-2-a Collision inélastique conservative

Lorsque le nombre de particules ne change pas avant et après une collision, même si l'énergie cinétique n'est pas conservée, la collision est dite collision inélastique conservative. C'est le cas des collisions entraînant l'excitation des niveaux optiques, vibrationnelles ou rotationnelles des molécules cibles [27]. Un schéma simplifié de l'excitation est illustré sur la figure I-7.

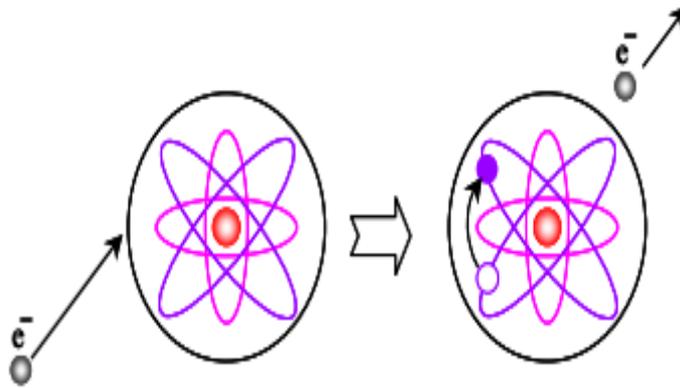


Figure I-7 : Représentation simplifiée d'une collision d'excitation. [10].

I-4-2-b Collision de transfert de charge

La collision de transfert de charge se produit entre un ion et un atome (ou molécule). Lorsque un ion se déplace sous l'action d'un champ électrique, dans un gaz parent (par exemple l'ion AB^+ dans un gaz AB), le transfert de charge est dit résonant ou symétrique. Par contre, lorsque l'ion se déplace dans un gaz non-parent (par exemple l'ion A^+ dans le gaz AB), le transfert de charge est dit non-résonant ou asymétrique.

Au cours d'un transfert de charge non-résonant l'ion énergétique A^+ devient un neutre rapide et le neutre B devient un ion. L'ion B^+ peut être accéléré par son énergie interne [23].

Le transfert de charge joue un rôle très important dans les plasmas froids non-thermiques, particulièrement dans la redistribution d'énergie moyenne des ions dans le plasma car il permet de transformer un ion rapide en un ion lent [27]. La figure suivante présente un schéma de transfert de charge non-résonant entre l'ion A^+ et le gaz atomique B .

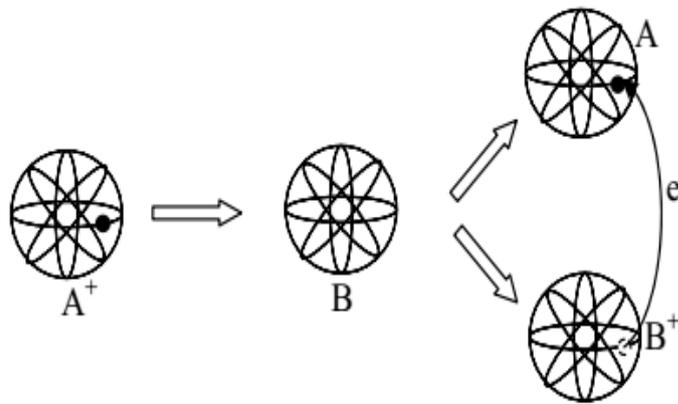


Figure I-8 Représentation schématique d'une collision de transfert de charge non-résonant [27].

➤ **Ionisation** : Les processus d'ionisation présentent généralement les barrières énergétiques les plus élevées, de l'ordre de 10 eV [10]. Les électrons avec une énergie suffisante peuvent arracher un électron d'un atome et produire un électron supplémentaire et un ion positif. Les électrons éjectés et diffusés sont ensuite accélérés par le champ électrique qui règne dans le milieu.

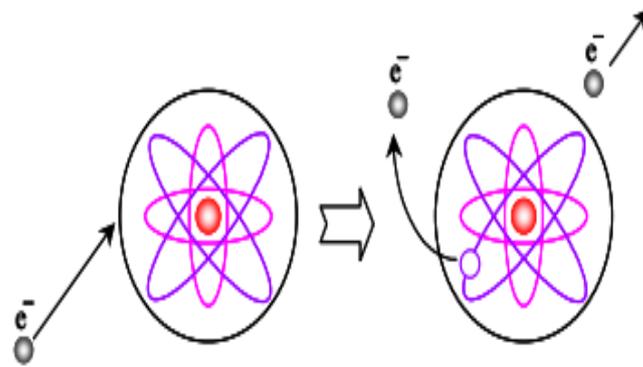


Figure I-9 : Représentation schématique de l'ionisation d'un atome [10].

➤ **Attachement électronique** : L'électron peut se fixer à un atome électronégatif pour former un ion négatif, comme dans le cas de l'atome d'oxygène, par exemple. Les molécules de gaz complexes, tels que le SF₆, peuvent également subir une fixation dissociative pour former des ions SF₅⁻ négatifs. Cela pourrait également être un processus de recombinaison à trois corps. Ce processus peut jouer un rôle très important parce qu'il modifie le transport et le champ électrique de charge d'espace

dans le plasma [10]. Le schéma simplifié du processus d'attachement est donnée sur la figure I-10.

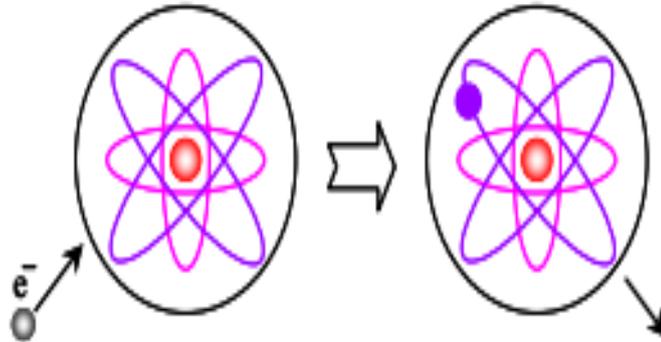


Figure I-10 : Représentation schématique de l'attachement [10].

➤ **Collision de détachement:** La collision électron-ion négatif peut entraîner le détachement de l'électron pour donner un neutre et un électron supplémentaire. Ici, l'affinité électronique des ions négatifs joue un rôle important. La figure I-11 montre un schéma simplifiée du détachement électronique.

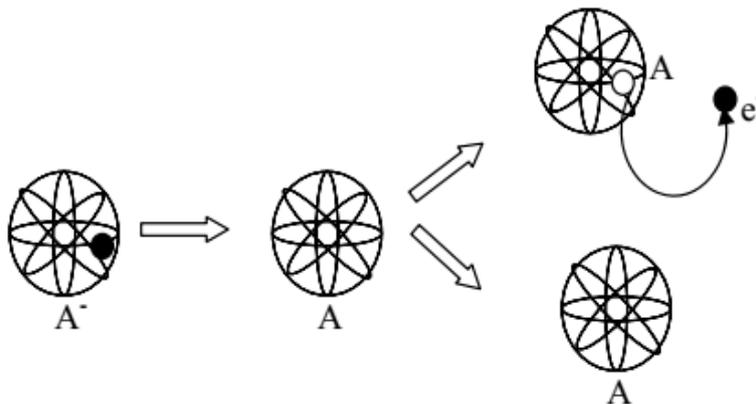


Figure I-11: Représentation simplifiée de détachement électronique [27].

Le tableau suivant présente un ensemble des réactions induites par impact électronique dans une collision inélastique [25] :

Processus	Réaction
Ionisation par impact électronique	$e^- + A \rightarrow 2e^- + A^+$
Ionisation dissociative	$e^- + AB \rightarrow 2e^- + A + B^+$
Excitation par impact électronique	$e^- + A \rightarrow e^- + A^*$
Recombinaison radiative	$e^- + A^+ \rightarrow A^* + h\nu$
Recombinaison à trois corps	$e^- + A^+ + B \rightarrow B + A^*$
Attachement à trois corps	$e^- + A + B \rightarrow A + B^-$
Détachement par impact électronique	$e^- + A^- \rightarrow 2e^- + A$
Dissociation par impact électronique	$e^- + AB \rightarrow e^- + A + B$

Tableau I-2 : les réactions induites par impact électronique [25].

Où A et B sont des espèces chimiques (particules neutres, atomes, molécules...)

I-5 Classification des plasmas

Les plasmas sont décrits par de nombreuses caractéristiques, telles que la température, le degré d'ionisation et la densité, dont l'ampleur et les approximations du modèle les décrivant donnent lieu à des plasmas qui peuvent être classés de différentes manières. La théorie des plasmas s'applique à des milieux gazeux dont les densités peuvent varier d'environ 10^6cm^{-3} à 10^{25}cm^{-3} . De même, les températures peuvent varier de 10^{-2} à 10^4 eV, pour un passage de décharges froides aux plasmas de fusion [27]. Les ordres de grandeurs de différents paramètres du plasma sont donnés sur la figure I-2. On retiendra surtout que pour les plasmas de décharges appliquées au traitement de surfaces (pulvérisation, gravure, déposition), la densité de charges varie de 10^8 à 10^{12}cm^{-3} (typiquement 10^{10}cm^{-3}) et la température électronique peut varier de 0.1 à 10 eV (typiquement 1 eV).

Ces plasmas sont classés comme cinétiques classiques, ils sont caractérisés par la double forte inégalité $\lambda_L \ll d_e \ll \lambda_D$ (λ_L est la longueur de Landau et d_e est la distance inter-particulaire). L'inégalité $\lambda_L \ll d_e$ indique que les effets de corrélation sont

négligeables et $d_e \ll \lambda_L$ signifie qu'il y a un grand nombre d'électrons dans la sphère de Debye.

Dans ce qui suit, nous donnons un bref aperçu sur les trois principaux classements des plasmas.

I-5-1 Classement des plasmas selon la température

Dans ce classement, qui peut être considéré comme étant le plus pertinent, nous distinguons :

I-5-1-a Les plasmas chauds : Ce sont les plus répandus dans la nature [28-29]. On les trouve dans le soleil, les étoiles, les flammes, les éclairs de foudre. Ils sont également appelés plasmas fortement ionisés et présentent de très grandes valeurs de α et T_e ($\alpha \approx 1$ et $T_e > 10^7 \text{K}$) [30]. Ce sont, par exemple, les plasmas de fusion nucléaire. Ce genre de plasma est caractérisé par une pression relativement élevée et donc des collisions entre particules plus fréquentes et une transmission aisée de l'énergie, ce qui induit à une forte ionisation des particules les constituants. Les températures électroniques T_e , ioniques T_i et des particules neutres du gaz T_g sont égales, exprimées par l'égalité : $T_e \approx T_i \approx T$ [17].

I-5-1-b Les plasmas froids : Il est possible de distinguer deux grandes catégories de plasmas froids, selon la température et leurs différentes composantes : plasma thermique et non-thermique [31].

➤ **Les plasmas thermiques** (à équilibre thermodynamique local : ETL) : sont caractérisés par une seule température de gaz T_g , les autres températures des électrons T_e , des ions T_i et des neutres T_n étant proches, voire égale à celle du gaz. Ces plasmas froids thermiques sont donc généralement à l'équilibre thermodynamique local (ETL) [16]. C'est le cas de la foudre ou des plasmas d'arc (soudure, découpage des métaux) qui peuvent atteindre des températures de l'ordre de 10 000 K [30]. Ces plasmas sont ainsi loin d'être froids, mais sont dénommés ainsi en raison de leur énergie très inférieure à celle des plasmas chauds.

➤ **Les plasmas non thermiques ou plasma hors équilibre thermodynamique local** (hors ETL): sont naturellement caractérisés par plusieurs températures. Seule la température T_e des électrons est très grande devant celle du gaz T_g qui reste assez proche de la température ambiante, et celle des ions qui peut être assez grande par rapport à celle du gaz, surtout à basse pression, ainsi qu'à la température propre aux états excités, notamment les états vibrationnels qui sont un réservoir d'énergie souvent à l'origine de la dynamique du gaz provoquée au sein de ces plasmas froids non thermiques [32]. Ces plasmas présentent l'avantage des milieux actifs chimiquement tout en gardant des températures faibles. On les retrouve essentiellement dans l'industrie pour la gravure et le dépôt de couches minces (microélectronique), mais aussi pour le traitement de surface des matériaux thermosensibles (emballage alimentaire) ou pour la stérilisation dans le milieu médical [6, 30, 33].

Dans les plasmas froids hors équilibre, les électrons vont pouvoir acquérir des énergies suffisamment élevées pour induire des collisions inélastiques générant des radicaux, des ions et des espèces métastables. L'énergie électrique est dans ce cas transformée en énergie chimique entraînant de l'ionisation, de la dissociation et de l'excitation des atomes et des molécules du milieu gazeux. [6].

Le Tableau I-1 résume les principales caractéristiques des plasmas à ETL et hors ETL.

	Plasmas à ETL	Plasmas hors ETL
Propriétés	<ul style="list-style-type: none"> - $T_e \approx T_i$ - Densité électronique plus élevée : ($n_e = 10^{21} - 10^{26} \text{ m}^{-3}$) - plasmas très collisionnels 	<ul style="list-style-type: none"> - $T_e \gg T_i$ - Densité électronique plus basse : ($n_e < 10^{19} \text{ m}^{-3}$) - plasmas peu collisionnels
Exemples	Plasma d'arc $T_e \approx T_i \approx 10000 \text{ K}$	Décharges lumineuses $T_e \approx 10000 - 100000 \text{ K}$ $T_i \approx 300 - 1000 \text{ K}$

Tableau I-1 : Principales caractéristiques des plasmas à ETL et hors ETL [16]

I-5-2 Selon la pression du gaz

La description des plasmas s'inspire de la physique des gaz et de la mécanique des fluides, et utilise des grandeurs macroscopiques. La pression du gaz est l'un des paramètres qui peuvent influencer la nature du plasma et contrôler les propriétés des espèces chargées[14]. A titre d'exemple, la figure I-3 suivante représente l'effet de la pression sur les températures électronique et ionique pour un plasma thermique d'arc.

On remarque, qu'à basses pressions le plasma est caractérisé par deux températures cinétiques, celle des électrons T_e et celle du gaz T_g (particules lourdes), c'est le cas des plasmas froids (hors ETL). Cette absence d'équilibre permet d'obtenir un plasma dans le quelle la température du gaz peut être voisine de l'ambiante alors que les électrons sont suffisamment énergétiques pour entraîner la rupture des liaisons moléculaires. Cette propriété rend ce type de décharge parfaitement adapté aux réactions chimiques entre matériaux très sensibles aux effets de la température (les composés organiques par exemple) [14].

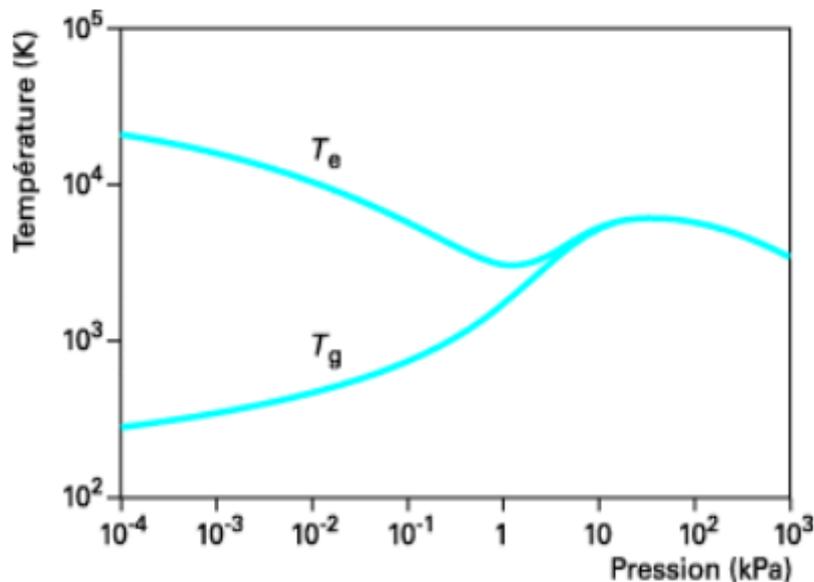


Figure 1.3: Évolution des températures des électrons T_e et des particules lourdes T_g avec la pression dans un plasma thermique d'arc [16].

A haute pression (voisine ou supérieure à la pression atmosphérique), le plasma présente une température de l'espèce lourde (ions, atomes, molécules) voisine de la température des électrons ($T_e = T_g$)[14-16].

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

Les plasmas froids à la pression atmosphérique (environ 100 kPa), de l'ordre de 750 Torr sont utilisés pour les modifications de surface des polymères. La majorité des plasmas froids sont créés en laboratoire à des basses pressions, de l'ordre de 10^{-4} Torr mais il est également possible de les obtenir à des pressions plus élevées comme la pression atmosphérique, nécessitant des configurations propres à l'obtention de plasma dans de telles conditions [30]. De manière générale, le plasma reste à l'état hors équilibre thermodynamique si la décharge est interrompue avant que les électrons ne thermalisent le milieu gazeux.

I-5-3 Selon la fréquence d'excitation

Le moyen le plus répandu pour la production d'un plasma est la décharge électrique. La décharge électrique est un phénomène physique se produisant dans les gaz lorsqu'on leur applique un champ électrique suffisamment intense. Ce gaz devient alors plus ou moins conducteur. Les décharges dans les gaz sont dues à l'apparition d'électrons et d'ions libres. On distingue deux types de décharges, elles sont à courant continu (DC) ou alternatif (AC).

I-5-3-a Plasma produit par une décharge continue (DC)

Le dispositif expérimental utilisé pour cette décharge est schématisé sur la figure I-4. Il représente un gaz compris dans un espace entre deux électrodes métalliques planes parallèles (une cathode et une anode) séparées par une distance d et porté à une pression P [32, 34]. Une tension V est appliquée entre les deux électrodes.

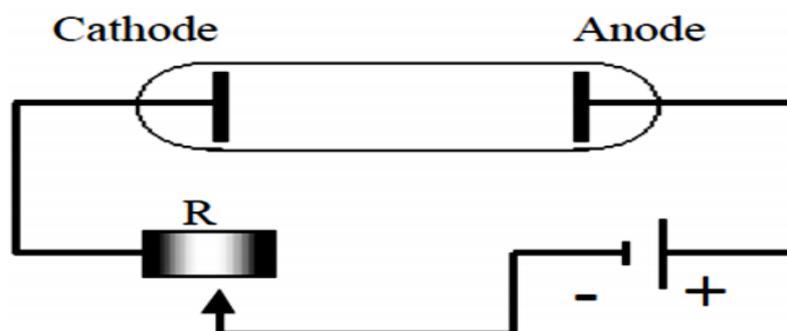


Figure I-4: Dispositif expérimental pour l'étude des décharges en courant continu [30].

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

Naturellement, le gaz étant un bon isolant, aucun courant ne le traverse. Cependant, la présence d'espèces chargées peut rendre ce gaz plus ou moins conducteur. Par exemple, avec certains instruments perfectionnés on peut détecter un courant de l'ordre de 10^{-15} A, dû aux charges générées par les rayons cosmiques ou la radioactivité. Par contre l'amorçage de la décharge ne peut être obtenu que pour une tension appliquée dépassant une valeur critique V_d , dite tension de claquage (appelée aussi tension de rupture) : on mesure brutalement une intensité dans le circuit et on observe une émission lumineuse. Tant que la source ne limite pas le courant, le gaz reste conducteur; une décharge électrique autonome a lieu[15-17, 32].

Le phénomène observé s'interprète comme la traversée du gaz par des électrons accélérés par le champ électrique, provenant initialement de la cathode (électrode négative) et qui par un phénomène d'avalanche se multiplient en produisant une ionisation du gaz[32, 34].

La caractéristique Tension- Courant typique d'une telle décharge, appliquée à un gaz à basse pression, est illustrée sur la figure I-5. La forme de la caractéristique est une succession de cinq zones différentes correspondant à cinq régimes de fonctionnement différents. Nous citons particulièrement la décharge sombre de Townsend, la décharge luminescente et la décharge d'arc.

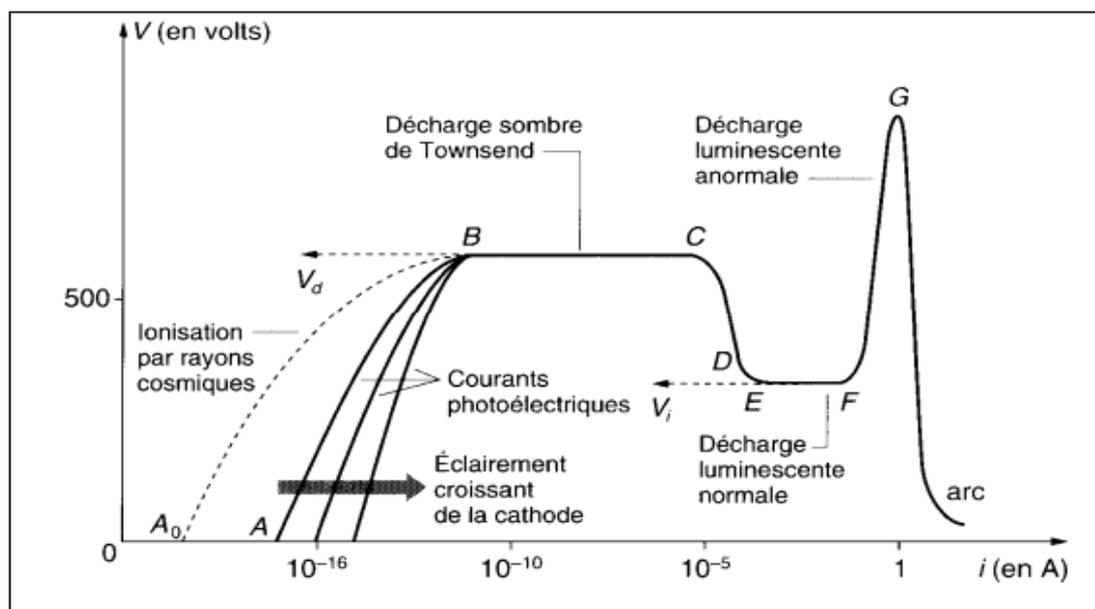


Figure I-5 : Caractéristique $V(I)$ de décharge en courant continu [30, 34]

I-5-3-b Plasma produit par une décharge en régime alternatif (AC)

Les fréquences du courant alternatif conduisent à une énergie ionique élevée et par conséquent à un bombardement ionique important des électrodes polarisées pouvant entraîner la gravure du dépôt en croissance. D'autre part, une haute fréquence favorise une augmentation de la densité électronique (nombre d'électrons) [5]. Les fréquences les plus courantes sont: 400 kHz pour les basses fréquences, 13,56 MHz pour les radiofréquences et 2,45 GHz pour les fréquences microondes.

➤ **Décharges Basses fréquences (BF)**

Les signaux à basse fréquence ont des fréquences d'oscillation variant de quelques centaines de Hz à quelque centaines de kHz [5] et correspondant au cas où $f < f_{pi} < f_{pe}$. Les ions ont une fréquence d'oscillation propre f_{pi} de l'ordre de 1Mhz. Dans ce domaine de fréquence, les électrons et les ions suivent instantanément les variations du champ électrique. L'entretien de la décharge se fait en grande partie grâce à l'émission des électrons secondaires de la cathode. [17, 35]

➤ **Décharges Radiofréquences (RF)**

Les décharges radiofréquences RF sont des décharges fonctionnant avec une excitation comprise dans une plage de fréquences allant de quelques dizaines de kHz aux MHz. Dans la gamme de fréquences susmentionnée, on utilise généralement la valeur de 13.56 MHz (fréquence commerciale) comme fréquence d'excitation ou une de ses harmoniques. Ce chiffre n'a rien de magique, il correspond seulement à la valeur imposée par la réglementation internationale des télécommunications et qui permet d'émettre une certaine quantité d'énergie sans interférer avec les signaux de télécommunications

[23]. Les ions ne parviennent pas à suivre les variations instantanées du champ électrique dans les gaines alors que les électrons y arrivent

($f_{pi} < f < f_{pe}$) et peuvent être accélérés pendant leur expansion avec une énergie suffisante pour ioniser les molécules du gaz [23, 35]. Plusieurs procédés plasma basse pression (ou plasmas froids) utilisent une décharge RF avec un couplage capacitif ou un couplage inductif.

➤ **Décharge Microonde (MO)**

Dans les décharges microondes, qui sont souvent réalisées avec des antennes placées à l'intérieur du réacteur ou à son extérieur, les fréquences sont habituellement utilisées entre quelques GHz et plusieurs GHz. La fréquence commercialisée est de 2,45 GHz, c'est la plus commune, correspondant au cas où $f < f_{pi} < f_{pe}$. Ni les électrons, ni les ions ne peuvent suivre les variations du champ électrique. [23, 35]. L'amplitude d'oscillation pour des électrons dans les décharges microondes est d'environ 10–100 microns, de sorte que les pertes d'électrons et les potentiels de plasma sont beaucoup plus inférieurs que dans des décharges RF. Les pertes d'électrons sont principalement par diffusion dans ces décharges. [5]

I-6 Décharges plasma radiofréquences RF

Les décharges radiofréquences fonctionnent avec une excitation électrique sinusoïdale dont la fréquence fondamentale est de 13,56 MHz ou une fréquence harmonique (27,12 et 40,68 MHz) [36]. La décharge RF fonctionne à plus basse pression et à plus basse tension contrairement aux décharges DC qui nécessitent l'utilisation de tensions élevées à basse pression. Les décharges radiofréquences sont couramment utilisées dans les réacteurs PECVD (Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition) [23]. Elles sont utilisées pour la gravure de surfaces ou le dépôt de films minces. Dans un plasma on peut distinguer deux façons fondamentales de coupler l'onde RF. La première façon consiste à appliquer l'excitation radiofréquence entre deux électrodes planes. Le générateur est lié à l'une des électrodes, ou bien en est isolé par la présence d'un condensateur de couplage, on parle d'une décharge plasma à couplage capacitif (CCP). La deuxième consiste à réaliser une excitation électromagnétique RF par la circulation d'un courant alternatif dans une bobine conductrice. La bobine est séparée du plasma par une électrode diélectrique, c'est le cas du couplage inductif (ICP) [37, 38].

Lorsque la source radiofréquence est constituée d'une antenne externe de forme spéciale entourant le tube isolant qui permet la transmission de la puissance au plasma en présence d'un champ magnétique important, le réacteur est dit de configuration hélicon, par rapport à l'onde électromagnétique "hélicon" qui est susceptible de se propager dans le plasma. Les plasmas obtenus dans ce type de réacteurs sont des

plasmas froids à basses pressions ($< 0,1$ Torr) et de forte densité électronique (10^{11} à 10^{14} cm^{-3}).

I-6-1 Les principales applications des décharges RF

La production des espèces ionisées (positives, négatives) et des espèces neutres réactives (atomes, radicaux, molécules) dans le plasma radiofréquence à basse température conduit à la réaction de ces espèces avec des surfaces exposées au plasma par des processus chimiques, physiques ou une synergie des deux. L'efficacité de la décharge RF basse pression (la pression est comprise entre 10^{-1} Pa et 10^3 Pa) utilisée dans des procédés de traitement et/ou de modification de l'état de surface de matériaux est bien établie.

Les décharges radiofréquences sont largement appliquées en chimie des plasmas, ils jouent un rôle clé dans les procédés sophistiqués de gravure et de dépôt de la microélectronique moderne, par exemple ils sont largement employés dans la fabrication de circuits intégrés, la croissance de couches minces ou de films spéciaux, modifiant les propriétés initiales (mécaniques, optiques, chimiques) des substrats sur lesquels ils sont déposés, l'utilisation comme outils de nettoyage ou comme moyen de stérilisation de surfaces industrielles, ainsi que dans le traitement des matériaux polymères[3]. Les décharges RF sont utilisées dans le domaine de la chimie analytique pour des diagnostics élémentaires quantitatifs et qualitatifs de matériaux principalement par spectrométrie optique et par spectrométrie de masse [38].

I-6-2 Les réacteurs RF

Les plasmas utilisés dans l'industrie sont généralement créés dans des enceintes appelées réacteurs à plasma. Ce sont des chambres à géométries plus ou moins complexes dans lesquelles le gaz est injecté, qui contiennent un système de génération de plasma et des supports de substrat sur lesquels le silicium est déposé. Les gaz sont évacués par des systèmes de pompage[39]. Les trois structures les plus connues dans le décharge RF sont les réacteurs capacitif, inductif et hélicon. La figure I-12 représente les structures schématiques pour les trois types de couplage.

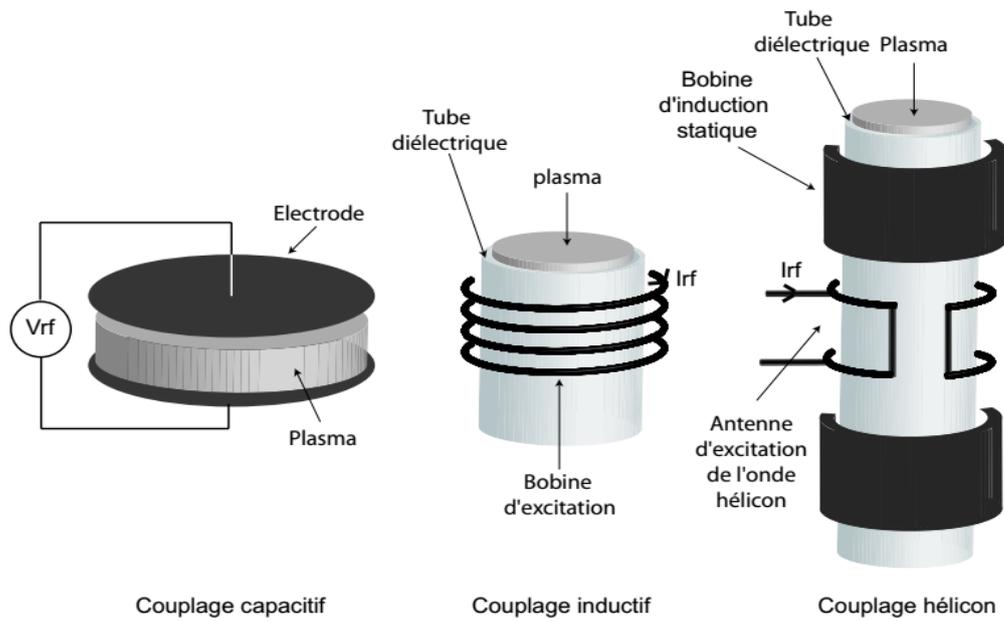


Figure I-12 : structures pour les couplages capacitif, inductif et hélicon[40].

I-6-3 Régime de fonctionnement dans les plasmas CCP

Les sources de plasma à couplage capacitif CCP représentent le premier type des réacteurs radiofréquences industriels. Les décharges RF-CCP sont généralement générées dans des chambres métalliques mises à la terre [38]. Une représentation simple de la configuration de ce type de réacteur est donnée sur la figure I-13.

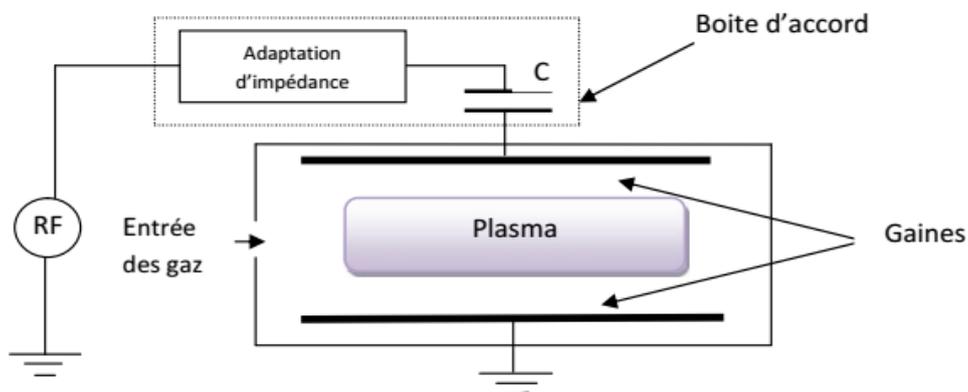


Figure I-13 : Schéma d'une source RF à couplage capacitif avec des électrodes planes et parallèles [23].

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

Le principe de fonctionnement est simple. Deux électrodes planes et parallèles sont séparées d'une distance de quelques centimètres. L'une des électrodes est connectée à la paroi de la chambre et mise à la terre et l'autre est alimentée par un générateur de tension RF, ce qui rend la décharge asymétrique. L'espace inter-électrodes est rempli par un gaz neutre de faible pression. Un condensateur de blocage sépare l'alimentation RF de l'électrode polarisée. La fréquence d'excitation étant relativement élevée, le courant total de décharge (J_T) est principalement un courant de déplacement entre les électrodes et le plasma[23]. J_T est la somme de trois composantes :

$$J_T = J_e + J_i + J_D \quad (\text{I-21})$$

Où J_e est le courant électronique, J_i , le courant ionique et J_D représente le courant de déplacement.

La dernière composante du courant total est générée par les variations temporelles du champ électrique sur les électrodes :

$$J_D = \varepsilon_0 \frac{dE}{dt} \quad (\text{I-22})$$

Avec ε_0 la permittivité du vide et E le champ électrique sur l'électrode.

I-6-4 Régime de fonctionnement dans les plasmas ICP

Dans les plasmas à couplage inductif (ICP), le champ électrique RF est induit dans le plasma par une antenne externe alimentée par un générateur RF. Les ICP présentent deux avantages principaux. Le premier avantage est qu'aucune électrode interne n'est nécessaire, comme dans les systèmes à couplage capacitif, pour créer le plasma, et le deuxième est qu'aucun champ magnétique continu n'est requis comme dans les réacteurs à résonance cyclotronique électronique (ECR).

Ces avantages font des ICP, probablement, les outils plasma les plus courants. Ces appareils sont disponibles suivant deux configurations différentes, La première fonctionne avec une bobine de type solénoïde qui entoure le réacteur et la seconde configuration consiste à utiliser une bobine plate posée au sommet de la chambre

d'injection des gaz. Une fenêtre diélectrique sépare, en général, la bobine du plasma [39]. Ces sources sont généralement utilisées dans un régime à haute densité. Elles sont communément excitées par une fréquence de 13.56 MHz. La figure I-14 représente les deux configurations de réacteurs plasma ICP.

