



HAL
open science

Optimisation de détecteurs pour l'astronomie du rayonnement X : développement de jonctions supraconductrices pour l'isolation thermique dans les interconnexions

Johannes Goupy

► **To cite this version:**

Johannes Goupy. Optimisation de détecteurs pour l'astronomie du rayonnement X : développement de jonctions supraconductrices pour l'isolation thermique dans les interconnexions. Autre. Université de Grenoble, 2012. Français. NNT : 2012GRENT030 . tel-00877895

HAL Id: tel-00877895

<https://theses.hal.science/tel-00877895>

Submitted on 29 Oct 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Nano Electronique et Nano Technologies**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Johannes GOUPY

Thèse dirigée par **Claude Pigot** et
Co-encadrée par **Jean-Claude Villégier**

Préparée au sein du **CEA/LETI/DOPT/LPA**
Dans l'**École Doctorale Electronique, Electrotechnique,
Automatique et Traitement du Signal**

*Optimisation de détecteurs pour l'astronomie du
rayonnement X :*

Développement de jonctions supraconductrices pour l'isolation thermique dans les interconnexions

Thèse soutenue publiquement le « **13 juillet 2012** »,

Devant le jury composé de :

Jumana Boussey : Président

Directeur de recherche au CNRS – INSIS (Grenoble)

Jean-Paul Maneval : Rapporteur

Professeur Emérite à ENS (Université Paris 7)

Daniel Bouchier : Rapporteur

Directeur de recherche au CNRS – INSIS (Université Paris Sud)

Louis Dumoulin : Examineur

Directeur de recherche Emérite au CNRS – CSNSM (Orsay)

Stéphanie Pouget : Examinatrice

Ingénieur de recherche au CEA – INAC (Grenoble)

Philippe Djemia : Examineur

Professeur au CNRS – LSPM (Université Paris 13)

Claude Pigot : Directeur de thèse

Directeur de recherche au CEA – IRFU (Saclay)

Jean-Claude Villégier : Co-encadrant

Directeur de recherche au CEA – INAC (Grenoble)



« La joie de regarder et de comprendre est le plus beau cadeau de la nature. »
Albert Einstein

« Pour explorer le champ des possibles, le bricolage est la méthode la plus efficace. »

Hubert Reeves

« Rien ne se perd, rien ne se crée, tout se transforme »

Antoine Laurent de Lavoisier

Remerciements

Au cours de cette thèse, il m'a été donné de travailler avec des gens formidables et passionnants.

Je te remercie Claude pour m'avoir dirigé dans cette thèse tout en me laissant une certaine liberté d'entreprendre. Tu as eu la patience de m'encadrer.

Jean-Claude, tu m'as apporté bien plus qu'un aperçu de ton expérience, j'ai pu découvrir une portion du vaste domaine de la technologie allant de la conception à la caractérisation de matériaux déposés en couches minces.

Hervé, je te remercie pour les précieux conseils que tu m'as donnés tout au long de ces années, et plus particulièrement, celui qui a entraîné la réorientation du sujet de la thèse. Je remercie également l'encadrement de l'école doctorale pour avoir soutenu cette thèse, surtout dans les moments compliqués, merci à Pierre Gentil, à Jumana Boussey et à Christian Commault.

Je remercie tous les membres du jury qui m'ont fait l'honneur d'accepter de venir examiner mon travail en plein milieu de l'été, la veille de la fête nationale (13 juillet). Et plus particulièrement, les deux rapporteurs qui ont accepté de prendre en charge la revue de mon manuscrit. Jean-Paul Maneval, je n'ai pas eu beaucoup l'occasion d'échanger avec vous, mais néanmoins, à chacune de vos explications, vos lumières m'ont éclairé sur les chemins de la compréhension. Merci à Daniel Bouchier et Louis Dumoulin pour leurs remarques constructives.

Merci Stéphanie d'avoir pris le temps pour m'expliquer et m'initier à la physique des matériaux dans le cadre des études cristallographiques. Philippe, je sais que vous avez énormément de travail, et vous avez su débloquer un peu de votre temps précieux pour vous investir dans mon projet. J'ai apprécié de travailler avec vous, et je partage certainement cette manière de vivre une collaboration scientifique ; merci Philippe. J'en profite pour remercier Laurent Belliard, avec qui j'ai eu une collaboration simple et tellement efficace. Si j'en ai l'occasion, je ferai mon possible pour retravailler avec l'équipe Laurent – Philippe.

Merci à toi Mathieu, tu as mis tant d'énergie dans la mesure de mon démonstrateur. J'ai apprécié nos discussions entre thésards. Merci aussi à Jean-Pascal Brison pour son aide précieuse.

Jean-Luc, tu es certainement le chercheur, avec lequel j'ai travaillé, qui m'a le plus marqué. Ta vision humaine et cette capacité à rendre les choses simples et accessibles seront un exemple pour ma vie professionnelle future. Merci à toi l'astrocryogénicien.

Merci Olivier d'avoir eu la patience de m'expliquer les bases théoriques du transfert thermique aux interfaces à basse température, et de m'avoir aidé à plusieurs reprises au cours de ma thèse. Je remercie également Alessandro et Nicolas de l'institut Néel avec qui nous avons réussi, non sans efforts, à maîtriser la fabrication de couches de TiN qui transitent vers 1 K, encore une collaboration réussie.

Vient maintenant le tour de mes collègues du DOPT. Les chefs d'abord... Vincent, Raymond et Agnès, vous avez tous une part dans l'aboutissement de ce travail, et je vous en remercie. Johan, je te remercie pour nos discussions scientifiques et pour m'avoir proposé les mesures sur le banc rapide. Jean-Louis, je te remercie de la patience que tu as eue lors des simulations de mes multilignes. Merci Patrick pour avoir assuré le co-encadrement du début de la thèse. Merci Véro pour m'avoir évité un grand nombre de problèmes administratifs.

Coté LPA, je commencerai (forcément) par Gilles. Ce personnage extraordinaire, portant la moustache trois mois sur douze, est mon coéquipier, de farces, de matches de Bad, de parties de Civilization ou de Black Ops ! Merci Gilles pour ces formidables moments! Charly, au cours de nos discussions philosophiques, tu m'as montré beaucoup de ta sagesse et de ton humilité, ta vision douce du monde est parfois un baume apaisant. Fred, j'espère que l'on pourra continuer à partager nos passions communes ; en tout cas merci pour toute l'aide que tu m'as apporté au long de ces années. Pablo, je te remercie de la patience que tu as eue à passer mes échantillons. Merci Babar pour l'énergie que tu as développée à mesurer ces modules de Young. A bientôt Alexis, peut-être dans une future co-op-ération. Merci à Delphine qui frappe très fort dans un volant. Merci aux deux Julien, à Alain, à Marion, à François, à Manu, à Laurent, à Stéphane, à Nacer, à Lydie, à Sophie (pas vraiment du LPA mais quand même) à Kevin et à Bertrand.

Je remercie les gars des Bolos de l'open space : Pierre, Geoffroy, Stéphane, Laurent et Manu ; pardon pour toutes les boulettes de papier dont vous avez été la cible.

Mais je remercie aussi, les gens du CEA avec qui j'ai eu une interaction forte. Au LETI ; merci à Amal Chabli, à Vincent Joussaume, François Pierre et Sophie Faynot. Au SBT ; merci à Daniel, Jean-Marc, Lionnel, Patrick. A la PTA ; merci à Frédéric Gustavo (l'homme providentiel de la Nordiko), Thibaut Haccard, Christophe Lemonias, Helge Haas et bien sûr Sébastien Loiseau à qui incombera certainement l'intégration d'une partie de mes développements dans le plan matriciel pour le détecteur XMS.

Je salue et je remercie tous ceux avec qui j'ai travaillé et que j'ai oublié de nommer.

Pour terminer ces remerciements, je tiens à dire un grand merci aux membres de ma famille et à mes amis pour avoir fait que ces quelques années aient vraiment été chaleureuses.

Je suis convaincu qu'une grande partie de la réussite d'un projet est due à l'état d'esprit des gens qui y travaillent. Si j'ai pu m'impliquer aussi sereinement dans mon projet de thèse et mener mon travail avec autant de ténacité, c'est grâce à la femme avec qui je partage ma vie ; elle a su m'accompagner dans les aléas de cette expérience, autant sur le haut, que dans le creux de la vague, merci Laetitia.

Le 28 juin 2011, je suis devenu papa pour la première fois, depuis qu'elle m'a confié son tout premier regard, j'ai trouvé une nouvelle raison d'avancer dans la vie. Lilia, je guiderai tes premiers pas.

Table des matières

Introduction générale.....	13
Chapitre I: Introduction au contexte de la thèse.....	17
1- Contexte	19
1-1 Des télescopes pour l'astrophysique.....	19
1-2 La détection du rayonnement X.....	22
2- Des microcalorimètres pour XMS.....	28
2-1 Un microcalorimètre X.....	28
2-2 Fonctionnement d'un microcalorimètre.....	29
2-3 Quelques points clés	31
2-4 Exemple par simulation	35
3- Enoncé des sujets étudiés au cours de ce travail de thèse	38
3-1 Les liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique.....	39
3-2 La diaphonie entre pixels	46
Bibliographie du Chapitre I.....	49
Chapitre II: Conduction thermique dans les liaisons supraconductrices.....	51
Notion de phonon	54
1 - Introduction à la supraconductivité.....	56
1-1 Enoncé du phénomène	56
1-2 Les paires de Cooper.....	58
1-3 Entropie dans les supraconducteurs	63
1-4 Compléments sur la supraconductivité	64
2- Conduction thermique dans les matériaux.....	65
2-1 Conduction thermique par les électrons.....	65
2-2 Conduction thermique par les phonons.....	67
2-3 Conduction thermique dans les supraconducteurs	71
2-4 Transfert thermique par radiations à basse température	73

3- Résistance thermique d'interface	75
3-1 L'observation de Kapitza	75
3-2 Interface entre deux solides	76
3-3 Modèles théoriques	78
3-4 Qualité d'interface et R_{Bd}	85
3-5 Différentes gammes de températures.....	87
3-6 Des miroirs thermiques dans les liaisons supraconductrices	93
3-7 Constantes et modules élastiques.....	102
Bibliographie du Chapitre II.....	105

Chapitre III: Conception de liaisons supraconductrices à forte résistance thermique à base d'interfaces TiN/Nb **111**

1- Les dépôts par pulvérisation cathodique	113
1-1 Principe	113
1-2 Structure des films déposés.....	115
1-3 Dépôt réactif de TiN	117
2- Les différents substrats utilisés.....	119
2-1 Substrats Si et Al_2O_3	119
2-2 Substrat W.....	120
3- Echantillons spécifiques pour les caractérisations physico-chimiques du $Ti_{1-x}N_x$ et du Nb	123
3-1 Les différents échantillons réalisés	123
3-2 Mesure d'épaisseur	126
4- Fabrication des liaisons supraconductrices	128
4-1 Structure du démonstrateur	128
4-2 Réalisation des liaisons	129
5- Assemblage du démonstrateur par hybridation	134
5-1 Assemblage par thermocompression	134
5-2 Assemblage par fusion de la brasure suivie d'une force d'appui	135
5-3 Assemblage par hybridation avec une régulation en Z.....	136
Bibliographie du Chapitre III	141

Chapitre IV: Caractérisation des couches composant les liaisons supraconductrices .. **143**

1- Propriétés structurales des couches minces de $Ti_{1-x}N_x$ et de Nb	146
1-1 Mesure de la stoechiométrie en azote	146
1-2 Diffraction de rayons X	153
1-3 Etude de la microstructure des couches de TiN et de Nb	173
1-4 Estimation de la masse volumique.....	180

2- Propriétés élastiques et mécaniques	187
2-1 Contrainte résiduelle dans les couches	187
2-2 Vitesse du son en mode longitudinal	191
2-3 Vitesse du son en mode transverse	198
2-4 Nano-indentation.....	205
3- Caractéristiques électriques	208
3-1 Mesure de la résistivité électrique à température ambiante	208
3-2 Température de transition supraconductrice pour le $Ti_{1-x}N_x$ et le Nb.....	209
Bibliographie du Chapitre IV	212
Chapitre V: Mesures des liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique.....	218
1-Moyens de mesure des démonstrateurs à basse température.....	220
1-1 Principe de la mesure	220
1-2 Moyens de mesure en dessous du kelvin	223
2- Mesure électrique du démonstrateur	226
2-1 Résistivité du substrat W	226
2-2 Transitions supraconductrices dans le démonstrateur.....	227
3- Mesure de résistance thermique	229
3-1 Estimation théorique de la R_{th} des démonstrateurs	229
3-2 Première mesure de R_{th} avec le démonstrateur de 1 ^{ère} génération	235
3-3 R_{th} à basse température d'un démonstrateur de 3 ^{ème} génération	236
Bibliographie du Chapitre V	240
Synthèse de ce travail de thèse	242
Annexe	248

Introduction générale

Ce manuscrit expose les différents travaux réalisés, dans le cadre de cette thèse, pour apporter des solutions concrètes aux problèmes posés par la conception de détecteurs spectro-imageurs refroidis à très basses température pour l'observation des phénomènes astronomiques dans le domaine du rayonnement X. Des détecteurs de ce type équiperont les prochaines missions spatiales d'astronomie X.

Le premier chapitre introduit quelques généralités sur les observations en astrophysique et s'arrête plus particulièrement sur la détection du rayonnement X. Le fonctionnement des détecteurs à base de microcalorimètres sera évoqué. Les solutions apportées par ce travail de thèse pour faciliter la réalisation de futurs détecteurs embarqués fonctionnant à basse température seront détaillées. Nous présentons l'environnement de la thèse, et nous introduisons les deux sujets qui ont été traités dans ce travail de doctorat. Nous rappelons ici que seulement le premier des deux sujets sera développé dans ce manuscrit de thèse. Le premier sujet est le développement d'une brique technologique innovante qui assure dans une interconnexion électrique un fort pouvoir d'isolement thermique tout en étant un conducteur électrique parfait, il s'agit d'une liaison supraconductrice à forte résistivité thermique.

Dans le chapitre II, nous introduisons certains mécanismes de la supraconductivité, puis nous définissons les notions de conduction thermique dans les matériaux, et plus particulièrement à basse température. Nous examinerons, en détail, les résistances thermiques associées aux interfaces entre deux solides à l'état supraconducteur.

Un démonstrateur a été réalisé pour la validation de cette brique technologique, sa fabrication sera détaillée dans le troisième chapitre. Les dépôts par pulvérisation cathodique des couches composant la brique technologique seront au centre de ce chapitre. Le traitement des substrats, le dépôt des matériaux composant l'interconnexion et la méthode d'assemblage par brasure seront exposés.

Différentes caractérisations ont été réalisées sur une multitude de couches de matériaux tels que le TiN et le Nb pour explorer différentes propriétés de ces matériaux composant la liaison supraconductrice. Les mesures par diffraction de rayonnements X, les mesures de vitesse du son ou de masse volumique seront exposées dans le chapitre IV.

Les mesures effectuées à très basse température sur les démonstrateurs seront présentées dans le chapitre V. Une introduction au fonctionnement d'un cryostat de test à très basse température sera faite. Enfin une comparaison des résultats des mesures électriques puis thermiques par rapport aux estimations théoriques sera détaillée dans le chapitre.

Le second sujet de ce travail de thèse, portant sur le dimensionnement des effets de diaphonie, ne sera pas explicité dans ce manuscrit. Seule une introduction succincte est faite à la fin du chapitre I. En annexe, est reporté quelques pages qui rappellent le procédé technologique de l'enchaînement des étapes pour la réalisation des échantillons qui serviront à la mesure de la diaphonie.

Chapitre I: Introduction au contexte de la thèse

Ce premier chapitre est une introduction au contexte de la thèse. Nous évoquerons la détection des différents rayonnements électromagnétiques présents dans l'univers. Nous nous focaliserons plus particulièrement sur la détection du rayonnement X, qui est la finalité directe des avancées relatées dans ce manuscrit. Puis nous énoncerons les deux sujets traités pendant ce travail de thèse, dont l'un d'eux fait l'objet de l'ensemble des chapitres suivants.

1- Contexte	19
1-1 Des télescopes pour l'astrophysique	19
1-2 La détection du rayonnement X	22
<i>a) Les précédentes missions</i>	<i>23</i>
<i>b) La future mission ATHENA.....</i>	<i>24</i>
<i>c) Le détecteur XMS</i>	<i>26</i>
2- Des microcalorimètres pour XMS	28
2-1 Un microcalorimètre X	28
2-2 Fonctionnement d'un microcalorimètre.....	29
2-3 Quelques points clés	31
<i>a) La sensibilité</i>	<i>31</i>
<i>b) L'absorbeur.....</i>	<i>32</i>
<i>c) Les liens thermomécaniques.....</i>	<i>33</i>
<i>d) La thermistance.....</i>	<i>34</i>
<i>e) La fuite thermique</i>	<i>34</i>
2-4 Exemple par simulation	35
3- Enoncé des sujets étudiés au cours de ce travail de thèse	38
3-1 Les liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique.....	39
<i>a) Enoncé du besoin</i>	<i>39</i>
<i>b) Les solutions existantes.....</i>	<i>40</i>
<i>c) Avantages des liaisons supraconductrices.....</i>	<i>42</i>
<i>d) Fonctionnement physique d'une liaison supraconductrice.....</i>	<i>44</i>
3-2 La diaphonie entre pixels	46
Bibliographie du Chapitre I	49

1- Contexte

Le sujet de thèse s'inscrit dans la proposition d'une solution innovante qui pourrait intéresser les concepteurs de télescopes pour l'observation du rayonnement en provenance de l'univers.