Dans ce type de décharge, un courant électrique passe à travers une bobine magnétique fournissant un champ magnétique axial, qui induit un champ électrique dans le réacteur qui soutient la décharge RF ICP [27, 38, 41]. Le champ magnétique dans la décharge ICP est déterminé par le courant dans le solénoïde, tandis que le champ électrique est obtenu selon la résolution des équations de Maxwell. Pour obtenir des champs électriques suffisants, une fréquence RF de 0,1 à 100 MHz est généralement nécessaire [3]. Un tube diélectrique est généralement inséré à l'intérieur de la bobine pour maintenir le plasma.

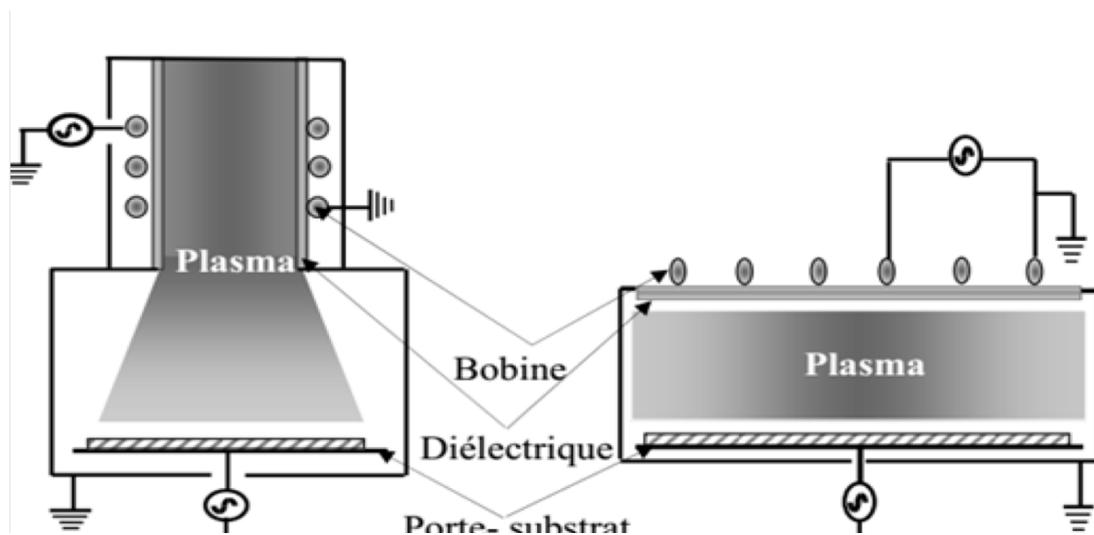


Figure I-14 : Les sources RF à couplage inductif : a) configuration cylindrique, b) configuration planaire [16].

La structure des lignes de champ magnétique dans la configuration de bobine plane des décharges ICP est plus compliquée que dans le cas de la bobine inductive cylindrique. Les lignes de champ magnétique RF dans la configuration de bobine plane en l'absence de plasma sont illustrées sur la figure I-15 (a). Ces lignes de champ magnétique encerclent la bobine et sont symétriques par rapport au plan de la bobine.

La déformation du champ magnétique en présence de plasma formé sous la bobine est représentée sur la figure I-15 (b).

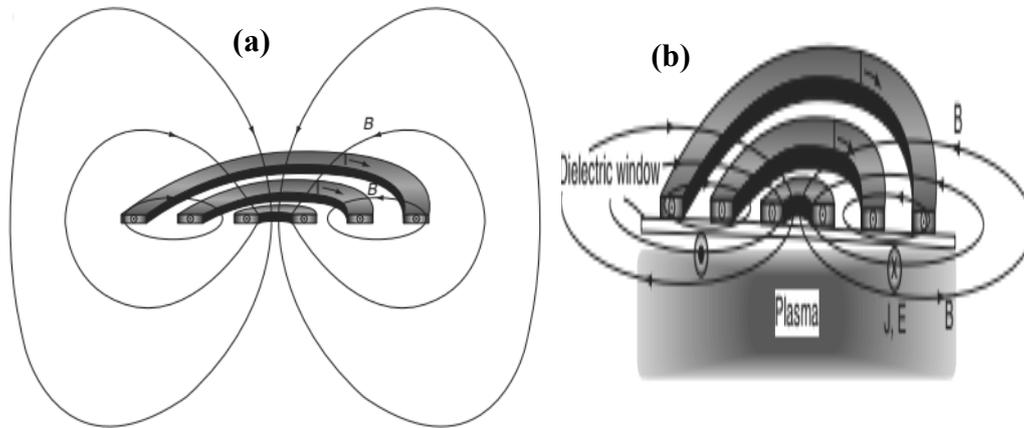


Figure I-15 : Champ magnétique RF à proximité d'une bobine inductive plane : (a) sans plasma, (b) avec plasma [42].

Dans ce cas, un champ électrique azimutal et un courant associé créent une onde évanescente dans le plasma car la pulsation plasma électronique est beaucoup plus élevée que la pulsation plasma radiofréquence. Les électrons vont pouvoir absorber l'énergie de ce champ induit et ainsi entretenir le plasma. L'onde électromagnétique ne va pas se propager dans le plasma mais va plutôt être absorbée dans le plasma sur une longueur de pénétration δ appelée épaisseur de peau comme le montre la figure I-16.

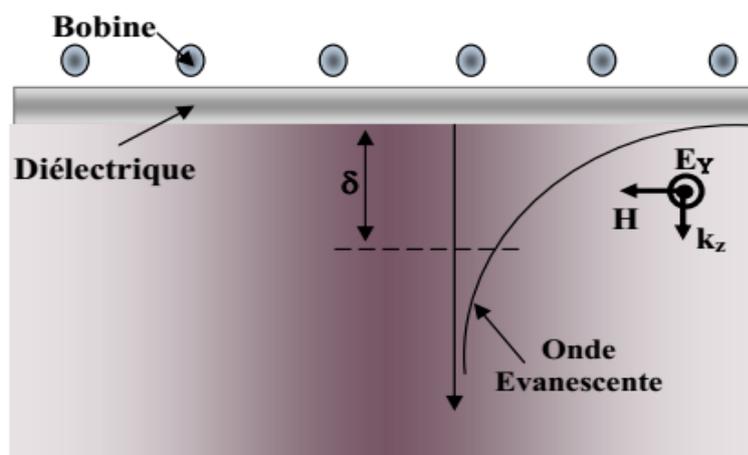


Figure I-16 : Illustration de l'épaisseur de peau dans le réacteur plasma à couplage inductif [16].

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

L'épaisseur de peau dépend de la fréquence du champ électromagnétique ($f = \omega/2\pi$), la perméabilité de la charge supposée égale à celle du vide et de la conductivité du plasma. Pour le calcul de la profondeur de la couche de peau δ (cm), il est pratique d'utiliser la relation suivante [42]:

$$\delta = \sqrt{\frac{2}{\omega\sigma\mu_0}} \quad (\text{I-23})$$

Avec ω : la pulsation plasma.

σ : la conductivité plasma

μ_0 : la perméabilité du vide. ($\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$ H/m),

Dans ce cas, et contrairement au fonctionnement en CCP, comme la majeure partie de la puissance est absorbée par les électrons responsables des collisions avec les neutres, on obtient des plasmas avec de fortes densités.

Le réacteur ICP pris en considération dans notre étude est de configuration planaire. Le réacteur est utilisé aussi bien pour la simulation de la décharge dans un plasma d'oxygène en mélange avec de l'argon que pour l'étude de l'effet des conditions de décharge sur le taux de croissance d'un film de silicium à partir de silane en mélange avec de l'hydrogène et de l'argon. Le schéma de la structure utilisée dans la simulation est inspiré de la littérature [43-44], il est donné sur la figure I-17.

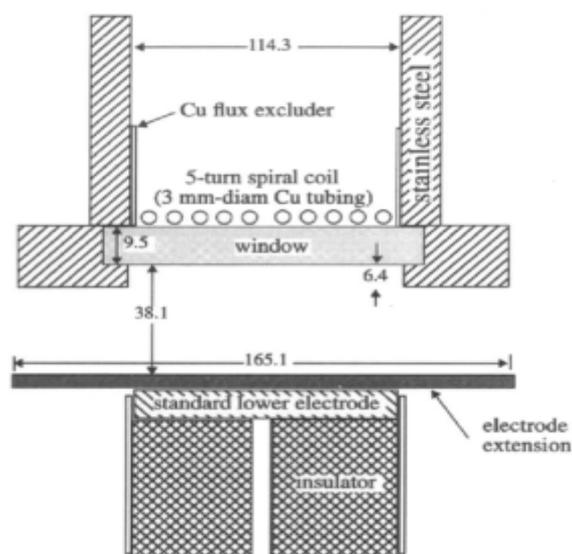


Figure I-17 : Schéma du système de dépôt [43-44].

I-7 Le dépôt de films de silicium

Le silicium est un matériau semi-conducteur de base dans l'industrie de l'électronique. Environ 95 % de tous les dispositifs à semi-conducteurs sont fabriqués à l'aide de substrats de silicium [5]. Le silicium a fait un immense succès pour la fabrication des couches minces. Comme beaucoup d'éléments, le silicium peut exister, à température ambiante, sous différentes structures. On distingue le silicium amorphe et le silicium mono ou polycristallin [45].

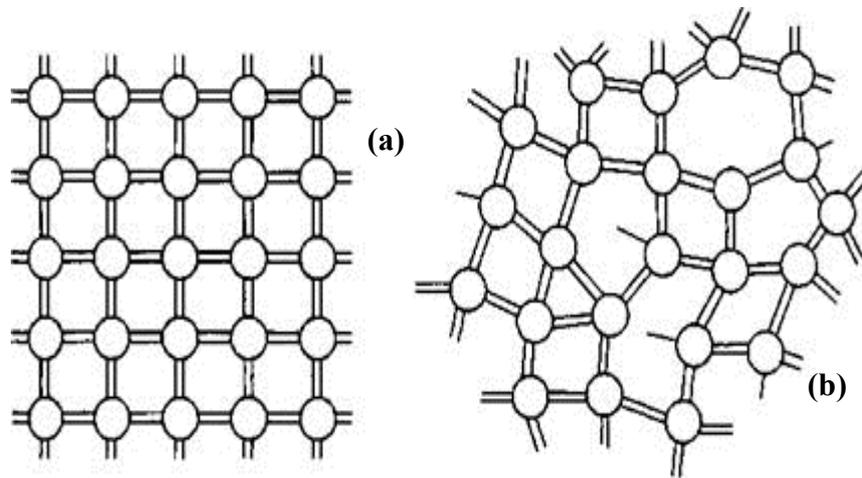


Figure I-18 : vue schématique de l'arrangement atomique dans la structure : (a) cristalline, (b) amorphe [3].

I-7-1 Les techniques de dépôt des couches minces de silicium

Les couches minces de silicium peuvent être déposées par différentes techniques. L'épaisseur des films réalisés ne dépasse pas quelques centaines d'angström [5]. La classification des films minces dépend de l'ordre court et long des atomes, ils sont classés en trois catégories différentes ; amorphe, monocristallin ou polycristallin. Actuellement, environ 40 applications du silicium ont été identifiées. La plupart sont commercialisées, comme les TFT (Thin Film Transistor), les photopiles solaires et les tambours électrophotographiques [46]. Il existe plusieurs méthodes de dépôt de silicium, les plus utilisées sont le dépôt chimique en phase vapeur (CVD) et le dépôt physique en phase vapeur (PVD). Les autres méthodes sont la pulvérisation cathodique, l'évaporation thermique et les méthodes basées sur l'épitaxie. Ces méthodes sont classifiées selon la température, les substances de départ et le nombre

de substrats dans le réacteur. Nous donnons dans ce qui suit un bref aperçu de chaque méthode

I-7-1-a L'épitaxie

Le dépôt par couche atomique ALD (Atomic Layer Déposition) noté Epitaxie [5] est une méthode utilisée pour déposer une couche cristalline de silicium sur un substrat de silicium, mais possédant une concentration en impureté ou un dopage différent. L'épitaxie de silicium se réalise dans la gamme de températures de 900°C–1200°C, par réduction ou décomposition d'espèces gazeuses entraînées par un gaz vecteur [47-49]. Les composés gazeux utilisés sont le SiCl_4 (tétrachlorure de Si), le SiHCl_3 (trichlorosilane) ou le SiH_2Cl_2 (dichlorosilane). Les gaz précurseurs pour le dopage sont généralement le diborane (B_2H_6) et la phosphine (PH_3) pour l'introduction respective de bore et de phosphore[47].

I-7-1-b Dépôt physique en phase vapeur (PVD)

Le dépôt physique en phase vapeur est un traitement de surface sous vide qui permet de déposer des films minces de quelques microns d'épaisseur. Le PVD consiste à utiliser des vapeurs du matériau à déposer pour réaliser un dépôt sur un substrat. Le transport des atomes de la cible vers le substrat nécessite un vide assez poussé (10^{-5} Pa) de façon à limiter la collision entre les atomes évaporés et ceux du gaz résiduel, pour limiter la contamination des couches déposées et augmenter la vitesse de dépôt [5]. Les procédés PVD les plus courants sont la pulvérisation cathodique et l'évaporation [50]. Il existe de nombreuses utilisations des revêtements préparés par PVD, les applications comprennent les pistes en aluminium et les résistances en céramique pour les circuits électroniques.

I-7-1-c Dépôt chimique en phase vapeur (CVD)

Le dépôt chimique en phase vapeur (CVD) signifie le dépôt du film à partir de précurseurs en phase gazeuse. La technique de dépôt chimique en phase vapeur est basée sur l'activation d'espèces gazeuses qui vont alors former un dépôt à la surface d'un substrat. L'activation des espèces se fait en apportant de l'énergie à un mélange gazeux dans une enceinte sous vide. L'apport d'énergie peut se faire par chauffage (CVD thermique) ou bien à l'aide d'un plasma (dépôt chimique en phase vapeur

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

assisté par plasma PECVD) [46]. La température du substrat en dépôt chimique en phase vapeur, nécessaire à la réaction gaz-surface, est environ de 600°C -1400°C[5]. Les différentes méthodes de CVD sont les dépôt par CVD à pression atmosphérique (APCVD), assistés par filament chaud (hot-wire CVD), assistés par laser (LCVD), dépôt chimique en phase vapeur à basse pression (LPCVD) et les dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma (PCVD ou PECVD). Le tableau I.3 regroupe les méthodes de dépôt chimique en phase vapeur et leur domaine de température.

Méthodes de CVD	Domaine de température
Le dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma (PECVD).	Inférieure à 400°C du gaz
Le dépôt chimique en phase vapeur assistés par laser LCVD	500-2500°C (du substrat)
Le dépôt chimique en phase vapeur à pression atmosphérique (APCVD)	400-1100°C (du substrat)
Dépôt photo chimique en phase vapeur (photo-CVD)	Inférieur à 300°C
Le dépôt chimique en phase vapeur à basse pression (LPCVD)	température de dépôt autour de 550°C
L'organométalliques (MOCVD)	300°C -800 °C
Le dépôt chimique en phase vapeur, assistés par filament chaud (Hot-wire CVD)	1625°C - 2027°C (du filament)

Tableau I.3 les méthodes de dépôt chimique en phase vapeur et leur domaine de température [5].

I-7-2 Procédé de dépôt par PECVD :

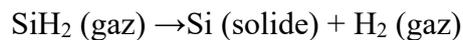
La production du film mince à partir d'un ensemble des réactions chimiques en phase gazeuse et de surface est appelée dépôt chimique en phase vapeur. Si les réactions en phase gazeuse et de surface sont stimulées par le plasma qui est généré par un champ électrique alternatif d'une fréquence de 13.56 MHz, le processus CVD est appelé dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma (PECVD).

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

La technique de dépôt PECVD permet de déposer des couches minces uniformes, homogènes sur de grandes surfaces de différents substrats tels que des verres, des métaux, des polymères et des céramiques à des températures entre 25°C et 400°C à faible pression et avec une épaisseur contrôlée.

Les films minces de silicium produits par PECVD ont une large gamme d'applications, y compris les transistors à couches minces pour écrans plats, les cellules solaires et les tambours d'exposition pour la xérographie. [3]

Les couches minces de silicium amorphe sont produites à partir des précurseurs utilisés pour le dépôt comme le silane, le silane hydrogène (SiH_4/H_2) ou le mélange silane- argon- hydrogène ($\text{SiH}_4/\text{H}_2/\text{Ar}$) [5]. Turban a étudié en détail les mécanismes de dissociation du silane dans un plasma. Les réactions principales conduisant au dépôt de silicium sont présentées sous la forme suivante:[51]:



La cinétique de la décharge PECVD dans le mélange $\text{SiH}_4/\text{H}_2/\text{Ar}$ a été décrite par Kushner (1988)[3]. Les ions positifs (en particulier SiH_4^+ , SiH_3^+ , SiH_2^+) sont produits par dissociation directe par impact électronique des molécules de silane. Ces ions positifs sont généralement instables par conséquent l'ionisation du silane est dissociative. Le bombardement de surface par des ions positifs joue un rôle critique dans la croissance des films de silicium amorphe, par conséquent, la décharge de silane est essentiellement électro-négative et les processus d'attachement dissociatif apportent une contribution significative à l'équilibre des particules chargées et à la production des ions négatifs de silane.

Les précurseurs les plus importants pour la croissance des couches minces de silicium amorphe sont les radicaux silanes, SiH_3 et SiH_2 , produits par dissociation directe par impact électronique des molécules de silane.

1-7-2-a Influence des paramètres de la décharge sur la croissance du film de silicium

Lors du dépôt de couches minces de silicium, par PECVD, à partir d'un des précurseurs cités ci-dessus, les conditions de la décharge plasma ont un effet significatif sur la cinétique de croissance des films. Nous rappelons dans ce qui suit, les paramètres de la décharge les plus influents.

i- Effet de la puissance de la décharge

La puissance de la décharge est un des paramètres qui contrôlent le plasma dans le réacteur. De plus, cette puissance a un effet, sur les films mince en croissance, très important. Il a été rapporté par des travaux expérimentaux que la vitesse de dépôt et la cristallinité des films dépendent de la puissance appliquée. L'augmentation de la puissance appliquée donne une augmentation de la vitesse de dépôt. Puisque la travailler avec une puissance plus élevée revient à augmenter la densité électronique, cela favorise la dissociation des particules et ainsi la création de plus d'espèces réactives qui vont contribuer à la formation des couches minces. L'augmentation de la puissance de la décharge augmente aussi le taux de réticulation[52]. Cependant, l'énergie apportée par une augmentation de puissance peut être aussi dissipée sous forme de photons ou de chaleur entraînant alors des pertes par dégradation [53-55]. Mais, à forte puissance, on constate une forte diminution de l'homogénéité des couches ainsi que l'apparition de creux à la surface du film [54].

ii- Influence de la pression du gaz

La pression est l'un des paramètres les plus influents sur les propriétés du plasma et par conséquent sur le processus de dépôt. Il a été observé que la cristallinité des films de silicium augmente avec la diminution de la pression de travail. À basse pression, la cristallinité est liée à la température électronique. Si la pression augmente, la température électronique tombe à un niveau bas alors que la densité plasmatique augmente avec la pression [48]. Une augmentation de la pression provoque une augmentation de la densité du gaz, ce qui conduit à une probabilité de réaction plus grande entre les espèces provoquant des vitesses de dépôt plus importantes [46]. Pour des pressions trop élevées, on observe une diminution de la vitesse de dépôt. Ce phénomène est attribué à une diminution des libres parcours moyens donc une

réduction de l'énergie moyenne des électrons, ce qui entraîne le déplacement vers les hautes énergies de la distribution en énergie des électrons, par conséquent des interactions électrons-molécules moins efficaces [53-57].

iii- Influence du débit de silane

L'influence des conditions de décharge, telle que le flux des gaz, la puissance et la pression sur les propriétés de matériau déposé est multiple. La nature du mélange des gaz utilisés pour le dépôt des couches minces joue également un rôle déterminant. La nature des couches de silicium déposées à partir du silane pur sont purement amorphes [58]. La vitesse de dépôt augmente linéairement avec le débit de silane. Quand le débit de silane augmente, le rapport entre la quantité des ions et la quantité des radicaux diminue. De plus, la concentration des radicaux SiH_3 augmente aussi. [46].

I-7-2-b Rôle de l'hydrogène additif au silane

Des nombreuses travaux expérimentaux ont montré que la dilution du silane avec de l'hydrogène améliore les propriétés des films déposés [53-54]. La dilution du silane avec l'hydrogène peut induire la cristallinité dans les couches de silicium déposées et diminuer la création des poudres. La présence d'hydrogène réduit une grande partie des liaisons pendantes et permet ainsi de réduire la densité des défauts. Cependant, une augmentation du débit d'hydrogène dans le mélange entraîne une diminution de la vitesse de dépôt du film, car le film de silicium peut être gravé par une concentration plus élevée de radicaux H. Pour contourner cette limitation, la dilution du silane avec des gaz rares est une autre façon de synthétiser les couches minces de silicium par PECVD avec une vitesse de dépôt élevée. Les gaz inertes comme l'hélium (He) et l'Argon (Ar) peuvent être utilisés comme gaz diluants. [58]

I-7-2-c Vitesse de croissance des films déposés

Plusieurs travaux s'intéressent au calcul de la vitesse et du taux de déposition de couches minces [59-60]. La vitesse de dépôt est déterminée à partir de l'épaisseur maximale de la couche d et du temps de dépôt t .

Les vitesses de dépôt sont environ de quelques microns par minute pour des températures très hautes (1000-1200°C) suivant le gaz utilisé [49]. Pour obtenir une

vitesse de dépôt élevée, il est nécessaire de travailler avec un certain débit de gaz. Des études expérimentales [54–55] ont montré que dans un plasma du silane dilué avec de l'hydrogène, la concentration de silane est le paramètre le plus important pour la croissance de films de silicium de bonne qualité. Pour augmenter la vitesse de dépôt, il est intéressant de changer la composition du gaz réactif en diluant le silane avec un gaz inerte tel que l'hélium ou l'argon [58].

La vitesse de croissance des films déposés par ICP est influencée par les paramètres de la décharge. Une grande valeur de la pression du gaz et de la puissance induit une grande vitesse de dépôt des couches. Dans le cadre de ce travail, nous avons simulé la variation du taux de croissance des films de silicium déposés par ICP-CVD, en fonction de la puissance appliquée, de la pression de gaz et de la dilution de l'hydrogène dans le mélange gazeux

I-8 Conclusion

Le dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma est parmi les techniques d'élaboration les plus utilisées pour la réalisation de couches minces. Le matériau de base pour la fabrication des couches minces est le silicium. Les couches de silicium sont d'une très grande importance dans un très grand nombre d'applications.

Dans ce premier chapitre, nous avons rappelé quelques notions de base sur les paramètres et les caractéristiques des plasmas en général, sur leurs classifications, les différents types des collisions mises en jeu ainsi que les décharges plasma.

Nous avons par la suite présenté des généralités sur les mécanismes de dépôt des couches minces de silicium ainsi que l'influence des paramètres de la décharge plasma (la puissance, la pression et le débit de silane) sur le taux de croissance de ces films, lors de dépôts par ICP-CVD.

Références bibliographiques du chapitre I

- [1] Paul M. Bellan, «Fundamentals of Plasma Physics», Cambridge University Press, ISBN 978-0521528009, 2006.
- [2] Fridman, Alexander, A. Kennedy and A. Lawrence, «Plasma Physics and Engineering», ebook ISBN13: 9780203334874, 2004.
- [3] Alexander Fridman, «Plasma Chemistry», Cambridge University Press, ISBN 978-1107684935, 2008.
- [4] A. Bogaerts, E. Neyts, R. Gijbels, J. V. Mullen «Gas discharge plasmas and their applications», ELSEVIER, Spectrochimica Acta Part B 57, 609–658, 2002.
- [5] H. KEBAILI, « Contribution à l'étude par la simulation numérique de Dynamique Moléculaire de la croissance des couches minces par procédé PECVD », Mémoire de magister, université Kasdi Merbah Ouargla, 2013.
- [6] P. Fauchais, «Gaz ionisés et plasmas», Techniques de l'Ingénieur, AF 3 560.
- [7] Jean-Marcel Rax, «Physique Des Plasmas, Cours et applications », © Dunod, Paris, 2005.
- [8] Bernard Held, «Physique des Plasmas froids », Masson, Paris, ISBN: 2-225-84580-8, ISSN: 0229-2434, 1994.
- [9] J.L. Delcroix, A. Bers « Physique des plasmas », volume I et II, publié dans Inter Editions/CNRS Editions, 1994.
- [10] Francis F. Chen Jane P. Chang, « Principales of plasma processing », thèse de Doctorat de l'université de California, Los Angeles, 2002.
- [11] Tsun-Hsu Chang, «Introduction to Plasma Physics», National Tsing Hua de l'université, Taiwan. 2012.

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

[12] P.K. Shukla, A.A Mamun, « Introduction to Dusty Plasma Physics», Series in Plasma Physics, ISBN 0-7503-0653-X, 2001.

[13] S. Rebiaï, H. Bahouh, S. Sahli, «2-D Simulation of dual frequency capacitively coupled helium plasma, using COMSOL Multiphysics», IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul, Vol. 20, Issue 5, pp. 1616-1624, 2013.

[14] A. Berkane, S. Rebiaï, « Simulation d'une Décharge radio fréquence Dans l'Argon à Basse pression» Séminaire International sur la Physique des Plasmas SIPP'2013, UKM Ouargla, 2013.

[15] F. Bouanaka, « Contribution à la Modélisation des Plasmas de Dépôt Basse Pression», thèse de Doctorat de l'université de Constantine1, 2014.

[16] H. Bahouh, « Modèle fluide d'une décharge plasma radiofréquence».Thèse de Doctorat de l'université de Constantine1, 2014.

[17] A. BERKANE,«Modélisation de mécanismes se produisant dans un plasma de dépôt», thèse de Doctorat de l'université de Constantine1, 2015.

[18] J.P. Boeuf, « Numerical model of rf glow discharges », Phys. Rev. A 36(6), 2782, 1987.

[19] K. Miyamoto, «Plasma Physics and Controlled Nuclear Fusion», University of Tokyo Press, ISSN 1615-5653, ISBN 3-540-24217-1, 2004.

[20] T.J.M. BOYD, J.J. SANDERSON, «The Physics of Plasmas», university Cambridge Press, ISBN 978-0-511-07733-3, 2003.

[21] Micheal A. Liebermann et Allan J. Lichtenberg, « Principles of plasma discharges and materials processing», A John Wiley & sons, INC Publication, ISBN 0-471-72001-1, USA, 2005.

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

[22] Christian Sarra-Bournet, « Design et réalisation d'un réacteur plasma à pression atmosphérique », thèse doctorat université LAVAL, 2007.

[23] L. Tonks, I. Langmuir, « Oscillations in Ionized Gases », Physical Review, vol 33, 1929.

[24] Y.P. Raizer, « Gaz Discharge Physics », ISBN 3-540-19462-2, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York , ISBN 0-387-19462-2, Springer-Verlag New York Berlin Heidelberg, Moscow, April 1991.

[25] A. Granier, M.C. Bordage, J-B-A Mitchell, C Rebrion-Rowe, Collectif, « Plasmas Froids, Cinétiques, transports et transferts », Publication de l'université SaintEtienne, collection : integrations, N°7, ISBN : 2862723916, 2-86272-391-6, 9782862723914, 2005.

[26] C. K Birdsall, A. B Langdon, « Plasma Physics via Computer Simulation », IOP Publishing Ltd, ISBN 0-07-005371-5, 1991.

[27] D. BENYOUCEF, « modélisation particulière et multidimensionnelle des décharges hors équilibre à basse pression excitées par champs électromagnétiques », thèse doctorat de l'université de TOULOUSE, 2011.

[28] John Harry, « Introduction to Plasma Technology », WILEY-VCH Verlag & Co. KGaA, 2010.

[29] J.A. Bittencourt, « Fundamentals of Plasma Physics », first edition British Library Cataloguing in Publication Data, ISBN 0-08-033924-7, ISBN 0-08-033923-9, p24-32, 1986.

[30] Lucie BRES, « Interaction entre un plasma froid à la pression atmosphérique et des surfaces thermoplastiques industrielles : application à l'activation de surface », thèse doctorat de l'université de Toulouse, 2017.

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

[31] D wight R. Nicholon, «Introduction to Plasma Theory», John Wiley & Sons, Inc, 1983.

[32] J.C.F. Iza, , J.K. Lee, Senior, and C-Mo Ryu, « Electron and Ion Kinetics in a DC Microplasma at Atmospheric Pressure », IEEE Transactions On Plasma Science, Vol. 35, N°. 5, 1274-1278, October 2007.

[33] Nabil IKHLEF, «Modélisation numérique d'une installation convertisseur plasma d'induction en vue d'une commande optimale», thèse de doctorat de l'université de Batna, 2010.

[34] J. P Boeuf « A two dimensional model of dc glow discharges», J. Appl. Phys. 63(5), 1342- 1349, March 1988.

[35] Pascal Chabert and Nicholas Braithwaite, «Physics of Radio-Frequency Plasmas», universite Cambridge press, 2011.

[36] T. R. Govindan and M. Meyyappan «One-Dimensional Modeling Studies of the Gaseous Electronics Conference RF Reference Cell», Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology, vol 100, No 4, pp.463-472, 1995.

[37] Krishna Seshan, « Handbook of thin-film deposition processes and techniques», Norwich, New York, U.S.A, 2002.

[38] H. Bahouh, S. Rebiaï, F. Bouanaka, S. Sahli, «Fluid Model Simulation of DC Glow Discharges», Advanced Materials Research, Vol. 227, pp116-120, 2011.

[39] P. Scheubert, P. Awakowicz, R. Schwefel, G. Wachutka, «Fluid dynamic modelling and experimental diagnostics of an inductive high density plasma source(ICP) », Surface and Coatings Technology 142-144, pp.526-530, 2001.

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

[40] Plihon Nicolas, «stabilité et structure électrique d'une décharge inductive en gaz électronégatif», thèse de doctorat de l'école polytechnique. 2006.

[41] M. Mao, A. Bogaerts, «Investigating the plasma chemistry for the synthesis of carbon nanotubes/nanofibres in an inductively coupled plasma enhanced CVD system: the effect of different gas mixtures», J. Phys. D: Appl. Phys. 43, pp.20, 2010.

[42] Alexander Fridman and Gary Friedman, « Plasma Medicine», John Wiley & Sons, 2013.

[43] Dimitris P. Lymberopoulos, «two dimensional self consistent radio fréquence plasma simulations relevant to the gaseous electronic conference RF reference cell». Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology, 100, 473, 1995.

[44] Justine Johannes, «Direct Simulation Monte Carlo of Inductively Coupled Plasma and Comparison with Experiments», J Electrochem. Soc., Vol. 144, No. 7, July 1997.

[45] G.C. Joyce, D.T.J. Hurle ET Q.QA.E. Vaughan, «Novel Development of the Weighing Method for Automatic Czochralski Crystal Growth of Semiconductors», Journal of Crystal Growth, 132, 1, 1993.

[46] A. Barhdadi, « A propos de la préparation et la croissance de couches minces de a Si:H à basse température par la technique Hg-Photo-CVD», Afrique Science, Vol. 01, pp 15–30. 2005.

[47] Reynald Alcotte, « Epitaxie en phase vapeur aux organométalliques de semiconducteurs III-As sur substrat silicium et formation de contacts ohmiques pour les applications photoniques et RF sur silicium», thèse de doctorat de l'université GRENOBLE ALPES, 2016.

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

[48] O. Nilsen, O. Bjørn Karlsen, A. Kjekshus, H. Fjellvåg, «Simulation of growth dynamics in atomic layer deposition. Part I. Amorphous films», *Thin Solid films*, Vol. 515, pp 4527–4537 .2007.

[49] Stephen Giraud, «Croissance de couches minces de silicium pour applications photovoltaïques par epitaxie en phase liquide par évaporation du solvant», thèse de doctorat de l'université de Grenoble, 2014.

[50] Amanda Thouvenin, «Dépôt et caractérisation de couches minces de SiC_xNy. Hpar CVD assistée par plasma micro-ondes ECR avec précurseurs organosiliciés», thèse de doctorat de l'université de Lorraine, 2016.

[51] J. Zhuang, W. Shang, L. Liu et D. Wang, «Numerical Simulation of Hydrogen Dilution Effects on Deposition of Silicon Film at Atmospheric Pressure RadioFrequency Argon Silane Plasma», *Plasma Science and Technology*, Vol. 12, N° 1, pp71-75, 2010.

[52] Menno Thomas van Os, « Surface modification by plasma polymerization: film deposition, tailoring of surface properties and biocompatibility», thèse de doctorat de l'université de Twente, 2000.

[53] Danko Stephan, Dirk Bluhm, Valentin Bolsinger, Wladislaw Dobrygin, Oliver Schmidt and Ralf Peter Brinkmann, « A global model study of silane/hydrogen discharges», *J. Plasma Sources Sci. Technol*, 055009, 2013.

[54] J.H. Hsieh, H. C. Liang, Y. Setsuhara and C. Li, « Deposition and characterization of a- and μ c-Si:H thin films by ICP-CVD system with internal antennas», *Surface Coatings Technology*.231, 550, 2013.

[55] Chen Jiuxiang, WANG Weizhong, JyhShiram CHERNG and CHEN Qiang, « High Growth Rate of Microcrystalline Silicon Films Prepared by ICP-CVD with Internal Low Inductance Antennas», *J. Plasma Science and Technology*.16, 502, 2014.

Chapitre I Notions fondamentales sur les décharges plasma et les générateurs de dépôts de couches minces.

[56] W. M. M. Kessels, A. H. M. Smets et M. C. M. van de Sanden, «The a-Si: H growth mechanism and the role of H abstraction from the surface by SiH₃ radicals via an Eley–Rideal mechanism», Journal of Non-Crystalline Solids, Vol. 338/340, pp 27–31, 2004.

[57] Yuri Viktorovich Ivanov, «Modeling of ICP reactive discharges and numerical investigation of related nonlinear phenomena», thèse de doctorat de l'université de la Ruhr Bochum, 2004.