1-1 Des télescopes pour l'astrophysique

L'observation avec l'œil, des phénomènes célestes n'est plus suffisante pour avancer dans la compréhension des mécanismes régissant l'univers. Aujourd'hui, nombre d'autres moyens sont disponibles pour sonder l'univers. Certains objets célestes, comme le soleil, émettent de la lumière dite visible que l'on peut capter avec l'œil si son intensité est suffisante. Ces objets rayonnent également dans d'autres longueurs d'ondes. L'œil humain n'étant sensible qu'à la région du spectre électromagnétique dite visible, il nous est parfois difficile de nous rendre compte que cette région est restreinte. L'astrophysique s'intéresse aux phénomènes généraux en observant l'ensemble du spectre électromagnétique sur toutes les longueurs d'onde.

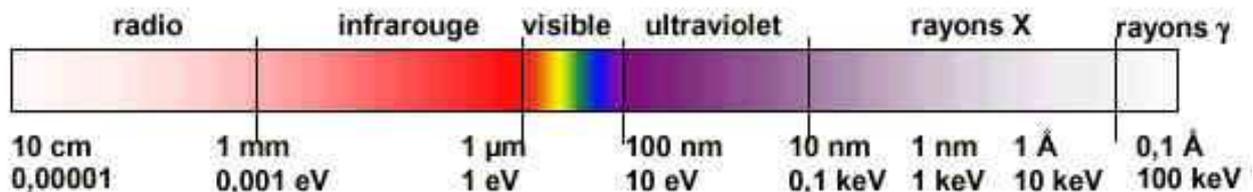


Figure 1-1 Spectre électromagnétique¹

Certains de ces rayonnements sont observables depuis la terre. Les conditions climatiques et l'atténuation des rayonnements par l'atmosphère réduisent l'efficacité des observations dans les autres gammes de longueur d'onde² [Revéret-2008].

¹ http://irfu.cea.fr/Sap/Phoce/Vie_des_labos/Ast/ast_sstechnique.php?id_ast=1218

² http://fr.wikipedia.org/wiki/Absorption_%28optique%29

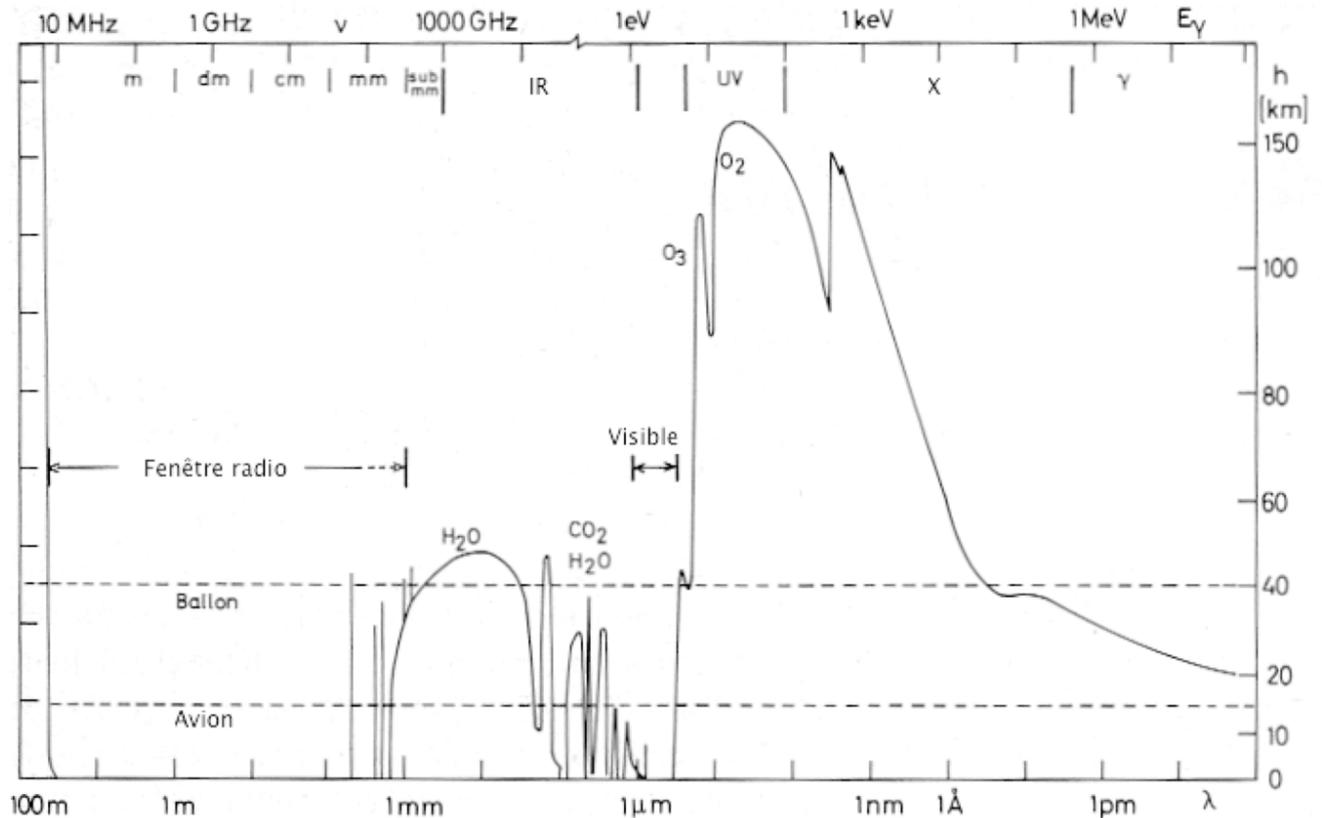


Figure 1-2 Opacité de l'atmosphère terrestre¹. L'ordonnée indique l'altitude par rapport au niveau de la mer, en km (à droite) et en dizaine de milles (à gauche).

Les télescopes sont embarqués dans des sondes spatiales (satellites en orbite terrestre ou solaire) et envoyés en dehors de l'atmosphère (ex : le point L2 de Lagrange, une orbite solaire géosynchrone à $1,5 \cdot 10^6$ km de distance de la terre), pour réaliser des campagnes de mesures sur des spectres électromagnétiques, difficilement réalisables sur la terre à cause de l'absorption atmosphérique. L'observation spatiale est aujourd'hui largement utilisée pour l'étude des phénomènes célestes.

Un bon exemple de ce type de station d'observation spatiale est le télescope Herschel. Ce télescope est entré en activité en milieu 2009. Il a embarqué trois instruments (HIFI, PACS et SPIRE) qui permettent de photographier l'univers dans la gamme des rayonnements infrarouges et d'analyser la composition chimique des sources, par la spectrométrie des rayonnements observés. L'une des missions d'Herschel est l'observation de la naissance des étoiles dans l'univers et l'étude des prémices de l'univers.

¹https://colbertserv.lyceecolbert-tg.org/~marathonphys/pdm/www.astro.uni-bonn.de/~webstw/astro_instr/atmosphaerische_absorption.html

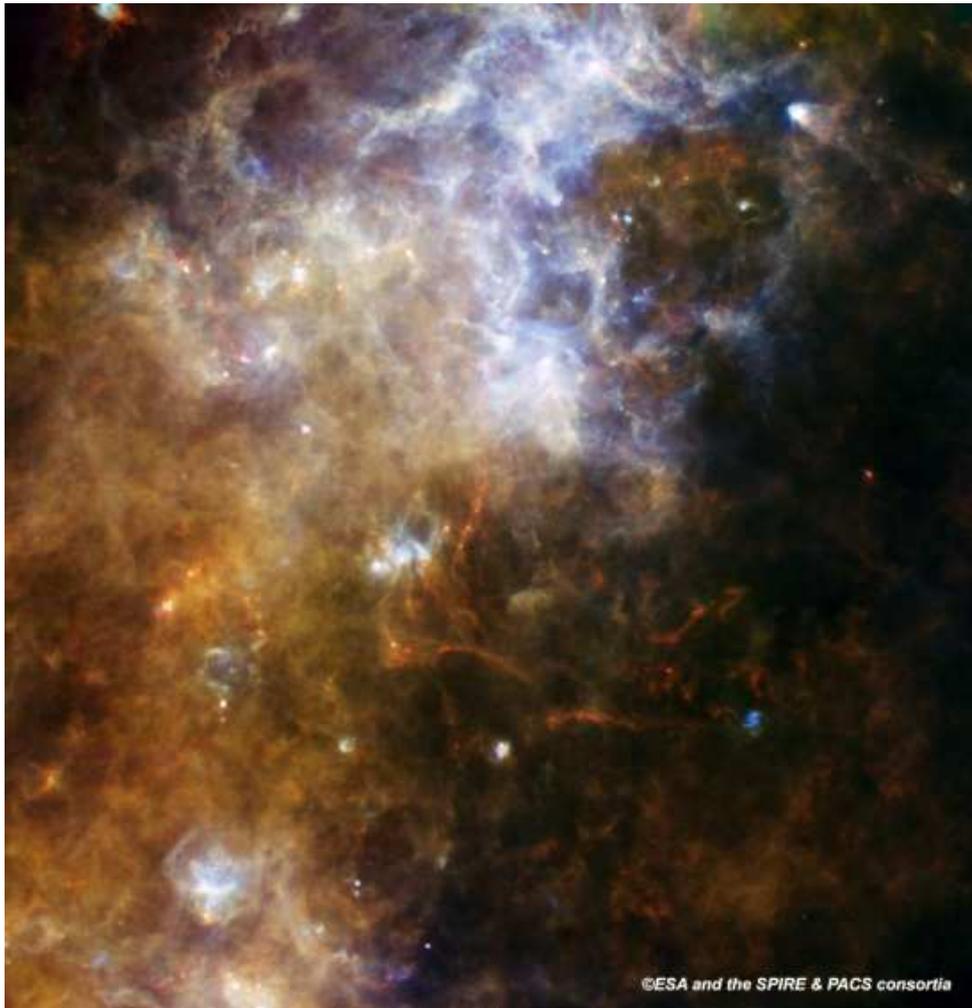


Figure 1-3 Image de nuages moléculaires, ou pouponnières d'étoiles, dans la Voie Lactée réalisée à partir des instruments Spire et Pacs du télescope Herschel¹

Certains objets à faible température ne brillent pas dans les couleurs de l'arc en ciel. Il est possible de les étudier en détectant leurs radiations infrarouges émises. Les rayons infrarouges sont invisibles pour l'œil humain. Les couleurs représentées sur la figure 1-3 sont de fausses couleurs qui permettent de représenter, en fonction de la longueur d'onde, la luminosité en infrarouge des objets observés dans les nuages moléculaires de la Voie Lactée. Les couleurs rouges correspondent aux éléments froids et les couleurs bleues correspondent aux objets les plus chauds.

¹ <http://www.herschel.fr>

1-2 La détection du rayonnement X

Tout comme certaines bandes du rayonnement infrarouge et submillimétrique, le rayonnement X est arrêté par l'atmosphère (voir figure 1-2) et son observation requiert des missions spatiales.

Par contre, et tout comme le rayonnement infrarouge et submillimétrique, le rayonnement X est, paradoxalement, peu absorbé par le milieu interstellaire (voir figure 1-4), ce qui permet de l'utiliser pour sonder loin et dans des milieux denses où le rayonnement visible ne serait d'aucun secours.

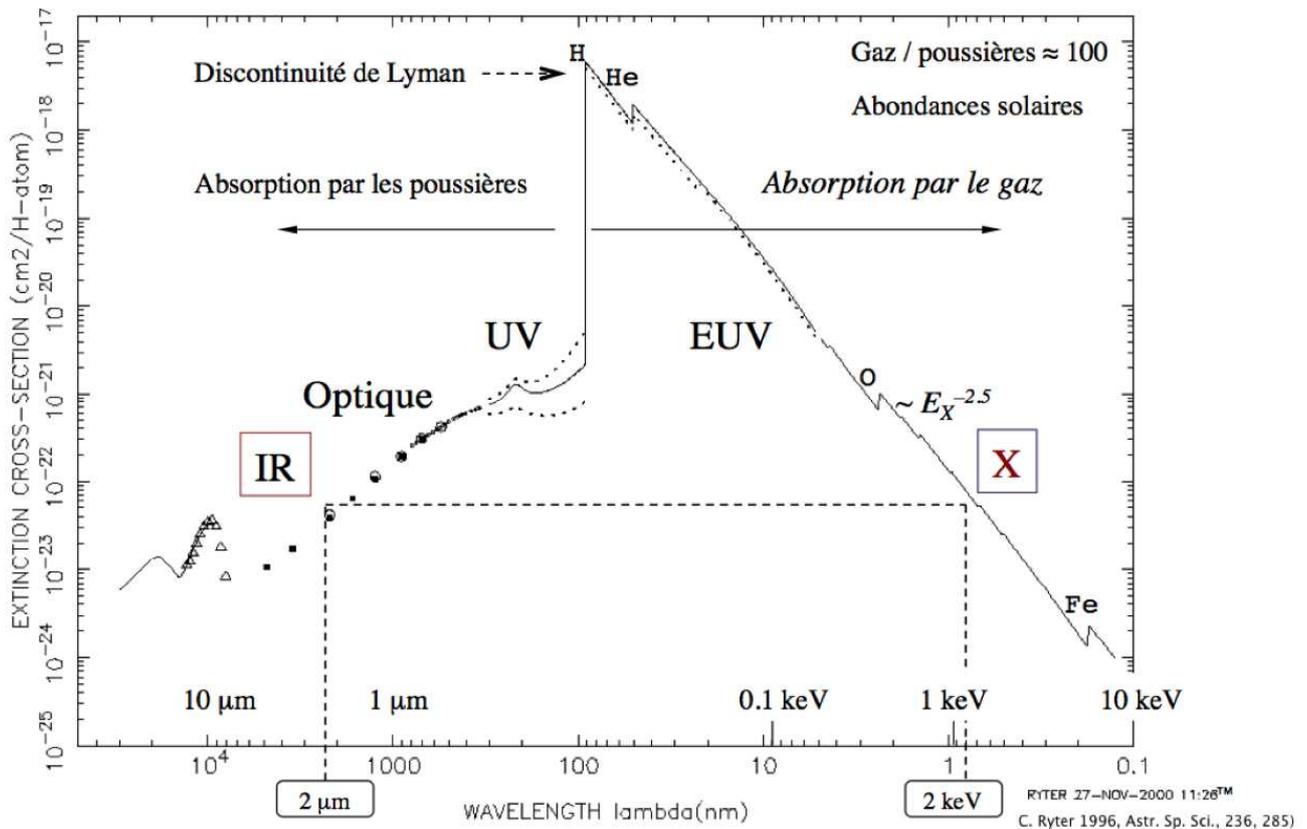


Figure 1-4 Absorption du rayonnement électromagnétique par le milieu stellaire [Ryter-1996]

Le rayonnement X est un traceur du gaz chaud et des particules relativistes. Il est émis par l'activité magnétique dans l'atmosphère des étoiles, lors de l'explosion d'étoiles (supernovæ), par la matière chauffée par le champ de gravitation, comme dans les amas de galaxies, les noyaux actifs de galaxie, les disques d'accrétion auprès d'objets compacts accretants.

Certains de ces objets forment des sources étendues (amas de galaxies, restes de supernova) et requièrent des instruments spectro-imageurs pour leur observation.

a) *Les précédentes missions*

Il y a eu plusieurs télescopes en activité pour l'observation des rayonnements X de l'univers au cours des dernières décennies. Les plus célèbres sont sans doute XMM-Newton et Chandra. Aujourd'hui, de même que la mission japonaise Suzaku, ils sont encore opérationnels. Les télescopes de XMM-Newton ont fourni de nombreux résultats qui intéressent la cosmologie contemporaine. A titre d'exemple, la figure 1-5 présente les différentes photographies obtenues de la galaxie d'Andromède (M31) située à 2,55 millions d'années-lumière de la terre.

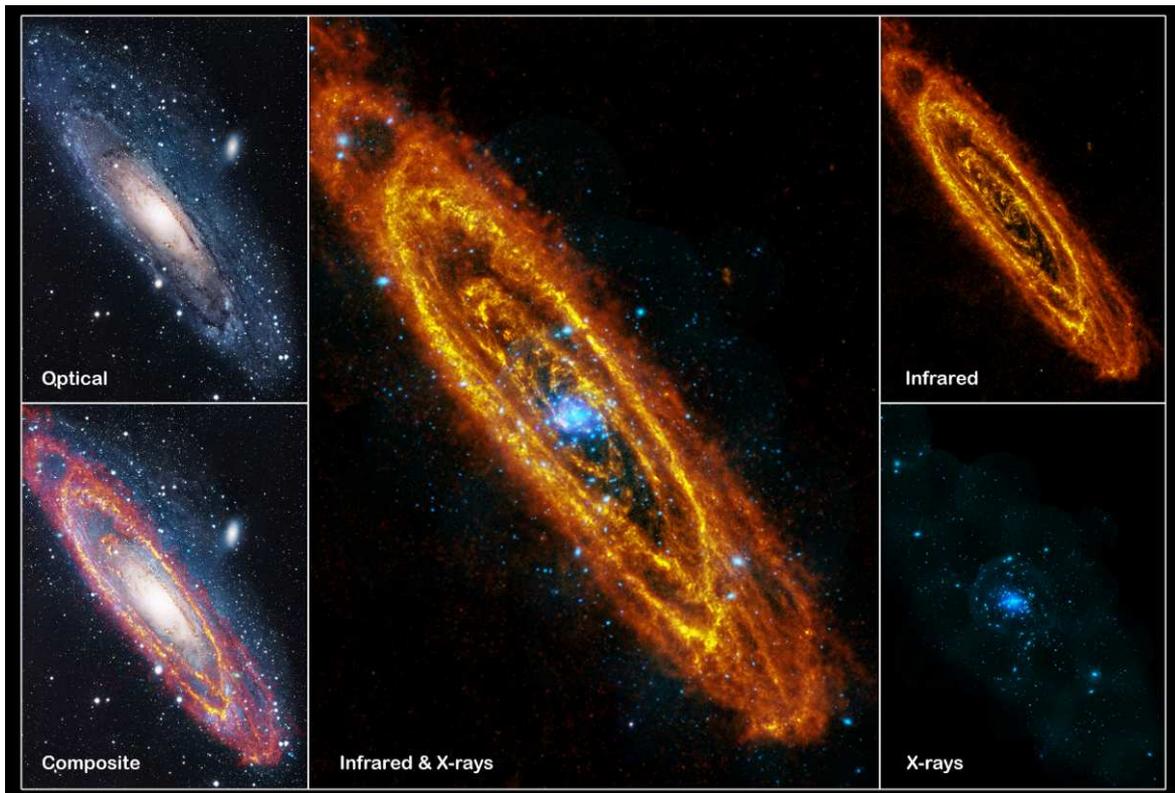


Figure 1-5 Photos prises dans différentes longueurs d'onde de la galaxie d'Andromède¹. Les images infrarouges ont été prises avec Herschel et les images en rayons X avec XMM-Newton.

Les taches lumineuses que l'on peut observer sur l'image (figure 1-5 : en bas à droite) obtenue avec XMM-Newton (instrument EPIC) ont été déterminées comme étant des rémanents de supernovæ, ou signant la présence d'objet émettant une radiation fortement énergétique telle qu'une naine blanche, une étoile à neutrons ou un trou noir attirant (gravitationnellement) un compagnon moins dense. Le cœur de cette galaxie est occupé par un trou noir supermassif.

¹ <http://sci.esa.int/science-e/www/object/index.cfm?fobjectid=48317>

b) La future mission ATHENA

La future mission ATHENA (Advanced Telescope for High ENergy Astrophysics) dont le lancement est prévu pour 2022, prendra le relais des télescopes de la génération actuelle, XMM-Newton et Chandra. La mission ATHENA prend la suite de la mission XEUS proposée à l'origine par l'ESA et de la mission IXO proposée en collaboration avec la NASA. Le télescope sera placé en orbite autour du second point de Lagrange à 1,5 Mkm de la terre.

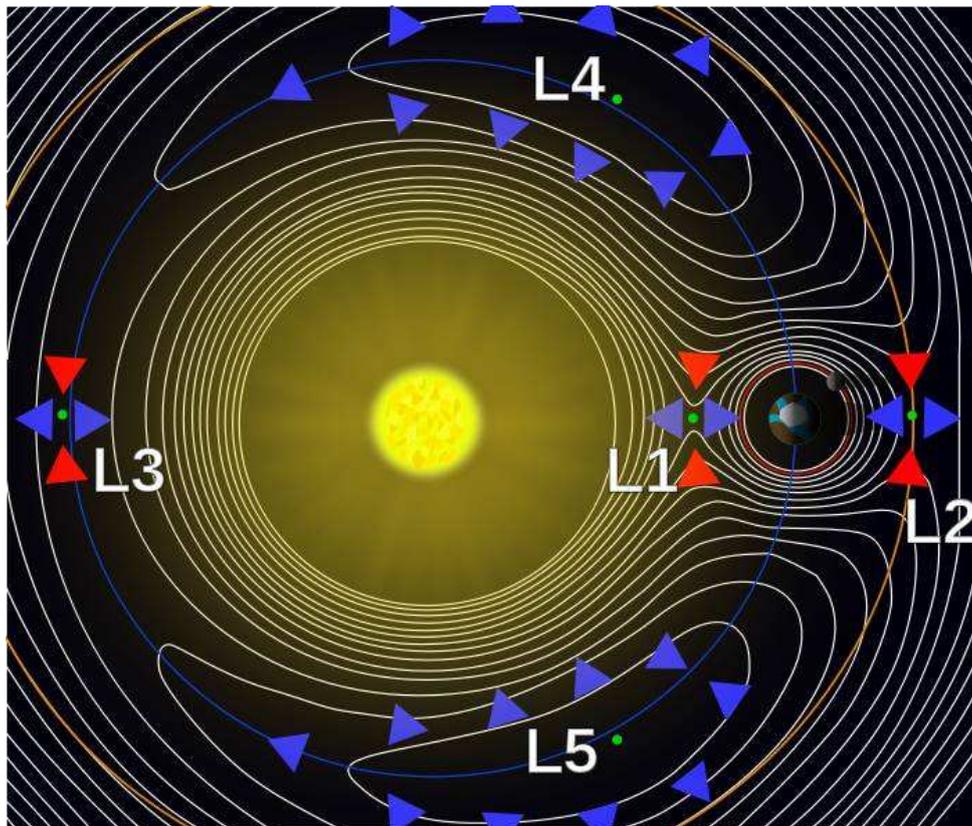


Figure 1-6 Les points de stabilité gravitationnelle ou points de Lagrange du couple terre-soleil¹

La figure 1-7 présente une vue d'artiste de la mission ATHENA, avec ses deux télescopes. Contrairement à IXO, ATHENA ne sera pas déployable. Ses miroirs utiliseront une technologie silicium développée à l'ESA.

¹ http://fr.wikipedia.org/wiki/Point_de_Lagrange

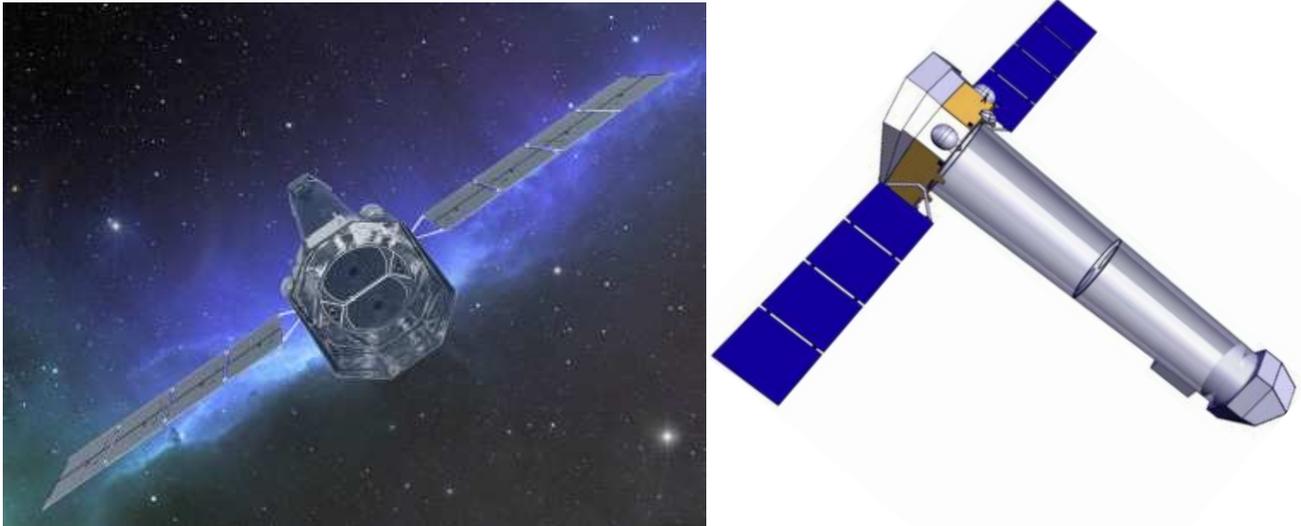


Figure 1-7 Représentation artistique de la mission ATHENA¹

L'observation de la matière dans des conditions extrêmes auprès des trous noirs ou la formation des galaxies seront parmi les missions d'ATHENA, pendant son activité prévue pour une durée d'exploitation de 5 à 10 années. ATHENA apportera une amélioration de la précision des observations pour la gamme des rayonnements X « mous » (100 eV à 10 keV). Elle améliorera la résolution en énergie de la spectrométrie d'un facteur 50, grâce aux microcalorimètres.

Deux instruments seront embarqués dans ce télescope. WFI (Wide Field Imager) est un imageur silicium qui prendra des images simultanément aux acquisitions du détecteur XMS (X-ray imaging Microcalorimeter Spectrometer). XMS est le spectromètre à haute résolution du télescope, nous allons détailler ses caractéristiques et une partie de son fonctionnement plus loin dans ce chapitre.

Détecteurs	XMS	WFI
Domaine d'énergie	0,3–10 keV	0,1–10 keV
Résolution en énergie	$\Delta E = 3 \text{ eV}$ à $E < 7 \text{ keV}$ ($E/\Delta E = 2300$ à $E > 7 \text{ keV}$)	$\Delta E \leq 150 \text{ eV}$ à 6 keV
Plan focal	$2,3 \times 2,3 \text{ arcmin FoV}$	$25 \times 25 \text{ arcmin FoV}$
Taux de comptage	modeste	acceptable

Tableau 1-1 Caractéristiques des deux instruments de la mission ATHENA²

¹ <http://sci.esa.int/science-e/www/object/index.cfm?fobjectid=49996>

² <http://sci.esa.int/science-e/www/object/index.cfm?fobjectid=49997>

c) Le détecteur XMS

Les travaux que nous allons décrire dans ce manuscrit ont pour application directe l'instrument XMS du futur télescope ATHENA. Ils pourront être utilisés, aussi, pour d'autres instruments pour les futures missions spatiales d'astronomie X (missions japonaises, américaines ou autres...).

Aujourd'hui, la technologie de base, pour apporter une solution adéquate pour la détection des rayonnements X dans la gamme 200 eV – 10 keV, qui équipe XMM-Newton, Chandra et Suzaku, fait appel à des CCDs silicium qui n'ont aucune difficulté à couvrir tout le plan focal de ces missions, mais dont la résolution spectrale reste limitée par le facteur de Fano, au mieux à une valeur moyenne de 120 eV FWHM @ 6 keV. XMM-Newton propose une résolution à 150 eV (à 6 keV) avec l'actuel instrument EPIC.

La technologie des matrices de microcalorimètres devrait permettre d'atteindre une résolution spectrale inférieure à 3 eV @ 6 keV, mais au prix d'un point de fonctionnement à très basse température (50 mK) afin d'optimiser leurs performances.

Deux technologies sont en compétition pour la réalisation du senseur thermométrique de l'instrument XMS. Il s'agit des TES et des MIS.

Les TES (Transition Edge Sensor) sont des thermomètres travaillant à une température à l'intérieur de la transition supraconductrice du matériau, de manière à se retrouver en début ou au milieu de la transition dans une zone où la sensibilité du thermomètre est la plus grande. Le photon impacte le détecteur et son énergie élève la température de l'absorbeur et par voie de conséquence celle du senseur, en connexion thermique, modifiant ses propriétés électriques. La forte variation de la résistance, en fonction de la température, due à la pente de transition supraconductrice, apporte à ce type de détecteur une sensibilité extrême. C'est aujourd'hui la technologie qui est pressentie pour être intégrée à l'instrument XMS.

La technologie MIS (Metal Insulator Semiconductor) est celle développée par le service d'Astrophysique pour apporter une solution à l'instrument XMS. Elle consiste à utiliser un absorbeur pour thermaliser l'énergie du photon incident qui est transmise sous forme de phonons au thermomètre, l'élévation de température modifiera les propriétés résistives du thermomètre à base de semi-conducteur lié thermiquement à l'absorbeur. Nous allons détailler le fonctionnement de cette technologie dans la suite de ce chapitre.

Quoi qu'il en soit, il semble que les spécifications en résolution spectrale puissent être atteintes avec toutes les technologies connues pour la réalisation des thermomètres microcalorimétriques, ainsi que le montre la figure 1-8 avec l'évolution dans le temps des performances de trois types de senseurs thermométriques.

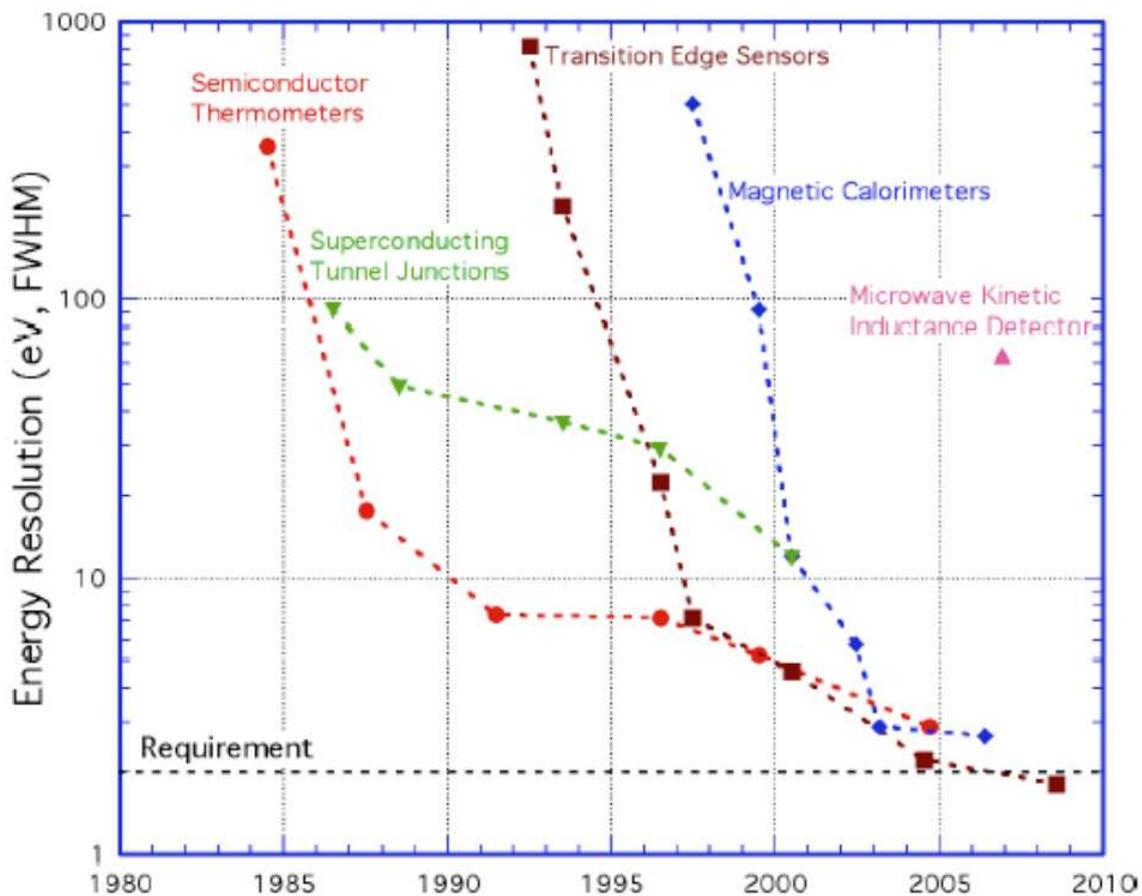


Figure 1-8 Evolution en fonction du temps de la résolution en énergie (à 6 keV) pour plusieurs technologies de détecteurs. On remarquera la spécification visée, à 2 eV de résolution en énergie¹.

Avec la figure ci-dessus, la résolution en énergie des différentes technologies en concurrence, pour atteindre la résolution nécessaire au télescope XMS, apparaît en fonction de l'année, pour les dernières décennies. Nous remarquerons l'évolution des TES et des MIS (semiconductor thermometers).

Il existe plusieurs autres types de technologies utilisées pour compter (mesurer les paramètres) des particules incidentes ou des photons X. Les MKIDs [Monfardini-2011] détectent les variations d'inductance induites par une particule impactant une fine couche de matériau supraconducteur. Un autre exemple de détecteur de particules est le SNSPD [Cavalier-2011]: un courant continu parcourt une piste électrique constituée d'un film mince de matériau supraconducteur, lors de l'impact d'une particule sur le film, un point chaud se crée et le matériau perd localement ses propriétés supraconductrices ; cela induit une élévation de la tension aux bornes de la piste pendant le court laps de temps de vie (< 10 ns) du point chaud avant le retour à l'état stable du détecteur.

¹ Présenté oralement par Caroline Kilbourne (2010)

2- Des microcalorimètres pour XMS

Nous avons vu qu'il existe plusieurs technologies de thermomètre pour détecter les rayonnements X provenant de l'univers pour l'étude des phénomènes astrophysiques via l'instrument XMS. Le service d'astrophysique du CEA à Saclay a choisi de développer un détecteur à base de microcalorimètres utilisant des thermomètres MIS. Dans cette partie, nous allons présenter quelques généralités sur le fonctionnement du microcalorimètre.