[58] O. Babahani, F. Khelifaoui et M. T. Meftah, «Analytical calculation of site and surface reaction probabilities of SiH_x radicals in PECVD process», Eur. Phys. J. Appl. Phys, Vol. 62 N° 1 pp 10301-10307. 2013.

[59] Fethi Khelifaoui and Oumelkheir Babahani, «How to Use the Monte Carlo Simulation Technique? Application: A study of the Gas Phase during Thin Film Deposition Theory, Application, and Implementation of Monte Carlo Method», Science and Technology, 2019.

[60] W. M. M. Kessels, A. H. M. Smets, D. C. Marra, E. S. Aydil, D. C. Schram et M.C.M. van de Sanden, «On the growth mechanism of a-Si:H», Thin Solid Films, Vol. 383, pp 154-160, 2001.

Chapitre II

**Modèle traité et
système d'équations
(plasma, écoulement et
dépôt de couches de
silicium (réactions
chimiques))**

II-1 Introduction

Un plasma est un gaz partiellement ou totalement ionisé, constitué d'un ensemble globalement électriquement neutre, comprenant des électrons, des ions positifs et négatifs, des atomes et de molécules. L'étude d'un plasma nécessite la description de la dynamique de ses particules chargées ainsi que des particules neutres et de leur couplage avec le champ électromagnétique.

Nous consacrons ce chapitre à la modélisation des décharges plasmas. Nous rappelons, dans un premier temps, les trois modèles physiques qui sont le plus utilisés pour décrire les décharges électriques dans un plasma à basse pression. Il s'agit des modèles fluide (macroscopique), particulaire (microscopique) et hybride. Ensuite nous présenterons le système d'équations qui gouvernent la décharge dans un plasma radiofréquence ainsi que les approximations appliquées pour simplifier ces équations. Nous rappellerons, par la suite, le système d'équations utilisées pour décrire l'écoulement du gaz dans le réacteur étudié. Le système d'équations ainsi présenté sera exploité par notre modèle de décharge plasma à couplage inductif (ICP), élaboré sous logiciel COMSOL Multiphysiques dans le cas d'un réacteur de type Cellule de référence GEC «Gaseous Electronics Conference».

II-2 Modélisation numérique des plasmas

La description d'une décharge dans un plasma RF à basse pression est un problème compliqué en raison de la complexité des phénomènes électriques et leur couplage.

Les particules chargées se déplacent dans le champ qui dépend lui même de leurs densités. Cela signifie qu'il faut prendre en compte le couplage entre le transport des particules chargées et le champ électrique. Il faut aussi décrire les interactions de toutes les espèces au sein du plasma, y compris des photons et le transport des particules chargées doit être couplé avec la cinétique des neutres [1].

La résolution des équations de Boltzmann est relativement complexe et le couplage avec les phénomènes électriques ne fait qu'accroître la difficulté. Pour cela, trois approches différentes sont développées, suivant la nature de la décharge plasma, pour décrire simplement la cinétique des particules chargées dans une décharge électrique [2-4]. Ces approches sont rappelées dans les paragraphes suivants.

II-2-1 Modèle particulaire

Le modèle particulaire ou microscopique est destiné à simuler le comportement des plasmas. Il est basé sur le traitement de chaque type de particules (des électrons et des ions) jouant un rôle dans la formation du plasma et suivre leurs mouvements dans l'espace des phases.

Les équations du mouvement pour chaque particule de masse m , de charge q et de vitesse v , soumise à un champ électrique E et un champ magnétique B en l'absence de collisions est donnée par la relation suivante :

$$m \frac{dv}{dt} = q(E + v \times B) \quad (\text{II-1})$$

Le domaine de calcul dans ce modèle est spatialement divisé en cellules élémentaires. Les densités des particules chargées sont calculées au centre de chaque cellule. Le champ électrique est calculé dans ces cellules par la résolution de l'équation de Poisson. Puis, on calcule les nouvelles forces exercées sur chaque particule compte tenu de la charge d'espace accumulée. Le libre parcours ou le temps de vol libre de chaque particule est déterminé à l'aide de tirage d'un nombre aléatoire. Le type de collision est ensuite obtenu en comparant le rapport des fréquences ou des sections efficaces à un autre nombre aléatoire [4]. Le lecteur peut avoir plus de détails de sur les méthodes particulières dans la littérature [5-8].

En présence de collisions, on doit compléter la méthode particulaire (PIC) avec la méthode Monte-Carlo (MC). Le principe de la méthode est basé sur les probabilités, où les collisions sont initiées en tirant des nombres aléatoires compris entre 0 et 1. Cette méthode (PIC-MCC) permet de suivre, d'une manière très précise, dans l'espace et dans le temps, le mouvement d'une particule ou plusieurs espèces (électrons, ion) existant dans une décharge hors équilibre thermodynamique soumise au champ électrique [9-15]. Les méthodes particulières ont été utilisées pour décrire les processus de collisions élastiques dans les diodes basse pression.

II-2-2 Modèles hybrides

La modélisation hybride est un mélange entre la modélisation fluide et la modélisation particulaire. Le modèle hybride est appliqué pour désigner une simulation en

considérant deux classes des électrons. Ces deux groupes de populations électroniques sont partiellement indépendants. Le premier groupe inclut la majorité des électrons à faible énergie. Le deuxième groupe est composé par les électrons énergétiques accélérés en présence du champ électrique. Afin d'optimiser le temps de calcul, les électrons du premier groupe sont traités à l'aide du modèle fluide. Par contre, les électrons rapides sont traités en adoptant une méthode de type Monte Carlo (MC) [10-16].

Un des avantages de l'utilisation du modèle hybride est qu'il permet de surmonter l'obstacle lié au problème principal des modèles basés sur les moments de l'équation de Boltzmann [17-19] qui nécessitent une description réaliste du terme source d'ionisation due aux électrons énergétiques [2].

II-2-3 Modèle fluide

L'approximation fluide est basée sur l'hypothèse suivant laquelle les différentes particules qui constituent le plasma sont à l'équilibre. Les modèles fluides sont des modèles de décharges plasmas où les descriptions du transport des particules (électrons et ions), sont basées sur des valeurs moyennes [4,9]. Les modèles fluides sont les plus largement utilisés dans les études des plasmas froids à basse pression pour leur rapidité de calculs et leur simplicité. Le modèle fluide résout les trois premiers moments de l'équation de Boltzmann dans le temps et l'espace (cf. chapitre 1). Ce modèle présente le milieu plasma en fonction des quantités macroscopiques définies en chaque point (vitesse moyenne, densité, flux de chaleur, pression et énergie) [20].

La base des modèles fluides nécessite deux hypothèses principales pour limiter le nombre d'équations et fermer le système d'équations obtenues. La première hypothèse concerne l'ordre physique pour limiter le nombre d'équations hydrodynamiques générées par l'équation de Boltzmann. On peut aller par exemple jusqu'au deuxième moment de l'équation de Boltzmann (ordre 1) ou jusqu'au troisième moment (ordre 2). A l'ordre 1, on considère l'équation de conservation de la densité et de la quantité de mouvement tandis qu'à l'ordre 2, on ajoute l'équation de conservation de la densité d'énergie.

La seconde hypothèse concerne la condition de fermeture du système ce qui exige des hypothèses supplémentaires. A l'ordre 1, le système est fermé en adoptant l'hypothèse du champ local où les paramètres de transport et de réaction sont supposés dépendre directement du champ électrique régnant localement à un instant donné dans la décharge électrique. A l'ordre 2, le système est fermé en utilisant l'hypothèse de l'énergie locale où les paramètres de transport et de réaction sont supposés dépendre directement de l'énergie moyenne des particules chargées.

II-2-3-a Approximation du champ local (ACL)

L'approximation du champ électrique local est supposée qu'il n'y a aucun transport d'énergie dans le système autre que les processus collisionnels. Les coefficients de transport des électrons et les taux des réactions qui permettent d'écrire les termes de dérive et de diffusion à un point donné et en un instant donné sont à la fois fonctions du champ électrique existant au même instant et au même endroit.

Cette approximation suppose aussi que la fonction de distribution d'énergies au point r et à l'instant t est considérée la même que pour un champ électrique uniforme ou local [4,10]. ACL signifie que l'énergie gagnée par les électrons, en présence du champ électrique, est localement compensée par la perte d'énergie due aux collisions.

II-2-3-b Approximation de l'énergie locale (AEL)

Dans l'approche de l'énergie moyenne locale, les termes sources d'ionisation dépendent de l'énergie moyenne locale des particules et non plus du champ local. Pour améliorer la représentation des processus d'ionisation, un troisième moment de l'équation de Boltzmann correspondant à l'équation de transport de l'énergie des électrons est ajoutée au système. L'ionisation ne dépend que des électrons rapides, qui sont moins nombreux, tandis que l'énergie moyenne est déterminée par les électrons lents.

Cette approximation suppose aussi que la fonction de distribution est complètement déterminée par la densité et l'énergie moyenne locale électronique ou ionique. Cette hypothèse est capable de négliger les variations non physiques de la FDE dans les régions de la gaine, obtenues quand l'approximation ACL est adoptée [9,20].

II-3 Systèmes d'équations

Le modèle électrique auto-cohérent consiste à décrire le couplage entre le champ électrique et les phénomènes de transport des particules chargées. Le transport des particules dans une décharge radiofréquence peut être décrit par l'équation de Boltzmann. Les phénomènes d'induction dans le plasma peuvent être décrits par les équations de Maxwell. Le mouvement des fluides dans l'approximation des milieux continus peut être décrit par l'équation de Navier-Stokes. Toutes ces équations se résument comme suit :

II-3-1 Équation de continuité

L'intégration de l'équation de Boltzmann sur de l'espace de vitesse résulte le premier moment de Boltzmann :

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \nabla(nv) = S - L \quad (\text{II-2})$$

Où n est la densité des espèces chargée

Les termes de perte (L) et de source (S) correspondent respectivement aux collisions créant et détruisant des particules.

S est dû à l'ionisation par des collisions électron-neutre

L est dû à la recombinaison qui est négligeable ($L=0$) car nous travaillons à faible pression (<100 Torr). Le moment appliqué à chaque espèce chargée fournit le système suivant :

$$\begin{cases} \frac{\partial n_e}{\partial t} + \nabla(\Gamma_e) = S_e \\ \frac{\partial n_i}{\partial t} + \nabla(\Gamma_i) = S_i \end{cases} \quad (\text{II-3})$$

Où n_e et n_i sont respectivement les densités électronique et ionique,

$\Gamma_e = n_e v_e$ et $\Gamma_i = n_i v_i$ leurs flux respectifs. Avec v_e et v_i les vitesses moyennes des électrons et des ions.

S_e et S_i leurs termes sources respectifs [21].

$$S_e = (v_i - v_a)n_e - r_e n_e n_p \quad (\text{II-4})$$

v_i : La fréquence moyenne d'ionisation.

v_a : La fréquence moyenne d'attachement.

r_e : Le coefficient de recombinaison.

Les collisions élastiques ne changent pas le nombre de particules. Lorsque nous négligeons les sources comme l'ionisation ou les pertes telle la recombinaison nous obtenons :

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \nabla(\Gamma_e) = 0 \quad (\text{II-5})$$

II-3-2 Équation de conservation de la quantité de mouvement

Cette équation est approximée par les équations de dérive-diffusion. Les flux des électrons et des ions s'écrivent alors :

$$\begin{cases} \Gamma_e = -n_e \mu_e E - D_e \nabla n_e \\ \Gamma_i = -n_i \mu_i E - D_i \nabla n_i \end{cases} \quad (\text{II-6})$$

Où μ_e et μ_i sont les mobilités électronique et ionique, D_e et D_i sont les coefficients de diffusion électronique et ionique. Généralement, ces paramètres sont appelés coefficients de transports.

II-3-3 Équation de conservation de l'énergie

L'équation de la conservation de l'énergie est importante pour certains aspects de la physique de plasma.

La conservation de l'énergie est régie par l'équation :

$$\frac{\partial}{\partial t} (n_e \cdot \varepsilon_e) + \nabla \Gamma_{\varepsilon,e} + \frac{2}{3} n_e \varepsilon_e \nabla \cdot v + \nabla q = S_{\varepsilon,e} \quad (\text{II-7})$$

Où $n_e \cdot \varepsilon_e$ la densité d'énergie thermique (J/m^3), Γ_{ε_e} , le flux d'énergie thermique macroscopique des électrons (W/m^2), ε_e est l'énergie moyenne des électrons. Le terme $\frac{2}{3} n_e \varepsilon_e \nabla \cdot v$ représente le chauffage ou le refroidissement du fluide selon la compression ou l'expansion de son volume (W/m^3), q le flux de chaleur (W/m^2) et S_{ε_e} le terme source de l'énergie des électrons.

Si le fluide ne chauffe/refroidit pas, et le flux de chaleur est négligeable le moment se simplifie sous la forme suivante :

$$\frac{\partial}{\partial t} (n_e \varepsilon_e) + \nabla \Gamma_{\varepsilon_e} = S_{\varepsilon_e} \quad (II-8)$$

Le flux Γ_{ε_e} est défini par :

$$\nabla \Gamma_{\varepsilon_e} = -\frac{5}{3} n_e \varepsilon_e \mu_e E - \frac{5}{3} D_e \nabla (n_e \varepsilon_e) \quad (II-9)$$

Et le terme source s'écrit :

$$S_{\varepsilon_e} = -e \Gamma_e E - n_e L \quad (II-10)$$

II-3-4 Équation de Poisson

L'équation de poisson est couplée avec l'équation de Boltzmann pour les phénomènes de transport des particules chargées:

$$\Delta V = -\frac{e}{\varepsilon_0} \cdot (n_i - n_e) \quad (II-11)$$

Où V et e expriment la différence de potentiel entre les électrodes et la charge élémentaire.

II-3-5 Équations de Maxwell

Dans les décharges Plasmas à couplage inductif (ICP), telles que celles considérées dans notre étude, le champ électrique interne qui génère le courant est produit par un champ électromagnétique oscillant. La détermination du champ électrique couplée au

champ magnétique peut être obtenue par résolution des équations de Maxwell. Ces équations donnent les bases de l'électromagnétisme. Elles permettent de décrire les évolutions spatio-temporelles du champ magnétique et du champ électrique.

Ces équations associent le champ électrique E et le champ magnétique H à leurs sources : densité de charge ρ et densité de courant:

$$\text{div } \vec{D} = \rho \quad (\text{II-12})$$

$$\text{div } \vec{B} = 0 \quad (\text{II-13})$$

$$r \vec{\partial} t \vec{E} = - \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (\text{II-14})$$

$$r \vec{\partial} t \vec{H} = \vec{J} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (\text{II-15})$$

Les relations constitutives de milieu sont données généralement sous les formes suivantes :

$$\vec{B} = \mu \vec{H} \quad (\text{II-16})$$

$$\vec{D} = \epsilon \vec{E} \quad (\text{II-17})$$

Avec ces équations nous pouvons ajouter la loi d'Ohm:

$$\vec{J} = \vec{J}_{ind} + \vec{J}_s \quad (\text{II-18})$$

Avec :

$$\vec{J}_{ind} = \sigma \vec{E} + \sigma (\vec{v} \wedge \vec{B}) \quad (\text{II-19})$$

Avec:

J_{ind} : la densité de courant induit.

J_s : la densité de courant de source [A/m^2].

B : l'induction magnétique.

ρ : la densité volumique de la charge électrique [C/m^3].

D : le déplacement électrique ou l'induction électrique [$A.s/m^2$],

μ : la perméabilité magnétique (dans le vide $\mu = \mu_0 = 4\pi 10^{-7}$ [H/m]),

ϵ : la permittivité électrique (dans le vide $\epsilon = \epsilon_0 = 8.854410^{-12}$ [F/m])

v : le vecteur vitesse aux points considérés[m/s] .

σ : la conductivité électrique [Ω^{-1}/m].

Dans l'équation (II-15), le terme $\partial D / \partial t$ est appelé terme des courants de déplacement et correspond au phénomène de propagation des ondes électromagnétiques [9,22].

Dans le domaine de la radiofréquence ce terme peut être négligé.

L'équation (II.15) peut se simplifier pour donner le théorème d'Ampère :

$$\text{rot} \vec{H} = \vec{j} \quad (\text{II-20})$$

La densité de courant J est à flux conservatif est donnée par :

$$\text{div} \vec{j} = 0 \quad (\text{II-21})$$

Dans la configuration (2D) axisymétrique telle que celle représentée dans notre travail, les équations du champ électromagnétique de Maxwell sont formulées en termes de potentiel vecteur magnétique A tel que [23-25] :

$$\nabla^2 A - i\omega\mu_0\sigma A + \mu_0 j_{coil} = 0 \quad (\text{II-22})$$

Cette formulation est mieux adaptée à notre problème car elle offre un double intérêt: le système d'équations électromagnétique de Maxwell présente une seule inconnue, cette inconnue ne possède qu'une seule composante, A_ϕ la composante tangentielle du potentiel vecteur magnétique dans notre modèle [9].

II-3-6 Equations de Navier-Stokes

La mécanique des fluides gouverne de nombreux phénomènes d'écoulement de fluide. Les équations de Navier-Stokes sont nommées d'après deux physiciens du XIXe siècle, Claude Navier et George Stokes. Elles sont des équations aux dérivées partielles non-linéaires qui décrivent le mouvement des fluides dans l'approximation des milieux continus [22]. Ces équations vont nous permettre l'étude de l'écoulement du gaz neutre injecté dans le réacteur.

II.3-6-a Equation de conservation de masse ou équation de continuité

Dans le cas d'un fluide compressible en régime stationnaire, l'équation de conservation de masses écrit :

$$\nabla \cdot (\rho_m u) = 0 \quad (\text{II-23})$$

Avec ρ_m est la masse volumique du gaz.

u est la vitesse du fluide

Cette dernière appelée alors équation de compressibilité. Dans le cas d'un écoulement compressible, on ajoute pour fermer le système une équation d'état du fluide. Un fluide est dit incompressible lorsque l'on peut négliger ses variations de masse volumique [26,27].

II.3-6-b Equation de Conservation de la Quantité de Mouvement

L'équation de bilan de la quantité de mouvement pour un fluide peut s'écrire [27,28]:

$$\nabla \cdot (\rho_m uu) = -\nabla p + \left[\eta(\nabla u + \nabla u^T) - \frac{2}{3} \eta \nabla \cdot (uI) \right] + F \quad (\text{II-24})$$

Où p est la pression du fluide, η (Pa.s) la viscosité dynamique du fluide (dépend de la température et de la pression du gaz), T la matrice transposée, I la tenseur identité et F représente les forces de Lorentz ainsi que les forces de gravitation.

Avec :

$$F = \rho_m g + J \times B \quad (\text{II-25})$$

Où g est l'accélération de la pesanteur, J ; la densité de courant induit dans le plasma, calculé à partir de la conductivité électrique.

II-3-7 Dynamique des ions négatifs

La décharge RF est un piège efficace pour les ions négatifs. Les gaz et plasmas électronégatifs ont attiré beaucoup d'attention car ils ont des applications dans différents domaines, tels que le traitement de surface, la science atmosphérique, et les études environnementales [29]. Les processus de création et de perte des électrons et des ions négatifs sont différents, les électrons sont perdus en surface et en volume alors que les ions négatifs, confinés au cœur du plasma, ne sont perdus qu'en volume par détachement ou recombinaison. Dans les plasmas électronégatifs la condition de quasi neutre devient :

$$n_+ = n_e + n_- \quad (\text{II-26})$$

A basse pression, La relation de Boltzmann pour les électrons et les ions négatifs chacune avec sa température propre donne :

$$n_e = n_{e0} \exp \frac{eV}{kT_e} \quad (\text{II-27})$$

$$n_- = n_{-0} \exp \frac{eV}{kT_-} \quad (\text{II-28})$$

Pour quantifier l'influence des ions négatifs dans les plasmas électronégatifs, deux paramètres très importants sont employés théoriquement. Ces deux termes sont α_n l'électronégativité et γ le rapport des températures (Cf. chapitre 1)

L'équilibre de la décharge dépend des flux de pertes électroniques et ioniques aux parois (figure II-1), la présence d'ions négatifs modifie l'expression des flux de perte en surface [29].

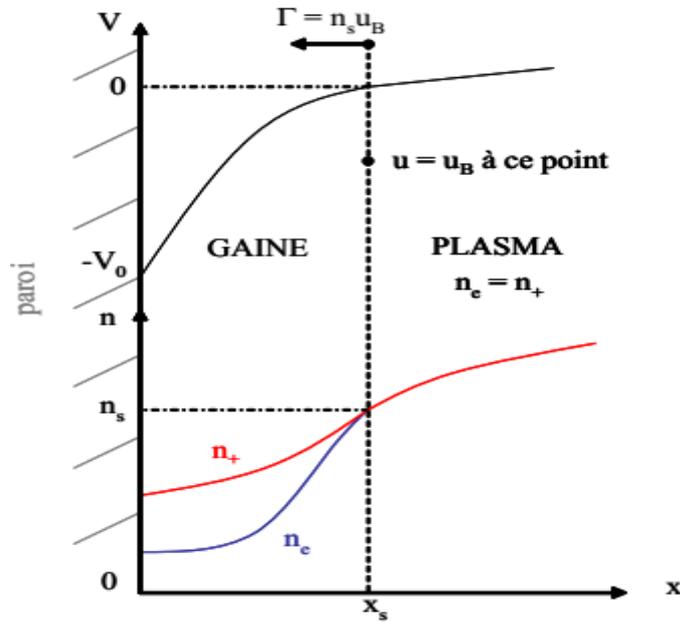


Figure II-1 : Profils de potentiel et de densités à la transition plasma/gaine [29].

Le critère de Bohm pour une gaine stable peut être généralisé à des distributions arbitraires d'ions et d'électrons. Le critère de formation de la gaine est tel que la vitesse des ions u_s doit être supérieure ou égale à la vitesse de Bohm u_B [30]:

$$u_s \geq u_B = \sqrt{\frac{eT_e}{m^+}} \quad (\text{II-29})$$

Où m^+ représente la masse des ions positifs.

Le flux d'ions à la bordure de la gaine est égal au flux d'ions à la paroi (la gaine étant généralement privée d'ionisation) et s'écrit: $\Gamma_+ = n_s u_B$.

Où n_s est la densité ionique à l'entrée de la gaine.

Un facteur géométrique h est introduit [31], de sorte que les flux de perte aux parois s'écrivent :

$$\Gamma_+ = \Gamma_e = h n_+ u_B = h n_e u_B \quad (\text{II-30})$$

Le critère de Bohm est généralisé en équilibre de Boltzmann pour les ions négatifs [32]. Ce critère, valide uniquement à basse pression, dans le cas d'un plasma électronégatif et s'écrit :

$$u_s \geq u_B = \sqrt{\frac{eT_e}{m_+} \frac{1+\alpha_s}{1+\gamma\alpha_s}} \quad (\text{II-31})$$

Où α_s représente l'électronégativité à la bordure de la gaine.

L'expression (II-31) tend vers la relation suivante pour une électronégativité très élevée ($\alpha_s \geq 1$):

$$u_s \geq u_B \sim \sqrt{\frac{eT_-}{m_+}} \quad (\text{II-32})$$

Généralement il existe trois structures électriques des plasmas électronégatifs [33]:

- Lorsque l'électronégativité est faible ($\alpha \leq 2$), les ions négatifs sont confinés au cœur du plasma à cause de leur faible température (figure II-2(a)).
- Comme le montre la figure II-2(b) pour une électronégativité moyenne ($2.5 \leq \alpha \leq 3.5$), la stratification reste prononcée, elle est associée à la présence d'une double couche, analysée comme un front d'ions négatifs similaire à un choc [34-36].
- Dans le cas d'une forte électronégativité ($\alpha \geq 4$) (figure II-2(c)), cette stratification disparaît. Les ions négatifs occupent la totalité du volume du plasma et la densité électronique possède un profil plat dans l'ensemble du plasma.

Le cas d'un plasma électronégatif sera traité au chapitre 3, dans le cas d'une décharge ICP dans un mélange oxygène–argon.

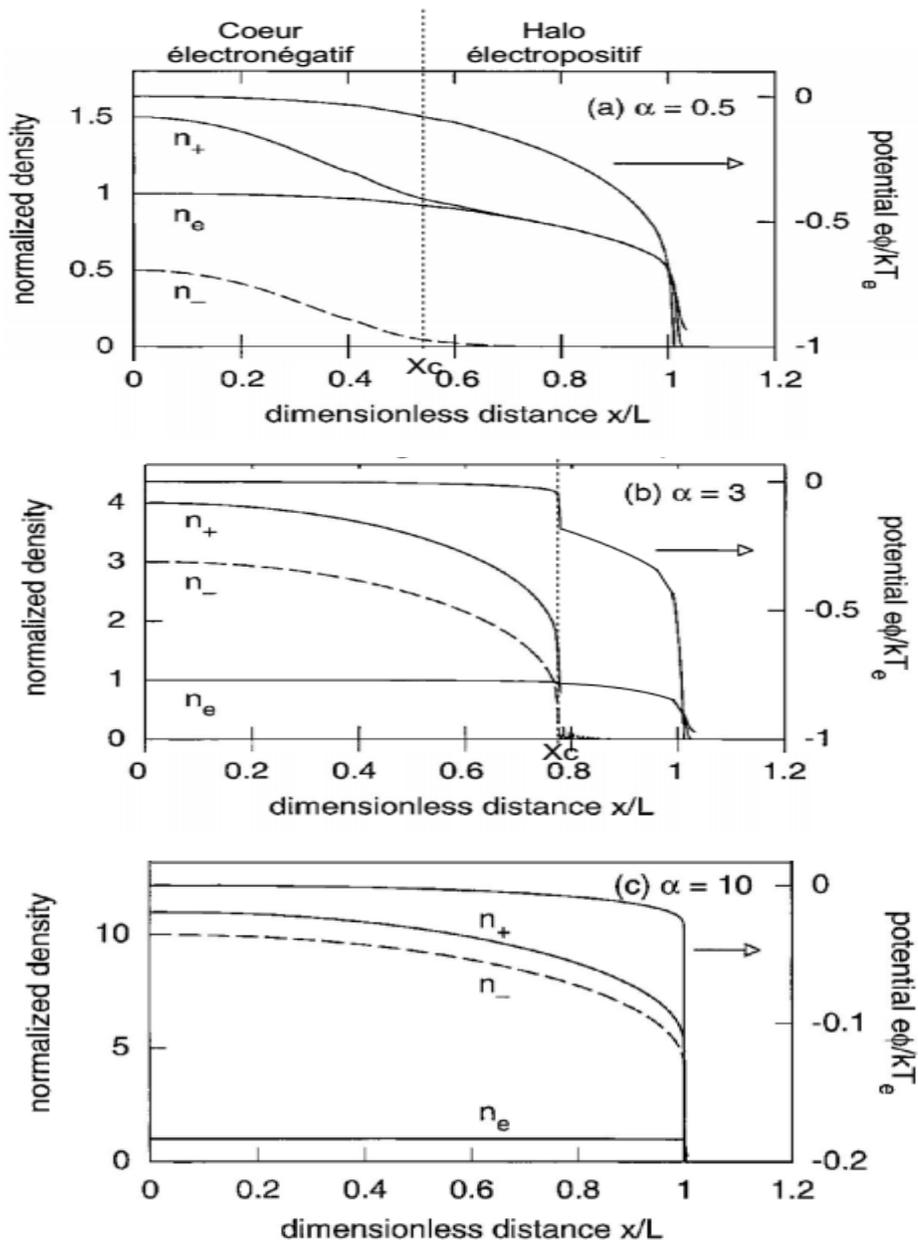


Figure II-2 : Structures électriques des plasmas électronégatifs [37]. (a) Régime de faible électronégativité, (b) régime d'électronégativité moyenne (c) régime de forte électronégativité.

II-4 Méthodes de résolution

Plusieurs méthodes analytiques, numériques ou mixtes (semi-analytique) sont utilisées pour la résolution des équations aux dérivées partielles. Les premières méthodes utilisées sont les méthodes analytiques. Elles consistent à résoudre les équations différentielles avec la technique de séparation des variables. Elles sont appliquées généralement à des géométries simples dans une approche unidimensionnelle, et rarement dans des approches bidimensionnelles [38]. Les méthodes numériques sont

largement adaptées avec le développement des ordinateurs. Les équations différentielles peuvent être résolues directement par les méthodes numériques. Les méthodes les plus fréquentes sont la méthode des différences finies, la méthode des volumes finis et celle des éléments finis.

II-4-1 La méthode des différences finies (MDF)

La méthode des différences finies consiste à approcher les dérivées des équations différentielles par un opérateur de différence appelé développement de Taylor. Cette méthode permet d'obtenir des résultats satisfaisants car elle est caractérisée par son faible coût de calcul et sa simplicité d'écriture, mais elle reste limitée à des géométries simples.

II-4-2 La méthode des volumes finis (MVF)

Le domaine de calcul, dans cette méthode, est divisé en volumes élémentaires. L'équation discrétisée par cette méthode est alors intégrée sur chaque volume élémentaire. La fonction inconnue est affichée à l'aide d'une fonction d'approximation (linéaire, exponentielle) entre deux nœuds consécutifs. Ensuite, la forme intégrale est discrétisée dans le domaine de calcul. Cela conduit à une solution plus précise que celle obtenue par la méthode des différences finies. Elle est plus utilisée pour résoudre les problèmes de la dynamique des fluides et elle est adaptée aux géométries quelconques.

II-4-3 La méthode des éléments finis (MEF)

La méthode des éléments finis consiste à diviser le domaine de calcul en domaines élémentaires de forme linéique, triangulaire ou quadrilatérale et à exprimer l'inconnue sur chaque élément par les fonctions d'interpolation en fonction des valeurs de l'inconnue en chacun des sommets de cet élément soit aux centres [22].

Pour les domaines tridimensionnels les éléments de maillage sont de forme tétraédrique ou prismatique, alors que dans les domaines bidimensionnels ce sont couramment des triangles [39-41]. La figure II.3 montre certains éléments pour des domaines uni et bidimensionnels.

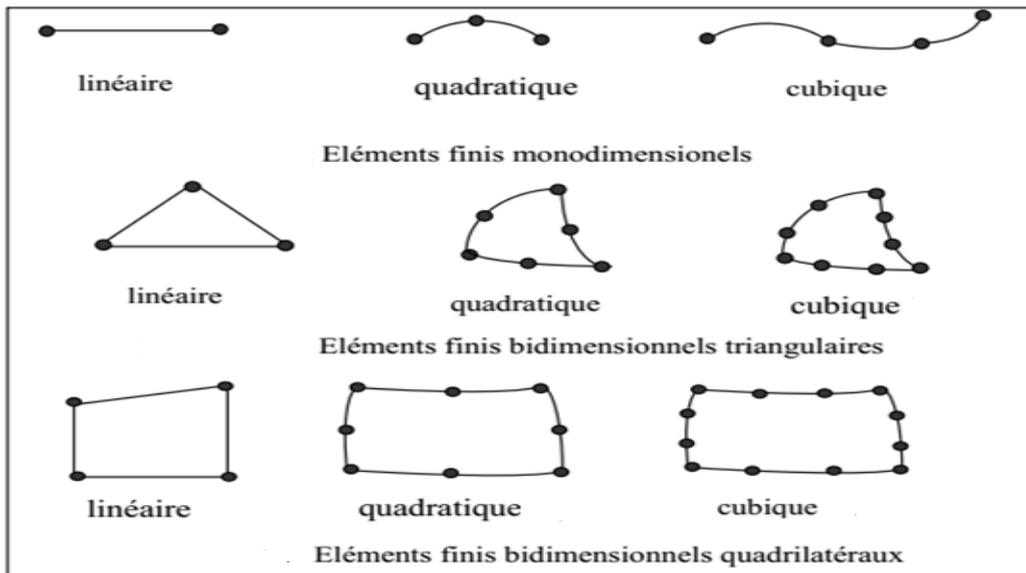


Figure II.3: Eléments finis pour les domaines uni et bidimensionnels [22].

La simulation numérique par la méthode des éléments finis de différents problèmes physiques ou multiphysiques a été largement utilisée dans la mécanique des fluides, la thermique, et l'électromagnétisme. Cette méthode est adaptée aux géométries complexes. Malgré cela, elle est un peu difficile à mettre en œuvre car elle requiert une grande capacité d'espace mémoire et un temps de calcul important [9].

II-5 Logiciel de simulation COMSOL multiphysiques

COMSOL est un logiciel de simulation permettant de résoudre des problèmes décrits par des équations aux dérivées partielles par la méthode éléments finis. Le modèle réalisé à l'aide du logiciel peut faire appel à plusieurs physiques qu'on introduit sous forme de module. Ainsi pour la simulation des plasmas, par exemple, on fait souvent appel au module plasma ainsi qu'aux modules écoulement et /ou transfert de chaleur. Dans ce logiciel ces équations sont exprimées dans des petits volumes permettant leur expression sous forme de différences simples et transformant le problème continu en un problème comportant un nombre fini d'équations et d'inconnues pouvant se résoudre avec des techniques d'algèbre linéaire. On comprend intuitivement que plus le volume de discrétisation sera petit plus le modèle discret approchera le modèle continu [42, 43].

Dans ce travail nous utilisons le logiciel COMSOL pour simuler la décharge et l'écoulement dans un réacteur plasma radiofréquence à couplage inductif par la méthode des éléments finis dans le but de faciliter la résolution numérique.

II-6 régimes de fonctionnement d'une décharge inductive

Une décharge inductive peut fonctionner dans deux régimes différents, suivant la valeur de la puissance injectée. Le premier, à haute puissance, appelé régime inductif (mode électromagnétique H) et le deuxième régime à basse puissance est appelé régime capacitif (mode électrostatique E), il est créé par couplage de la haute tension RF au gaz, à travers la fenêtre en quartz [44-46]. Pour décrire ces deux régimes il faut comparer la puissance perdue à la puissance absorbée par les électrons. La puissance perdue est proportionnelle à la densité électronique, elle est indépendante de la tension radiofréquence appliquée, La puissance absorbée dépend en revanche fortement du régime de fonctionnement (inductif ou capacitif) et particulièrement du chauffage des électrons. Le point de fonctionnement de la décharge correspond alors au point d'équilibre $P_{\text{abs}} = P_{\text{perdue}}$. La figure II-4, qui présente l'allure de la courbe résultante $P_{\text{abs}}(n_e)$ en fonction de la densité électronique, illustre les points de fonctionnement d'une décharge inductive.