2-1 Un microcalorimètre X

Le microcalorimètre a un fonctionnement très semblable à celui d'un bolomètre. Les deux senseurs transforment l'énergie/puissance véhiculée par les photons incidents en information électrique après avoir converti leur énergie/puissance en température (thermalisation). La différence entre les deux réside dans le mode de détection.

Les bolomètres, classiquement utilisés dans la détection des rayonnements infrarouges, sondent un flux continu de photon, ils retransmettent une information faisant état de l'énergie des photons infrarouges incidents, c'est à dire de la puissance apportée par le rayonnement.

Les microcalorimètres sont capables de compter les photons incidents. Après la mesure de l'énergie d'un photon, le retour à l'état initial (stable) se fait rapidement, ce qui permet l'attente de l'arrivée d'un autre photon unitaire. On mesure l'énergie de chaque photon. Ceci est possible dans le domaine du rayonnement X, car chaque photon véhicule une grande énergie (comparée à celle d'un photon infrarouge) et parce que les sources astrophysiques émettent beaucoup moins de photons X que de rayonnement à plus grande longueur d'onde.

Nous avons opté pour l'utilisation d'une matrice de microcalorimètres fonctionnant à très basse température : 50 mK (zéro kelvin = - 273,15°C), afin de répondre à l'appel d'offre lancé pour la réalisation du détecteur XMS de la mission ATHENA. Nous verrons que cette température est favorable à la sensibilité des détecteurs. La figure 2-1 représente le schéma d'un plan matriciel composé d'une matrice de 16 par 16 pixels (soit 256 pixels). Le plan matriciel (a) est composé d'une matrice de 256 pixels microcalorimétriques (b). Les 512 pistes (c) électriques (soit 2 pistes par pixel), représentées sur la figure par deux bus en forme de flèche, servent à la fois au transport de l'information et à la polarisation de chaque microcalorimètre ; elles relient la matrice (a) à la zone de reprise de contact (d). Chaque interconnexion, dans la zone de reprise de contact, entre le plan matriciel (a) et le circuit (e), est électriquement isolée des autres et fait office de liaison mécanique entre (e) et (a). L'information électrique (signal) est transférée à un circuit de lecture (e) fonctionnant à plus haute température. On notera que la figure 2-1 est une vue schématique du détecteur.

Le démonstrateur développé par le SAp sera composé d'un plan matriciel avec une matrice de 1024 pixels (soit 32 par 32 pixels). Le nombre d'interconnexions et de pistes électriques sera multiplié par 4 par rapport à la figure 2-1.

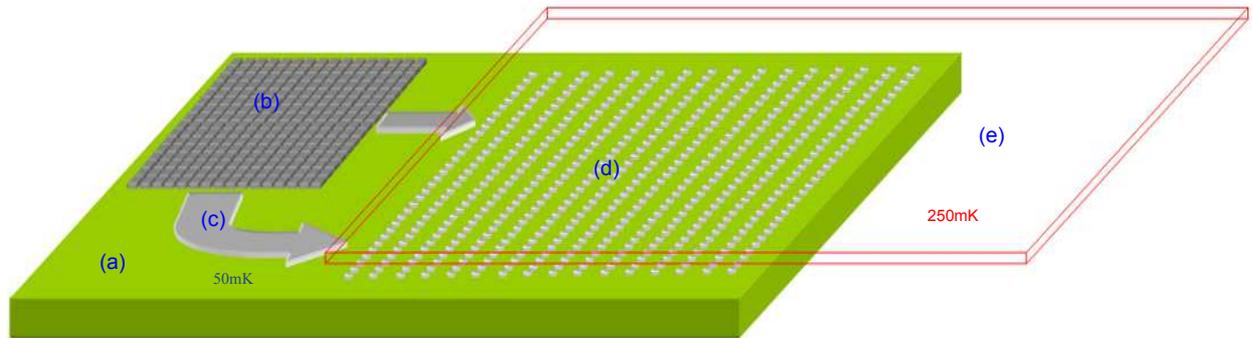


Figure 2-1 Vue schématique d'un plan matriciel avec une matrice de 256 pixels

Chaque matrice sera aboutable par deux cotés et permettra ainsi un assemblage de 4 unités qui constituera un plan matriciel complet de 4096 pixels (64 par 64 pixels).

Les données prétraitées (amplifiées et multiplexées) sur les circuits de lecture opérant à une température allant de 300 mK à une dizaine de kelvins seront ensuite transmises vers une électronique à température ambiante (300 K) pour être archivées.

2-2 Fonctionnement d'un microcalorimètre

Focalisons-nous maintenant sur le fonctionnement du microcalorimètre conçu pour la détection du rayonnement X.

Un photon X de forte énergie (100 eV – 10 keV) provenant d'une source cosmique impacte la surface d'un matériau absorbeur. L'épaisseur de cet absorbeur est prévue pour arrêter la majeure partie des rayonnements de la gamme d'énergie visée. Le photon cède son énergie à l'absorbeur. L'énergie est thermalisée, puis la chaleur résultante diffuse vers un thermomètre par un lien thermomécanique.

Une fine membrane de silicium fait office de thermomètre. Cette planche thermométrique a subi un procédé de dopage par implantation ionique et de diffusion à haute température pour obtenir une résistance électrique contrôlée évoluant fortement dans la gamme de température visée. Deux pistes électriques permettent à la fois la polarisation et la mesure du thermomètre.

L'énergie cédée par le photon incident est évacuée via une fuite thermique à la source froide. Cette fuite est dimensionnée pour que la durée de l'évacuation des charges thermiques ne soit ni trop courte, ni trop longue. Une durée trop longue empêcherait la détection unitaire des photons. Une durée trop courte, impliquerait une perte importante de l'énergie à mesurer. Les pistes électriques nécessaires à la lecture de la résistance du thermomètre passent à la surface des fuites thermiques qui sont matérialisées par des poutres de section carré. Les poutres relient la planche thermométrique (membrane) suspendue aux murs de la matrice.

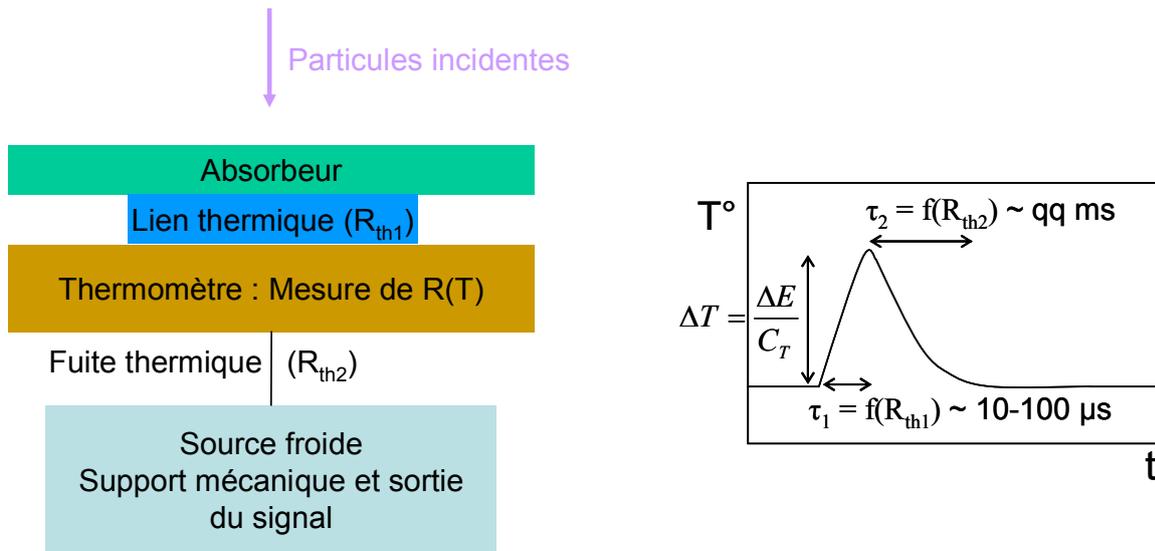


Figure 2-2 Fonctionnement d'un microcalorimètre

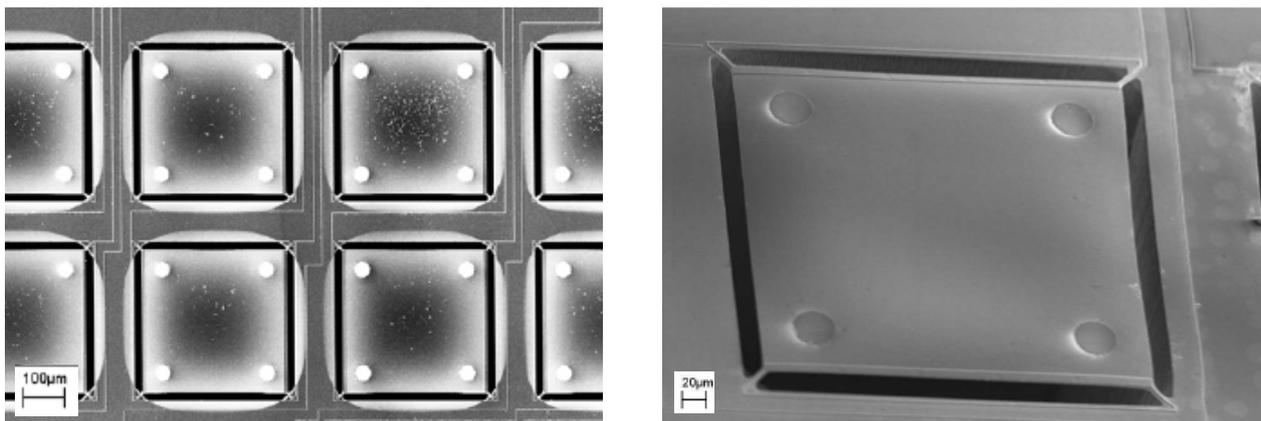


Figure 2-3 Images d'un ou plusieurs pixels microcalorimétriques, sans absorbeur, reliés aux murs, chacun par 4 poutres [Aliane-2009]

2-3 Quelques points clés

Nous allons évoquer quelques points intéressants, inhérents à la conception des microcalorimètres et à leur fonctionnement. Nous ne rentrerons pas dans les détails de fabrication des microcalorimètres puisque cela n'est pas le sujet de ce manuscrit. La personne qui est aujourd'hui en charge de la conception de ces microcalorimètres de nouvelle génération est Sébastien Loiseau (post doctorant à l'IRFU / SAp). Il met en place les procédés pour réaliser, à partir des techniques issues de la microélectronique, les matrices de microcalorimètres sur la plateforme PTA (*Plateforme Technologique Amont* du CNRS et de l'INAC à Grenoble).

a) La sensibilité

Le premier point important consiste à maximiser la sensibilité. La capacité calorifique des matériaux dans la chaîne de détection (absorbeur, lien thermique et thermomètre) du microcalorimètre doit être la plus faible possible. Dans l'équation 2.1, la sensibilité ΔT est exprimée en fonction de l'énergie du photon incident ΔE et de la capacité calorifique totale C_t du microcalorimètre.

$$\Delta T = \frac{\Delta E}{C_t} \quad (\text{Eq 2.1})$$

La capacité calorifique est le produit du volume V et de la chaleur spécifique C_v du matériau. L'unité de capacité calorifique est le J/K. A basse température dans un matériau métallique, la chaleur spécifique est la somme de deux termes, l'un lié à la contribution des électrons, évoluant en T , et l'autre à la contribution des phonons (vibrations mécaniques du réseau), évoluant en T^3 [Ashcroft-2002].

$$C_t = C_v \times V \quad (\text{Eq 2.2}) \quad \text{avec} \quad C_v = \gamma \cdot T + \beta \cdot T^3 \quad (\text{Eq 2.3})$$

Nous démontrerons (dans le chapitre suivant) que pour des matériaux supraconducteurs (avec $T < T_c / 10$), la conduction de la chaleur ne se fait qu'avec les phonons. L'équation 2.3, pour un supraconducteur devient, alors :

$$C_v = \beta \cdot T^3 \quad (\text{Eq 2.4}) \quad \text{avec} \quad \beta = \frac{1945 \times \rho}{\Theta_D^3 \times M} \quad (\text{Eq 2.5})$$

La masse volumique ρ , la masse molaire M et la température de Debye Θ_D sont des constantes propres au matériau. Pour obtenir la sensibilité la plus forte possible, les matériaux de structure occupant un volume important sont choisis pour fonctionner à l'état supraconducteur, à moins qu'ils ne soient isolants comme le silicium à la température d'opération. Les autres matériaux voient leur volume réduit au strict minimum.

b) L'absorbeur

L'absorbeur est la partie la plus volumineuse du microcalorimètre. Nous avons, donc, choisi un matériau supraconducteur tel que le tantale (Ta) pour cette fonction.

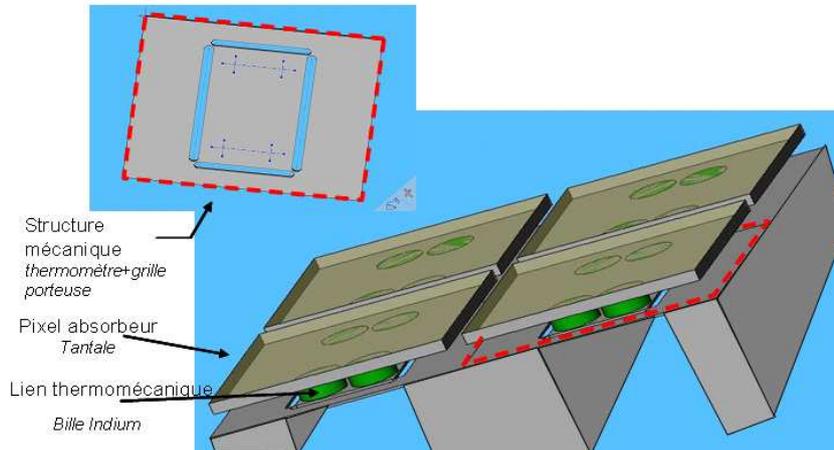


Figure 2-4 Représentation schématique d'un ensemble de 4 microcalorimètres avec leur absorbeur

La haute valeur du numéro atomique du tantale ($Z = 73$) est un paramètre important pour obtenir un bon pouvoir d'arrêt pour les photons X. En effet, le pouvoir d'arrêt des matériaux élémentaires, par effet photoélectrique (l'interaction dominante dans le domaine d'énergie du rayonnement X), croît plus vite que Z^3 .

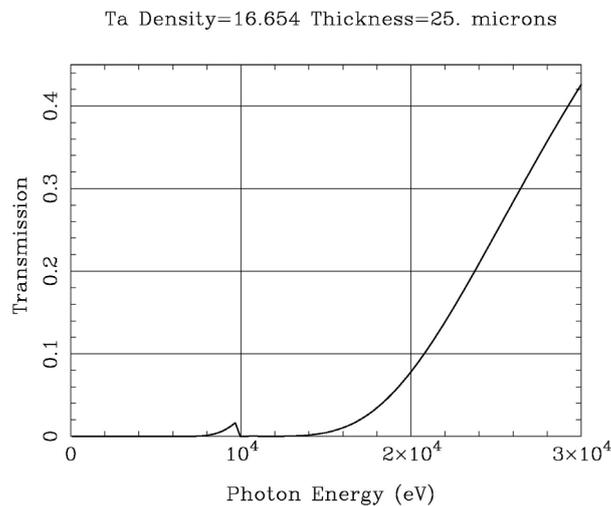


Figure 2-5 Courbe du pouvoir d'arrêt du Ta pour une épaisseur de 25µm

Nous verrons dans l'introduction à la supraconductivité du chapitre suivant que des paires de Cooper se forment dans les matériaux à l'état supraconducteur. Lorsqu'un photon X fortement énergétique impacte l'absorbeur, il déclenche un mécanisme de thermalisation complexe.

Le photon X incident interagit, dans un premier temps, avec le matériau absorbeur en transférant son énergie à des électrons (photoélectron, électron Auger,...) qui, à leur tour, vont diffuser et partager leur énergie avec d'autres électrons du milieu. Quand l'énergie moyenne des électrons aura décru suffisamment par interactions électron-électron, l'énergie va être transférée majoritairement aux phonons qui vont décroître en énergie par interactions phonon-phonon. A plus basse énergie, les phonons vont se mettre à ré-interagir avec les électrons du milieu. Le processus de thermalisation sera, alors, différent suivant que nous serons dans un métal résistif ou supraconducteur.

Dans le cas d'un métal normal, non supraconducteur, les phonons vont retransmettre une partie de leur énergie aux électrons de conduction du métal, et les deux populations, phonons comme électrons vont atteindre une distribution d'énergie en équilibre thermique. Cet équilibre est atteint dans un temps qui dépend de la température.

Dans le cas d'un supraconducteur, les phonons vont casser des paires de Cooper en quasiparticules qui vont relaxer leur énergie en phonons jusqu'à atteindre leur niveau fondamental, où elles vont pouvoir se recombinaison en paire de Cooper avec émission de phonon. Ce processus est beaucoup plus long que dans un métal non supraconducteur ; nous avons mesuré 900 μs (100 mK) de temps caractéristique pour la thermalisation d'un photon de 6 keV pour un absorbeur parallélépipédique de $500 \times 500 \times 25 \mu\text{m}^3$ de tantale [Perinati-2008].

Pour accélérer la recombinaison de ces paires de Cooper, nous plaçons à la surface de l'absorbeur une couche mince de supraconducteur à plus basse température de transition, comme l'aluminium. L'énergie nécessaire à la recombinaison dans cette couche est inférieure à celle du Tantale. Cette couche agit, donc, comme un puits de potentiel pour les quasiparticules dans leur état fondamental dans le Tantale. Les quasiparticules finissent, donc, par être confinées dans un volume restreint d'Aluminium, où leur densité favorise leur probabilité d'interaction ; ainsi, le temps de recombinaison est fortement abaissé.

c) Les liens thermomécaniques

Les contacts qui lient la planche thermométrique et l'absorbeur sont réalisés par un assemblage équivalent à la technique que nous détaillons à la fin du chapitre III. Ils permettent une conduction thermique adéquate entre les deux surfaces en contact et une forte tenue mécanique. L'une des parties du lien thermomécanique a une forme de bille et est composée de matériau ductile (exemple : l'indium), ce matériau va absorber la majorité des contraintes dues au rétreint thermique différentiel lors de la descente à basse température.

Le nombre et le diamètre de ces liens permettent de régler la constante de temps du transfert de la chaleur, de l'absorbeur à la planche thermométrique.

d) La thermistance

Le thermomètre est réalisé à partir d'une membrane en silicium d'une épaisseur proche de 1,5 µm. La taille de ce thermomètre est classiquement de 300 µm par 300 µm pour des pixels au pas de 500 µm. La fine planche thermométrique de silicium est dopée avec des atomes de phosphore (P), puis des atomes de bore (B). Cela permet l'ajustement de la résistance de canal à une valeur proche du MΩ à très basse température (50 - 70 mK). Les extrémités de la planche sont sur-implantées (dépassement de la transition de Mott [Rosenbaum-1980]) en phosphore. Des reprises de contacts sont réalisées par des vias sur ces zones fortement dopées, entre les pistes électriques et la planche thermométrique.

La résistance de la planche thermométrique suit la loi d'Efros et Shklovskii [Aliane-2009]. A très faible température, dans un silicium fortement dopé (ex : $3,4 \times 10^{18}$ atomes / cm³), les électrons se déplacent par effet tunnel d'un site phosphore à un autre, la conduction est dite par saut. R_0 et T_0 sont des constantes dépendantes du silicium et de son implantation.

$$R = R_0 \cdot e^{\left(\frac{\sqrt{T_0}}{\sqrt{T}}\right)} \quad \text{en } (\Omega) \quad (\text{Eq 2.6})$$

Cette loi exponentielle nous apporte une excellente résolution à basse température.

e) La fuite thermique

La planche thermométrique est suspendue aux murs du plan matriciel par plusieurs poutres. Les pistes électroniques sont déposées sur ces poutres pour cheminer jusqu'à la zone d'interconnexion de la plaque de prétraitement située en lisière du plan matriciel.

Ces poutres ont une double utilité : maintien mécanique et fuite thermique. Leur géométrie influe sur la tenue mécanique. Elles doivent être suffisamment solides pour supporter la planche thermométrique sur laquelle repose l'absorbeur massif de Ta et résister aux accélérations (~ 20 G à basse fréquence) dues aux lanceurs spatiaux.

La géométrie des poutres impacte également sur la valeur de la résistance thermique de la fuite à la source froide. Nous avons montré qu'il était important de pouvoir ajuster la fuite thermique pour le bon fonctionnement du microcalorimètre. Le modèle de Casimir fournit, pour une poutre longiligne, la formule de résistance thermique suivante [Downey-1984] : P, L et A sont respectivement le périmètre, la longueur et la section d'une poutre.

$$R_{fuite} = \frac{1}{5 \times 10^{-9}} \cdot T^{-3} \cdot \frac{P \cdot L}{A^2} \quad \text{en } (\text{K/W}) \quad (\text{Eq 2.7})$$

En conclusion de cette présentation succincte du fonctionnement des microcalorimètres, nous mettons en avant les différents points de cette technologie, pointue et sensible. C'est, en soi, un sujet passionnant, sur lequel j'ai consacré le début de ma thèse, mais les deux sujets développés dans ce manuscrit ne traitent pas des problèmes liés aux microcalorimètres. Ces sujets seront détaillés plus loin dans ce chapitre.

2-4 Exemple par simulation

Pour terminer cette introduction avec les microcalorimètres, nous présentons un travail de simulation d'un pixel microcalorimétrique.

Nous avons vu, précédemment, le fonctionnement général d'un microcalorimètre. Nous présentons une simulation théorique en deux temps d'un pixel standard. La première partie de cette simulation utilise les équations de conversion d'énergie en température et du transfert thermique entre l'absorbeur et la planche thermométrique. La simulation est réalisée pour un microcalorimètre parfait et simplifié.

La figure 2-6 montre le résultat de la simulation de la courbe thermique d'un microcalorimètre pour l'impact d'un photon d'une énergie de 6 keV. La température du thermomètre est représentée en fonction du temps. La capacité calorifique du système : absorbeur, lien thermomécanique et planche thermométrique est estimée par calcul à $C_t = 1,11 \cdot 10^{-14} \text{ J/K}$ (à 50 mK). La résistance thermique du lien est de $R_{\text{lien}} = 2,32 \cdot 10^9 \text{ K/W}$ (à 50 mK) pour 4 connexions (hybridation) d'un diamètre de 20 μm . La résistance de la fuite thermique, pour huit poutres ($25 \times 15 \times 1,5 \mu\text{m}^3$), est estimée à $R_{\text{fuite}} = 1,13 \cdot 10^{11} \text{ K/W}$ (à 50 mK). La source froide est thermalisée à 50 mK.

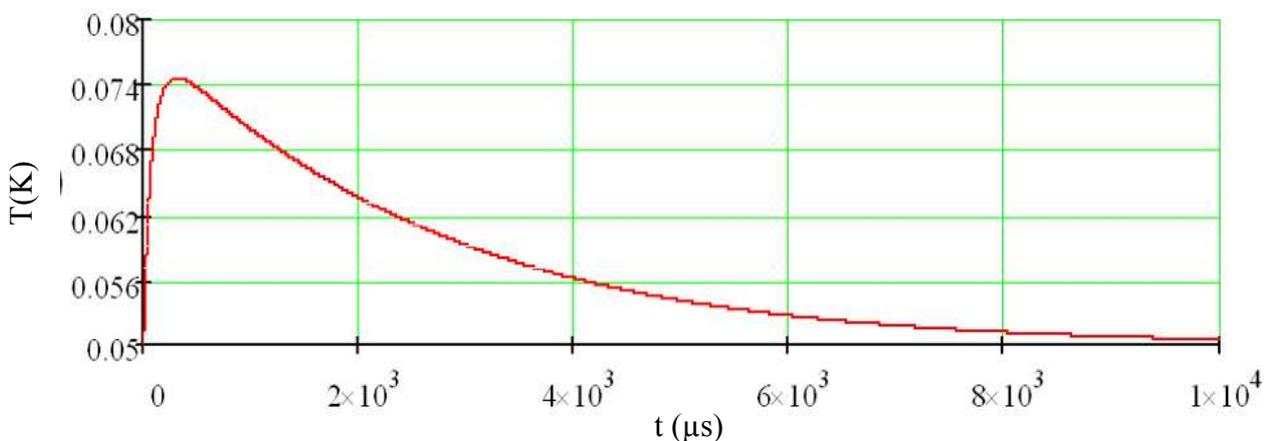


Figure 2-6 Courbe simulée de la température de la planche thermométrique après un impact photonique de 6 keV

On remarque sur la figure ci-dessus que l'impact photonique va créer une élévation de la température sur la planche thermométrique avec un maximum à 200 μs après l'impact. Nous fixons arbitrairement, ici, le temps de recombinaison des paires de Cooper à 100 μs . Ensuite, les calories seront lentement évacuées par la fuite thermique. On voit qu'il est possible de détecter un impact photonique toutes les 10 ms. Avec des techniques de traitement du signal, il est même possible de mesurer et dissocier deux impacts photoniques empilés, si le second arrive lors de la phase d'évacuation de la chaleur du premier vers la source froide.

A ce stade, il est possible de remonter à l'information sur l'énergie du photon incident en réalisant le calcul de l'aire sous la courbe et en la divisant par la résistance thermique de fuite. Dans cette configuration de thermalisation rapide de l'énergie et d'évacuation lente des calories, l'erreur sur l'intégration jusqu'à 10 ms peut être bien inférieure à 1%.

C'est pour réaliser cette intégration afin de remonter à l'énergie, que la mesure de la résistivité électrique est faite. Le niveau de température influe directement sur la valeur de la résistance de la planche thermométrique. La lecture du courant traversant cette thermistance ainsi que la connaissance de la fonction de variation de la résistance en température, permet de remonter à l'information sur la température de la planche thermométrique en fonction du temps. Nous noterons ici que pour la simulation, nous avons négligé l'impact de la puissance dissipée due à la polarisation du thermomètre.

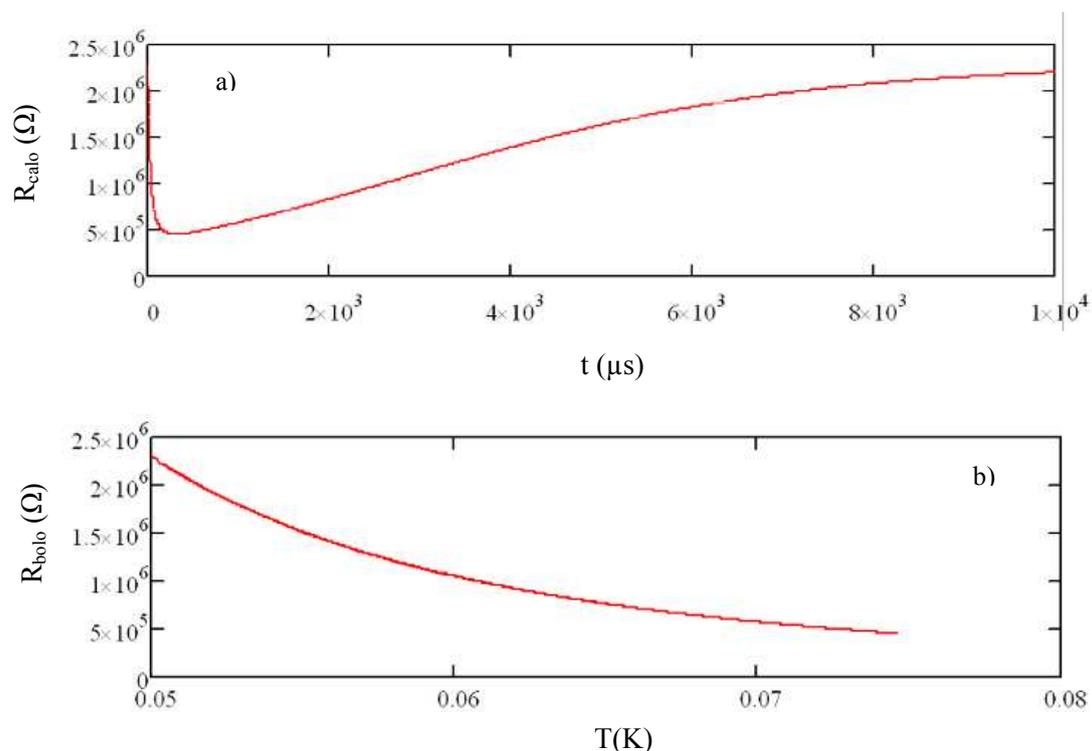


Figure 2-6 Courbes simulées de la résistance du microcalorimètre en fonction du temps après un impact photonique (a) et en fonction de la température (b) suivant la loi d'Efros et Shklovskii

La résistance du thermomètre est obtenue à partir de la loi d'Efros et Shklovskii avec R_0 et T_0 respectivement fixés à $R_0 = 300 \Omega$ et $T_0 = 4$.

Ces résultats sont comparables à ce qu'Abdelkader Aliane [Aliane-2009] a obtenu, aussi bien par le calcul, que par la mesure. Certaines données d'entrée, pour cette simulation, sont issues de son manuscrit.

Pour une mesure précise de l'énergie du photon incident, il est important de pré-calibrer pour chaque pixel la résistance thermique de fuite ainsi que la fonction de variation en température de chaque thermistance. Le délai de thermalisation dans le tantale doit être inférieur à $100 \mu\text{s}$, d'où l'intérêt d'utiliser une technique qui accélère la recombinaison des quasiparticules.

Nous avons choisi, ici, de n'aborder que les points les plus essentiels à la compréhension du fonctionnement global d'un microcalorimètre. Il y a bien d'autres points durs, à résoudre, pour le fonctionnement du microcalorimètre ; nous orientons le lecteur intéressé à consulter le manuscrit de thèse d'Abdelkader Aliane, pour trouver les réponses à ses questions.

3- Enoncé des sujets étudiés au cours de ce travail de thèse

Initialement, le sujet de la thèse portait sur la fabrication d'un démonstrateur composé d'une matrice 32 par 32 pixels. Ce sujet faisait suite à la thèse d'Abdelkader Aliane. L'aboutissement de cette thèse (début 2009) fut un démonstrateur d'un plan matriciel composé d'une matrice de 64 pixels. Cette matrice, à proprement parler, n'était pas optimisée, mais nous a permis de valider de nombreux points de fonctionnement pour les réalisations suivantes de matrices à base de microcalorimètres. Son travail a également abouti à la validation d'un procédé de fabrication technologique pour les microcalorimètres. Cet enchaînement d'étapes technologiques sera majoritairement réutilisé pour la phase suivante d'élaboration d'une matrice avec un nombre de pixels seize fois plus élevé.

Le sujet initial de la présente thèse comportait plusieurs points critiques. La fabrication d'un tel démonstrateur se faisait à partir de la technologie microélectronique disponible sur la plateforme silicium du LETI à Grenoble. Le temps estimé pour la fabrication d'un tel démonstrateur sur la plateforme dépassait la moitié de la durée de la thèse. Le budget pour lancer un lot avec 14 niveaux de masques (> 160 étapes) sur la plateforme silicium du LETI était conséquent. La probabilité de disfonctionnement dans l'enchaînement des étapes de la fabrication était non négligeable pour un lot de cette complexité.

L'écart entre le budget nécessaire pour démarrer le lot sur la plateforme LETI et les possibilités de financement du sujet n'a pas pu être comblé, compte tenu du retard pris par le LETI pour entreprendre la réalisation de ce lot. La solution de remplacement envisagée a été la fabrication presque intégrale du démonstrateur sur la plateforme technologique amont (PTA). Cette plateforme Grenobloise du CNRS et de l'INAC est beaucoup plus accessible financièrement. La raison principale en est que c'est le chercheur qui réalise ses propres étapes technologiques.

L'avantage majeur de cette plateforme est la réactivité et la flexibilité. L'inconvénient de la PTA par rapport à la plateforme silicium du LETI est certainement le manque d'expérience capitalisée et mise à disposition. Toutefois, le personnel technique de la PTA fournit un soutien d'une excellente qualité et est très impliqué. Pour résumer, la plateforme LETI correspond à une plateforme semi-industrielle alors que la PTA est plus adaptée aux actions de recherche.

A la différence du démonstrateur réalisé par A.Aliane, nous avons opté pour la fabrication d'un plan matriciel 32 par 32 pixels sur la PTA. La durée prévue d'une telle réalisation sur la PTA n'était pas plus courte. En mars 2010, nous avons estimé que le sujet de la thèse devait être réorienté vers un sujet avec un intérêt scientifique accru et une faisabilité réaliste.

Nous avons déterminé deux sujets qui pouvaient apporter des solutions à certains problèmes rencontrés pour la réalisation du futur détecteur XMS, tout en étant généralisables à d'autres détecteurs du même type, éventuellement proposés pour les futures missions spatiales.

Nous allons détailler ces deux sujets dans la suite de ce chapitre. L'un traite d'une brique technologique innovante qui, intégrée aux interconnexions, permet un isolement thermique entre les deux parties tout en conservant une conduction électrique parfaite. Ce sujet est mis en avant dans ce manuscrit, puisque c'est celui sur lequel nous avons porté le plus gros de nos efforts et de notre temps. Le second sujet consiste à rechercher l'évolution de la perturbation électrique induite par un signal entre des pistes voisines (diaphonie). Ce sujet ne fait pas l'objet d'un développement dans ce manuscrit.

3-1 Les liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique

Une brique technologique était à inventer pour limiter le flux calorifique entre les différents étages à basse température. Limiter cette charge thermique est crucial pour les télescopes spatiaux embarquant un cryostat avec un pouvoir de refroidissement limité.

a) Enoncé du besoin

Aujourd'hui les températures de fonctionnement des détecteurs sont de plus en plus basses, pour en améliorer la résolution. De plus, le nombre de pixels par plan matriciel est en constante augmentation. Cela implique que le flux thermique parasite augmente fortement entre le plan matriciel et la chaîne de traitement de l'information. En multipliant le nombre d'interconnexions (nombre de pixels croissant), la surface en contact est augmentée. Si la différence de température augmente avec l'écart entre la température de travail du plan matriciel et les premiers étages abritant l'électronique froide de proximité, il devient alors compliqué de maintenir un flux thermique parasite suffisamment faible et compatible avec le pouvoir réfrigérant des cryostats embarqués qui n'évolue pas.

Le volume des cryostats embarqués est limité dans les missions spatiales. La puissance dissipée par un cryostat dépend de sa température. La puissance à dissiper sur le plan focal XMS de la mission ATHENA sera inférieure à $1 \mu\text{W}$.