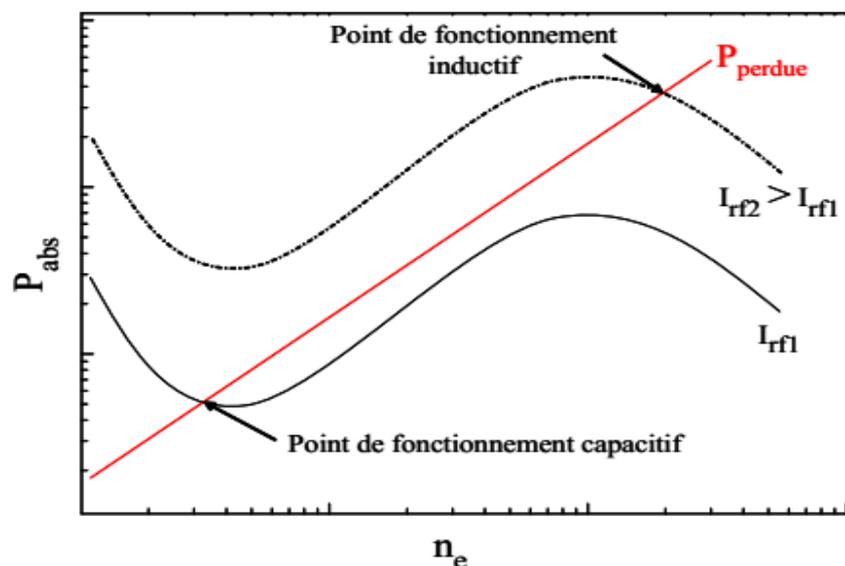


Figure II-4: les Points de fonctionnement d'une décharge inductive en fonction de la densité électronique et la puissance absorbée [47].

Sur cette figure on remarque qu'à cause du couplage capacitif, la puissance déposée augmente à nouveau lorsque n_e tend vers zéro. Sur la figure est également tracée la puissance perdue par les électrons qui varie linéairement avec n_e . L'intersection des deux courbes de puissance définit le point de fonctionnement du réacteur. En fonction de la valeur du courant RF, deux points d'équilibre stables sont possibles, un sur la branche capacitive (mode électrostatique E), l'autre sur la branche inductive (mode électromagnétique H). L'augmentation du courant RF entraîne une transition E-H relativement abrupte, les pentes de $P_{\text{abs}}(n_e)$ et $P_{\text{perdue}}(n_e)$ étant comparables au voisinage de la transition.

II-6-1 Le mode capacitif (E)

La densité électronique du plasma reste faible pour des faibles puissances radiofréquences. L'application d'une tension radiofréquence entre les deux extrémités de la bobine génère une circulation d'un courant radiofréquence dans la bobine. Cette tension crée un champ électrostatique capacitif entre la bobine et les parois du réacteur. Le champ électrique couplé au plasma à travers la fenêtre diélectrique est associé à un chauffage de nature capacitive dont la contribution domine à faible densité électronique [47]. Donc, pour un courant donné dans le régime de faible densité électronique, la puissance absorbée est proportionnelle à la densité n_e [48].

$$P_{\text{abs}} \propto I_{\text{rf}}^2 n_e \quad (\text{II-33})$$

II-6-2 Le mode inductif (H)

Dans le mode inductif, le plasma est caractérisé par une haute luminosité, des gaines fines et un potentiel de plasma relativement faible [9]. Les puissances plus importantes permettent l'apparition de forts courants induits car l'énergie absorbée par les électrons est importante ce qui mène à des densités de particules chargées assez élevée. Les courants circulant dans la bobine créent une onde qui pénètre dans le plasma sur l'épaisseur de peau δ .

La puissance absorbée est caractérisée par une contribution ohmique due au champ électromagnétique dans le plasma et une contribution stochastique due à l'interaction des électrons dans la profondeur de peau sur des temps faibles [44]. Le calcul du champ

électromagnétique dans un cylindre de rayon R fait apparaître deux cas limites. Pour un courant I_{rf} donné, la puissance absorbée croît linéairement avec la densité électronique pour les basses densités et elle décroît en racine carrée pour les hautes densités [47-48].

- le régime basse densité ($\delta \geq R$) où $P_{abs} \propto I_{rf}^2 n_e$ (II-34)

- le régime haute densité ($\delta \leq R$) où $P_{abs} \propto I_{rf}^2 / \sqrt{n_e}$ (II-35)

II-6-3 La transition E-H

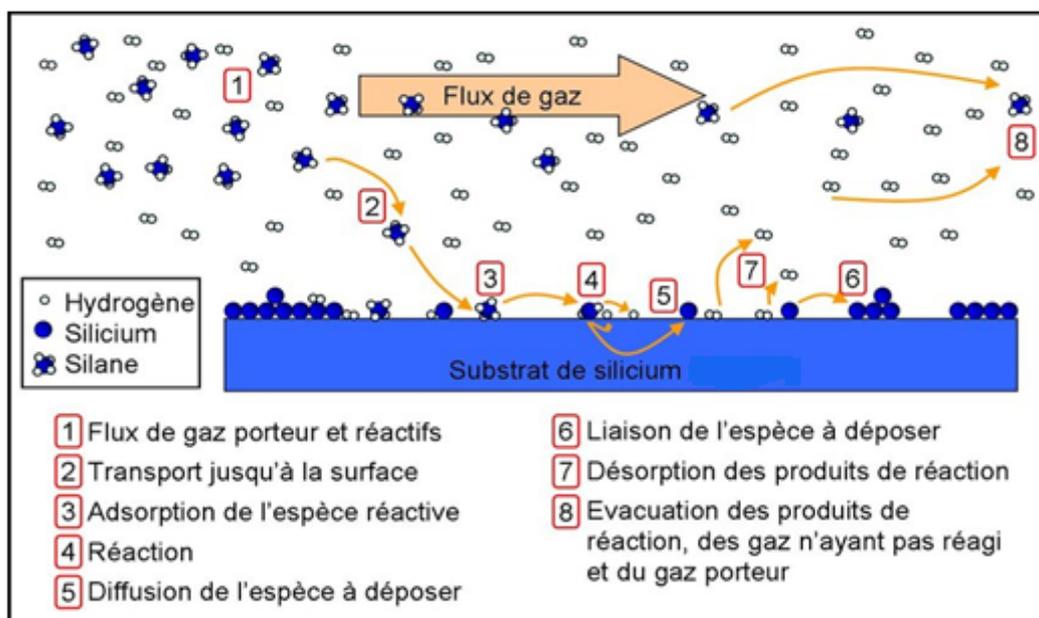
Lorsque la puissance radiofréquence est faible, le plasma fonctionne en régime capacitif (mode E), l'augmentation de la puissance radiofréquence provoque le passage du mode capacitif au mode inductif (mode H). Le saut entre les deux modes inductif et capacitif entraîne une transition E-H relativement abrupte qui est accompagnée d'un saut de la densité électronique et donc ioniques [9]. Les transitions E→H ou H→E n'ont pas lieu pour les mêmes valeurs de puissance ou de courant. Des travaux expérimentaux montrent que la transition E-H peut être instable dans le cas des gaz électronégatifs [47]. Pour éviter ces instabilités, et de manière générale les réacteurs à couplage inductif opèrent en mode H à une puissance nettement supérieure à celle des instabilités. Les valeurs de puissances considérées dans notre étude sont assez importantes, elles sont de 150 à 300 W pour le premier modèle élaboré et de 1000 à 3000 W pour le second, dans le cas de croissance de films de silicium hydrogéné.

II-7 Mécanisme de croissance du silicium amorphe hydrogéné

Les films de silicium amorphe Hydrogéné (a-Si:H) sont préparés par PECVD à l'aide du mélange Silane-Hydrogène-Argon ($SiH_4/H_2/Ar$) dans des réacteurs RF. Ces films sont très importants pour les technologies photovoltaïques [49-50].

La compréhension de mécanisme de la croissance des films de silicium est importante pour contrôler les propriétés morphologiques du film qui en résulte. Généralement on peut distinguer trois étapes de dépôt du silicium amorphe hydrogéné par plasma [49] (figure II-5) :

- La dissociation du gaz réactif (silane dilué avec hydrogène et argon), suite aux collisions inélastiques avec les électrons accélérés par le champ électrique.
- le transport de la matière jusqu'au substrat grâce au transport diffusionnel des espèces neutres.
- Les réactions des radicaux libres et des ions positifs avec la surface du substrat conduisent leur incorporation dans la couche en cours de croissance (dépôt) ou leur réémission sous forme de molécules stables vers la phase gazeuse (gravure).



La figure II-5 : le principe du dépôt de silicium à partir de silane [51]

Dans ce travail, nous présentons un modèle bidimensionnel axisymétrique de dépôt de films de silicium à partir d'un plasma à couplage inductif produit dans un réacteur Gaseous Electronics Conference (GEC) et son implémentation numérique sous COMSOL Multiphysics à partir d'un mélange composé d'argon, d'hydrogène et de silane. Ces différents gaz sont décrits dans ce qui suit.

II-7-1 L'argon (Ar)

C'est un gaz rare (noble) de numéro atomique 18 et de symbole Ar. L'argon est très difficile à réagir avec d'autres éléments chimiques car sa dernière couche électronique est saturée. Cette caractéristique rend l'argon comme un gaz plasmagène et un bon candidat pour les procédés de dépôt de couches minces et de pulvérisation [52]. L'argon

est généralement utilisé dans les dépôts par CVD pour obtenir une décharge stable et pour augmenter la vitesse de dépôt, la cristallinité des films déposés et les collisions entre les espèces présentes dans le plasma.

II-7-2 Le Silane (SiH_4)

Le tétrahydrure de silicium (SiH_4) connu sous l'appellation du silane est un gaz actif, incolore à l'odeur caractéristique. Le silane est utilisé généralement pour le dépôt de couche à base de silicium et dans la fabrication de silicium amorphe pour les tambours de photocopieuse ou les cellules solaires. [53-55]. Le silane est largement répandu dans diverses technologies des semi conducteurs tel que les écrans plats, les circuits intégrés et les cellules solaires.

II-7-3 L'hydrogène (H_2)

L'élément le plus léger dans la classification périodique de Mendeleïev c'est l'hydrogène (H_2). Le noyau d'hydrogène n'est composé que d'un unique proton et son atome compte un électron. Le gaz H_2 est le plus vieux de tous les éléments.

Aux premiers instants de l'univers, les noyaux d'hydrogène ont fusionné dans les étoiles pour donner naissance à des noyaux plus lourds [55-58].

II.8 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons donné un aperçu sur les différents modèles physiques d'une décharge RF tel le modèle fluide, particulaire et hybride. Dans le modèle fluide nous avons abordé les trois premiers moments de l'équation de Boltzmann qui nous ont permis de déduire les trois équations de transport des particules et d'émettre des hypothèses sur la fonction de distribution électronique.

Effectivement, dans le cadre de notre travail, nous nous intéressons à la simulation d'une décharge dans le cas de mélanges Ar/O_2 et $\text{SiH}_4/\text{Ar}/\text{H}_2$ dans un réacteur GEC-ICP à basse pression. En raison des faibles taux d'ionisation, le taux de collisions des électrons avec les neutres est plus élevé que celui des collisions électrons-ions et électrons-électrons ce qui nous permet de considérer l'approche fluide pour décrire et simuler les plasmas considérés dans cette étude. Par ailleurs, l'équation de Maxwell réduites sera utilisée pour les champs électromagnétiques (module plasma) et l'écoulement des gaz plasmagènes sera traité par les équations de Navier – Stokes, à l'aide du module

Chapitre II Modèle traité et système d'équations (plasma, écoulement et dépôt de couches de silicium (réactions chimiques)).

dynamique des fluides. L'ensemble des modules considérés est couplé par le logiciel COMSOL multiphysics qui résout les systèmes d'équations par la méthode des éléments finis.

Références bibliographiques du chapitre II

- [1] H. Bahouh, S. Rebiaï, F. Bouanaka, S. Sahli, « Fluid Model Simulation of DC Glow Discharges », *Advanced Materials Research*, Vol. 227, pp116-120, 2011.
- [2] J. P Boeuf « A two-dimensional model of dc glow discharges », *J. Appl. Phys.* 63(5), 1342- 1349, March 1988.
- [3] A. Salabas, G. Gousset and L. L. Alves, « Two-dimensional fluid modelling of charged particle transport in radio-frequency capacitively coupled discharges », *Plasma Sources Sci. Technol.* 11, pp.448–465, 2002.
- [4] Djilali BENYOUCEF, « Modélisation particulière et multidimensionnelle des décharges hors équilibre a basses pressions excitées par champs électromagnétiques », thèse de Doctorat de l'université de Toulouse, 2011.
- [5] V. Vahedi and M. Surenda, « A Monte Carlo collision model for the particle-in-cell method: Application to argon and oxygen discharge », *Comput. Phys*, 1995.
- [6] K. Radouane, B. Despax, M. Yousfi, J. P. Couderc, E. Klusmann, H. Meyer, R. Schulz, et J. Schulze, « Two-dimensional electrical modeling of asymmetric radiofrequency discharges for geometry effect analysis: comparison with experiments », *J. App. Phys*, 2001.
- [7] D. Benyoucef, M. Yousfi, B. Belmadani, A. Settaouti, « PIC MC Using Free Path for the Simulation of Low-Pressure RF Discharge in Argon », *IEEE Trans. on Plasma Science*, 2010.
- [8] D. Benyoucef, M. Yousfi, B. Belmadani, « RF discharge characteristics from particle model based on two optimized Monte Carlo methods for collision treatment », *ICPIG Cancun*, 2009.

- [9] Bahouh Hanene, « Modèle fluide d'une décharge plasma radiofréquence ». Thèse de Doctorat de l'université de Constantine1, 2014.
- [10] F. Bouanaka, « Contribution à la Modélisation des Plasmas de Dépôt Basse Pression », thèse de Doctorat de l'université de Constantine1, 2014.
- [11] F. Bouanaka, S. Rebiaï, « Pressure and Free Flight Time Effects on Glow Discharge Characteristics », International Journal of Computer Applications, Vol. 72– No.1, 38-44, 2013.
- [12] E.Neyts, M.Yan, A.Bogaerts, R.Gijbels, « PIC-MC simulation of an RF capacitively coupled Ar/H₂ discharge », Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B202, 300–304, 2003.
- [13] FS. M. Lee, Y. J. Hong, Y. S. Seo, F. Iza, G. C. Kim, J. K.Lee: « Simulations of biomedical atmospheric-pressure discharges », Computer Physics Communications, 2009.
- [14] A. Bogaerts, R. Gijbels, « Numerical modelling of gas discharge plasmas for various applications », Vacuum 69, 37–52, (2003).
- [15] W. Jiang, H.Wang, Z. Bi1 and Y.Wang, « Implicit and electrostatic particle-in-cell/Monte Carlo model in two-dimensional and axisymmetric geometry: II. Self-bias voltage effects in capacitively coupled plasmas », Plasma Sources Sci. Technol. 20, 2011.
- [16] V. Vahedi, C. K. Birdsall, M. A. Lieberman, G. DiPeso, et T. D. Rognlien, « Verification of frequency scaling laws for capacitive radiofrequency discharges using two dimensional simulations », Phys. Fluids, 1993.
- [17] J.P. Boeuf and A. Merad, « Fluid and Hybrid models of Non-Equilibrium Discharge », Applied Sciences, 291-319, 1997.

[18] A. Fiala, L.C. Pitchford, and J.-P.Boeuf, «Two-dimensional, hybrid model of low pressure glow discharge», *Physical Review E*, 5607-5622, 1994.

[19] BERKANE Amal, « Modélisation de mécanismes se produisant dans un plasma de dépôt», thèse de Doctorat de l'université de Constantine1, 2015.

[20] Z. KANZARI, M. YOUSFI, A. HAMANI, « Modeling and basic data for streamer dynamics in N₂ and O₂ discharges», *J. Appl. Phys*, 4161-4169, 1998.

[21] L. Delcroix and A. Bers, « Physique des plasmas », Inter Éditions et CNRS Editions, 1994.

[22] Nabil IKHLEF, « Modélisation numérique d'une installation convertisseur plasma d'induction en vue d'une commande optimale», thèse doctorat de l'université de BATNA, 2010.

[23] G. J. M. Hagelaar, G. Fubiani, J.P. Boeuf, « Model of an inductively coupled negative ion source: I. General model description», *Plasma Sources Sci. Technol*, 16, 2011

[24] Cheng Jia, Ji Linhong, Zhu Yu, Shi Yixiang, « Fluid model of inductively coupled plasma etcher based on COMSOL », *Journal of Semiconductors*, 6, 2010.

[25] D. P. Lymberopoulos, D. J. Economou, « Tow-dimensional self consistent radio-frequency plasma simulations relevant to the gaseous electronics conference RF reference cell», *J Res Natl Inst Stand Technol*, Vol. 100, No. 4, pp. 473-494, 1995.

[26] J.P. Pontazaa, XuDiaob, J.N. Reddy and K.S. Suranac, « Least-squares finite element models of two-dimensional compressible lows», *Finite Elements in Analysis and Design* 40, pp 629–644, 2004.

[27] H. C. Kwon, A.Rehman, I. H. Won,W. T. Park, and J. K. Lee, « Negative resistance phenomenon in dual-frequency capacitively coupled plasma-enhanced chemical vapor

deposition system for photovoltaic manufacturing process», *Journal Of Applied Physics* 111,6pp, 2012.

[28] D. P. Lymberopoulos and D. J. Economou, «Fluid simulations of glow discharge & Effect of metastable atoms in argon», *J. Appl. Phys.*, Vol. 73, No. 8, pp. 3668-3679, 1993.

[29] H.M. Katsch T, C. Manthey, J.A. Wagner, H.F. Dfbele, «Negative ions in argon–oxygen discharges», *Surface & Coatings Technology* 200, 831 – 834, 2005.

[30] D. Bohm, E.H.S. Burhop & H.S.W. Massey, «The characteristics of electrical discharges in magnetic field», *Qualitative Description of the Arc Plasma in a Magnetic Field*, New York, 1949.

[31] V.A. Godyak, «Soviet Radiofrequency Discharge Research», Delphic Associates, Fall Church, VA, 1986.

[32] N. S. J. Braithwaite & J. E. Allen, « Boundaries and probes in electronegative plasmas», *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol.21, no.12, pages 1733-1737, 1988.

[33] C M Ferreira, G Gousset & M Touzeau, « Quasi-neutral theory of positive columns in electronegative gases», *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 21, no. 9, pages 1403-1413, 1988.

[34] T.E. Sheridan, «Double layers in a modestly collisional electronegative», *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 32, no. 15, pages 1761-1767, 1999.

[35] I. G. Kouznetsov, A. J. Lichtenberg & M. A. Lieberman, «Internal sheaths in electronegative discharges», *Journal of Applied Physics*, vol. 86, pages 4142-4153, 1999.

[36] I. Kaganovich, « Negative ion density fronts», *Physics of Plasmas*, vol. 8, pages 2540-2548, 2001.

[37] T.E. Sheridan, P. Chabert & R.W. Boswell, « Positive ion flux from a low-pressure electronegative discharge», *Plasma Sources Science Technology* *Plasma Sources Science Technology*, vol. 8, pages 457-462, 1999.

[38] O.C. Zienkiewicz, « the finite element method», Mc Graw Hill, Sixth edition, 2005.

[39] K. Hameyer, J. Driesen, H. De Gersem, and R. Belmans, «The classification of coupled field problems», *IEEE Transactions on Magnetics*, 1618–1621, 1999.

[40] R. Abidat, S. Rebiaï, L. Benterrouche, «Numerical Simulation of Atmospheric Dielectric Barrier Discharge in Helium gas using COMSOL Multiphysics», 3^d International Conference on Systems and Control, ICSC13, 29 - 31, Algiers, Algeria, 2013.

[41] S. Rebiaï, H. Bahouh, S. Sahli, «2-D Simulation of dual frequency capacitively coupled helium plasma, using COMSOL Multiphysics», *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul*, Vol. 20, Issue 5, pp. 1616-1624, 2013.

[42] C. Jia, J. Linhong, W.Kesheng, H. Chuankun and S. Yixiang, « Two-dimensional simulation of inductively coupled plasma based on COMSOL and comparison with experimental data», *Journal of Semiconductors*, Vol. 34, No. 6, pp.7, 2013.

[43] Hanene Bahouh, Saida Rebiai, David Rochette, Damien Vacher and Michel Dudeck, «Modelling of an inductively coupled plasma torch with argon at atmospheric pressure», *Phys. Scr.* T161, 014008, (4pp), 2014.

[44] Plihon Nicolas, « stabilité et structure électrique d'une décharge inductive en gaz électronégatif», thèse de doctorat de l'école polytechnique. 2006.

[45] Pascal Chabert and Nicholas Braithwaite, «Physics of Radio-Frequency Plasmas», Cambridge University Press, 2011.

[46] M. A. Lieberman, A. J. Lichtenberg, «Principles of plasma discharges and materials processing», John Wiley, New York, 2005.

[47] Emilie Despiau-Pujo, «Gravure des semi-conducteurs III-V par plasmas inductifs chlorés», thèse de Doctorat de l'école polytechnique, 2009.

[48] P. Chabert, J.-L.Raimbault, P. Levif, and J.-M.Rax, M. A. Lieberman, « Inductive Heating and E to H Transitions in Capacitive Discharges», PHYSICAL REVIEW LETTERS 95, pp. 4, 2005.

[49] J.H. Hsieh, H. C. Liang, Y. Setsuhara and C. Li. «Deposition and characterization of a- and $\mu\text{c-Si:H}$ thin films by ICP-CVD system with internal antennas», Surface Coatings Technology, 550-556, 2013.

[50] Kebaili Hadja Oum Keltoum, « Contribution à l'étude par la simulation numérique de Dynamique Moléculaire de la croissance des couches minces par procédé PECVD », Mémoire Présenté pour l'obtention du diplôme de magister, université Kasdi Merbah - Ouargla, 2013.

[51] https://www.researchgate.net/figure/Principe-du-depot-CVD-de-silicium-a-partir-de-silane_fig42_30515130.

[52] T. Deconinck and L. L. Raja, « Modeling of mode transition behavior in argon micro hollow cathode discharges », Plasma Process. Polym, Vol. 6, 335–346, 2009

[53] Wang Xifeng, SONG Yuanhong, ZHAO Shuxia, DAI Zhongling and WANG Younian, « Hybrid Simulation of Duty Cycle Influences on Pulse Modulated RF SiH_4/Ar Discharge», J. Plasma Science and Technology, 394, 2016.

[54] L. X. Mei, S.Y.Hong, J. Wei, and Y. Lin, « The effects of process conditions on the plasma characteristic in radio-frequency capacitively coupled SiH₄/NH₃/N₂ plasmas: Two-dimensional simulations», Chin. Phys. B Vol. 22, No. 4, pp. 6, 2013.

[55] ComsolMultiphysics™ 4.3a, COMSOL Inc., <http://www.comsol.com>.

[56] Kathleen De Bleecker, Annemie Bogaerts and Renaat Gijbels, « Numerical investigation of particle formation mechanisms in silane discharges», physical review E, 056409, 2004.

[57] G.J. Nienhuis, W.J. Goedheer, E.A.G. Hamers, W.G.J.H. van Sark, and J. Bezemer, «A self-consistent fluid model for radio-frequency discharges in SiH₄-H₂ compared to experiments» , J. Appl. Phys. 82 (5), 2060, 1997.

[58] Danko Stephan, Dirk Bluhm, Valentin Bolsinger, Wladislaw Dobrygin, Oliver Schmidt and Ralf Peter Brinkmann, «A global model study of silane/hydrogen discharges», J. Plasma Sources Sci. Technol, 055009, 2013.

Chapitre III

**Modélisation d'un
plasma à couplage
inductif pour un
mélange argon
oxygène à basse
pression**

III-1 Introduction

À mesure que la technologie de traitement par plasma se développe, il existe une demande accrue des plasmas haute densité avec une bonne uniformité et un contrôle indépendant du flux ionique et de l'énergie de bombardement ionique. Les sources de plasma à couplage inductif (ICP) et à couplage capacitif (CCP) sont généralement utilisées pour la gravure, le dépôt et le traitement de surface dans la fabrication de composants à semi-conducteurs. Ces sources devraient continuer à jouer un rôle clé dans la prochaine génération de réacteurs à plasma car elles génèrent de fortes concentrations d'espèces réactives qui permettent le dépôt de films minces ou l'attaque de surfaces à de faibles températures du gaz.

La décharge RF est un piège très efficace pour les ions négatifs. Les gaz et plasmas électronégatifs ont attiré beaucoup d'attention ces derniers temps car ils ont des applications dans différents domaines, tels que le traitement de surface, la science atmosphérique, et les études environnementales [1-3]. Ces plasmas électronégatifs sont également utilisés comme générateurs de faisceaux d'ions négatifs qui sont utilisés comme faisceaux neutres dans les réacteurs à fusion. On dit également que la présence des ions négatifs améliore les performances de la gravure sèche, qui permet de réaliser des circuits intégrés [4-5]. Les gaz électronégatifs tels que CF_4 , SF_6 , Cl_2 et O_2 sont généralement utilisés dans les processus de gravure et de dépôt.

Ce chapitre est consacré à la présentation des résultats en termes de propriétés de la décharge obtenus par simulation d'un plasma à couplage inductif ainsi que leur interprétation. Dans ce travail, nous avons considéré deux types de gaz : un gaz électropositif en l'occurrence de l'argon (Ar) en mélange avec de l'oxygène (O_2) en tant que gaz électronégatif. Les résultats obtenus sont exprimés en termes de la distribution 3D dans le réacteur des densités des espèces constituant le plasma ainsi que du potentiel plasma et de la température électronique. Nous avons également réalisé une étude paramétrique pour mieux rendre compte de l'effet du débit d'oxygène, de la puissance et de la pression dans le réacteur sur l'évolution de la densité des charges, le rapport de la densité des ions négatifs à la densité du plasma, la température électronique, le potentiel électrique ainsi que l'électronégativité du plasma.

III-2 Présentation du modèle de la décharge ICP du mélange O₂/Ar

Dans cette étude nous sommes intéressées à la simulation d'une décharge plasma à couplage inductif (ICP) à partir de mélanges argon/ oxygène dans un réacteur de type cellule de référence GEC. Le réacteur considéré dans le modèle a été utilisé par Mark W. Kiehlbauch et al [6] dans une expérience pour examiner le transport et la réaction de l'oxygène dans le plasma radiofréquence. Notre modèle est donc appliqué à un réacteur industriel, en respectant sa géométrie, ses dimensions et les types des matériaux qui le composent [6]. Ce choix est pris pour nous permettre la validation du modèle élaboré, par comparaison avec les grandeurs obtenues par mesures expérimentales. Un schéma de la géométrie simulée est illustré sur la figure III-1(a). Le réacteur est caractérisé par une chambre plasma de 19.5 cm de diamètre 11.25 cm de hauteur, la géométrie présente trois bobines planes refroidies à l'eau et alimentées par une source RF permettant d'engendrer des plasmas de haute densité. Les bobines sont placées sur une fenêtre en quartz de 1 cm d'épaisseur. La distance entre la fenêtre et l'électrode inférieure est de 10,25 cm. Le maillage de la structure, conçue par le logiciel COMSOL, est illustré à la figure III-1(b). Nous avons choisi, pour le maillage de la structure étudiée, des éléments triangulaires de taille fine, ce qui donne un nombre de 12204 éléments pour la simulation.

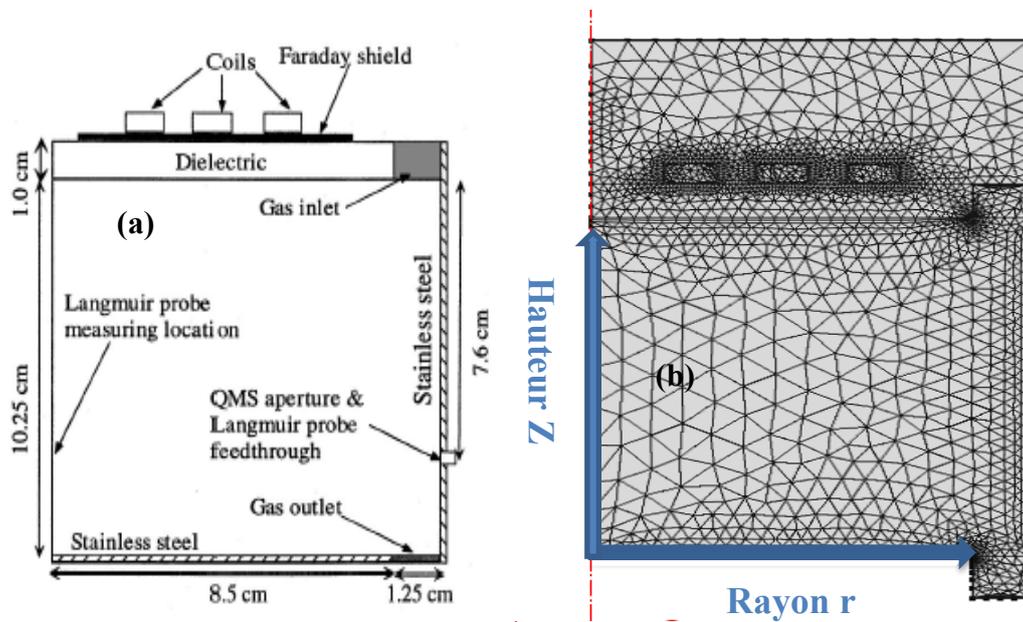


Figure III-1:(a) Schéma et dimensions du réacteur à plasma à couplage inductif étudié [6],
(b) Le Maillage de la structure.

III-2-1 Critère de convergence

La modélisation de cette décharge est réalisée par la méthode des éléments finis à l'aide du logiciel COMSOL Multiphysics.

La quasi-neutre du plasma, au centre de la décharge, est choisie comme critère de convergence. Le critère de convergence est atteint après quelques minutes (20 mn) pour une simulation sur Intel, Xeon CPU E5-268wq 3.1 GHz.

III-2-2 Conditions initiales et aux limites

Dans le modèle de la décharge ICP dans le mélange oxygène /argon, nous avons considéré les conditions initiales de calcul suivantes :

- ✓ Une densité électronique initiale n_{e0} de 10^{15} (m^{-3})
- ✓ Une énergie électronique initiale ε_0 de 5 (V)
- ✓ Une valeur nulle du potentiel électrique ; $V= 0$ (V)
- ✓ Une vitesse initiale d'écoulement fixée par le débit du gaz qui est de 100 sccm.

En raison de mouvements aléatoires, les électrons sont perdus dans le mur par quelques voies moyennes libres et peuvent être gagnés en raison des effets d'émission secondaire, suivant la nature des parois, pour cela la condition aux limites pour le flux d'électrons est donnée par :

$$-n \cdot \Gamma_e = \frac{1-\gamma_e}{1+\gamma_e} \left(\frac{1}{2} V_{th} n_e \right) - \sum_p \gamma_p \cdot (\Gamma_p \cdot n) \quad (III-1)$$

Avec :

$$V_{th} = \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi \cdot m_e}} \quad (III-2)$$

Où n est le vecteur unité, normal à la paroi, Γ_e est le flux des électrons sur les parois, V_{th} est la vitesse thermique des électrons.

Et la condition aux limites pour le flux d'énergie des électrons est donnée par:

$$-n_e \Gamma_\varepsilon = \left(\frac{5}{6} v_{th} n_e\right) \quad (III-3)$$

Où Γ_ε est le flux d'énergie des électrons et n_e la densité d'énergie.

Dans ce travail, nous supposons que les gaz entrent dans le réacteur avec une direction axiale, à une température T de 500K. La vitesse d'entrée est fixée par le débit du gaz. De plus, au niveau des parois du réacteur, nous considérons un potentiel électrique nul et nous ignorons le processus d'émission secondaires des électrons (γ_p).

III-2-3 les paramètres standards de la décharge

Le tableau suivant récapitule l'ensemble des paramètres d'entrée que nous avons appliqués à la cellule GEC dans le cas de cette simulation. Le choix de ces paramètres n'est pas arbitraire, il correspond à des données de travaux expérimentaux [2].

Paramètres de la décharge	Valeurs
Température du gaz T_g	500 K
Pression du gaz p	20 mTorr
Fréquence RF	13.56 (MHz)
La puissance appliqué P	300 (W)

Tableau III-1 : Les paramètres standards de la décharge.

III-2-4 Chimie du plasma

Un mélange d'argon et d'oxygène est considéré dans cette étude. Un total de 62 réactions et 15 espèces et utilisé dans le modèle [8]. Les espèces chimiques (électrons e , ions positifs (Ar^+ , O^+ , O_2^+), ions négatifs (O^- , O_2^-) et atomes métastables (Ar^* , O_2^* , O^*) sont pris en considération. Les interactions électron-atome ou électron-molécule considérées par le modèle sont de types choc élastique, excitation, attachement et ionisation. Les réactions les plus importantes sont données dans le tableau III-2 :

Reaction	Type	$\Delta\varepsilon(\text{ev})$
$e+\text{O}_2\Rightarrow 2e+\text{O}_2^+$	Ionization	12.06
$e+\text{O}_2\Rightarrow e+\text{O}+\text{O}1s$	Excitation	9.97
$e+\text{O}_2+\text{O}_2\Rightarrow \text{O}_2+\text{O}_2^-$	Attachment	0
$e+\text{O}_2^+\Rightarrow \text{O}+\text{O}$	Recombination	-
$e+\text{Ar}\Rightarrow e+\text{Ar}$	Elastic	0
$e+\text{Ar}\Rightarrow e+\text{Ar}s$	Excitation	11.5
$e+\text{Ar}s\Rightarrow e+\text{Ar}$	Excitation	-11.5
$e+\text{Ar}\Rightarrow 2e+\text{Ar}^+$	Ionization	15.8
$e+\text{Ar}s\Rightarrow 2e+\text{Ar}^+$	Ionization	4.427

Tableau III-2: Tableau des collisions et réactions modélisées [8].

Où $\Delta\varepsilon$ (ev) représente l'énergie de réaction.