Prenons le problème de manière formelle. Si deux sources sont portées à des températures différentes (gradient thermique), un écoulement d'énergie thermique interviendra entre les deux sources dans le lien thermique existant entre elles. Cet écoulement sera d'autant plus grand que le diamètre du lien sera large.

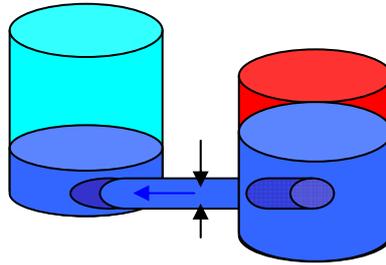


Figure 3-1 Schéma d'un transfert thermique entre une source chaude et une source froide

Pour le détecteur XMS, nous devons diminuer le flux transitant entre le plan focal froid (50 mK) et la chaîne de traitement de l'information à plus haute température (~ 250 mK). La réduction du flux peut se faire par plusieurs voies : la diminution du diamètre du lien thermique entre les deux sources et l'intégration d'un « bouchon » (thermique), dans le lien, pour bloquer le passage de l'énergie thermique.

b) Les solutions existantes

Le lien entre deux sources est dans notre cas une interconnexion électrique. La nécessité de connecter le plan matriciel à l'électronique de traitement est le transfert des informations électriques relatives aux signaux issus des pixels du détecteur. La limitation du flux thermique par la diminution des surfaces en contact n'est pas suffisante. L'augmentation du nombre de pixels et, donc, du nombre d'interconnexions va impacter la possibilité de réduire la surface en contact. Le second point à prendre en compte est l'impact de la réduction des surfaces en contact sur la tenue mécanique. Les interconnexions électroniques sont également utilisées pour une fonction d'assemblage mécanique. Les attentes actuelles de la technologie tendent à miniaturiser et à gagner en compacité. Ce lien thermique et électrique sera utilisé comme un lien d'assemblage mécanique. C'est pour cela, qu'une diminution de la surface en contact fragiliserait la tenue mécanique.

Jean-Louis Ouvrier Buffet [Ouvrier-2006] a proposé une structure d'isolation thermique pour un bolomètre tout en gardant une conduction électronique acceptable. Ce brevet vient argumenter notre explication. L'absorbeur est isolé thermiquement par la faible surface en contact (pointes) et permet une conductivité électrique pour les faibles signaux (forte résistance d'accès).

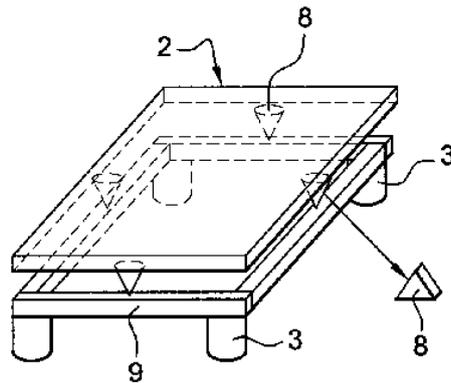


Figure 3-2 Schéma d'un bolomètre suspendu par 4 pointes assurant un contact électrique et une isolation thermique [Ouvrier-2006]

Pour notre application, ce n'est pas la solution retenue. Nous avons imaginé une solution introduisant un « bouchon » thermique dans l'interconnexion. Il faut bien noter que la solution au problème n'est pas triviale, puisque, de prime abord, si on choisit d'insérer un matériau isolant entre les deux sources, ce matériau s'opposera au passage des informations électriques. La loi de Wiedemann-Franz [Ashcroft-2002], nous informe que dans un métal, la conduction électrique est liée à la conduction thermique par la constante de Lorentz.

Aujourd'hui, les détecteurs utilisent déjà des systèmes d'interconnexion ayant une bonne conduction électrique et une faible conduction thermique. Ces systèmes sont des rubans de polyamide sur lesquels sont imprimées de fines pistes qui permettent la transmission électrique des informations ; on les appelle des limandes dans le jargon technique.

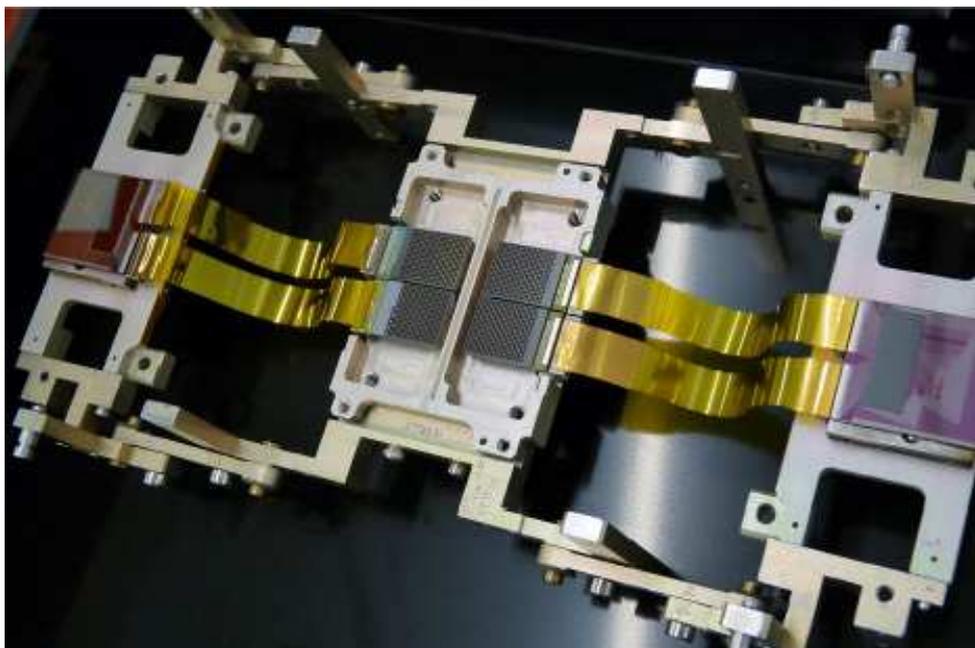


Figure 3-3 Image d'un détecteur de type PACS. Au centre : les plans matriciels ; aux extrémités : les circuits de traitement ; entre les deux (en jaune) : les limandes. [Revéret-2008]

Ces limandes ont deux défauts majeurs pour les futures applications. La résistance thermique est obtenue par la longueur du ruban, ce qui implique une longueur conséquente pour obtenir une faible conductivité thermique. De plus, les pistes imprimées à la surface des rubans contribuent à la conduction thermique (si elles ne sont pas supraconductrices). Il sera, aussi, difficile de multiplier le nombre de ces pistes imprimées lorsque l'on atteint la limite de résolution des procédés de dépôt sur les rubans. Le second point désavantageux réside dans la mise en place du dispositif. La reprise de contact sur les limandes ne constitue pas un assemblage mécanique. La reprise de contact entre les puces et les pistes du ruban est généralement réalisée par fils micro-soudés (bonding), c'est un point majeur de fragilité mécanique.

La solution que nous avons développée est une brique technologique intégrée directement dans l'interconnexion. Cette brique permettra une excellente conduction du signal électrique, mais aura une capacité d'isolation thermique ajustable. Nous l'appellerons : « liaison supraconductrice à forte résistivité thermique ». Cette brique technologique remplacera les limandes.

c) Avantages des liaisons supraconductrices

Une partie du circuit de traitement de l'information électrique (e) pourra être directement reportée sur le plan matriciel (a) par hybridation. Ainsi le détecteur gagnera en compacité et en tenue mécanique. Prenons pour exemple la figure 3-4, les pistes (c) (représentées par un bus de données : flèches grises) relient les pixels de la matrice de microcalorimètres (b) du plan matriciel (a) à la zone d'interconnexion (d). (a) et (e) sont hybridés par brasure. Chaque interconnexion permet le passage de l'information électrique de la matrice de calorimètres (b) au circuit de lecture déporté (e).

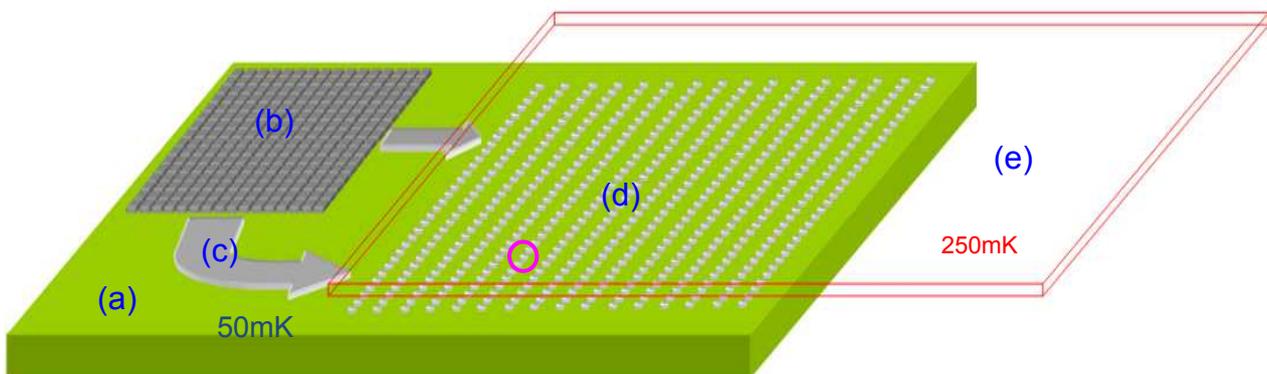


Figure 3-4 Schéma d'un plan matriciel (a) assemblé à un circuit électronique de prétraitement (e).
Le circuit est représenté transparent pour voir les interconnexions (d)

Une ou plusieurs liaisons supraconductrices seront insérées dans chaque interconnexion (figure 3-5). Le cercle en rose sur la figure 3-4 cible une interconnexion dans le champ. Chaque interconnexion est composée d'une liaison supraconductrice déposée sur la piste conductrice. Des couches métalliques sont ajoutées pour garantir une bonne accroche de la bille de brasure et empêcher la diffusion de cette dernière dans la liaison. La connexion des deux parties (plan matriciel (a) et puce de prétraitement (e)) se fait avec le matériau de brasage, ce procédé sera détaillé dans la suite de ce manuscrit à la fin du chapitre III. On peut voir sur la figure 3-5 que le flux thermique (flèche orange) sera diminué avec l'ajout de la liaison dans l'interconnexion. Il sera même possible d'ajuster la diminution du flux thermique en réglant l'efficacité des liaisons.

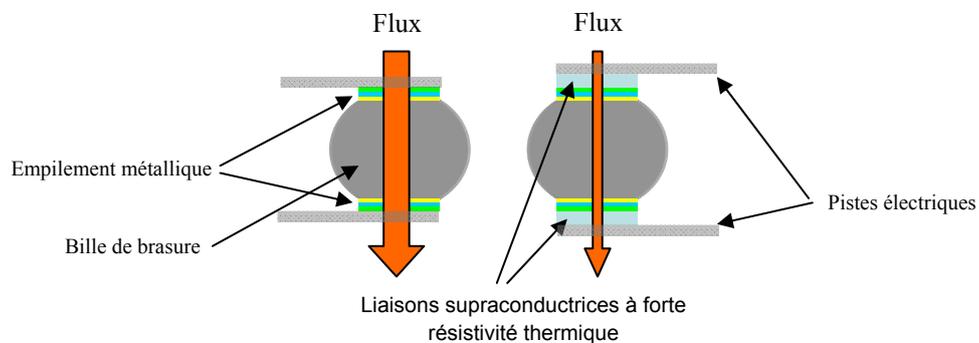


Figure 3-5 Schéma d'une interconnexion classique ou avec deux liaisons supraconductrices

Les liaisons supraconductrices constituent une solution qui apporte un gain en compacité et en tenue mécanique. Elles apportent une maîtrise du flux thermique pour un grand gradient de température. Le nombre d'interconnexions a peu d'influence sur leur faisabilité. Certaines applications pourront trouver un intérêt à ajuster le flux thermique traversant les interconnexions.

d) Fonctionnement physique d'une liaison supraconductrice

Nous avons fait le choix de protéger cette brique technologique d'isolation thermique avec une excellente conduction électrique par un brevet [Goupy-2012].

Dans un métal, la conduction thermique est majoritairement assurée par les électrons disponibles dans la bande de conduction. Les diélectriques, ne possédant pas d'électrons libres dans la bande de conduction, ont une conduction thermique fortement réduite. La chaleur dans un matériau crée de l'agitation thermique. Les atomes composant le matériau vibrent selon une fréquence dépendante de la température et de certains paramètres intrinsèques au matériau. Ces vibrations mécaniques sont appelées **phonons**. Ces ondes acoustiques parcourent le matériau et transportent l'énergie thermique.

Dans un métal, selon la loi de Wiedemann-Franz, meilleure est la conductivité électrique, meilleure sera la conduction thermique. Les électrons et les phonons contribuent à la conduction thermique. Dans un matériau diélectrique, seuls les phonons contribuent au transfert des charges thermiques. Aucun des deux types de matériau n'est convenable pour à la fois isoler thermiquement deux parties (en connexion électrique) et permettre une excellente conduction électrique dans la liaison.

A des températures proches du zéro absolu (- 273,15°C), certains matériaux deviennent supraconducteurs. Cet état de la matière confère des propriétés spécifiques aux matériaux. Un matériau supraconducteur voit, entre autre, sa résistivité chuter jusqu'à une valeur nulle. A une température suffisamment basse, si le courant critique ou le champ magnétique critique ne sont pas dépassés, le matériau persiste dans l'état supraconducteur. En effet les électrons de la bande de conduction du matériau s'assemblent par paires, elles sont appelées paires de Cooper. Au-delà de l'annulation de la résistance électrique, les paires de Cooper présentent une autre propriété tout aussi intéressante pour notre application, elles ne conduisent pas la chaleur.

Les supraconducteurs ont une conduction thermique assurée uniquement par les phonons. On peut assimiler un matériau supraconducteur à un diélectrique d'un point de vue des propriétés de transport thermique et à un conducteur électrique parfait pour ce qui est du transport électrique. En soi, une longue bande de matériau supraconducteur est une solution acceptable pour un certain nombre d'applications. Dans notre cas, la recherche de compacité impose une solution mieux intégrée.

Les phonons se propagent dans la matière jusqu'à rencontrer un centre diffusant (défaut, impureté, ...). Un phonon a une certaine probabilité d'être réfléchi ou (partiellement) transmis au matériau suivant, à une interface. La probabilité de réflexion des phonons est dépendante des propriétés des deux matériaux formant l'interface (vitesse du son dans le matériau et impédance acoustique caractéristique) comme cela est représenté sur la figure 3-6.

Cette interface peut être perçue comme un miroir à phonons et nommée résistance d'interface ou, par abus de langage largement répandu, résistance de Kapitza.

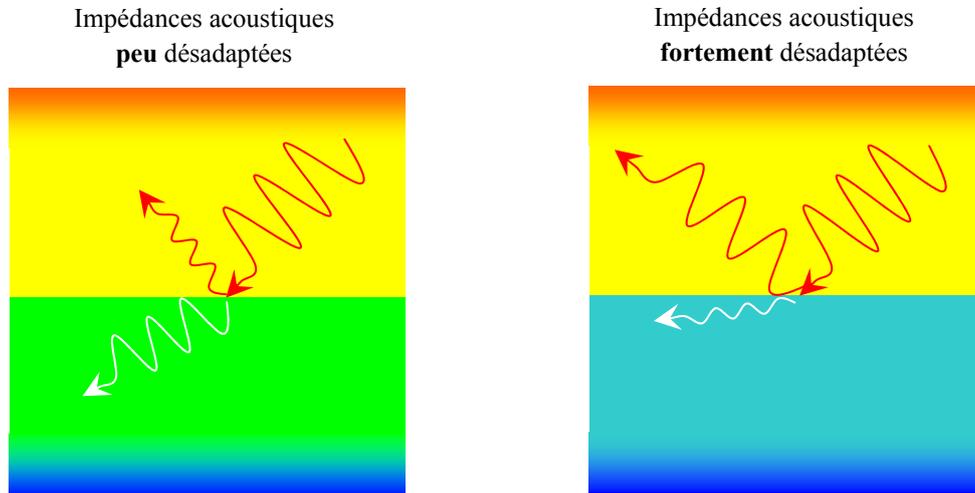


Figure 3-6 Représentation de la réfraction et de la réflexion d'un phonon à une interface entre deux matériaux ayant des propriétés acoustiques proches (à gauche) et très désadaptées (à droite).

Les liaisons supraconductrices sont un assemblage de matériaux supraconducteurs déposés pour former un empilement de plusieurs couches de matériaux. Dans le cas du démonstrateur présenté plus loin dans ce manuscrit, une liaison se compose d'un nombre important de couches de nitrure de titane et de niobium déposées alternativement les unes après les autres. Le choix des matériaux et le nombre de couches empilées permettront de régler l'isolement thermique de la liaison tout en ayant une conduction électrique parfaite grâce à l'effet supraconducteur.

L'essentiel de ce travail de thèse porte sur ce sujet. Dans le chapitre suivant, une étude théorique introduira les différents modes de conduction thermique, de la supraconductivité et de la résistance d'interface ; le chapitre III exposera les méthodes utilisées pour la fabrication du démonstrateur. Le chapitre IV portera sur les mesures de différentes caractéristiques physiques des couches de TiN et Nb. Le chapitre V présentera les mesures des liaisons supraconductrices, en cryostat à basses températures. La résistance thermique des liaisons supraconductrices sera démontrée au chapitre V.