III-3 Résultats et discussions

Afin de mieux comprendre les mécanismes de la décharge ICP et de voir l'effet des paramètres de la décharge sur les grandeurs caractéristiques du plasma, nous avons considéré dans un premier temps la simulation d'une décharge à couplage inductif d'un plasma de mélange de 70% d'argon avec 30 % d'oxygène avec les conditions données sur le tableau III-1.

L'interprétation du résultat de la simulation est donnée en termes d'évolution spatiale de la densité des espèces chargées négatives et positives présentes au centre de la décharge, de l'évolution de la température électronique, du profil de champ électrique et du potentiel électrique.

La figure III-2 illustre la distribution 3D des différentes espèces chargées (électrons, ions positifs et négatifs). D'après la figure III-2(a), nous constatons que la densité électronique atteint sa valeur maximale de $2.3 \cdot 10^{16} \text{ m}^{-3}$ dans la région du cœur du plasma puis décroît progressivement jusqu'à la paroi du réacteur. La valeur maximale de la densité des ions négatifs d'oxygène (figure III-2(b)) est d'environ $3,4 \cdot 10^{16} \text{ m}^{-3}$, au milieu de la décharge, et celle des ions positifs d'argon Ar^+ (figure III-2(c)) est légèrement supérieure. Elle est autour de $3,5 \cdot 10^{16} \text{ m}^{-3}$ alors que celle des ions d'oxygène positif O_2^+ , (figure III-2(d)). Elle est plus faible. Elle est d'environ 1.2

Chapitre III: Modélisation d'un plasma à couplage inductif pour un mélange argon oxygène à basse pression.

10^{16}m^{-3} au milieu du réacteur. Cette répartition des espèces montre que le plasma créé avec cette décharge est concentré au milieu du réacteur et qu'il disparaît au voisinage de sa paroi. Ce confinement des charges est dû à la force électromagnétique exercée sur les particules ainsi qu'à la diffusion et la recombinaison des ions et des électrons au niveau de la paroi du réacteur.

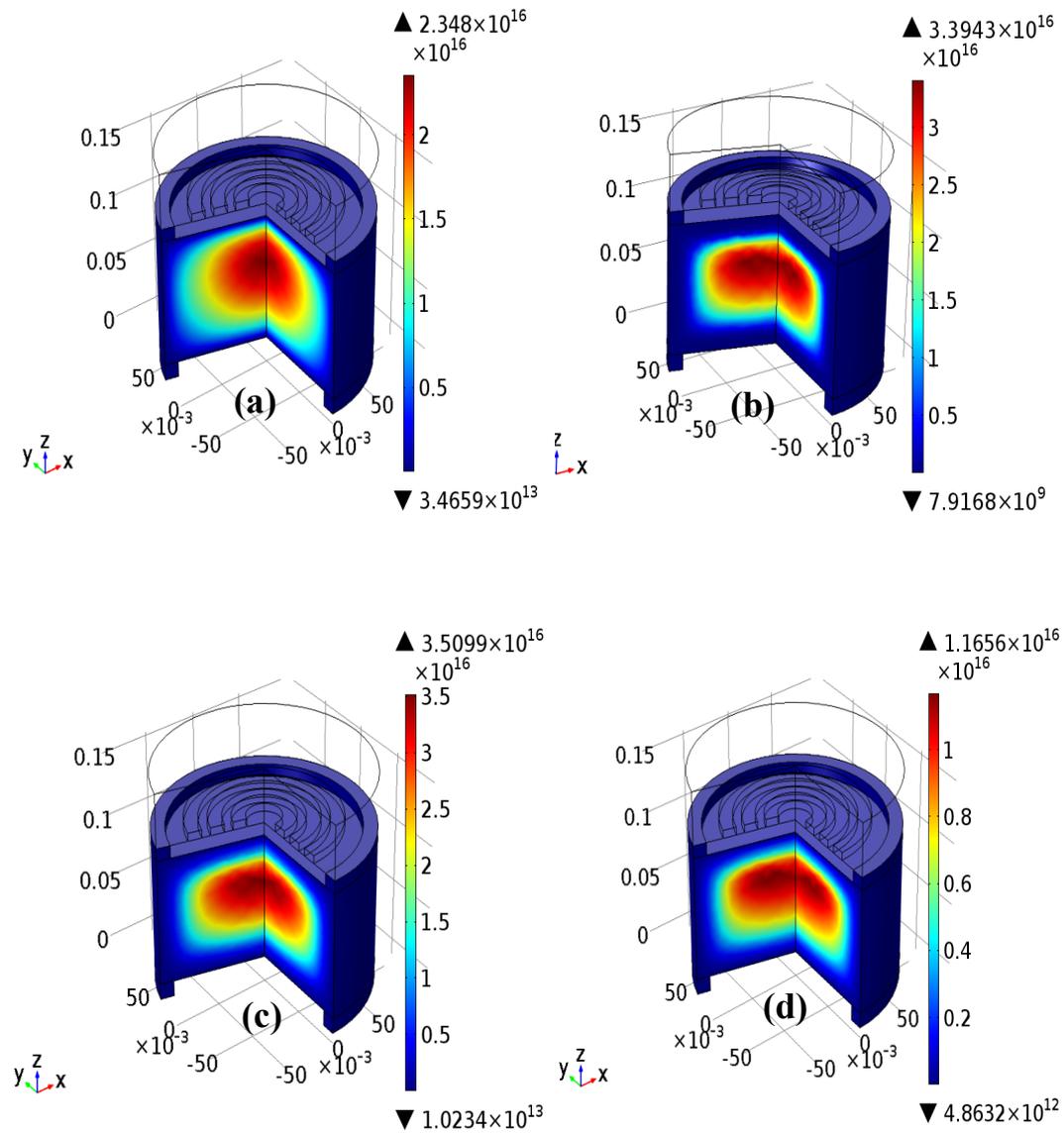


Figure III-2: Distribution 3D de différents paramètres du plasma créé dans un mélange argon-oxygène; (a) la densité électronique (b) la densité des ions négatif d'oxygène (c) la densité des ions positif d'argon (d) la densité des ions d'oxygène positif. Les valeurs sont exprimées en m^{-3} .

Les espèces chargées présentes dans le plasma de mélange argon- oxygène sont, en plus des électrons, les ions O_2^+ , O_2^- , O^+ , O^- et Ar^+ . Une illustration 1D de la distribution radiale des densités de ces différentes particules chargées (électrons, ions) au milieu de la décharge inductive est présentée sur la figure III-3. Elle nous permet de mieux voir le confinement des espèces chargées dans la zone d'induction, qui représente la zone la plus réactive du plasma. Dans le milieu de la décharge, les ions Ar^+ et O^- sont les plus présents, les densités électronique et d'ions oxygènes positifs sont légèrement inférieures, à l'exception près des parois externes du réacteur où la densité est supposée baisser fortement dans les directions axial et radial. Ainsi nous constatons qu'une quasi-neutralité du plasma est présente dans le réacteur.

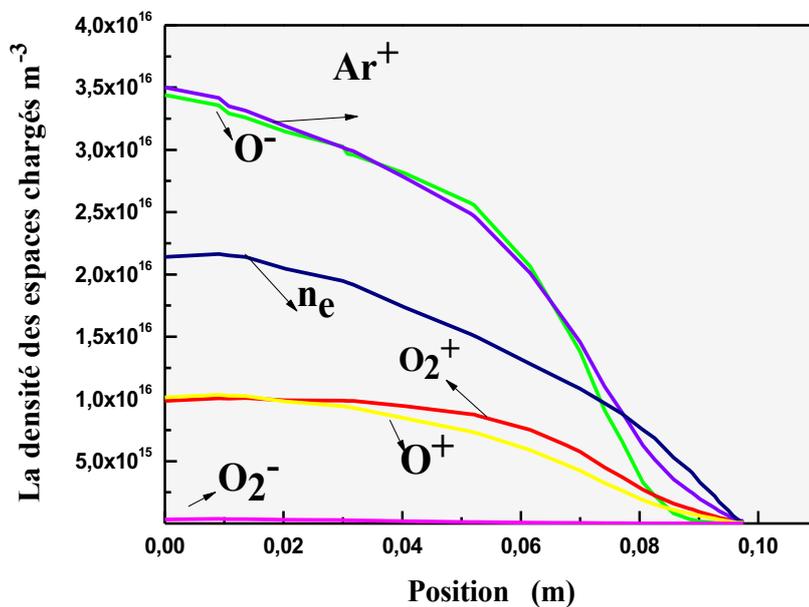


Figure III-3: Evolution de la densité des électrons et des espèces (O_2^+ , O^- , O_2^- , O^+ et Ar^+), au centre de la décharge en fonction de la position radiale, pour un mélange de 70% d'argon et 30 % d'oxygène

La représentation 3D du potentiel électrique est représentée sur la figure III-4. Il est intéressant de voir que la valeur maximale (environ 21 V) du potentiel se produit au niveau de l'axe de symétrie où la densité des espèces chargées atteint son maximum. Pour maintenir la quasi-neutralité du plasma, le potentiel dans le centre de la décharge (la colonne positive) est toujours supérieur à celui des parois externes. Ces dernières présentent un potentiel quasi nul. De ce fait, Il n'y a pas de bombardement ionique indésirable de la surface du réacteur ni de phénomènes de pulvérisation ou de contamination des surfaces.

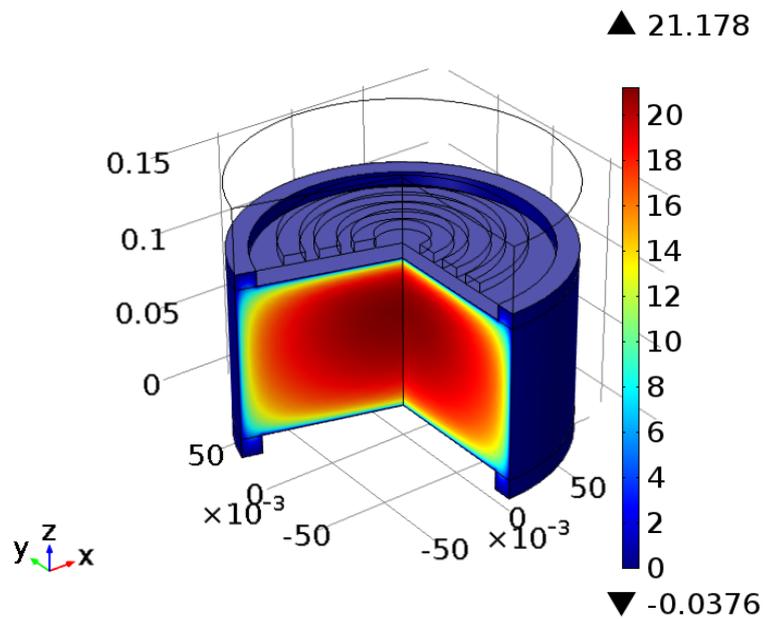


Figure III-4: L'évolution du potentiel électrique dans le réacteur pour une pression de gaz de 20 mTorr et une puissance de décharge de 300W.

Le profil du champ électrique, calculé à partir du potentiel par l'équation de Poisson, est présenté sur la figure III-5. Le champ électrique atteint son maximum d'environ 2562 V/m à la paroi extérieure du réacteur entre les deuxième et troisième tours de la bobine RF et est égal à zéro à l'intérieur du réacteur. L'évolution du champ électrique le long de la direction axiale du réacteur montre que la majorité de la puissance transférée des sources d'excitation au plasma est dissipée dans la région des bobines.

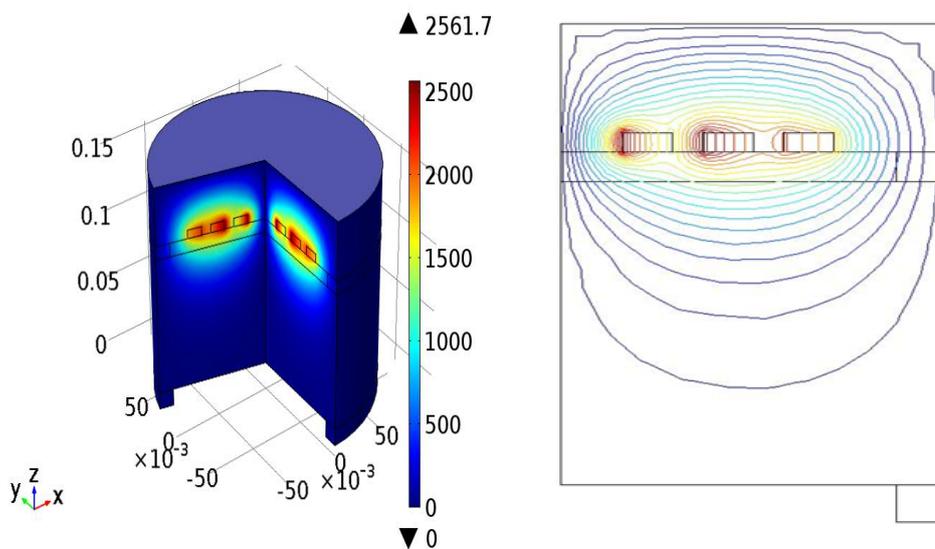


Figure III-5 : L'évolution du champ électrique dans le réacteur pour une pression de 20 mTorr et une puissance de décharge de 300W.

La simulation de la décharge ICP nous a permis aussi de prédire la distribution de la température électronique dans le réacteur. Cette dernière est donnée sur la figure III-6. La figure montre que la région où les électrons sont le plus énergétiques est située sous les bobines avec une température électronique maximale d'environ 4,4V. Elle est située au niveau de la paroi intérieure du réacteur sous la deuxième bobine, où la densité de puissance dissipée est également plus importante.

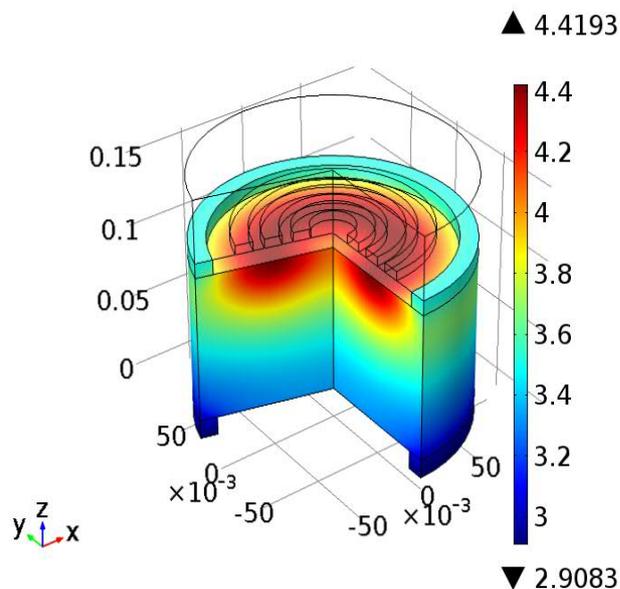


Figure III-6: Evolution de la température des électrons dans le réacteur pour une pression de 20 mTorr et une puissance de décharge RF de 300W.

Dans cette région, les électrons absorbent l'énergie du champ électrique inductif et sont accélérés vers le milieu plasmagène où ils perdent leur énergie par collisions avec les neutres. Il est clair sur la figure que lorsqu'on s'éloigne de la zone supérieure du réacteur, les électrons refroidissent considérablement pour atteindre des températures de l'ordre de 3.2 V au milieu du plasma.

Nous nous sommes intéressés dans cette simulation à l'écoulement du mélange gazeux (Ar/O_2), dans le réacteur, à travers le calcul de sa vitesse par la résolution des équations de Navier Stokes. Nous avons considéré une entrée du gaz à partir d'une ouverture située au niveau de la paroi supérieure du réacteur et une évacuation des gaz à partir d'une ouverture située au niveau de la base du réacteur (figure III-1). La densité du gaz introduit est la source des particules créées dans le plasma et son écoulement peut influencer les réactions entre particules et par la suite les densités de charges créées. La figure III-7 présente la distribution de la vitesse d'écoulement du gaz neutre dans le réacteur. La valeur maximale de la vitesse d'écoulement est

d'environ 14 m/s. Elle apparaît autour de l'entrée et de la sortie du flux de gaz. Par contre, la valeur de cette vitesse diminue dans l'enceinte entre les deux ouvertures.

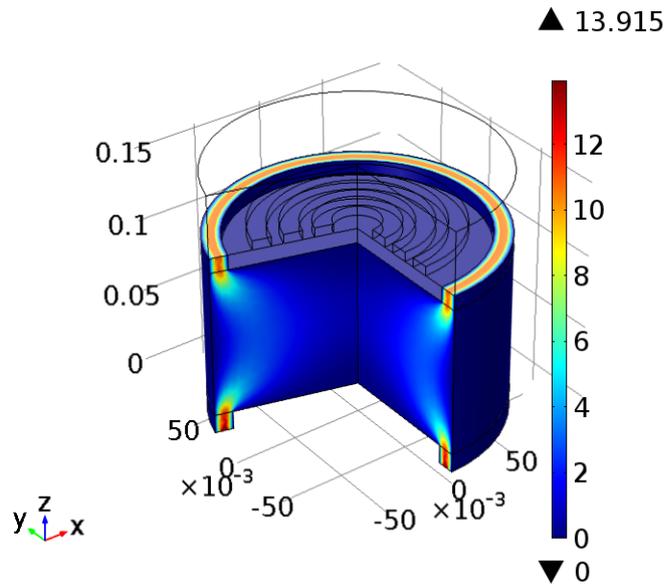


Figure III-7: la vitesse d'écoulement dans le réacteur pour une pression de 20 mTorr et une puissance de décharge de 300W.

Les résultats de notre simulation de l'évolution des paramètres du plasma lors d'une décharge RF dans un mélange argon-oxygène sont assez proches des résultats expérimentaux obtenus par H.M. Katsch [7] dans un réacteur GEC pour un mélange de 70% argon et 30% oxygène, pour une pression de gaz de 5 Pa (37.6 mTorr) et une puissance de 160 W, l'auteur a obtenu une densité électronique maximale de $2 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$, une densité des ions positifs de $6 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$ et une densité des ions négatifs de $8 \cdot 10^{16} \text{ m}^{-3}$.

III-3-1 Influence des paramètres opératoires sur la décharge inductive

En dehors de la composition de la phase gazeuse, la distribution ainsi que la densité des espèces chargées dans le plasma peuvent être influencées par différents paramètres qui sont à l'origine de la création de la décharge [9]. Effectivement, la composition du plasma peut varier avec le taux d'injection du gaz précurseur, la pression et la température du gaz dans le réacteur ainsi que la puissance appliquée, comme elle peut dépendre de la dimension du réacteur et du nombre de bobines utilisées. Dans ce travail, nous avons simulé l'effet du débit d'oxygène, de la puissance appliquée et de la pression dans le réacteur sur l'évolution de la densité des charges, le rapport de la densité des ions négatifs à la densité du plasma, la

température électronique ainsi que le potentiel électrique, pour un mélange d'argon et d'oxygène.

Les résultats de la simulation sont présentés pour une fréquence RF de 13,56 MHz et une température de gaz de 500 K.

III-3-1-a Influence du débit d'oxygène

Dans ce paragraphe nous présentons les résultats de la simulation de la décharge ICP dans un plasma de mélange argon/oxygène, pour un taux d'oxygène variant de 15 à 90%, créé avec une pression de gaz de 20 mTorr et une puissance de 300W.

Les figures III-8 à III-11 montrent l'évolution de la densité des espèces chargées, de la température, du potentiel et de l'électronégativité avec le pourcentage d'O₂.

Au fur et à mesure que le pourcentage d'O₂ augmente dans le mélange, les densités d'électrons et d'ions Ar⁺ diminuent en raison de la diminution des atomes d'argon dans le gaz neutre. La décroissance rapide de la densité des électrons est suivie par une pseudo-saturation à partir d'un mélange de 45% O₂ et 55% Ar. Cette saturation est expliquée par D. BENYOUCEF et al [10] par l'existence d'un équilibre entre les électrons gagnés par ionisation et détachement et les électrons perdus par recombinaison et attachement, sachant que la présence des électrons assure la survie du processus d'ionisation des neutres et maintien la décharge.

Cependant, la figure III-8 montre que lorsque le taux d'oxygène dans le mélange augmente, il entraîne une augmentation de la concentration d'ions O⁻ et O₂⁺). Nous remarquons aussi, qu'à partir d'un mélange de 45 % O₂ et 55% Ar, les ions O⁻ sont les particules chargées dominante du plasma.

Cette évolution des densités d'électrons et d'ions O⁻ avec le pourcentage d'O₂ est cohérente avec des résultats de simulation basé sur la méthode de Monte-Carlo (PIC-MCC) obtenus par S. H. Lee et al pour un plasma de mélange argon /oxygène, une pression de 115 mTorr et une fréquence RF [11] ainsi qu'avec le modèle particulière établi par D. BENYOUCEF et al pour un plasma de mélange Ar/O₂ avec une pression de gaz de 50 mTorr, excité par un champ électrique RF et confiné par un champ magnétique croisé [10].

Les résultats de la simulation montrent que les densités plasmatiques varient de $8,2 \cdot 10^{15}$ jusqu'à $6,3 \cdot 10^{16} \text{ m}^{-3}$ pour un pourcentage d'O₂ de 15 à 90 % respectivement. Dans l'oxygène gazeux, la perte d'énergie par collision par paire électron-neutre créée peut être 2 à 3 fois plus élevée que pour le gaz argon à la même température d'électrons en

dessous de 10 eV, ce qui entraîne une densité plasmatique plus faible. K. Takechi et al [12] ont rapporté que la densité plasmatique augmente avec l'augmentation le taux d'oxygène pour le mélange argon/oxygène. Dans une source de plasma de grande surface à couplage inductif.

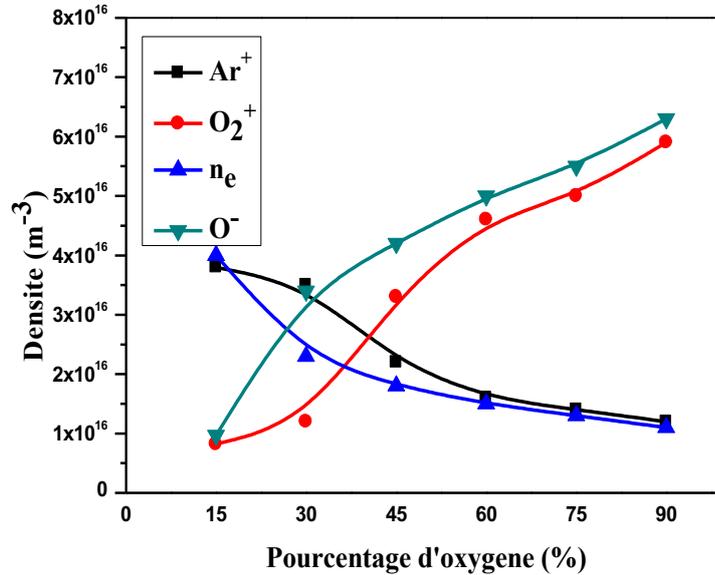


Figure III-8 : Densité des espèces chargées en fonction de pourcentage d'oxygène, pour une pression de 20 mTorr et une puissance de décharge de 300W.

Les figures III-9 et III-10 présentent le résultat du calcul de l'évolution de la température électronique et du potentiel plasma pour les concentrations d'oxygène variant de 15 à 90 %.

La valeur maximale de la température des électrons (figure III-9), déterminée dans la direction radiale sous les trois bobines à une longueur d'arc égale à 10 mm, augmente de 4 à 5.2 V avec l'augmentation du taux d'oxygène. Ce dernier étant proportionnel à la concentration d'oxygène, il est attendu une augmentation de la température électronique lorsque la concentration d'oxygène augmente.

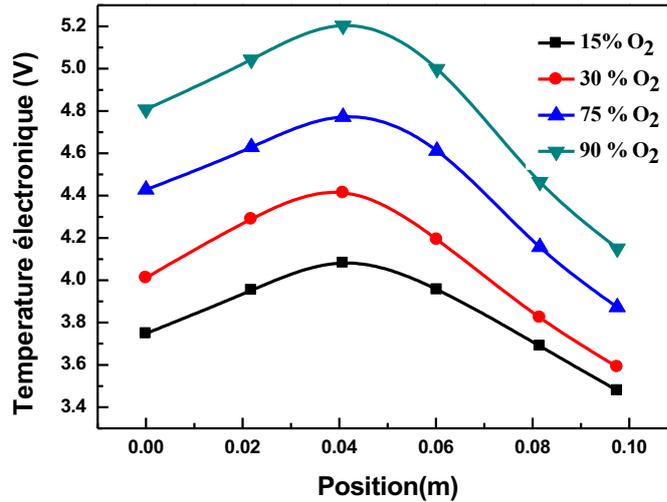


Figure III-9 : Evolution de la température électronique en fonction du pourcentage d'oxygène, pour une pression de 20 mTorr et une puissance de décharge de 300W.

Le potentiel électrique augmente avec un pourcentage d'oxygène croissant, mais ne change pas beaucoup (Figure III-10). La faible différence des valeurs du potentiel électrique dans le plasma pour les concentrations d'oxygène considérées sera analysée par rapport à la température électronique. Lorsque le couplage de l'énergie est de nature inductive, le potentiel plasma est en effet proportionnel à la température électronique, dans une description simplifiée, il vaut $(-T_e/2 \ln(\pi m_e / 2m^+)) \sim 5 T_e$ [13]. La valeur du coefficient de proportionnalité dépend de la masse moyenne des ions positifs. Cette dépendance en masse apparaît dans un logarithme et peut être considérée comme assez faible entre les concentrations d'oxygène considérées.

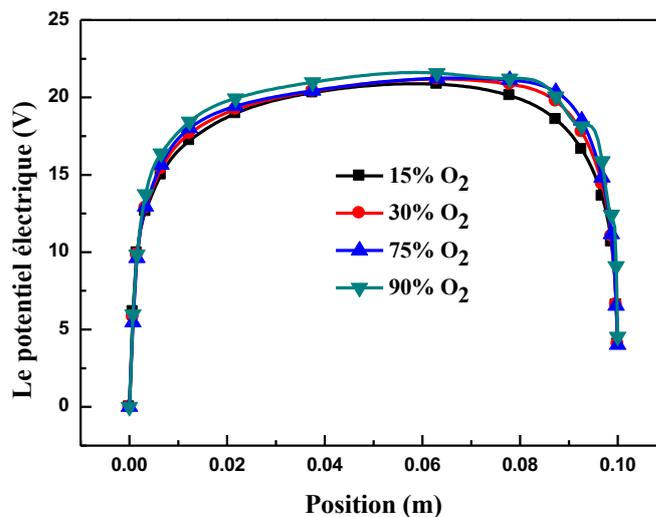


Figure III-10 : Évolution du potentiel électrique en fonction du pourcentage d'oxygène, pour une pression de 20 mTorr et une puissance de décharge de 300W.

Le tracé de la valeur du paramètre d'électronégativité, $\alpha = n^- / n_e$, en fonction du pourcentage O₂ dans le mélange, est illustré sur la figure III-11. Nous confirmons, d'après ce résultat, que l'électronégativité augmente avec le pourcentage d'O₂, comme prévu. Kinga Kutasi et al [14], ont rapporté que l'électronégativité diminue avec l'augmentation du pourcentage d'argon dans un plasma de mélange argon oxygène par ICP, avec une pression de 0,5 Torr, 1Torr, 2Torr et 3Torr.

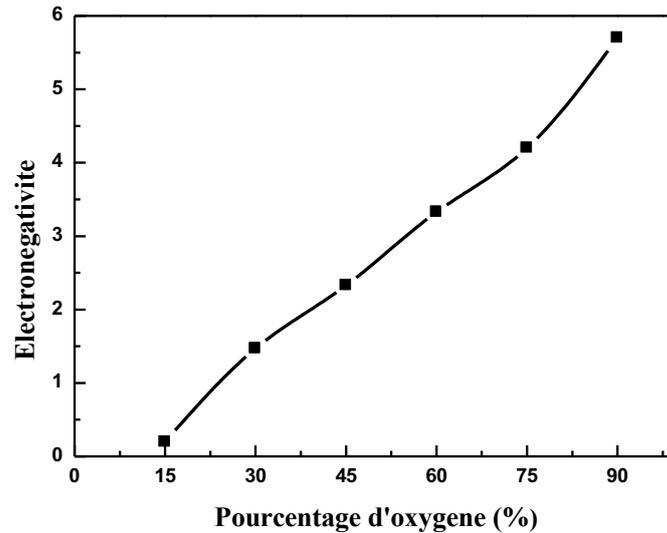


Figure III-11 : L'électronégativité α en fonction de pourcentage d'oxygène pour une pression de 20 mTorr et une puissance de décharge de 300W.

III-3-1-b Influence de la puissance appliquée

L'influence de la puissance RF de la décharge sur les paramètres des plasmas de mélange de 70% d'argon et 30% d'oxygène est étudiée dans cette partie, pour une gamme de puissance variant de 150 à 300 Watts. La pression de travail est maintenue à 20mTorr. Le résultat de la simulation est présenté sur les figures III-12 à III-16 suivantes.

La figure III-12 montre que la densité des charges augmente linéairement avec une puissance d'entrée croissante. Les densités d'électrons calculées par la simulation de fluides 2D sont de $9.2 \cdot 10^{15}$ et $2.3 \cdot 10^{16} \text{ m}^{-3}$ pour 150 et 300 W, respectivement. Mark W. Kiehlbauch et al [6] ont obtenu une augmentation similaire de $2 \cdot 10^{16}$ à $1.2 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$ avec l'augmentation de la puissance appliquée de 100 à 500W. La densité d'ions négatifs d'oxygène augmente avec l'augmentation de la puissance appliquée de $9.5 \cdot 10^{15}$ à $3.4 \cdot 10^{16} \text{ m}^{-3}$ pour 150 à 300 W, la quantité d'ions positifs d'oxygène augmente dans le plasma avec l'augmentation de la puissance appliquée de $5.6 \cdot 10^{15}$ à $1.2 \cdot 10^{16}$

m^{-3} , lorsque la puissance appliquée passe de 150 à 300 W, et celle des ions positifs d'argon augmentent de 9.710^{15} à $3.510^{16} \text{ m}^{-3}$.

Cette évolution peut être expliquée par le fait que l'augmentation de la puissance appliquée accentue les dissociations des fragments présents dans le plasma en augmentant la quantité d'espèces réactives ce qui donne des taux d'ionisation plus élevés et donc un plasma riche en électrons entraînant plus d'interactions avec les particules du plasma et de créations de nouvelles particules et par conséquent l'augmentation de la densité ionique.

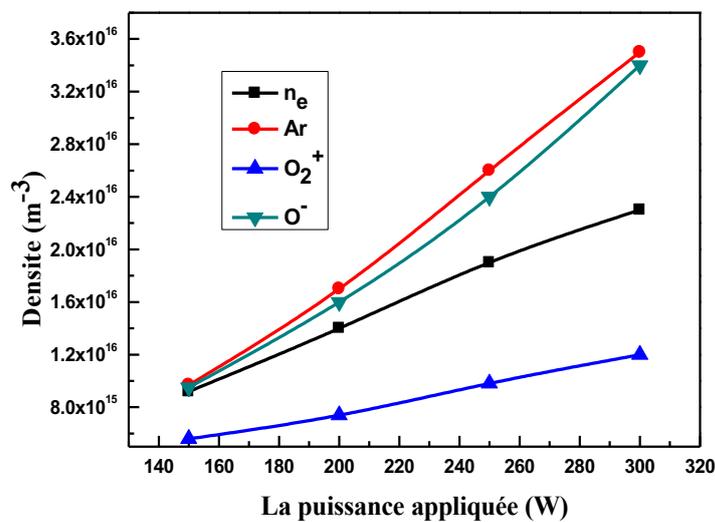


Figure III-12 : Évolution de la densité des espèces chargées avec la puissance appliquée pour une pression de gaz de 20 mTorr pour un mélange de 70% d'argon et 30% d'oxygène.

La figure IV-13 présente l'évolution du rapport de la densité d'ions négatifs à la densité du plasma en fonction de la puissance appliquée. Nous constatons que le rapport de la densité d'ions négatifs à la densité du plasma augmente légèrement en fonction de la puissance appliquée. Lorsque cette dernière croit de 150 à 300W, le rapport n/n_p évolue de 0.27 à 0.32. En Effet, comme nous l'a montré la figure IV-12, l'augmentation de la puissance appliquée a entraîné une augmentation l des taux d'ionisation et donc de la population en espèces chargées. Cela permet la création de nouvelles particules et par conséquent l'augmentation de la densité d'ions oxygène négatifs.

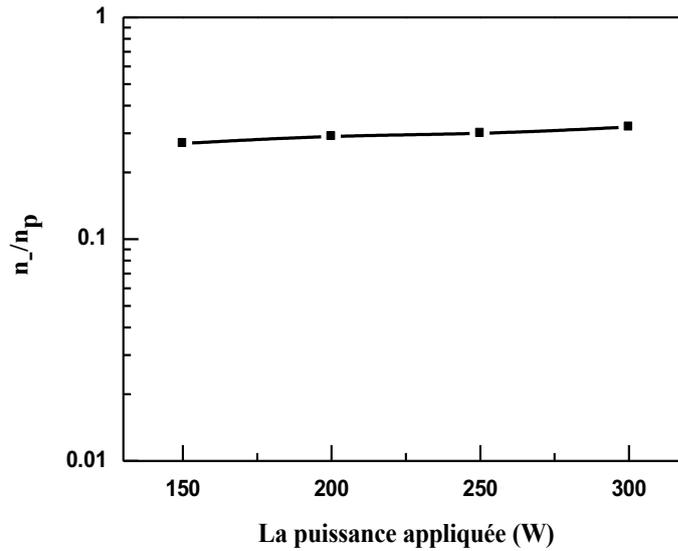


Figure III-13: Evolution du rapport des ions oxygène négatifs à la densité du plasma avec la puissance appliquée pour une pression de gaz de 20 mTorr, pour un mélange de 70% d'argon et 30% d'oxygène.

H. M. Katsch et al [7] ont étudié l'effet de la puissance appliquée sur le rapport des ions négatifs à la densité de plasma dans le mélange argon/oxygène au sien d'un réacteur inductif de configuration planaire GEC fonctionnant avec les mêmes conditions opératoires de notre simulation (pression 3.3 Pa, puissance 150 à 300 W et excitation RF). Selon la figure III-14, nous observons un relativement bon accord entre nos résultats et ceux obtenues par H. M. Katsch et al (points illustrés pour les Photo détachement).

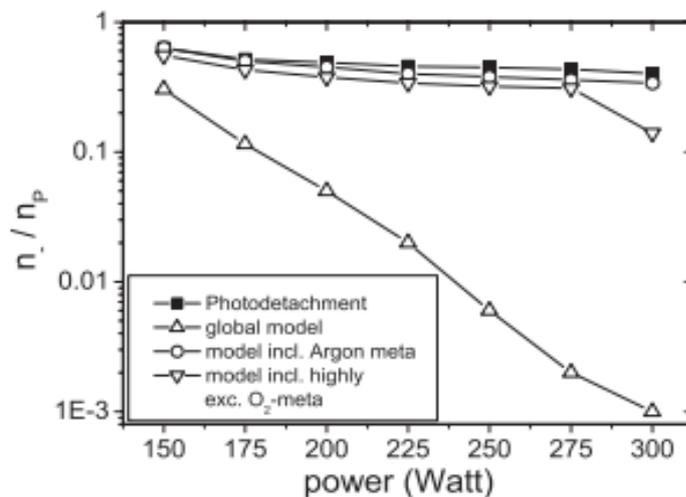


Figure III-14 : Évolution du rapport des ions négatifs à la densité de plasma avec la puissance appliquée [7].

Nous avons aussi calculé l'électronégativité du plasma créé dans le mélange argon/oxygène pour les différentes puissances appliquées. La figure III-15 représente son évolution pour une puissance variable de 150 à 300 W. D'après ce résultat, l'électronégativité du plasma généré dans ces conditions augmente de 1.03 à 1.47 lorsque la puissance appliquée augmente de 150 à 300 W. L'augmentation d'électronégativité dans la région du plasma est un résultat évident, elle résulte de la forte augmentation de la densité des ions négatifs dans la décharge, par rapport à celle des électrons.

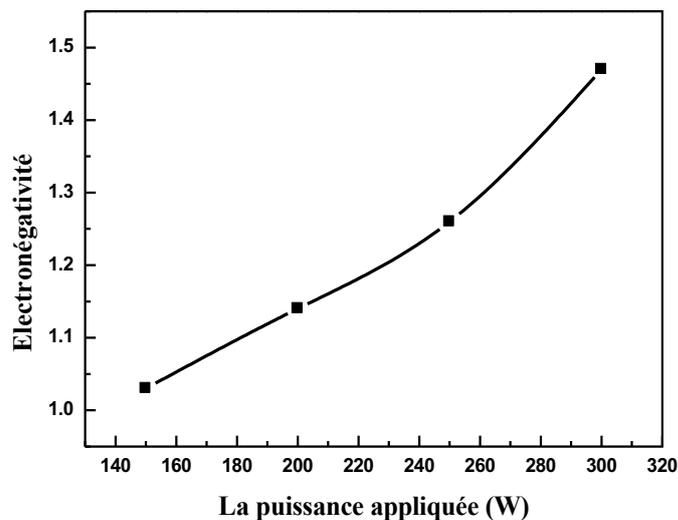


Figure III-15 Evolution d'électronégativité en fonction de la puissance appliquée pour une pression de gaz de 20 mTorr pour un mélange de 70% d'argon et 30% d'oxygène.

Nous avons simulé l'effet de la puissance appliquée sur la température des électrons dans le plasma du mélange de 70% d'argon et 30% d'oxygène. Le résultat de la simulation est présenté sur la figure III-16, pour une température électronique calculée en dessous de la deuxième bobine (à 4 cm du centre) à une hauteur de 10 cm. De cette figure, nous constatons que la température des électrons augmente de 2.9 à 4.4V avec l'augmentation de la puissance appliquée de 150 à 300 W. En effet, à mesure que la puissance appliquée augmente, les électrons acquièrent de l'énergie ce qui se traduit par une température électronique plus importante [6].

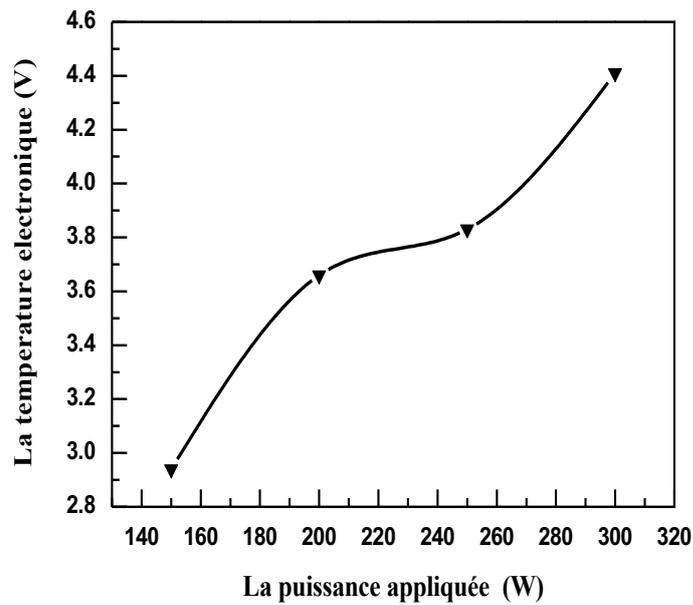


Figure III-16 : Evolution de la température électronique avec la puissance appliquée, pour un plasma de mélange de 70% d'argon et 30% d'oxygène à une pression de 20 mTorr.

La figure III-17 illustre le comportement du potentiel électrique pour différentes valeurs de la puissance appliquée. Cette figure montre que le potentiel électrique simulé présente une faible augmentation de 19.7 à 21.1V avec l'augmentation de la puissance appliquée. Le potentiel électrique suit l'augmentation de la température électronique [13].

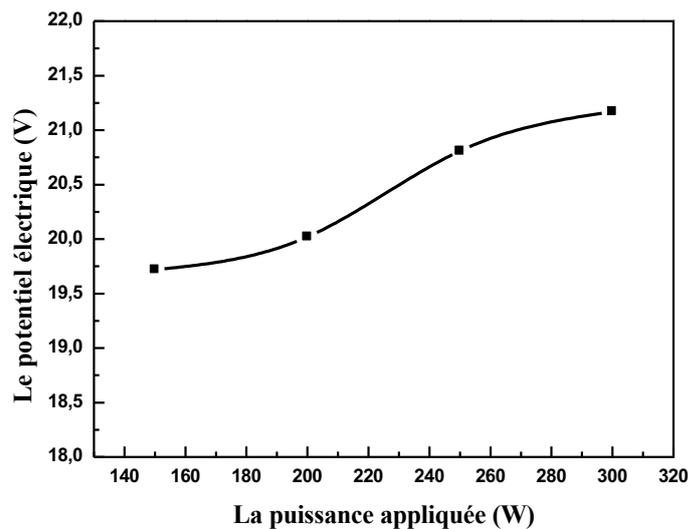


Figure III-17 : Évolution du potentiel électrique avec la puissance appliquée, pour un plasma de mélange de 70% d'argon et 30% d'oxygène à une pression de 20 mTorr.

III-3-1-c Influence de la pression

Dans ce paragraphe, nous présentons les résultats de la simulation, par notre modèle, de l'influence de la pression du gaz sur les paramètres de la décharge, pour un plasma de mélange de 70% argon/ 30% oxygène. Les calculs sont effectués pour une puissance de décharge de 300 W et une pression de gaz variant de 10 à 30 mTorr.

Les figures III-18 à III-21 montrent l'évolution de la densité des charges, du rapport du nombre total d'ions négatifs au nombre d'électrons, de la température des électrons et du potentiel plasma, calculés en fonction de la pression dans la gamme considérée.

La figure III.18 montre que la densité des charges augmente linéairement avec la pression de $7.6 \cdot 10^{15}$ à $6.9 \cdot 10^{16} \text{m}^{-3}$. Cette évolution s'explique par le fait qu'une pression de gaz plus importante encourage les différents processus de collision (ionisation ou excitation) en phase gazeuse, ce qui produit une plus forte augmentation de la densité des particules chargées.

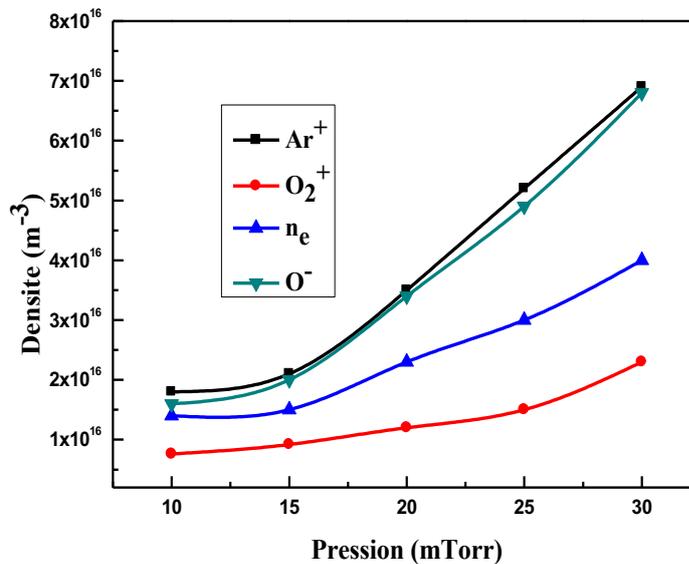


Figure III-18: Evolution de la densité des espèces chargées avec la pression, dans un plasma de mélange argon/oxygène, pour une puissance de décharge de 300W.

Le résultat obtenu de la densité des électrons et de la densité des ions négatifs d'oxygène par rapport à la pression concorde bien avec les résultats d'une simulation basé sur la méthode de Monte-Carlo (PIC-MCC) calculé par S. H. Lee et al [11]. Pour un plasma d'oxygène dans un réacteur inductif fonctionnant avec une excitation RF, une puissance de 100 W et une pression de 20 mTorr, S. H. Lee et al trouvent une

valeur de $2 \cdot 10^{18} \text{ m}^{-3}$ pour la densité électronique et une valeur de $1.6 \cdot 10^{18} \text{ m}^{-3}$ pour la densité des ions négatifs d'oxygène.

La figure III.19 présente l'évolution du rapport des ions négatifs à la densité du plasma avec la pression du gaz dans le réacteur. L'augmentation de la pression de 10 à 30 mTorr provoque une augmentation modérée de ce rapport de 0,28 à 0,34. L'augmentation de la pression signifie une augmentation du nombre de particules par unité de volume, une augmentation du taux de collisions créant de nouvelles particules, ainsi une augmentation de la dissociation des molécules (oxygène) produisant dans le plasma de nombreuses espèces réactives.

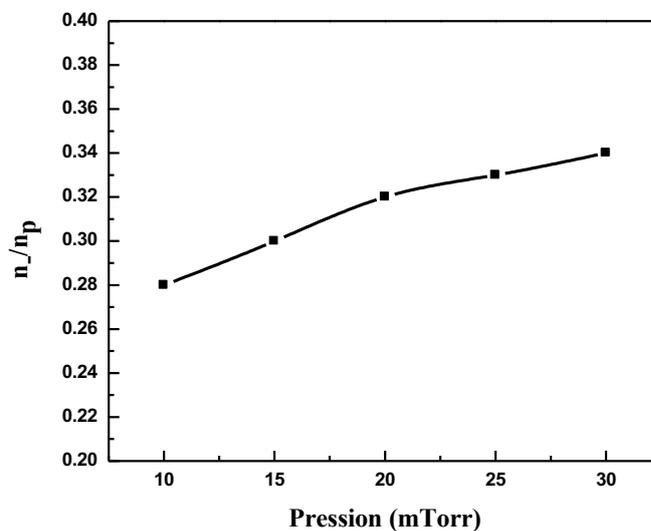


Figure III-19: Evolution du rapport des ions négatifs à la densité de plasma avec la pression ; dans un plasma de mélange argon/oxygène, pour une puissance de décharge de 300W.

Nous avons reporté sur la figure III-20 l'évolution de la température électronique (au cœur de la décharge) en fonction de la pression du gaz. Nous observons que l'effet de la pression sur la de la température électronique est important. Lorsque la pression varie de 10 à 30 mTorr, cette température décroît de 4.9 jusqu'à 2.6 V.

L'équilibre du plasma est fixé par des rapports entre différents termes de création et de perte des particules chargées. Ces termes présentent des dépendances non-linéaires en température (en particulier les coefficients d'ionisation). Cette évolution peut expliquer par la variation de la température. De plus, lorsque la pression du gaz augmente, cela entraîne une augmentation de la densité électronique et une diminution du libre parcours entre particules. Il en résulte une plus grande

probabilité de collisions dans la décharge, ce qui entraîne une perte d'énergie électronique qui est traduite par la chute de leur température.

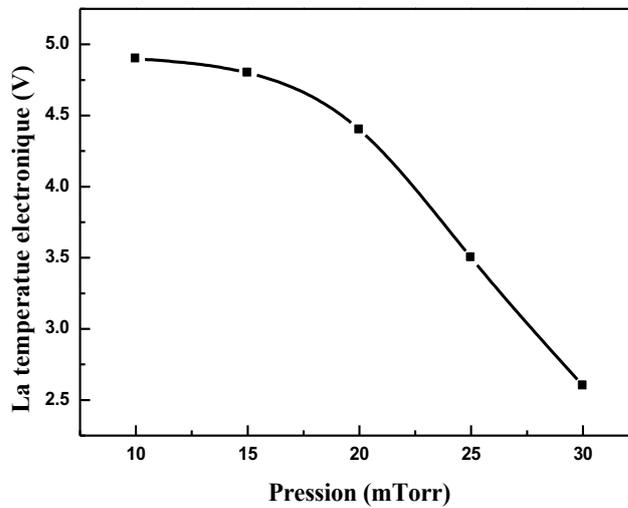


Figure III-20 : Evolution de la température électronique en fonction de la pression, dans un plasma de mélange argon/oxygène, pour une puissance de décharge de 300 W.

L'évolution du potentiel électrique en fonction de la pression est illustrée sur la figure III-21. La puissance radiofréquence est maintenue à 300 W. Le potentiel au sein de la décharge diminue fortement lorsque la pression augmente et suit l'évolution de la température électronique. Les valeurs calculées pour le potentiel plasma sont de 22 V pour une pression de 10 mTorr à 19.6 V pour 30 mTorr.

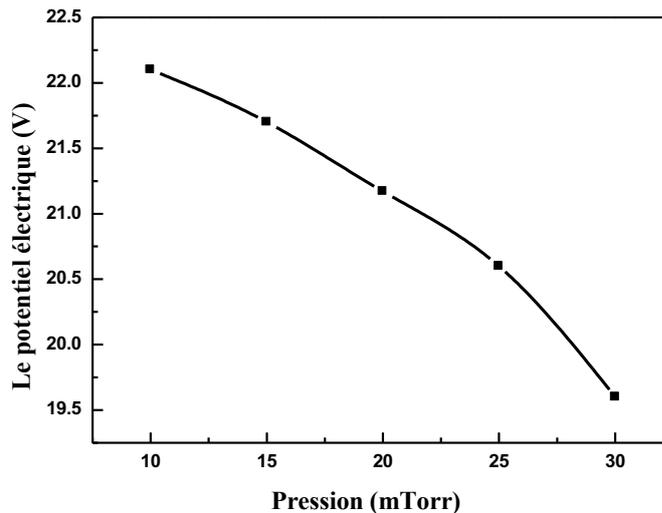


Figure III-21 : Évolution du potentiel électrique avec la pression, dans un plasma de mélange argon/oxygène, pour une puissance de décharge de 300 W.

Nous avons aussi calculé le rapport d'électronégativité des plasmas simulés pour les différentes pressions. Les valeurs obtenues sont reportées sur le tableau III-3 qui montre que ce rapport augmente de 1.14 jusqu'à 1.7 pour la gamme de pression considérée dans notre étude. En effet cette augmentation est directement liée à l'augmentation de la densité de charge négative dans la décharge. De plus nous constatons que pour la gamme de pression étudiée, vu les valeurs de α , le plasma étudié est toujours de faible électronégativité (inférieure à 2).

Pression du gaz (mTorr)	10	15	20	25	30
$\alpha = n^-/n_e$	1.14	1.3	1.47	1.6	1.7

Tableau III-3: L'électronégativité α en fonction de la pression, dans un plasma de mélange argon/oxygène, créé avec une puissance de décharge de 300 W.

III-4 Conclusion

Les décharges RF dans un mélange argon-oxygène avec un couplage inductif suscitent clairement un intérêt croissant. Nous avons consacré ce chapitre à la simulation des décharges radiofréquences dans le cas d'un plasma de mélange de 70 % d'argon avec 30 % d'oxygène à basse pression, dans un réacteur de type ICP-GEC, pour déterminer les paramètres du plasma au cœur de la décharge.

La dépendance de ces paramètres avec le débit d'oxygène, la puissance de la décharge et la pression du gaz dans le réacteur a été étudiée. Nous avons constaté que la densité d'ions négatifs augmente avec l'augmentation du débit d'oxygène, la puissance et la pression au centre du plasma (l'électronégativité de la décharge peut être plus élevée). Le rapport de la densité des ions négatifs à la densité du plasma diminue avec la puissance appliquée par contre la température électronique augmente avec l'augmentation de la puissance appliquée.

Les résultats de la simulation en fonction des paramètres qui gèrent la décharge ont donnés des variations qui sont validés par comparaison avec des travaux expérimentaux et des modèles numériques (modèles particuliers) ce qui peut permettre l'utilisation du modèle présenté pour des essais avec des conditions nécessaires pour des applications particulières, sachant qu'un plasma de mélange argon/oxygène peut être, par exemple, utilisé pour la gravure de composés organiques.

Références bibliographiques du chapitre III

- [1] Dimitris P. Lymberopoulos and Demetre J. Economou. «Two-Dimensional Self-Consistent Radio Frequency Plasma Simulations Relevant to the Gaseous Electronics Conference RF Reference Cell», Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology.100, 473, 1995.
- [2] Justine Johannes, Timothy Bartel, Gregory A. Hebner, and Joseph Woodwort, « Direct Simulation Monte Carlo of Inductively Coupled Plasma and Comparison with Experiments», J Electrochem.Soc.100, 473, 1995.
- [3] Young-Kwang Lee, Ju-Hwan Ku and Chin-Wook Chung, « Measurements of the total energy lost per electron–ion pair lost in low-pressure inductive argon, helium, oxygen and nitrogen discharge », Plasma Sources Sci. Technol. 20,015005, 2011.
- [4] Emilie Despiau-Pujo, «Gravure des semi-conducteurs III-V par plasmas inductifs chlorés», thèse de Doctorat de l'école polytechnique, 2009.
- [5] Akihiro Kono, « Negative ions in processing plasmas and their effect on the plasma structure», Applied Surface Science 192, 115–134, 2002.
- [6] Mark W. Kiehlbauch and David B. Graves, « Inductively coupled plasmas in oxygen: Modeling and experiment », J. Vac. Sci. Technol. A, Vol. 21, No. 3, 2003.
- [7] H.M. KatschT, C. Manthey, J.A. Wagner, H.F. Dfbele, « Negative ions in argon–oxygen discharges », Surface & Coatings Technology 200, 831–834, 2005.
- [8] ComsolMultiphysics™ 4.3a, COMSOL Inc, <http://www.comsol.com>.
- [9] Lizhu Tong, « Effect of Gaz Flow rate and gaz composition in Ar/CH₄ inductively coupled plasmas », Excerpt from the proceedings of the comsol conference, 2011.
- [10] Djilali Benyoucef, Mohammed Yousfi, and Bachir Belmadani, « Self-consistent particle modeling of radio frequency discharge in Ar/O₂ mixtures: Effects of crossed

electric and magnetic fields and partial pressure», journal of Applied Physics 109, 083304, 2011.

[11] S. H. Lee, F. Iza, and J. K. Leeb, « Particle-in-cell Monte Carlo and fluid Simulations of argon-oxygen plasma: Comparisons with experiments and validation», physics of plasmas 13, 057102, 2006.

[12] K. Takechi and M. A. Lieberman, «Effect of Ar addition to an O₂ plasma in an inductively coupled, traveling wave driven, large area plasma source: O₂/Ar mixture plasma modeling and photoresist etching», journal of applied physics, volume 90, number 7, October, 2001.

[13] PLIHON Nicolas, « Stabilité et structure électrique d'une décharge inductive en gaz électronégatif », thèse doctorat de l'école polytechnique, 2006.

[14] Kinga Kutasi¹, Vasco Guerra² and Paulo Sa, « Theoretical insight into Ar–O₂ surface-wave microwave discharges», J. Phys. D: Appl. Phys. 43, 175201 (14pp), 2010.

Chapitre IV

**Modélisation de dépôts
de couches minces de
silicium par PECVD
dans un réacteur de
type GEC-ICP, à
partir d'un plasma de
mélange
silane/argon/hydrogène**

IV-1 Introduction

Le dépôt de films de silicium (Si) est une étape technologique largement utilisée dans l'élaboration de nombreux composants à semi-conducteurs. On rencontre ce procédé, par exemple, dans la fabrication de transistors à couches minces, de photodiodes, de cellules solaires ou de capteurs d'images.

Plusieurs techniques de dépôt peuvent être utilisées pour l'élaboration de ces couches minces et dans le cadre de notre étude nous nous intéressons au dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma à couplage inductif (ICP-CVD).

Le dépôt chimique en phase vapeur ou CVD (Chemical Vapor Deposition) est une technique de dépôt de film solide à partir de précurseurs en phase gazeuse par des réactions chimiques. Le principe général du dépôt CVD est de recouvrir un substrat par un revêtement solide, grâce à des réactions entre les espèces présentes dans le plasma et à la surface du substrat, dans une enceinte de dépôt.

Une simulation fluide auto-cohérente du procédé effectué dans un réacteur GEC-ICP à basse pression, utilisant un mélange de silane, d'argon et d'hydrogène (SiH_4 / Ar / H_2) est présentée dans ce chapitre. Le modèle proposé est de type fluide, il est basé sur la résolution des équations de continuité pour les espèces chargées, des équations de dérive-diffusion pour décrire leur transport et de l'équation d'énergie électronique, couplées aux équations de Maxwell et de Poisson, à l'aide du logiciel COMSOL Multiphysics. Le modèle couple le module plasma au module thermodynamique pour tenir compte de l'écoulement du gaz plasmagène dans le réacteur.

Dans cette étude, les bobines du réacteur GEC sont alimentées par un signal RF de 13.56 MHz de fréquence. Les résultats de cette simulation donnent le profil de la densité électronique, de la température électronique, du potentiel électrique, de la perte de puissance collisionnelle et du champ électrique au milieu de la décharge lors du dépôt des films de silicium. Les effets des paramètres externes, tels que la pression de la chambre, la puissance appliquée et la dilution d'hydrogène, sur la vitesse de croissance des films de silicium déposés par ICP-CVD sont ensuite étudiés.

IV-2 Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD

La plupart des films de silicium sont préparés par dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma (PECVD) utilisant un plasma à couplage capacitif (CCP) [1-3] ou un plasma à couplage inductif (ICP) [4-6]. Cependant, le CCP est une source de faible densité de plasma, et donc de faibles taux de dépôt et de gravure. D'autre part, l'ICP est une source de haute densité [7-9]. La cellule de couplage inductif est utilisée pour la gravure par plasma [10-12] et pour le dépôt par plasma de couches minces [13-15].

Le dépôt chimique en phase vapeur de couches minces de silicium est un processus complexe dû à l'activation des espèces chimiques présentes dans le gaz. La vitesse de croissance et la couche de film déposé sont influencées par les paramètres de la décharge tels que la composition de la phase gazeuse, la pression du réacteur, la température du substrat lors du dépôt ainsi que la puissance. Les films de silicium sont déposés avec des mélanges d'argon, d'hydrogène et de silane. L'argon est utilisé pour augmenter la vitesse de dépôt et la cristallinité des films déposés [16]. L'hydrogène est généralement un élément responsable de la saturation des liaisons pendantes et de la réduction de la densité des défauts de surface et de volume [17].

IV-2-1 Modèle numérique

Un modèle fluide numérique bidimensionnel, utilisant une approximation de diffusion-dérive pour différentes espèces, l'équation d'énergie électronique moyenne et les équations de Maxwell pour le champ électromagnétique est utilisé pour une étude du plasma à couplage inductif basse pression. Le module plasma est couplé au module à flux laminaire via les équations de Navier – Stokes pour le gaz de fond neutre afin de prendre en compte l'écoulement du gaz. Nous avons utilisé l'hypothèse d'une fonction de distribution d'énergie des électrons maxwellienne. Ce choix est basé sur des résultats expérimentaux où il a été montré que pour des gaz moléculaires dans les plasmas ICP radiofréquences, pour une pression considérée entre 10 et 50 mTorr (cf. chapitre II), les mesures de la fonction de distribution en énergie des électrons ont montré que l'approche de la FDEE maxwellienne est une approche raisonnable [18-

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD
dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange
silane/argon/hydrogène.

20].

L'ensemble des équations qui régissent le modèle GEC-ICP avec ses deux modules plasma et écoulement est décrit dans le chapitre II.

Le taux de croissance du silicium déposé par PECVD-ICP est donné par l'équation suivante [21]:

$$\frac{dh}{dt} = \frac{RM}{\rho_b} \quad (\text{IV-1})$$

Où h est le taux de dépôt totale (m), M est le poids moléculaire (kg / mol) et ρ_b est la densité de l'espèce en volume (kg / m³), R est l'expression du taux de surface (mol / m²).

La partie la plus importante du dépôt est effectuée au niveau du réacteur, où se fait la croissance de la couche mince suivant plusieurs étapes physico-chimique, peuvent être résumées comme suit :

- Transport des espèces non réactives depuis l'entrée du réacteur vers la zone de dépôt.
- Réactions chimiques des gaz conduisant à la formation d'espèces réactives et de résidus.
- Transport des espèces réactives jusqu'à la surface du substrat.
- Adsorption des espèces sur la surface du substrat.
- Diffusion des espèces à la surface jusqu'aux sites de croissance.
- Incorporation des constituants du film dans la couche croissante.
- Désorption des produits résiduels de réactions de surface.
- Transport des produits résiduels vers la sortie du réacteur.

IV-2-2 Conditions aux limites

En raison de mouvements aléatoires, les électrons sont perdus dans le mur par quelques voies moyennes libres et gagnés en raison des effets d'émission secondaire, conduisant à la condition aux limites suivante pour le flux d'électrons :

$$-n_e \Gamma_e = \frac{1-r_e}{1+r_e} \left(\frac{1}{2} V_{th} n_e \right) - \sum_p \gamma_p \cdot (\Gamma_p \cdot n) \quad (\text{IV-2})$$

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

Où \mathbf{n} est le vecteur unité, normal à la paroi, Γ_e est le flux des électrons sur les parois, V_{th} la vitesse thermique des électrons et γ_p est le coefficient de l'émission secondaire. Le deuxième terme de l'équation (IV-2) présente le gain d'électrons.

Et le flux d'énergie des électrons est donnée par :

$$-\mathbf{n} \cdot \Gamma_\varepsilon = \frac{1-r_e}{1+r_e} \left(\frac{5}{6} V_{th} n_\varepsilon \right) - \sum_p \gamma_p \varepsilon_p \cdot (\Gamma_p \cdot \mathbf{n}) \quad (IV-3)$$

Le deuxième terme de l'équation (IV-3) présente le flux d'énergie des électrons secondaires et ε_p présente l'énergie moyenne des électrons secondaires.

Les processus d'émission secondaires d'électrons (γ_p) et de réflexion (r_e) sont ignorés dans cette simulation.

Le potentiel électrique est nul sur toutes les parois internes du réacteur ($V=0$).

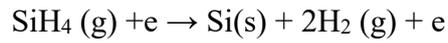
IV-2-3 Chimie du plasma

Une fois le gaz précurseur introduit dans le réacteur et les conditions de décharge établies, l'aboutissement à la croissance du film de silicium passe par plusieurs étapes physico-chimiques complexes. Le gaz précurseur subit, dans un premier temps, un ensemble d'interactions induisant la rupture de certaines liaisons et la création de nouvelles particules dans le gaz. Les espèces réactives qui arrivent vers le substrat subissent une adsorption sur sa surface et la peuplent d'atomes. A ce niveau, plusieurs processus atomiques se produisent. On assiste à une diffusion des espèces à la surface jusqu'aux sites de croissance, suivie d'une incorporation des constituants du film dans la couche en croissance accompagnée d'une désorption des produits résiduels de réactions de surface qui est transportée et évacuée du réacteur.

Dans le modèle que nous avons élaboré considère le gaz précurseur est composé d'un mélange de 90% d'argon, de 5% de silane et de 5% d'hydrogène, où les collisions de ces éléments avec des électrons ou des ions hautement énergétiques conduisent à leur dissociation et/ou ionisation. Ainsi, les réactions les plus importantes telles que les ionisations, les excitations et les attachements, qui peuvent se produire dans la décharge, sont prises en compte dans le modèle.

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

La chimie du plasma consiste en des réactions volumétriques et superficielles. Des réactions de surface se produisent sur le substrat qui consomme du silicium et libère de l'hydrogène. La réaction principale conduisant au dépôt de silicium est la réaction de dissociation du silane. La réaction se présente sous la forme suivante [21]:



Cette réaction implique que des couches de silicium se déposent à la surface du substrat et que le silane est remplacé par de l'hydrogène à l'intérieur du réacteur [21].

Les collisions d'électrons prises en considération dans le modèle sont données dans le tableau IV-1 [21-25].

Réaction	Formula	Type	$\Delta\varepsilon$ (eV)
1	$\text{e} + \text{Ar} \Rightarrow \text{e} + \text{Ar}$	Elastique	0
2	$\text{e} + \text{Ar} \Rightarrow \text{e} + \text{Ar}^*$	Excitation	11.5
3	$\text{e} + \text{Ar}^* \Rightarrow \text{e} + \text{Ar}$	Superplastique	-11.5
4	$\text{e} + \text{Ar} \Rightarrow 2\text{e} + \text{Ar}^+$	Ionisation	15.8
5	$\text{e} + \text{Ar}^* \Rightarrow 2\text{e} + \text{Ar}^+$	Ionisation	4.427
6	$\text{e} + \text{SiH}_4 \Rightarrow \text{e} + \text{SiH}_4$	Elastique	0
7	$\text{e} + \text{SiH}_4 \Rightarrow \text{e} + \text{SiH}_4^*$	Excitation	0.11
8	$\text{e} + \text{SiH}_4 \Rightarrow \text{e} + \text{SiH}_4^*$	Excitation	0.27
9	$\text{e} + \text{SiH}_4 \Rightarrow \text{e} + \text{SiH}_4^*$	Excitation	8.01
10	$\text{e} + \text{SiH}_4 \Rightarrow \text{e} + \text{SiH}_4^*$	Excitation	8.92
11	$\text{e} + \text{SiH}_4 \Rightarrow 2\text{e} + \text{SiH}_4^+$	Ionisation	12.9
12	$\text{e} + \text{SiH}_4 \Rightarrow \text{SiH}_4^-$	Attachement	0
13	$\text{e} + \text{H}_2 \Rightarrow \text{e} + \text{H}_2$	Elastique	0
14	$\text{e} + \text{H}_2 \Rightarrow \text{e} + \text{H}_2^*$	Excitation	15
15	$\text{e} + \text{H}_2 \Rightarrow \text{e} + \text{H}_2^*$	Excitation	16.6
16	$\text{e} + \text{H}_2 \Rightarrow 2\text{e} + \text{H}_2^+$	Dissociative attachement	15.4

Tableau IV-1 : Les collisions d'électrons utilisées dans le modèle.

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

IV-2-4 Les paramètres standards de la décharge

Le tableau suivant regroupe l'ensemble des valeurs numériques des différents paramètres considérés dans le modèle proposé.

Paramètres de la décharge	Valeurs
Température du gaz T_g	500 K
Pression du gaz p	10-40mTorr
Fréquence RF	13.56 (MHz)
Densité électronique initiale n_{e0}	10^{15} (m^{-3})
L'énergie électronique initiale ϵ_0	5 (V)
Le potentiel électrique V	0 (V)
La puissance appliquée P	1000-3000 (W)

Tableau IV-2 : Les paramètres standards de la décharge.

IV-2-5 Critère de convergence

La modélisation de cette décharge est réalisée par la méthode des éléments finis à l'aide du logiciel COMSOL Multiphysics. Le critère de convergence est atteint au bout de quelques minutes (environ 35 minutes) sur Intel, Xeon CPU E5-268wq 3.1 GHz.

IV-2-6 Présentation du modèle de décharge inductif

Dans cette étude, nous présentons un modèle axisymétrique bidimensionnel de plasma à couplage inductif produit dans un réacteur de cellule de référence GEC et sa mise en œuvre numérique sous COMSOL Multiphysics.

La configuration de GEC-ICP est bien documentée [22, 26-28]. La cellule est utilisée avec une bobine inductive pour générer une basse pression (<6,67 Pa, soit 50 mTorr) et une densité de charge élevée ($> 10^{17} m^{-3}$) [29]. La basse pression assure un bombardement ionique directionnel et une meilleure uniformité du plasma sur des substrats de grand diamètre [30]. De plus, une densité de plasma élevée garantit des taux de gravure ou de dépôt élevés.

Un schéma de la géométrie simulée est illustré sur la figure IV-1 (a). La cellule gazeuse GEC présente cinq bobines planes de 3 mm de diamètre, refroidies à l'eau. Les bobines sont séparées du plasma par une fenêtre en quartz de 1 cm d'épaisseur.

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

La distance (hauteur) entre la fenêtre en quartz et l'électrode inférieure (substrat) est de 3,8 cm.