3-2 La diaphonie entre pixels

Au cours de ce travail de thèse, deux sujets ont été menés de front. Nous avons détaillé le premier dans la section précédente. Le second sujet est l'étude de la diaphonie entre les voies de lecture des différents pixels.

Précédemment, dans ce chapitre, nous avons expliqué le fonctionnement d'un microcalorimètre. Chaque pixel, correspondant chacun à un microcalorimètre, est polarisé et lu à travers deux pistes électriques. Les pistes sont déposées sur les murs, (silicium laissé en place entre les pixels, après gravure profonde de la face arrière), de la matrice pour atteindre le champ d'hybridation. Sur une partie ou sur toute la longueur du parcours, les pistes électriques sont parallèles et proches de plusieurs autres paires de pistes.

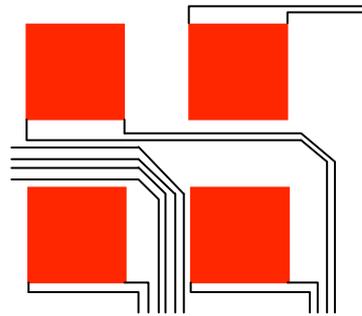


Figure 3-7 Représentation d'une portion (4 pixels) de la matrice avec les fils parcourant les murs.
Dans le cas réel, les pixels sont au pas de $500\mu\text{m}$ et les pistes électriques sont au pas de $4\mu\text{m}$.

Lorsqu'un photon impacte un pixel, une information électrique, fonction de l'énergie déposée par le photon, sera transportée par la paire de pistes du pixel en question jusqu'au circuit de lecture déporté. Le couplage capacitif entre toutes les pistes parallèles à la paire de pistes du pixel touché entraînera un effet diaphonique, c'est-à-dire un signal de plus faible intensité, image du signal source, sur les paires parallèles. L'augmentation de la distance et l'écrantage réduiront l'intensité des signaux parasites.

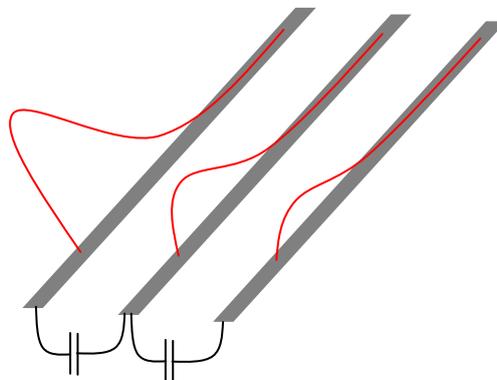


Figure 3-8 Schéma de l'effet de diaphonie d'une piste source (à gauche) à d'autres pistes perturbées. Les amplitudes ne sont pas ici représentatives.

La connaissance de cette diaphonie capacitive (ou cross-talk) est essentielle. Prenons le cas où deux photons tombent sur deux pixels différents mais dont les pistes sont parallèles sur une portion donnée du plan matriciel ; le premier signal contiendra une partie de l'information du second, et vice versa.

La précision des mesures visée pour le futur détecteur XMS impose une connaissance de cet effet. Si l'on est capable de connaître en tout point la diaphonie entre chaque paire de pistes et ses voisines, il sera possible de retrancher cet effet parasite lors du traitement des données.

Le sujet consiste à développer un démonstrateur qui permettra l'étude de la diaphonie entre différentes paires de pistes. Ce démonstrateur sera porté à basse température pour observer les variations de la diaphonie entre la température ambiante et la température de fonctionnement du plan matriciel (50 mK). Ces données seront utilisées lors du routage des pistes sur le plan matriciel pour optimiser et maîtriser la diaphonie capacitive. Des corrections seront ensuite introduites lors du traitement des données, pour éliminer les erreurs de mesure dues à l'effet diaphonique.

Une partie importante du temps de la thèse a été investi à développer le procédé de réalisation du démonstrateur consacré à l'étude de la diaphonie (un rappel en annexe sera fait sur l'enchaînement des étapes technologiques). Les connaissances acquises, alors, dans le domaine de la microtechnologie, ont facilité la fabrication du démonstrateur pour l'étude des liaisons supraconductrices.

Bibliographie du Chapitre I

[Aliane-2009]: A. Aliane, Thèse de Doctorat : « Développement de bolomètre refroidi à 0,1 K pour une détection X dans la gamme 100 eV – 10 keV », Institut Polytechnique de Grenoble, LETI, (2009)

[Ashcroft-2002]: N. W. Ashcroft, N. D. Mermin, « Physique des solides », EDP Science, (2002)

[Cavalier-2011]: P. Cavalier, Thèse de Doctorat : « Echantillonnage direct d'interférences lumineuses à l'aide de nanodétecteurs supraconducteurs pour la réalisation d'un microspectromètre SWIFTS », Université de Grenoble, INAC, (2011)

[Downey-1984]: P. M. Downey, A. D. Jeffries, S. S. Meyer, R. Weiss, F. J. Bachner et al., « Monolithic Silicon Bolometers », Applied Optics, Vol. 23, N. 6, p 910-914, (1984)

[Goupy-2012]: J. Goupy, C. Pigot, J. C. Villégier, J. L. Sauvageot, Brevet : « Dispositif de connexion électrique multicouche de matériaux supraconducteurs entre deux circuits », N° 12 53890, (2012)

[Monfardini-2011]: A. Monfardini, A. Benoit, A. Bideaud, L. Swenson, A. Cruciani, P. Camus et al., « A dual band millimetre-wave kinetic inductance camera for the IRAM 30 m telescope », The Astrophysical Journal Supplement Series, Vol. 194, N. 24, (2011)

[Ouvrier-2006]: J. L. Ouvrier-Buffet, S. Bisotto, Brevet : « Détecteur bolométrique à isolation thermique par constriction et dispositif de détection infrarouge mettant en œuvre un tel détecteur bolométrique », N° 28 77492, (2006)

[Perinati-2008]: E. Perinati, M. Barbera, S. Varisco, E. Silver, J. Beeman, C. Pigot, « Experimental evidence of an incomplete thermalization of the energie in an X ray microcalorimeter with a Ta/Au absorber », Rev. Scient. Instr., Vol. 79, N. 053905, (2008)

[Revéret-2008]: V. Revéret, P. André, M. Talvard, L. Rodriguez O. Boulade, E. Doumayrou, P. Gallais, B. Horeau, J. Le Pennec, M. Lortholary, J. Martignac, P. Agnès, « Herschel-PACS Bolometer Arrays for Submillimeter Ground-Based Telescopes », J. Low Temp. Phys., Vol. 151, p 32-39, (2008)

[Rosenbaum-1980]: T. F. Rosenbaum, K. Andres, G. A. Thomas, R. N. Bhatt, « Sharp Metal-Insulator Transition in a Random Solid », Phys. Rev. Lett., Vol. 45, N. 21, p 1723-1726, (1980)

[Ryter-1996]: C. E. Ryter, « Interstellar Extinction from Infrared to X-rays: an Overview », Astrophysics and Space Science, Vol. 236, p 285-291, (1996)

Chapitre II: Conduction thermique dans les liaisons supraconductrices

Ce chapitre pose les bases théoriques nécessaires à la compréhension du fonctionnement des liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique. La supraconductivité sera introduite et son importance pour les liaisons sera mise en avant. Les différents modes de conduction dans les matériaux seront explicités. La résistance d'interface, autrement connue sous le nom de résistance de Kapitza, entre solides sera détaillée.

Notion de phonon	54
1 - Introduction à la supraconductivité	56
1-1 Enoncé du phénomène	56
1-2 Les paires de Cooper.....	58
<i>a) Deux électrons</i>	<i>58</i>
<i>b) Rôle des phonons</i>	<i>58</i>
<i>c) Résistivité nulle</i>	<i>59</i>
<i>d) Gap supraconducteur.....</i>	<i>60</i>
<i>e) Température de transition supraconductrice</i>	<i>62</i>
1-3 Entropie dans les supraconducteurs	63
1-4 Compléments sur la supraconductivité	64
2- Conduction thermique dans les matériaux.....	65
2-1 Conduction thermique par les électrons.....	65
<i>a) Chaleur spécifique dans un métal.....</i>	<i>66</i>
<i>b) Chaleur spécifique des électrons</i>	<i>66</i>
<i>c) Loi de Wiedemann-Franz.....</i>	<i>66</i>
2-2 Conduction thermique par les phonons.....	67
<i>a) Chaleur spécifique des phonons</i>	<i>68</i>
<i>b) Le libre parcours moyen des phonons</i>	<i>69</i>
2-3 Conduction thermique dans les supraconducteurs.....	71
2-4 Transfert thermique par radiations à basse température	73
3- Résistance thermique d'interface	75
3-1 L'observation de Kapitza	75
3-2 Interface entre deux solides	76
3-3 Modèles théoriques	78
<i>a) Acoustic Mismatch Model (AMM)</i>	<i>78</i>
<i>b) Diffuse Mismatch Model (DMM).....</i>	<i>83</i>
3-4 Qualité d'interface et R_{Bd}	85
3-5 Différentes gammes de températures.....	87
<i>a) $T < 1 K$; AMM.....</i>	<i>87</i>
<i>b) $1 K < T < 20 K$; DMM.....</i>	<i>89</i>
<i>c) $T > 20 K$.....</i>	<i>90</i>

3-6 Des miroirs thermiques dans les liaisons supraconductrices	93
a) <i>Choix des matériaux supraconducteurs</i>	93
b) <i>Dimensionnement d'une multicouche</i>	96
c) <i>Impact de la qualité des interfaces</i>	101
3-7 Constantes et modules élastiques	102
Bibliographie du Chapitre II.....	105

Notion de phonon

Tout au long du manuscrit nous allons parler de **phonons**. Nous nous proposons d'introduire succinctement cette notion et le formalisme associé pour faciliter la compréhension du texte.

Dans un matériau cristallin les atomes sont agencés dans une maille caractéristique de chaque matériau. Les atomes ne sont pas statiques mais vibrent autour de leur point d'équilibre. Ces vibrations dépendent de la température du cristal. Les atomes vibrent plus intensément en milieu chaud que froid: c'est l'agitation thermique. Tous les atomes de la maille sont reliés par ce que l'on peut se représenter comme des petits ressorts de rappel à leur position initiale.

Les vibrations du réseau d'atomes sont appelés phonons. Le modèle qui fut introduit par Debye [Kittel-1983] définit les fondements théoriques des phonons. Dans un matériau les atomes peuvent vibrer selon trois modes. Un de ces trois modes correspond à une onde de compression (mode longitudinal) et les deux autres sont des ondes de cisaillement (modes transverses).

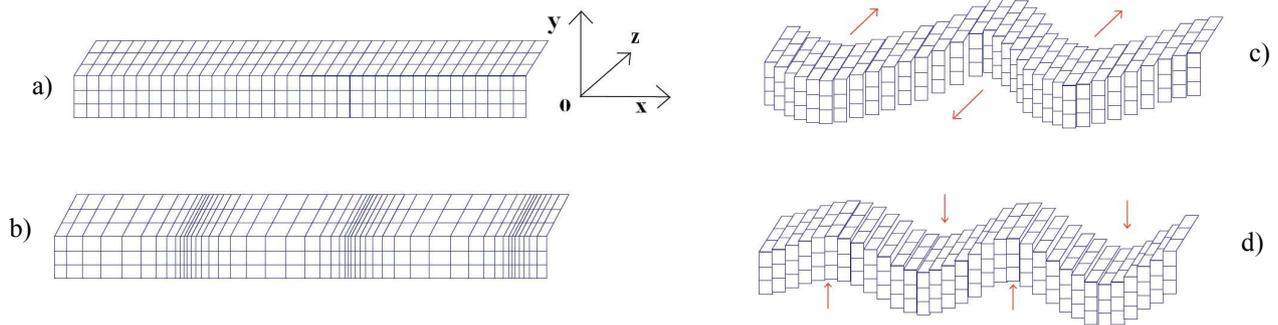


Figure introductive - 1 : Représentation d'une portion de matière sans agitation thermique (au zéro absolu) (a) ; parcourue par une onde longitudinale selon l'axe x (b) ; par une onde transverse selon l'axe z (c) ; ou encore par une onde transverse selon l'axe y (d) [Heron-2009]

Dans un matériau à une température donnée, les phonons n'ont pas tous la même fréquence ou la même longueur d'onde. Pour chaque fréquence et à une certaine température, le nombre moyen de phonons dans un état donné suit la statistique de Bose-Einstein (avec h la constante de Planck et k_B la constante de Boltzmann)

$$\langle n(f_{ph}, T) \rangle = \frac{1}{e^{\left(\frac{h \cdot f_{ph}}{k_B \cdot T}\right)} - 1} \quad (\text{Eq Intro-1})$$

La fonction de répartition en fonction de la longueur d'onde des phonons à une température donnée est analogue à celle énoncée par la loi de Planck, à cela près que la vitesse de la lumière est remplacée par la vitesse du son dans le matériau.

La fréquence du phonon est directement liée à sa longueur d'onde par la relation de dispersion.

$$f_{ph} = \frac{\sqrt{2 \cdot \frac{K}{M} \cdot (1 - \cos(k \cdot a))}}{2\pi} \quad (\text{Eq Intro-2})$$

Le nombre k est le nombre d'onde du phonon, c'est-à-dire qu'il est égal à 2π divisé par la longueur d'onde du phonon ; K est la raideur de chaque petit ressort entre chaque atome du réseau espacé d'une distance a ; M est la masse de l'atome [Ashcroft-2002].

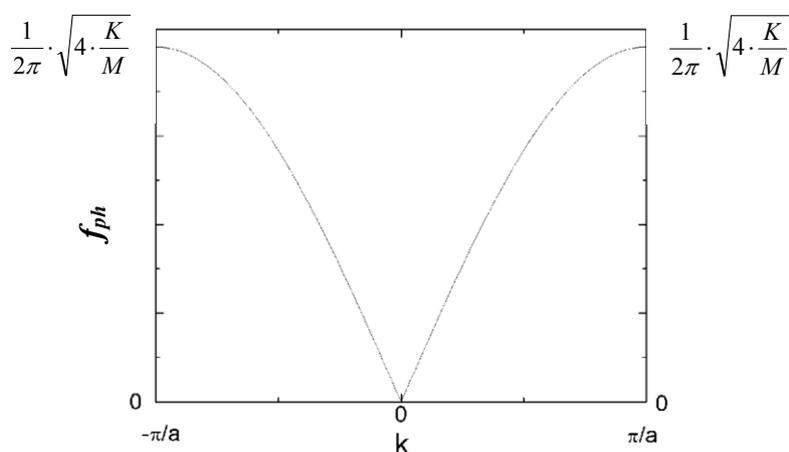


Figure introductive - 2 : Courbe de dispersion dans la première zone de Brillouin

Cette courbe de dispersion sera différente pour les différents modes de vibrations acoustiques des atomes. La vitesse de propagation du son dans le solide est égale à la vitesse de propagation du phonon dans le réseau ; cette vitesse est égale à la pente de la courbe de la relation de dispersion. Lorsque la longueur d'onde est grande, la vitesse des phonons est presque indépendante de la fréquence du phonon. Nous n'introduisons pas ici les branches pour les phonons optiques qui interviennent dans les cristaux ioniques.

1 - Introduction à la supraconductivité

Pour des températures proches du zéro absolu ($-273,15^{\circ}\text{C} = 0$ kelvin), certains matériaux basculent dans un état de la matière appelé état supraconducteur. D'autres conditions sont à respecter pour observer cet état. Dans la première partie du chapitre, nous introduirons les propriétés de l'état supraconducteur. Nous verrons les avantages de cet état de la matière pour notre application.

1-1 Enoncé du phénomène

Certains métaux, lorsqu'ils sont portés à une température inférieure à leur température de transition (T_c), se présentent dans l'état supraconducteur. Bardeen, Cooper et Schrieffer en 1957 [Bardeen-1957] ont posé les bases de la théorie microscopique de la supraconductivité, plus communément nommée BCS (des initiales des auteurs). Ils ont reçu le Prix Nobel de physique en 1972 pour leur théorie.

Les matériaux à l'état supraconducteur présentent différentes propriétés remarquables. En dessous de la température de transition supraconductrice, la résistance électrique du matériau chute à une valeur nulle. Cette propriété est essentielle pour notre application, elle permet de rendre électriquement transparent le bouchon thermique que constitue la liaison supraconductrice ajoutée dans les interconnexions. D'un point de vue applicatif, l'absence de résistivité électrique dans l'état supraconducteur est attractive pour des applications diverses, comme par exemple le passage de forts courants sur des sections réduites de conducteur, sans échauffement (ex : utilisation de bobines de champ supraconductrices pour l'IRM).