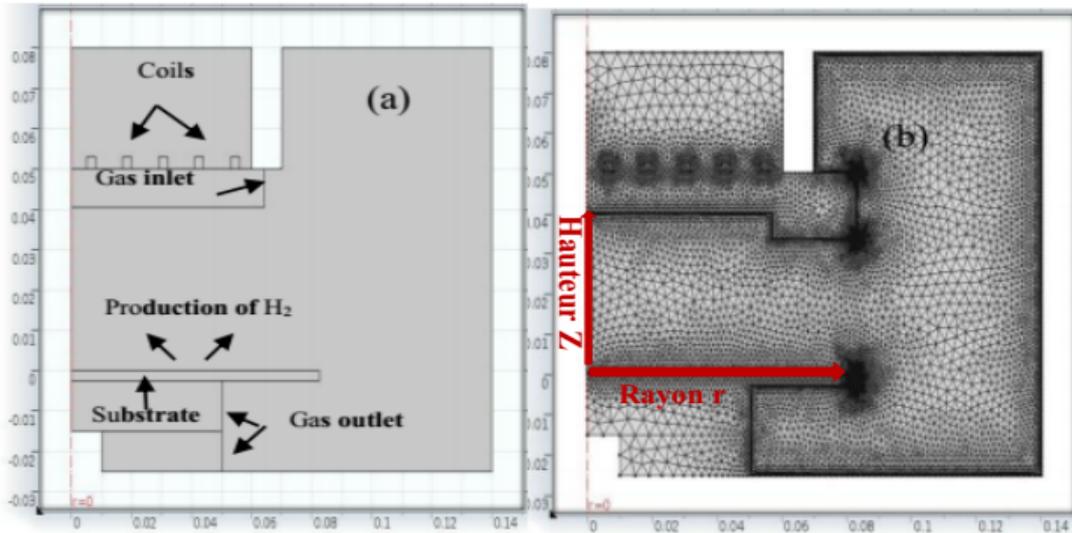


Figure IV-1 : (a) La structure de référence GEC conçue à l'aide du logiciel COMSOL, (b) Le maillage de la structure du GEC-ICP

La structure maillée de la cellule de référence est représentée sur la figure IV-1 (b). Le maillage est effectué à base d'éléments triangulaires fins, donnant un nombre de 14460 éléments pour la structure.

IV-3 Résultats et discussions

Nous avons considéré dans cette étude la décharge de dépôt chimique en phase vapeur à couplage inductif assisté par plasma (ICP-CVD) en utilisant un mélange silane-argon-hydrogène dans un réacteur GEC. Il fonctionne à une fréquence radio de 13,56 MHz pour maintenir la décharge de plasma et une température de gaz de 500 K. Les valeurs sont inspirées du modèle proposé par Danko Stephan et al [25] pour permettre la comparaison des résultats obtenus avec ceux de la littérature.

L'effet de la pression du gaz, de la puissance appliquée et de la fraction d'hydrogène est étudié dans cette section. Nous avons considéré une pression de gaz de 10 mTorr à 40 mTorr et une puissance de travail de 1000 W à 3000 W et une fraction d'hydrogène de 5% à 25%, afin de comparer les résultats de la modélisation avec certains résultats expérimentaux obtenus pour le dépôt de silicium hydrogéné (Si: H) par ICP-CVD [4, 5, 14, 17, 31].

IV-3-1 Les résultats de la simulation de la décharge

Les variations 3D et unidimensionnelles de la densité électronique, de la température électronique, du potentiel électrique, de la perte de puissance collisionnelle et du champ électrique au milieu de la décharge, calculés dans les conditions d'une puissance appliquée de 3000W, d'une pression de 20 mTorr et d'un mélange de 5% SiH₄, 5% H₂ et 90% Ar, sont présentées sur les figures suivantes.

La figure IV-2 illustre le résultat de la distribution de la densité électronique pour le mélange SiH₄/H₂/Ar. La valeur maximale de la densité électronique simulée est d'environ $4,4 \cdot 10^{18} \text{ m}^{-3}$ au milieu du réacteur et elle est supposée baisser fortement, en allant vers les parois extérieures du réacteur, dans la direction radiale (figure IV-2-a). Cette chute graduelle de la densité électronique est aussi observée dans la direction axiale ($r=0$), de part et d'autre du centre de la décharge où sa valeur décroît jusqu'à environ $5,6 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-3}$ au niveau de la fenêtre en quartz, sous les bobines (figure IV-2-b). Dans la décharge RF, les électrons, en raison leur forte mobilité, leur faible masse, et de leur fréquence f_{pe} qui est beaucoup plus élevée que la fréquence d'excitation f_{rf} sont confinés dans le milieu du plasma par le champ électrique lors que les ions sont accélérés vers les parois.

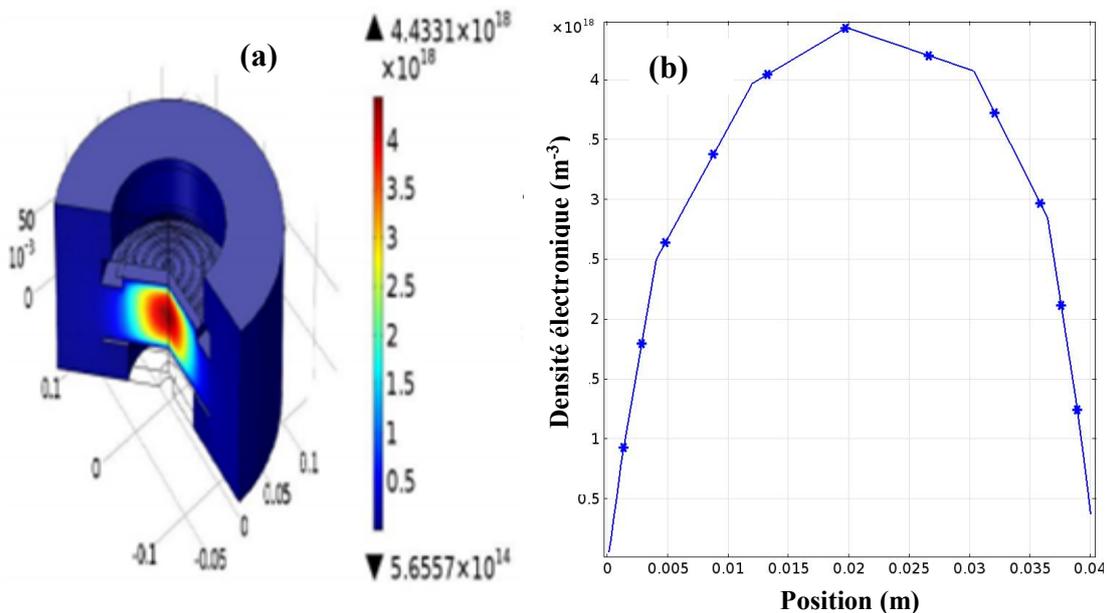


Figure IV-2 : Évolution 3D(a) et 1D (b) de la densité électronique (m^{-3}).

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

La distribution de la température électronique est illustrée sur la figure IV-3. Le résultat obtenu montre que cette température est maximale au niveau de la fenêtre en quartz sous les bobines (figure IV-3-a). Le tracé de son évolution radiale à ce niveau (figure IV-3-b), montre que sa valeur maximale est d'environ 3,3V, elle est située entre la troisième et la quatrième bobine à un rayon de 35 mm du centre du réacteur.

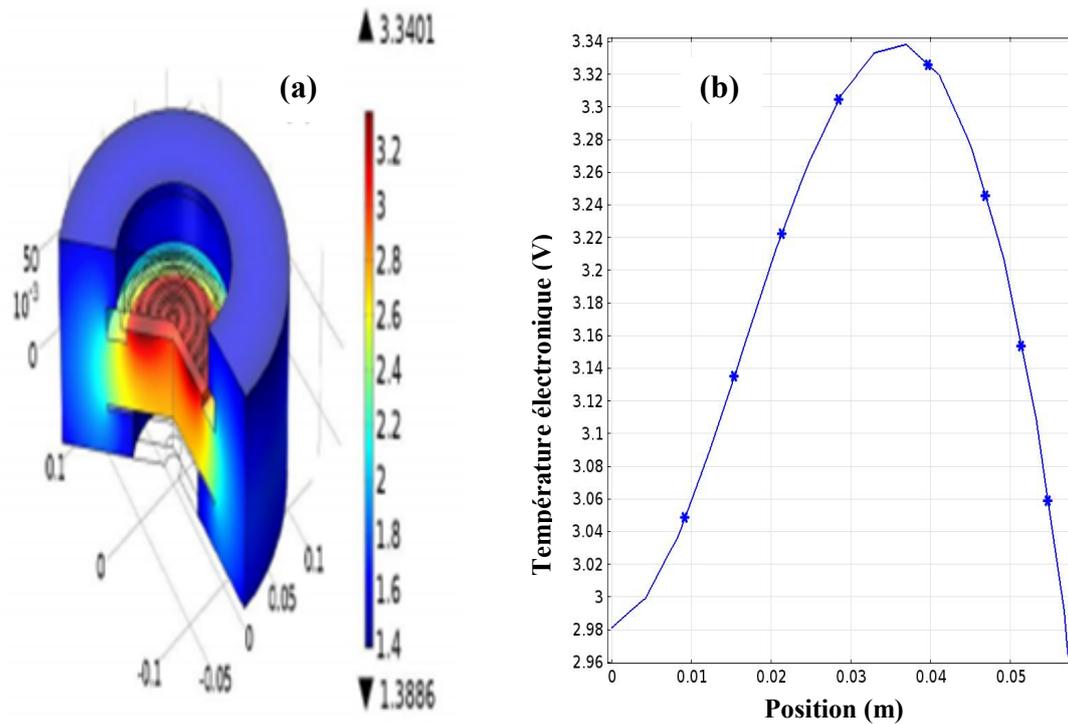


Figure IV-3 : Évolution 3D (a) et 1D (b) de la température électronique (V).

Le profil du potentiel électrique le long de l'axe central ($r=0$) du réacteur est présenté sur la figure IV-4. La valeur maximale du potentiel électrique, situé dans le cœur du plasma, est d'environ 16,7 V. Elle correspond au potentiel plasma qui est défini dans la zone plasma au centre du réacteur où la densité électronique atteint son maximum et où apparaît une quasi neutralité du plasma.

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

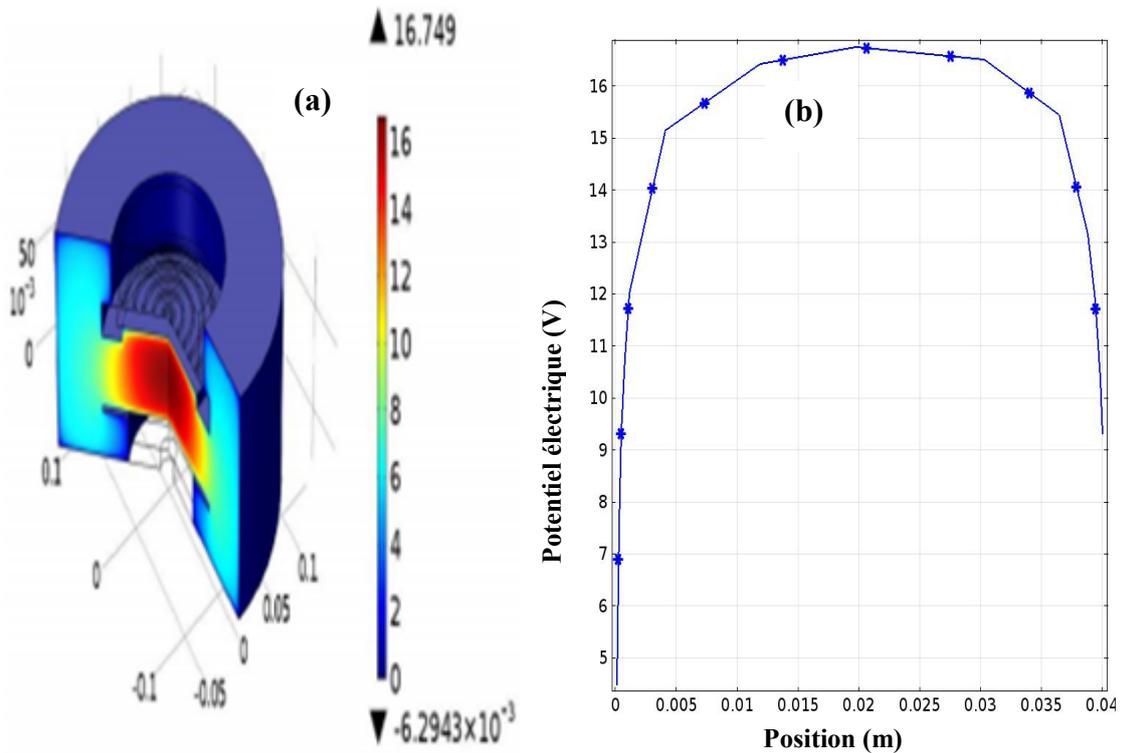


Figure IV-4 : Évolution 3D (a) et 1D (b) du potentiel électrique (V).

La puissance dissipée par collisions électroniques est représentée sur la figure IV-5. Nous constatons que le maximum de puissance dissipée est au centre du réacteur, dans la région où le plasma est créé. La perte de puissance est plus importante dans la partie supérieure du réacteur, au voisinage des bobines où la température électronique est élevée (figure IV-5 b), avec une valeur de $6,6 \cdot 10^6 \text{ w} / \text{m}^3$. Nous constatons aussi que le modèle rend compte du couplage du module plasma avec l'écoulement du gaz précurseur puisqu'il est clair, d'après cette figure, que la région de perte de puissance par collisions s'étale, en haut du réacteur, vers l'entrée des gaz suite aux nombreuses collisions électrons-neutres qui ont lieu à ce niveau.

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

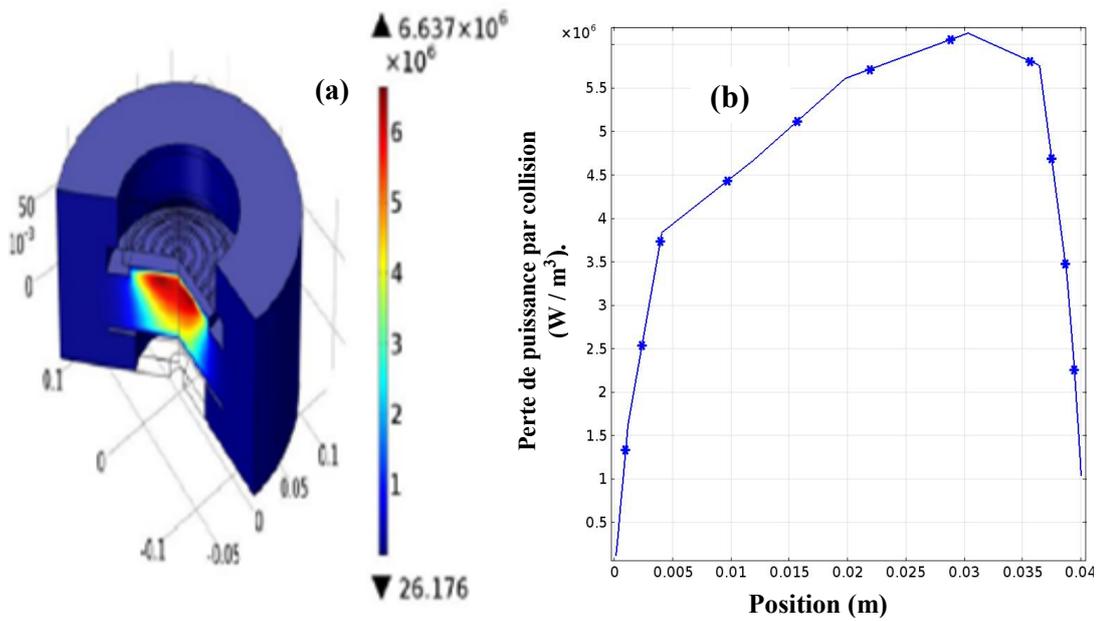


Figure IV-5 : Évolution 3D (a) et 1D (b) de la perte de puissance par collisions (W / m³).

La figure IV-6 représente la distribution spatiale du champ électrique E azimutal induit par le courant circulant dans les bobines alimentées par la puissance RF. On observe que ce champ électrique est très intense au niveau des bobines, il vaut environ 4856 V/m. Ce champ accélère les électrons dans la direction parallèle aux parois du réacteur et c'est par absorption l'énergie de ce champ induit que les électrons entretiennent le plasma par les interactions produites en son milieu. On remarque aussi que ce champ ne se propage pas dans le plasma mais qu'il est absorbé sur la distance appelée épaisseur de peau δ (Cf. Chapitre 1).

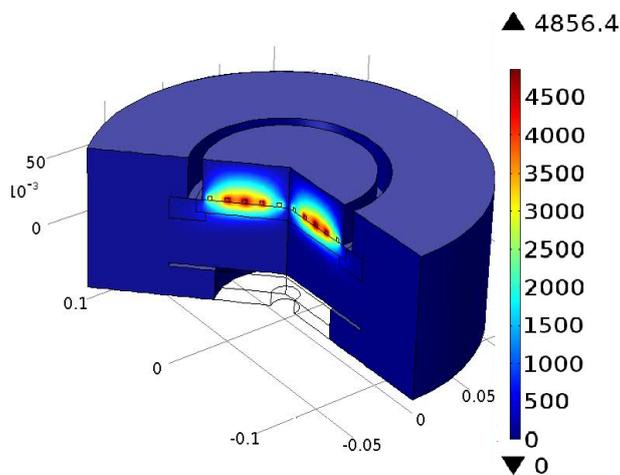


Figure IV-6 : Évolution du champ électrique azimutal (V/m).

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

Ces résultats sur la simulation de l'évolution des paramètres du plasma semblent assez proches de ceux obtenus par Ming Li et al [5] avec un modèle fluide ICP basé sur la simulation d'une décharge RF à basse pression. La comparaison des résultats expérimentaux obtenus par Ming Li et al avec les résultats de notre simulation montre que le modèle fluide donne de bons résultats pour une certaine plage de pression et de puissance appliquée. Pour une pression de gaz de 10 mTorr et une puissance de 800 W, les auteurs ont obtenu une densité électronique de $6 \cdot 10^{17} \text{m}^{-3}$, une température électronique de 3,8 eV et un potentiel électrique de 15 V.

Cette validation du modèle établi va nous permettre, par la suite, de faire une étude paramétrée sur l'effet des conditions de décharge sur les propriétés du plasma.

IV-3-2 Taux de réaction

Comme nous venons de le voir, la puissance RF appliquée aux bobines est à l'origine de l'énergie absorbée par les électrons qui sont dirigés vers le centre du réacteur où se produit le maximum de réactions avec les neutres du gaz précurseur pour l'entretien du plasma. Pour bien illustrer ce comportement nous avons reporté sur la figure IV-7 la variation axiale au centre du réacteur (pour $r = 0$) des taux d'ionisation de l'argon, du silane et de l'hydrogène dans le plasma (figure IV-7-a) ainsi que les densités d'électrons et d'espèces SiH_4^+ , SiH_4^- , H_2^+ et Ar^+ (figure IV-7-b). La figure IV-7(a) montre que le taux d'ionisation de l'argon est plus important que celui du silane et de l'hydrogène. L'argon est un gaz rare, il est généralement ajouté lors des dépôts par CVD de manière à obtenir une décharge stable et à augmenter les collisions entre les espèces présentes dans le plasma.

La figure IV-7(b) montre que la densité des espèces chargées est très élevée au centre du réacteur, avec $1,7 \cdot 10^{19} \text{m}^{-3}$ pour Ar^+ , $1,3 \cdot 10^{19} \text{m}^{-3}$ pour SiH_4^- et $4 \cdot 10^{18} \text{m}^{-3}$ pour les électrons, puis elle diminue progressivement en dehors de la zone plasma en raison de la diffusion vers la paroi ambipolaire et de la recombinaison électron-ion qui sont les principales causes de pertes de particules dans le plasma.

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

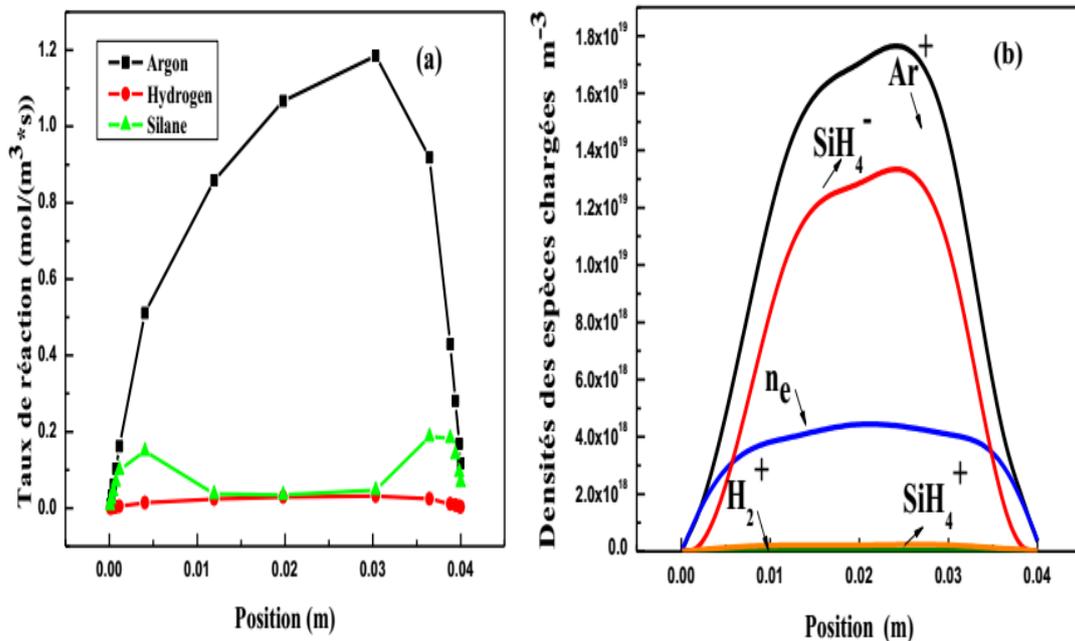


Figure IV-7 : (a) Profil axial de taux d'ionisation de l'argon, du silane et de l'hydrogène. (b) Évolution des densités des électrons et des espèces SiH_4^+ , SiH_4^- , H_2^+ et Ar^+ .

IV-3-3 Influence des paramètres de la décharge sur les propriétés du plasma

Certains paramètres comme la puissance RF, la pression des gaz, et le taux de dilution des mélanges gazeux jouent un rôle très important sur les propriétés du plasma. Dans ce paragraphe nous présentons les résultats de la simulation de l'effet de la puissance appliquée et de la pression du gaz sur les propriétés du plasma à travers l'étude de la variation de la densité des ions de silane et de la température électronique pour un mélange de 5% de SiH_4 , 5% d' H_2 et 90% d' Ar .

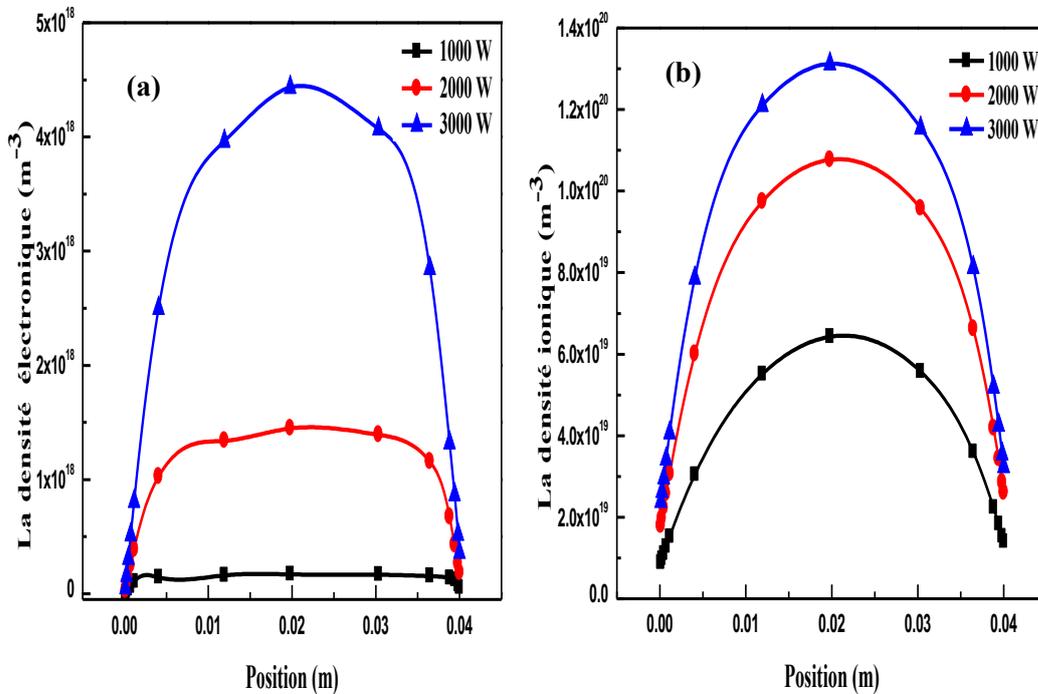
IV-3-3-a Influence de la puissance appliquée

L'influence de la puissance appliquée sur la densité électronique, ionique, la température des électrons et le potentiel électrique est représentée sur les figures IV-8, pour une pression de gaz de 20 mTorr maintenue constante.

Les figures IV-8 (a) et (b) présentent La variation spatiale des différentes espèces chargées (électrons, ions) au sein du réacteur en fonction de la puissance. La densité électronique est maximale dans le milieu de la décharge et elle augmente de $1.7 \cdot 10^{17}$ à

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

$4.4 \cdot 10^{18} \text{ m}^{-3}$ lorsque la puissance appliquée augmente de 1 à 3 kW. La densité ionique augmente de $6 \cdot 10^{19}$ à $1.3 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ avec l'augmentation de la puissance appliquée, et



elle est maximale aussi dans le milieu de la décharge.

Figure IV-8: Variation de (a) la densité électronique, (b) la densité ionique avec la puissance appliquée pour une pression de 20 mTorr.

Les figures IV-8 (c) et (d) présentent les évolutions de la température électronique et du potentiel plasma pour différentes valeurs de la puissance. La température électronique diminue de 5 à 3.3 V avec l'augmentation de la puissance appliquée. Le potentiel électrique subit une légère augmentation, de 14.99 à 16.74V, avec l'augmentation de la puissance appliquée.

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

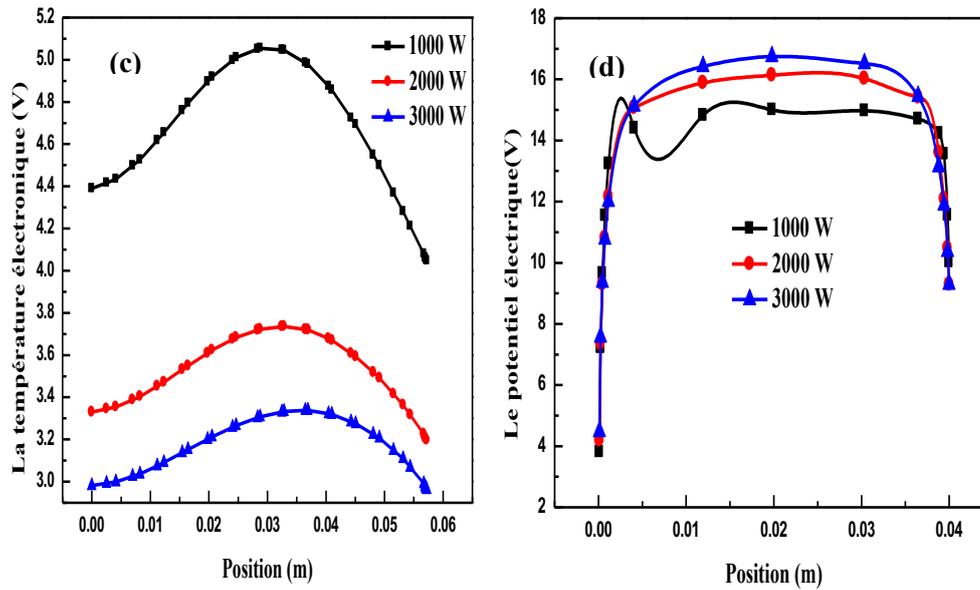


Figure IV-8 : Variation de (c) la température électronique et (d) du potentiel électrique avec la puissance appliquée pour une pression de 20 mTorr.

Lorsque la puissance appliquée augmente de 1000 à 3000W, la densité des ions silane augmente de $6 \cdot 10^{19}$ à $1,3 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ et la température des électrons diminue de 5,3 à 3,3 V (figure IV-9). Ceci peut être expliqué par le fait que la température des électrons est normalement proportionnelle à l'énergie de bombardement, ce qui provoque directement les défauts dans les films de silicium et la densité ionique sont directement liés à la vitesse de dépôt, du fait de l'augmentation du bombardement des ions et des espèces réactives [17, 31]. L'augmentation de la puissance appliquée donne des taux d'ionisation plus élevés et donc un plasma plus riche en espèces chargées. Cela permet la création de nouvelles particules et par conséquent l'augmentation de la densité ionique. L'augmentation du taux de collision conduit donc à la diminution de la température des électrons dans la zone plasma, qui peut être due à une perte d'énergie par collisions qui deviennent plus nombreuses.

Des résultats similaires sont obtenus expérimentalement par J.H. Hsieh et al [17] lors du dépôt de films de Si: H dans un système ICP-CVD pour une pression de 30 mTorr. Pour une puissance RF (13,56 MHz) variant de 1 à 2 KW. Les auteurs ont obtenu une légère diminution de la température des électrons de 1,95 à 1,92 eV et une augmentation de la densité ionique de $5 \cdot 10^{17}$ à $8,2 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$. De la même manière,

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

Chen Jiuxiang et al [31] ont obtenu, lors d'un dépôt de film Si-H à partir de 30 sccm de SiH₄ et 105 sccm de H₂, une variation de la température électronique de 1,88 à 1,86 eV et une croissance de la densité ionique de $8,0 \cdot 10^{17}$ à $9,2 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$ pour une pression de 30 mTorr et une puissance allant de 1,8 à 3 KW.

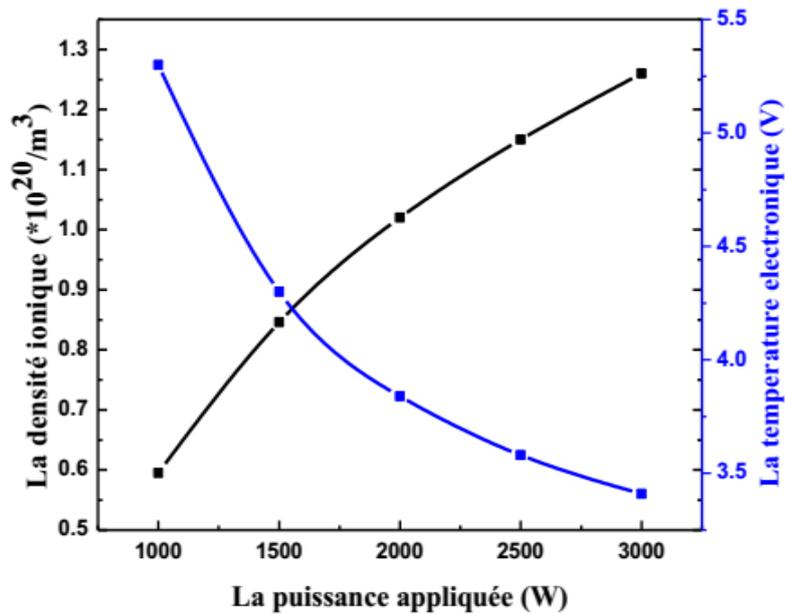


Figure IV-9 : Variation de la densité des ions SiH₄ et de la température des électrons avec la puissance appliquée pour une pression de 20 mTorr.

IV-3-3-b Influence de la pression

L'influence de la pression sur les densités électronique et ionique, la température des électrons et le potentiel électrique est étudiée pour une pression variant de 10 à 40 mTorr. Les résultats de la simulation sont représentés sur les figures IV-10, pour une puissance de gaz de 3000W. Les figures IV-10 (a) et (b) présentent la variation axiale (pour $r = 0$) des différentes espèces chargées (électrons, ions) au sein du réacteur en fonction de la pression. La densité électronique est maximale dans le milieu de la décharge et elle augmente de $3,9 \cdot 10^{18}$ à $5,8 \cdot 10^{18} \text{ m}^{-3}$ lorsque la pression augmente de 10 mTorr à 40 mTorr. La densité ionique augmente de $1,2 \cdot 10^{20}$ à $1,43 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ avec l'augmentation de la pression, et elle est maximale aussi au milieu de la décharge.

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

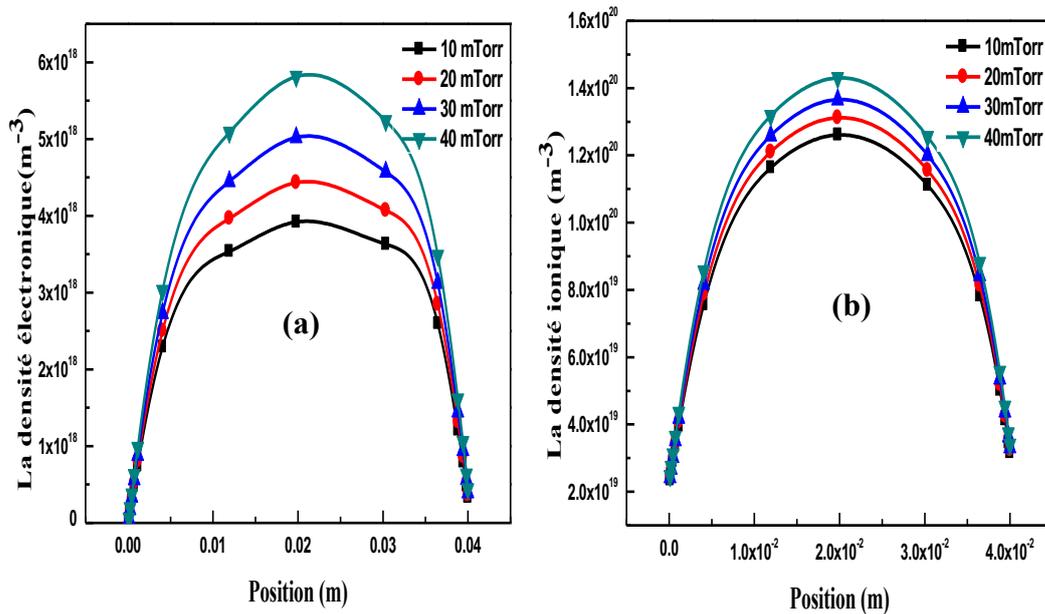


Figure IV-10 : Variation de (a) la densité électronique et (b) la densité ionique, avec la pression pour une puissance appliquée de 3000W.

Les figures IV-10 (c) et (d) présentent la variation radiale sous la fenêtre en quartz de la température électronique et la variation axiale (pour $r = 0$) du potentiel plasma avec la pression du gaz pour des valeurs comprises entre 10 et 40 mTorr.

La température électronique diminue de 3.5 à 3.1 V avec augmentation de la pression. La température électronique maximale est située dans la paroi intérieure du réacteur sous la deuxième bobine. Le potentiel électrique est quasi-constant au milieu du réacteur et sa valeur observe une très légère augmentation (de 16.5 à 16.86V) avec l'augmentation de la pression.

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

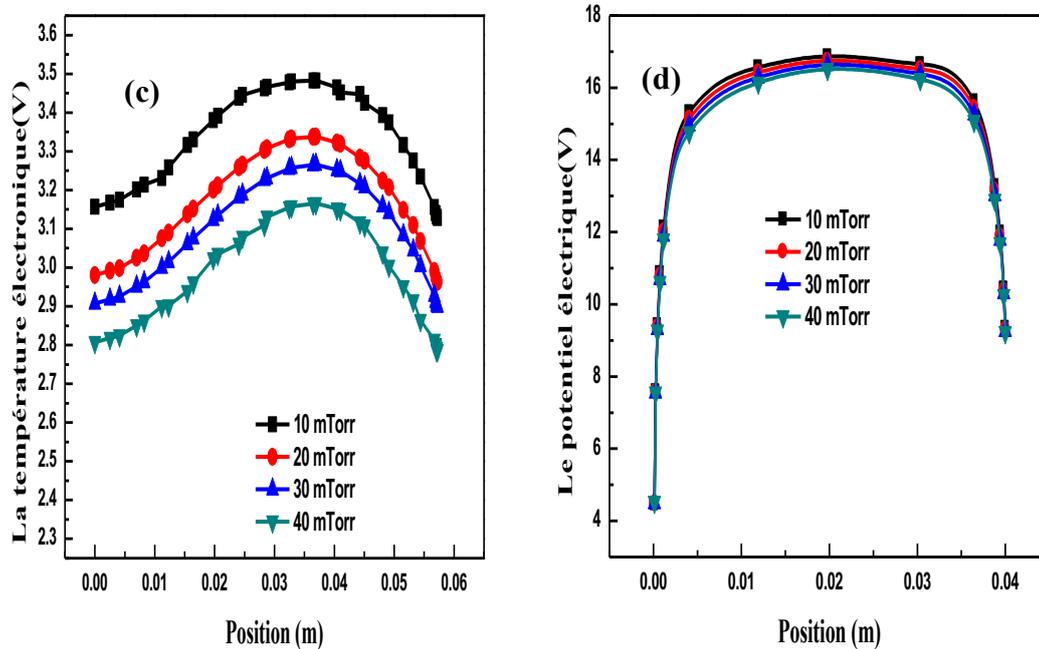


Figure IV-10 : Variation (c) de la température électronique et (d) du potentiel électrique, avec la pression pour une puissance appliquée de 3000W.

À partir de la figure IV-11, nous constatons que pour une variation de pression de 10 à 40 mTorr, la densité des ions silane augmente légèrement de $1,2 \cdot 10^{20}$ à $1,4 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ alors que la température des électrons diminue de 3,5 à 3,1 V.

L'augmentation de la densité des ions dans la région du plasma est due à l'augmentation de la pression. Cela signifie une augmentation des particules par unité de volume, ce qui entraînera une augmentation du taux de collisions créant de nouvelles particules. La diminution de la température électronique dans la zone plasma, lorsque la pression passe de 10 mTorr à 40 mTorr, est due à cette augmentation proportionnelle du taux de collisions avec la pression du gaz, ce qui entraîne une perte d'énergie par collisions. La densité d'ions et la température des électrons mesurées, par J.H. Hsieh et al [17], lors de dépôt de films minces de a-Si :H par ICP-CVD dans un système à antennes internes, avec une puissance RF de 1700 W et une pression de 20 à 40 mTorr sont de $6,3 \cdot 10^{17}$ à $8 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$ et 2,05 à 1,09 eV, respectivement. Ces évolutions sont analogues à ceux obtenus par notre modèle et permettent la validation des résultats de nos calculs.

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

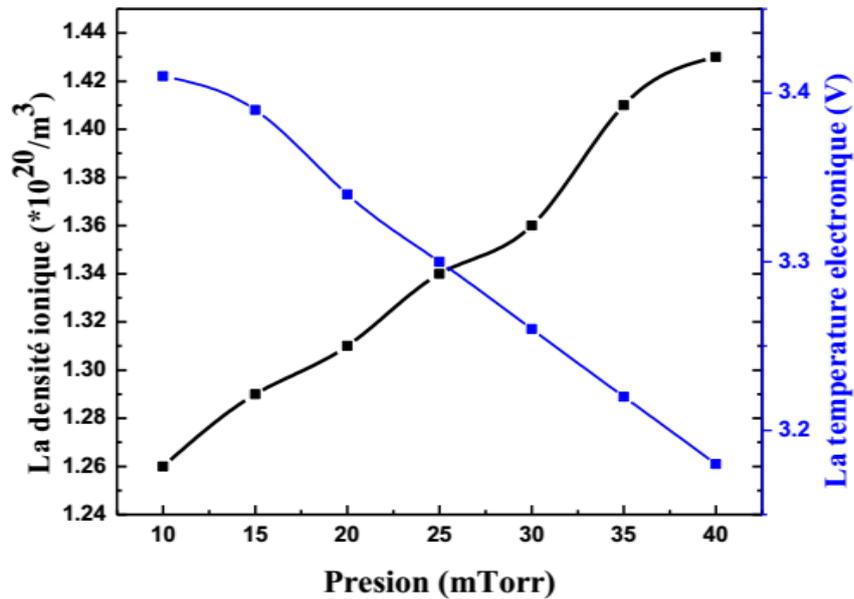


Figure IV-11 : Influence de la pression du gaz sur la densité des ions SiH_4 et la température des électrons pour une puissance appliquée de 3000 W.

IV-3-4 Effet des paramètres de décharge sur le taux de dépôt du film de silicium

Suivant la technique de dépôt de couches minces considérée, la vitesse de croissance des films élaborés peut être influencée par plusieurs paramètres de la décharge, telle la puissance, la pression du gaz, la température de dépôt ou la composition du mélange précurseur. Dans le cadre de cette simulation, nous avons étudié l'évolution de la vitesse de croissance des films de silicium déposés par ICP-CVD en fonction de la puissance appliquée, de la pression du gaz ainsi que de la dilution de l'hydrogène dans le mélange 5% SiH_4 et 90% argon, dans un réacteur de type GEC-ICP avec une puissance RF.

IV-3-4-a Influence de la puissance appliquée et de la pression

L'effet de la puissance appliquée (de 1 à 3 kW) sur le taux de dépôt des films de silicium, pour les différentes pressions de travail considérées dans cette étude (10 à 40 mTorr), est illustré sur la figure IV-12 pour un gaz précurseur composé de 5% SiH_4 , 5% H_2 et 90% argon.

Les courbes obtenues révèlent une augmentation presque linéaire de la vitesse de dépôt avec la puissance et la pression appliquées. Pour une pression fixée à 10 mTorr,

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

par exemple, la vitesse de dépôt passe de 4,8 à 6,7 Å/s lorsque la puissance passe de 1000 à 3000 Watts.

Le même effet est observé pour une augmentation de la pression de 10 à 40 mTorr pour une puissance fixe. Les mêmes résultats sont également obtenus lors du dépôt d'un film Si: H par système ICP-CVD, dans les travaux de J.H. Hsieh et al [17] et ceux de Chen Jiuxiang et al [31].

À basse pression, la température des électrons est plus élevée et la densité des ions SiH_4 est plus faible (figure IV-11). Dans ce cas, le taux de bombardement devient plus important.

En effet, la fréquence des bombardements effectifs entre espèces augmente la dissociation des molécules de silane, d'argon et d'hydrogène produisant, dans le plasma, de nombreuses espèces réactives, notamment le radical SiH_3 , ce qui est bénéfique pour l'augmentation de la vitesse de dépôt [17, 31].

Pour une augmentation de la pression, la température des électrons diminue et la densité du plasma augmente ; ce qui conduit à l'augmentation du taux de dépôt. Ce résultat suggère qu'une quantité de silicium libérée commence à former une grande quantité de film déposé.

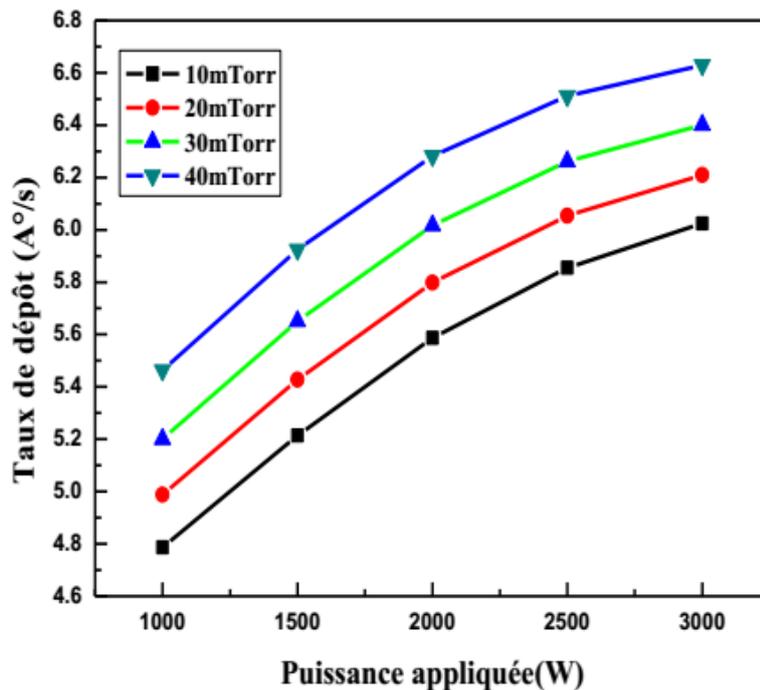


Figure IV-12 : Taux de dépôt en fonction de la puissance appliquée pour différentes valeurs de pression pour un mélange de 5% SiH_4 5% H_2 et 90% Ar.

IV-3-4-b Influence de l'hydrogène additif

Nous avons fait varier le taux d'hydrogène, de 5 à 25 %, dans le mélange gazeux et avons refait la simulation du processus dans le cas d'une puissance de décharge de 3000 W et une pression de gaz de 20 mTorr. Les résultats des calculs en termes de variation du taux de croissance des films en fonction du pourcentage d'hydrogène sont illustrés sur la figure IV-13. Ces résultats montrent que le taux de dépôt diminue de 6 à 4,8 Å/s lorsque le pourcentage d'hydrogène dans le mélange passe de 5 à 25%.

Sung Ki Kim et al [4] ont obtenu une diminution similaire du taux de dépôt de 0,92 à 0,6 Å/s, avec une augmentation du débit d'hydrogène de zéro à 12 sccm dans le dépôt de couches minces de Si dans un réacteur ICP-CVD à faible puissance RF de 80 W, à partir d'un mélange de 1 sccm de SiH₄ dilué dans l'hydrogène.

Ce résultat est expliqué dans la littérature [4, 14] par le fait qu'une plus grande dilution d'hydrogène dans le mélange gazeux améliore la cristallinité du film déposé en augmentant la vitesse de nucléation au lieu de sa vitesse de croissance.

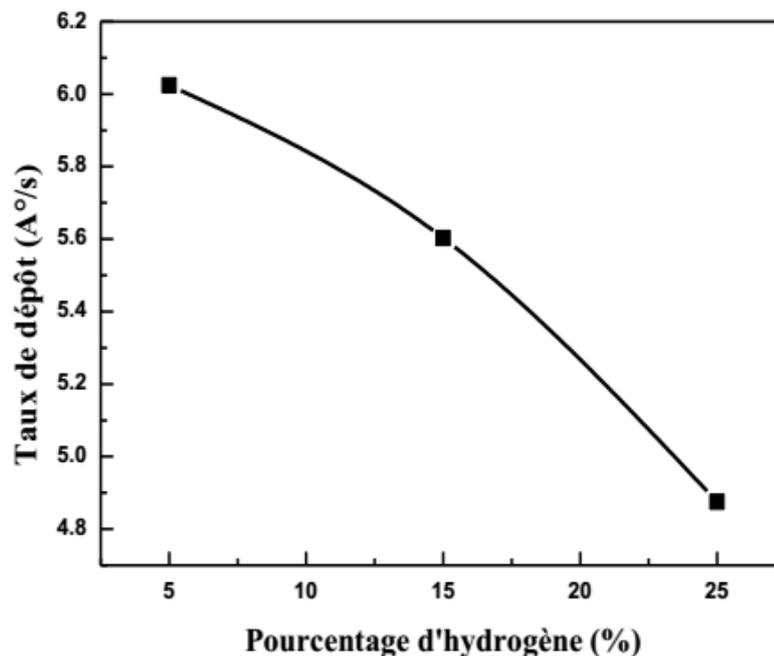


Figure IV-13 : Effet du pourcentage d'hydrogène sur le taux de dépôt pour une pression de 20 mTorr et une puissance RF de 3000W.

IV-4 Conclusions

Dans ce travail, nous avons présenté un modèle de dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma à couplage inductif (ICP-CVD) du mélange silane-argon-hydrogène, à basse pression dans un réacteur de type cellule de référence GEC. Le modèle de simulation est basé sur la résolution des équations différentielles qui régissent le fonctionnement de la décharge, par la méthode des éléments finis en utilisant le logiciel de commerce COMSOL Multiphysics. La distribution spatiale de la densité électronique, du potentiel électrique et de la température des électrons au centre de la décharge a été présentée pour une pression de gaz de 20 mTorr et une source de fréquence RF de 13,56 MHz. Nous avons étudié l'effet de la pression, de la puissance appliquée et de la dilution d'hydrogène sur les propriétés de la décharge et la vitesse de dépôt des films de silicium élaborés par ICP-CVD. Nos calculs ont montré que l'augmentation de la pression et de la puissance appliquée provoque une augmentation modérée de la vitesse de dépôt des films de silicium tandis qu'une augmentation du pourcentage d'hydrogène produit sa réduction.

Références bibliographiques du chapitre IV

- [1] Amrani Rachid, Frederic Pichot, Larbi Chahedand Yvan Cuminal. «Amorphous-Nanocrystalline Transition in Silicon Thin Films Obtained by Argon Diluted Silane PECVD», *Crystal Structure Theory and Applications*, vol 1, 57-61, 2012.
- [2] Sucheta Juneja, S. Sudhakar, Jhuma Gopeand Sushil Kumar, «Mixed phase silicon thin films grown at high rate using 60 MHz assisted VHF-PECVD technique», *Materials Science in Semiconductor Processing*, vol 40, 11-19, 2015.
- [3] K. Kandoussi, C. Simon, N. Coulon, K. BelarbiandT. Mohammed-Brahim. «Nanocrystalline silicon TFT process using silane diluted in argon–hydrogen mixtures», *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol 354, 2513–2518, 2008.
- [4] Sung Ki Kim, Young Jin Choi, Kyu Sik Cho and Jin Jang. «Hydrogen Dilution Effect on the Properties of Coplanar Amorphous Silicon Thin-Film Transistors Fabricated by Inductively-Coupled Plasma CVD», *IEEE transactions on electron devices*, vol 46, 1001-1006, 1999.
- [5] Ming Li, Han-Ming Wu and Yunming Chen. «Two-Dimensional Simulation of Inductive Plasma Sources with Self-consistent Power Deposition», *IEEE transactions on plasma science*, vol 23, 558-562, 1995.
- [6] H. P. Zhou, D. Y. Wei, S. Xu, S. Q. Xiao, L. X. Xu, S. Y. Huang, Y. N. Guo, W. S. Yan and M. Xu. «Dilution effect of Ar/H₂ on the microstructures and photovoltaic properties of nc-Si:H deposited in low frequency inductively coupled plasma», *J. Appl. Phys*, vol 110, 023517, 2011.
- [7] Debnath Raha and Debajyoti Das «Nanocrystalline silicon thin films prepared by low pressure planar inductively coupled plasma», *Applied Surface Science*, vol 276, 249 -257,2013.

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

- [8] S. H. Lee, I. Lee, and J. Yi. «Silicon nitride films prepared by high-density plasma chemical vapor deposition for solar cell applications», *Surface and Coatings Technology*, vol 153, 67-71, 2002.
- [9] Cheng Jia, Ji Linhong, Wang Kesheng, Han Chuankun and Shi Yixiang. «Two-dimensional simulation of inductively coupled plasma based on COMSOL and comparison with experimental data», *Journal of Semiconductors*, vol 34, 066004, 2013.
- [10] Chang Seok Oh, Tai Hong Kim, Kee Young Lim and Jeon WookYang. «GaN etch enhancement in inductively coupled BCl_3 plasma with the addition of N_2 and SF_6 gas», *Semicond.Sci.Technol*, vol 19, 172-175, 2004.
- [11] M. Mao., YN. Wang and A.Bogaerts.«Numerical study of the plasma chemistry in inductively coupled SF_6 and SF_6/Ar plasmas used for deep silicon etching applications»,*J. Phys. D: Appl. Phys*, vol 44, 435202, 2011.
- [12] J. H. Choi, L. Latu-Romain, E. Bano, F. Dhalluin, T. Chevolleau and T.Baron.«Fabrication of SiC nanopillars by inductively coupled SF_6/O_2 plasma etching»,*J. Phys. D: Appl. Phys*, vol 45, 235204, 2012.
- [13] Eric R. Keiter and Mark J. Kushner. «Radical and Electron Densities in a High Plasma Density-Chemical Vapor Deposition Reactor from a Three-Dimensional Simulation», *IEEE transactions on plasma science*, vol 27, 62-63, 1999.
- [14] Qijin Cheng, S. Xu, J. W. Chai, S. Y. Huang, Y. P. Ren, J. D. Long, P. P. Rutkevych and K. Ostrikov. «Influence of hydrogen dilution on the growth of nanocrystalline silicon carbide films by low-frequency inductively coupled plasma chemical vapor deposition», *Thin Solid Films*, vol 516, 5991-5995, 2008.
- [15] Luis da Silva Zambom, Ronaldo Domingues Mansano and Rogerio Furlan. «Silicon nitride deposited by inductively coupled plasma using silane and nitrogen», *Vacuum*, vol 65, 213-220, 2002.

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

- [16] Chuan Li, J.H. Hsieh, K.L. Huang, Yu Ting Shao and Yi Wen Chen. « Effects of H₂ and Ar flow rates on the deposition of hydrogenated silicon thin films by an inductive coupled plasma-chemical vapor deposition system», *Thin Solid Films*, vol 544, 37-43, 2013.
- [17] J.H. Hsieh, H. C. Liang, Y. Setsuhara and C. Li. «Deposition and characterization of a- and μ c-Si:H thin films by ICP-CVD system with internal antennas», *Surface Coatings Technology*, vol 231, 550-556, 2013.
- [18] M. Huang, P. Y. Yang, D. S. Hanselman, C. A. Monnig and G. M. Hieftje. «Verification of a Maxwellian electron-energy distribution in the ICP», *Spectrochimica Acta.45B*, vol 43, 511-520, 1990.
- [19] Harmeet Singh and David B. Graves. «Measurements of the electron energy distribution function in molecular gases in shielded inductively coupled plasma», *Journal of applied physics*, vol 88, 3889-3898, 2000.
- [20] Hyo-Chang Lee, Jin-Young Bang and Chin-Wook Chung. « Effects of RF bias power on electron energy distribution function and plasma uniformity in inductively coupled argon plasma», *Thin Solid Films*, vol 519, 7009-7013, 2011.
- [21] ComsolMultiphysics™ 4.3a, COMSOL Inc., <http://www.comsol.com>.
- [22] Badri Ramamurthi and Demetre J Economou. « Pulsed-power plasma reactors: two-dimensional electropositive discharge simulation in a GEC reference cell Plasma», *Sources Sci. Technol*, vol 11, 324-332, 2002.
- [23] Kathleen De Bleecker, Annemie Bogaerts and Renaat Gijbels. «Numerical investigation of particle formation mechanisms in silane discharges», *physical review E*, vol 69, 056409, 2004.

Chapitre IV : Modélisation de dépôts de couches minces de silicium par PECVD dans un réacteur de type GEC-ICP, à partir d'un plasma de mélange silane/argon/hydrogène.

- [24] Wang Xifeng, SONG Yuanhong, ZHAO Shuxia, DAI Zhongling and WANG Younian, «Hybrid Simulation of Duty Cycle Influences on Pulse Modulated RF SiH₄/Ar Discharge », J. Plasma Science and Technology, vol 18, 394-399, 2016.
- [25] Danko Stephan, Dirk Bluhm, Valentin Bolsinger, Wladislaw Dobrygin, Oliver Schmidt and Ralf Peter Brinkmann, «A global model study of silane/hydrogen discharges», J. Plasma Sources Sci. Technol, vol 22, 055009, 2013.
- [26] Johannes Justine, Timothy Bartel, Gregory A. Hebner and Joseph Woodwort, « Direct Simulation Monte Carlo of Inductively Coupled Plasma and Comparison with Experiments», J Electrochem. Soc, vol 144, 2448-2455, 1997.
- [27] Angel Ochoa Brezmes and Cornelia Breilkopf, «Fast and reliable simulations of argon inductively coupled plasma using COMSOL », Vacuum, vol 116, 65-72, 2015.
- [28] Yicheng Wang, R. J. Van Brunt and J. K. Olthoff. «Mass spectrometric measurement of molecular dissociation in inductively coupled plasmas», J.Appl.Phys, vol 83, 703-708, 1998.
- [29] Dimitris P. LyMBERopoulos and Demetre J. Economou. «Two-Dimensional Self-Consistent Radio Frequency Plasma Simulations Relevant to the Gaseous Electronics Conference RF Reference Cell», Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology, vol 100, 473-494, 1995.
- [30] Mahua Chakraborty, Amit Banerjee and Debajyoti Das. «Spectroscopic studies on nanocrystalline silicon thin films prepared from H₂-diluted SiH₄-plasma in inductively coupled low pressure RF PECVD», Physica E, vol 61, 95-100, 2014.
- [31] Chen Jiuxiang, WANG Weizhong, Jyh Shiram CHERNG and CHEN Qiang, « High Growth Rate of Microcrystalline Silicon Films Prepared by ICP-CVD with Internal Low Inductance Antennas», J.Plasma Science and Technology, vol 16, 502-505, 2014.

Conclusion générale et perspective

Conclusion générale et perspective

Conclusion générale et perspective

Le travail présenté dans cette thèse s'inscrit dans le cadre de la modélisation et la compréhension de phénomènes physiques intervenant dans les décharges plasmas radiofréquences. L'objectif de cette thèse consiste à élaborer des modèles de simulation pour décrire le comportement de la décharge et améliorer la compréhension de l'aspect du plasma créé dans une décharge RF, à basse pression, dans un réacteur de type cellule de référence GEC pour différents types de gaz précurseurs.

Ces plasmas sont utilisés aussi bien pour le dépôt de couches que pour le traitement des surfaces, car ils permettent de transformer l'énergie électrique en énergie chimique en dissociant les molécules. Ils contiennent ainsi non seulement des radicaux et des atomes réactifs qui s'attachent au substrat mais aussi des ions qui peuvent être accélérés par un champ électrique appliqué pour bombarder les surfaces.

Considérer la décharge dans le domaine des radiofréquences (de quelques dizaines de KHz à une centaine de MHz), dans le cas de basses pressions (< 100 mTorr), permet la création d'espèces chimiques actives dans le gaz à basse température. C'est pourquoi le dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma est l'une des techniques de CVD qui permettent de réaliser des films à basses températures (inférieures de 400°C) et de déposer des couches minces uniformes, homogènes et de meilleure qualité.

Les modèles de dynamique des fluides sont généralement appropriés pour l'étude des plasmas à couplage inductif à basse pression. C'est le modèle que nous avons adopté pour nos simulations numériques. Nous avons utilisé pour ce faire le logiciel COMSOL multiphysique en couplant plusieurs de ses modules pour tenir compte de la décharge, de l'écoulement du gaz neutre dans le réacteur et de la croissance de films de silicium.

Dans un premier temps, nous avons élaboré un modèle fluide de plasma à couplage inductif de mélange argon-oxygène à basse pression. Le modèle de simulation a été résolu par la méthode des éléments finis. La distribution spatiale des espèces

Conclusion générale et perspective

plasmatiques a été étudiée pour une pression de gaz de 20 mTorr et une source de fréquence RF de 13,56 MHz.

L'effet de certains paramètres opératoires comme le débit d'oxygène, la puissance appliquée aux bobines et la pression du gaz a été étudiée. Les résultats de la simulation obtenus ont montré que :

- La densité d'ions négatifs est très élevée au centre du plasma (l'électronégativité de la décharge peut être plus élevée) et qu'elle diminue progressivement en dehors de la zone plasma.
- La densité des ions négatifs, au centre du plasma, augmente avec le taux d'oxygène, la puissance appliquée et la pression dans le cas du mélange 30% Ar 70% O₂.
- La température électronique augmente lorsque le pourcentage d'oxygène augmente de 15 à 90 % et la puissance augmente de 150 à 300W et elle diminue lorsque la pression varie de 10 à 30 mTorr.
- Le potentiel électrique augmente avec le pourcentage d'oxygène et la puissance appliquée et diminue avec la pression.
- Le paramètre de l'électronégativité augmente avec le pourcentage d'O₂, la puissance appliquée et la pression.
- Le rapport densité d'ions négatifs à la densité du plasma augmente avec la puissance appliquée et la pression dans le cas du mélange 30% Ar 70% O₂.

Pour la deuxième étude, nous avons développé un modèle fluide auto-cohérent d'une décharge RF à basse pression adaptée aux applications de dépôts des couches minces de silicium hydrogéné obtenus par dépôt chimique en phase vapeur à couplage inductif assisté par plasma. Le gaz précurseur considéré dans cette étude est composé du mélange de 5%SiH₄, 5%H₂ et 90%Ar. La distribution spatiale de la densité électronique, du potentiel électrique, de la température électronique, de la perte de puissance collisionnelle et du champ électrique au milieu de la décharge a été présentée pour une pression de gaz de 20 mTorr, une puissance appliquée de 3000W, et une source de fréquence RF de 13,56 MHz.

L'effet de la pression du gaz, de la puissance appliquée et de la fraction d'hydrogène sur les propriétés du plasma et le taux de croissance de la couche déposée a été étudié.

Les résultats obtenus ont montré que :

Conclusion générale et perspective

- La vitesse de dépôt des films de silicium augmente presque linéairement avec la puissance appliquée et la pression et diminue avec le pourcentage d'oxygène.
- La densité électronique et ionique, au centre du plasma, augmente avec la puissance appliquée et la pression.
- La température électronique diminue avec la puissance appliquée et la pression.

La validation des modèles présentés a été effectuée par comparaison avec des résultats expérimentaux et d'autres modèles numériques de la littérature.

Les travaux réalisés ouvrent diverses perspectives de poursuites, on peut citer :

- Approfondir le modèle de décharge dans le milieu argon/oxygène pour une éventuelle application dans le cas de gravure de polymères, sachant que la gravure par plasma occupe une place importante dans les procédés de fabrication des circuits intégrés. Elle permet la réalisation de motifs aux dimensions sub-micrométriques dans tous les types de matériaux grâce à son anisotropie.
- Développer un modèle radiofréquence pour étudier la décharge lors d'un dépôt de couche d'oxyde de silicium (SiO_2) à partir d'un plasma de silane et oxygène.
- Faire une étude approfondie sur l'effet de la fonction de distribution en énergie des électrons et des ions sur les caractéristiques du plasma pour obtenir au modèle qui décrit plus finement la décharge et se rapprocher encore plus processus réel.

PRODUCTION SCIENTIFIQUE

Communications nationales

- 1- K. SIARI, H. BAHOUH, S. REBIAI, «study of negative ions in processing of inductively coupled plasma of argon–oxygen mixture at low pressure», Le 11eme Congrès National de la Physique et de ses Applications, Blida, Algérie, pp. 16-22, 23,24 et 25 Décembre, ,2014. <http://www.univ-blida.dz>
- 2- K. SIARI, H. BAHOUH, S. REBIAI, « effect of current applied in GEC reference reactor for argon plasma discharges », 1^{er} Congrès International sur les Plasmas et les Matériaux, Tlemcen, Algérie, pp.74, 15 au 17 novembre, 2014. <http://www.univ-tlemcen.dz>

Communications internationales

- 1- - REBIAI Saida, SIARI Khadidja, BAHOUH Hanene, «Simulation of silicon films growth by Plasma-Enhanced Chemical Vapor Deposition at low pressure », ELECTROTECH '15 International Electrical & Electronic Engineering and Technologies Conference ISTANBUL, TURKEY, pp.213 , OCTOBER 2-3, 2015.
- 2- SIARI Khadidja, REBIAI Saida, «Modeling of inductively coupled plasma of argon-oxygen mixture at low pressure», 4th International Conference on High Energy & Particle Physics Valencia, Spain, pp. 47, December 03-04, 2018.

Publications

- 1- -K. Siari, S. Rebiai, H. Bahouh and F. Bouanaka, « Plasma enhanced chemical vapor deposition of silicon films at low pressure in GEC reference cell», Plasma Physics Reports, Vol. 46, No. 6, pp. 667–674, 2020. ISSN 1063-780X.

Adresse URL : <https://doi.org/10.1134/S1063780X20060094>

- 2- Publié en Russe dans Fizika Plazmy, 2020, Vol. 46, No. 6, pp. 569–576.

ملخص

تمثل الأطروحة نتيجة العمل على نمذجة الظواهر الفيزيائية التي تحدث في تصريفات البلازما المقترنة بالحث بالترددات الراديوية. يمثل النموذج تطوير سائل متماسك ذاتيًا في مفاعل الخلية المرجعية GEC والذي يسمح بتحديد توزيع مختلف الجسيمات المشحونة، درجة حرارة الإلكترونات، المجال والجهد الكهربائي داخل المفاعل، وكذلك دراسة تأثير معاملات التفريغ، مثل تكوين الطور الغازي، ضغط المفاعل وكذلك الطاقة، في البلازما الباردة التفاعلية المتكونة في التصريفات التي يتم تحفيزها بواسطة مجال كهربائي، على خصائص البلازما. تم تطوير النموذج باستخدام برنامج Comsol متعدد الفيزياء التجاري. يعتمد هذا الأخير على حل اللحظات الثلاث الأولى من معادلة Boltzmann (معادلات الاستمرارية، معادلة نقل الزخم ومعادلة طاقة الإلكترونات) مقترنة بمعادلتَي Poisson و Maxwell، بطريقة العناصر المحدودة. يتم تطبيق النموذج من ناحية، لدراسة خصائص البلازما المختلطة المكونة من الأكسجين والأرجون، ومن ناحية أخرى، لتحليل تأثير ظروف التفريغ على معدل نمو أغشية السيليكون المودعة بواسطة ICP-CVD، من بلازما مختلطة مكونة من الأرجون والهيدروجين والسيلان.

الكلمات المفتاحية:

بلازما مقترنة حثيًا (ICP)، ترسيب بخار كيميائي بمساعدة البلازما، COMSOL، خلية مرجعية GEC، طبقة سيليكون، بلازما عالية الكثافة، ضغط منخفض، نسبة النمو.

Résumé

L'objectif du travail présenté dans ce mémoire est une contribution à l'élaboration de modèles électriques et hydrodynamique permettant la modélisation des phénomènes physiques qui se produit dans les décharges plasmas radiofréquences à couplage inductif. Il représente le développement d'un modèle fluide auto-cohérent de décharges créées dans un réacteur de type cellule de référence GEC-ICP qui permet la détermination de la répartition des différentes particules chargées, de la température électronique, du champ et du potentiel électriques au sein du réacteur, ainsi que d'étudier l'effet des paramètres de la décharge, tels que la composition de la phase gazeuse, la pression du réacteur ainsi que la puissance, dans un plasmas froids réactifs formés dans les décharges excitées par un champ électrique, sur les propriétés du plasma. Le modèle est développé à l'aide du logiciel commercial COMSOL multiphysics. Ce dernier est basé sur la résolution des trois premiers moments de l'équation de Boltzmann (équations de continuité, équation de transfert de la quantité de mouvement et l'équation d'énergie des électrons) couplés à l'équation de Poisson et aux équations de Maxwell, par la méthode des éléments finis.

Le modèle est appliqué d'une part, à l'étude des propriétés d'un plasma de mélange composé d'oxygène et d'argon et, d'autre part, à l'analyse de l'effet des conditions de décharge sur le taux de croissance de films de silicium déposés par ICP-CVD, à partir d'un plasma de mélange composé d'argon, d'hydrogène et de silane.

Mots clés: Plasma à couplage inductif (ICP), Dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma, COMSOL Multiphysics, Cellule de référence GEC, Films de silicium, plasma haute densité, basse pression, taux de croissance.

Abstract

The objective of the work presented in this thesis is a contribution to the development of electrical and hydrodynamic models allowing the modeling of the physical phenomena that occur in inductively coupled radiofrequency plasma discharges. It represents the development of a self-coherent fluid model in a GEC reference cell reactor which allows the determination of the distribution of different charged particles, electron temperature, electric field, and plasma potential, as well as to study the effect of discharge parameters, such as the composition of the gas, the pressure in the reactor as well as the applied power, in a reactive cold plasmas formed in discharges excited by an electric field, on the plasma properties.

The model is developed using the COMSOL multiphysics software. The software is based on solving the first three moments of the Boltzmann equation (continuity equations, momentum transfer equation, and the energy of electrons equation) coupled to the Poisson and Maxwell's equations, by the finite element method.

The model is applied, at first, to study the properties of plasma created in a mixture of oxygen and argon. Then, it is used to analyze the effect of discharge conditions on the growth rate of silicon films deposited by ICP-CVD, from plasma composed of argon, hydrogen and silane.

Keywords: Inductively coupled plasma (ICP), Plasma-enhanced chemical vapor deposition, COMSOL Multiphysics, GEC reference cell, Silicon films, High-density plasma, Low Pressure, Deposition rate.