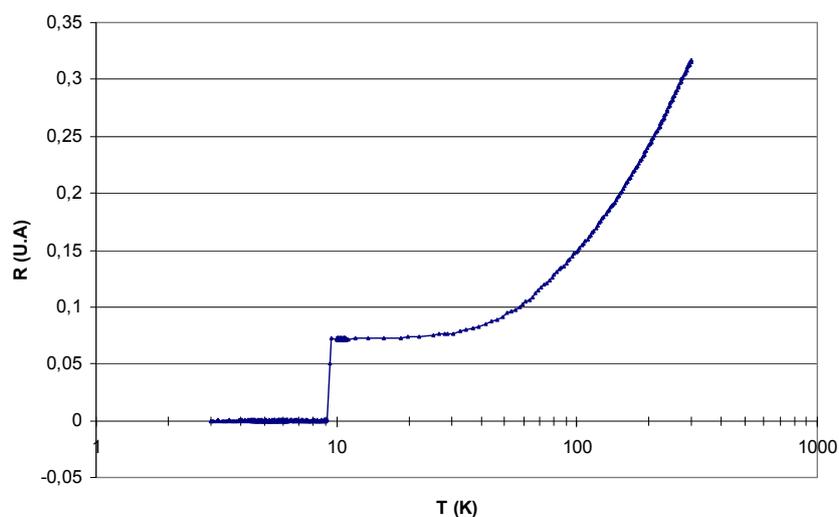


Figure 1-1 Mesure de la résistance électrique d'un échantillon de niobium, la transition supraconductrice intervient en dessous de $9,1 \text{ K} (\pm 0,1 \text{ K})$

La seconde propriété est le diamagnétisme parfait introduit par Meissner [Kittel-1983]. Un matériau dans l'état supraconducteur ($T < T_c$) repousse les lignes de champ magnétique (B) à l'extérieur de ses frontières. Le champ magnétique à l'intérieur de l'échantillon est nul ($B = 0$). Des courants apparaissent à la surface du matériau pour contrer le champ magnétique.

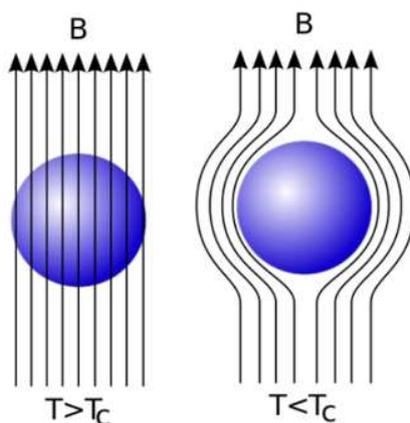


Figure 1-2 Effet Meissner: lignes de champ magnétique dans un métal (à gauche) et dans un supraconducteur (à droite)

Cette particularité est aujourd'hui utilisée pour, par exemple, mouvoir des trains se déplaçant à des vitesses vertigineuses ($> 500 \text{ km/h}$)¹. Ce type de train utilise des supraconducteurs pour léviter au-dessus de rails magnétiques : le déplacement se fait sans frottement mécanique.

Il faut souligner que l'état supraconducteur connaît deux limites physiques. Le courant que l'on peut faire passer dans un supraconducteur sans perte résistive est limité par un courant critique (I_c) au-delà duquel, le matériau perd ses propriétés supraconductrices et reprend son état « normal ». De la même façon, le champ magnétique est limité par une valeur critique (H_c) qui, dépassée, fait basculer le matériau de l'état supraconducteur vers l'état normal.

Le sujet de la supraconductivité est vaste, nous ne détaillerons que certaines propriétés électriques et thermiques de l'état supraconducteur et leurs conséquences, celles qui présentent un intérêt dans le cadre de notre étude. L'effet Meissner n'impacte que très faiblement notre étude, nous ne le détaillerons pas, tout comme les limites de courant et de champ critique.

¹ <http://www.supraconductivite.fr/>

1-2 Les paires de Cooper

Nous allons examiner le phénomène physique qui est à l'origine de l'état supraconducteur : la formation des paires de Cooper.

a) Deux électrons

Les **électrons** sont des particules (ou des ondes en mécanique quantique) avec une charge électrique négative. Seul un nombre limité d'électrons par atome se déplacent d'atome en atome, assurant la conduction dans les métaux, ce sont les électrons de conduction. Dans les diélectriques (ou isolants), il n'y a pas d'électrons de conduction. Un atome qui cède un électron devient un ion positif, il n'est plus électriquement neutre, il devient attractif pour un autre électron de conduction. Les électrons de conduction sont délocalisés des noyaux atomiques rendant les interactions extérieures plus efficaces que les liaisons atomiques.

En appliquant un potentiel électrique aux bornes d'un matériau métallique, les électrons de conduction vont circuler dans le sens du potentiel. C'est le principe de l'écoulement des charges dans les métaux. A basse température ($T < 20$ K), la résistivité en fonction de la température dans un métal est de la forme [Ashcroft-2002] ou [Wagner-1971]:

$$\rho(T) = \rho_0 + AT^2 + BT^5 \quad (\text{Eq 1.1})$$

ρ_0 est la résistivité liée aux impuretés dans le matériau, le terme en T^2 est dû aux interactions entre les électrons et le terme en T^5 provient de la diffusion des électrons par l'interaction avec les vibrations du réseau (interaction électrons-phonons).

b) Rôle des phonons

Lorsqu'un électron passe à proximité d'un ion positif, ce dernier est légèrement attiré vers l'électron. L'inertie d'un ion positif explique son faible déplacement au passage de l'électron. L'ion va mettre un certain temps avant de retrouver sa position (spatiale) d'équilibre. Une onde de déplacement des ions positifs dans le matériau résulte du déplacement d'un électron. On parle de phonons pour ces ondes de déplacement d'ions positifs. En se déplaçant l'ion positif se rapproche d'un voisin (autre ion positif) créant localement une zone polarisée. Un électron de moment équivalent sera préférentiellement attiré par cette zone.

Malgré la répulsion coulombienne (deux charges négatives se repoussent), localement deux électrons (ou trous) à la surface de Fermi, de moments et de spins opposés se lient et forment alors une paire, de moment et de spin résultant nuls. On appelle alors ces paires d'électrons (et trous), non distinguables, liées par les phonons du cristal, des paires de Cooper, du nom du scientifique à l'origine de l'hypothèse de leur existence [Cooper-1956]. Si la température est supérieure à T_c , l'agitation thermique masque et empêche la formation de paires de Cooper.

c) Résistivité nulle

Pour que la résistivité électrique soit nulle, l'équation 1.1 nous enseigne que le transport électrique ne doit plus être sensible ni aux défauts du réseau, ni à la diffusion par les phonons. Pour répondre à ces conditions, les paires de Cooper doivent former une onde collective quantique autrement appelée condensat. En se déplaçant, non plus de manière aléatoire comme dans la théorie de la cinétique des gaz d'électrons dans les matériaux à l'état normal, mais comme une onde collective ; cette onde macroscopique sera insensible aux défauts du réseau.

Les paires de Cooper sont composées de deux électrons. Dans la théorie BCS, ces électrons s'apparient de manière à avoir un spin opposé. Le spin résultant de la paire d'électron est nul. La statistique de Bose-Einstein [Diu-1989] prédit qu'il est alors possible pour les paires de Cooper de former un condensat. Pour ce faire, toutes les paires doivent se trouver dans l'état de plus basse énergie. L'assemblage de deux électrons de spin opposé rend le niveau d'énergie de la paire inférieure à l'énergie de deux électrons. Le niveau fondamental des paires de Cooper est l'énergie de Fermi ε_F . Les paires de Cooper sont des « bosons condensés ».

Une paire a un état énergétique identique à ses voisines et peut se superposer (spatialement) à elles. Les électrons de la paire ne sont pas nécessairement à faible distance. Leur position évolue dans une sphère équivalente au champ d'action de la paire de Cooper de diamètre appelé « longueur de cohérence » ξ_0 . Elle est de l'ordre de ~ 100 nm (ex : $\xi_0 = 38$ nm pour le Nb pur [Kittel-1983]). La valeur ξ_0 n'est valable que dans les cristaux propres (sans défaut) ; dans le cas des couches minces, la longueur de cohérence réelle ξ est fonction du libre parcours moyen des électrons l_e . V_F est la vitesse de Fermi et E_g le gap d'énergie que nous allons détailler.

$$\xi = \sqrt{\xi_0 \cdot l_e} \quad \text{avec} \quad \xi_0 = 2 \cdot \frac{\hbar \cdot V_F}{\pi \cdot E_g} \quad (\text{Eq 1.2})$$

La multitude de paires de Cooper superposées forme le condensat. A l'intérieur d'une région occupée par une paire de Cooper, on trouve les centres de nombreuses autres paires, c'est cela le condensat. Elles se déplacent toutes à la même vitesse. L'onde unique (un seul niveau d'énergie) est insensible aux défauts du réseau. Le condensat qui résulte de la formation des paires de Cooper permet l'annulation de la résistivité dans les supraconducteurs.

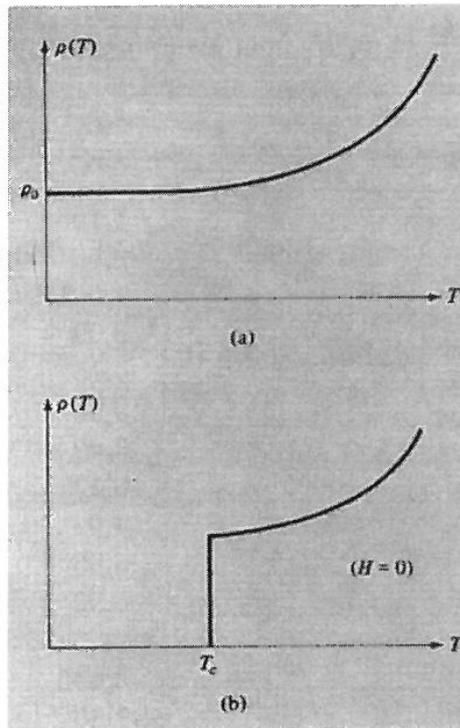


Figure 1-3 Résistivité (à basse température) de deux matériaux. (a) l'un non-supraconducteur ($\rho(T) = \rho_0 + AT^2 + BT^5$), (b) l'autre supraconducteur à T_c .

d) Gap supraconducteur

Les paires de Cooper sont condensées au niveau de Fermi. Les premiers états excités dans le supraconducteur se trouvent séparés de l'énergie des paires de Cooper par un gap. Pour casser une paire de Cooper, il faut apporter une énergie supérieure à ce gap (2Δ).

$\Delta(0)$ est le demi-gap (par électron) à température nulle, k_B est la constante de Boltzmann [Ashcroft-2002].

$$\frac{\Delta(0)}{k_B T_C} = 1,76 \quad (\text{Eq 1.3})$$

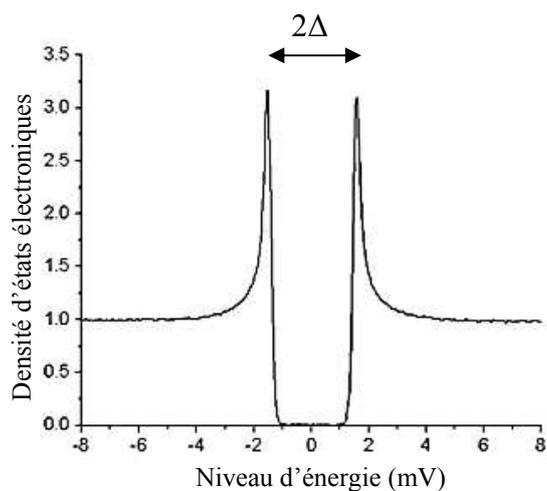


Figure 1-4 Mesure par effet tunnel de la densité d'états dans un échantillon de Nb standard. Le gap d'énergie dans ce supraconducteur, entre $\sim -1,5$ mV et $\sim 1,5$ mV, est centré autour de l'énergie de Fermi.

Ce gap évolue avec la température. A température nulle, le gap est à sa valeur nominale et il s'annule à T_c .

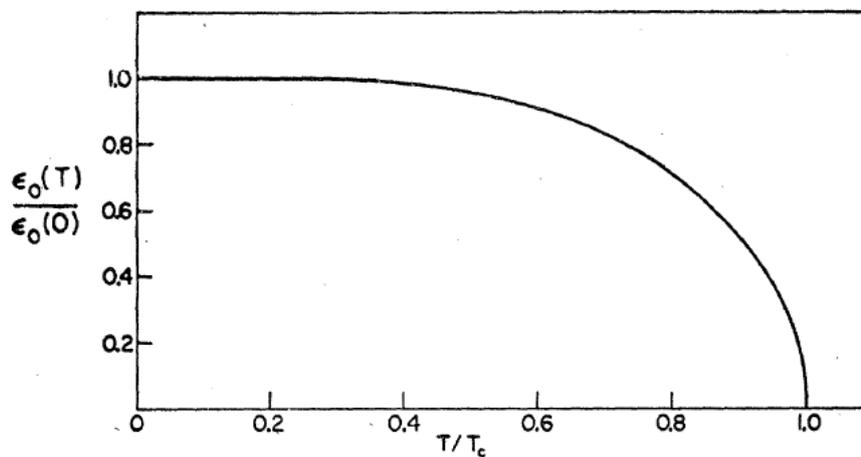


Figure 1-5 Evolution du gap en fonction de la température [Bardeen-1957]

e) Température de transition supraconductrice

La détermination de la température de transition supraconductrice est importante. En dessous de cette température, les premières paires de Cooper se forment car l'agitation thermique n'est plus suffisante pour les briser. Dans un supraconducteur conventionnel, la T_c suit la loi:

$$T_c = 1,14 \cdot \Theta_D \cdot e^{\left(\frac{1}{U \cdot D(\epsilon_F)}\right)} \quad (\text{Eq 1.4})$$

Θ_D est la température de Debye du matériau, U est l'interaction électron-phonon et $D(\epsilon_F)$ est la densité d'état au niveau de Fermi [Kittel-1983].

Élément		T_c (K)
Al		1,196
Cd		0,56
Ga		1,091
Hf		0,09
Hg	α (rhomb)	4,15
	β	3,95
In		3,40
Ir		0,14
La	α (hc)	4,9
	β (cfc)	6,06
Mo		0,92
Nb		9,26
Os		0,655
Pa		1,4
Pb		7,19
Re		1,698
Ru		0,49
Sn		3,72
Ta		4,48
Tc		7,77
Th		1,368
Ti		0,39
Tl		2,39
U	α	0,68
	β	1,80
V		5,30
W		0,012
Zn		0,875
Zr		0,65

Tableau 1-1 Températures de transitions supraconductrices pour quelques éléments chimiques [Roberts-1964]

1-3 Entropie dans les supraconducteurs

Dans un métal, à basse température, la chaleur est principalement transportée par les électrons. Les différents niveaux d'énergie que peuvent prendre les électrons sont à l'origine du transport thermique. Les électrons transportent la chaleur par le désordre dans les niveaux d'énergie qui leur sont accessibles. Ce désordre est appelé entropie (S).

$$dQ = T \cdot dS \quad (\text{Eq 1.5})$$

Reprenons le cas de l'état supraconducteur ; les électrons s'assemblent par paires et se condensent en un seul état énergétique. Le condensat ne présente aucun désordre puisque les paires sont dans un même état fondamental [Ashcroft-2002] : une paire de Cooper ne peut pas échanger d'énergie avec son milieu (sauf si la perturbation est supérieur à 2Δ). L'entropie des paires de Cooper est nulle. Le nombre d'états, représenté par ω , est unique ($\omega = 1$) dans la formule :

$$S = k_B \cdot \ln \omega \quad (\text{Eq 1.6})$$

A température nulle ($T = 0\text{K}$) tous les électrons libres sont appariés en paires de Cooper. Lorsque la température augmente, certaines paires sont brisées libérant quelques électrons dans la bande de conduction. Lorsque la température est supérieure à T_c , l'intégralité des paires de Cooper a disparu.

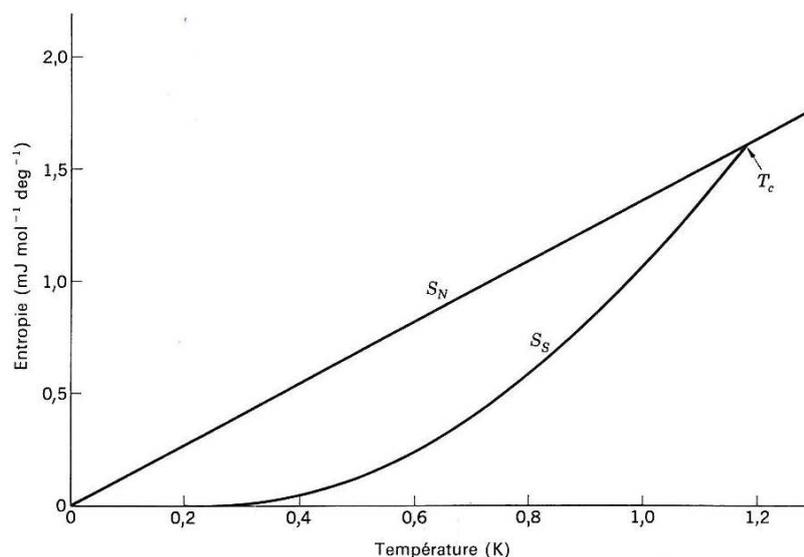


Figure 1-6 Entropie pour l'aluminium dans l'état normal (S_N) et supraconducteur (S_S) [Kittel-1983]

1-4 Compléments sur la supraconductivité

La supraconductivité recouvre un large domaine physique et chimique regroupant plusieurs aspects complexes. Les deux principales propriétés des supraconducteurs sont l'annulation de la résistivité en dessous de T_c et l'expulsion du champ magnétique à l'extérieur du matériau.

On distingue deux types de matériaux supraconducteurs, ceux de type I et ceux de type II. Les supraconducteurs de type I sont généralement des éléments purs du tableau périodique. Dans ce cas, les lignes de champ magnétique sont repoussées à l'extérieur du supraconducteur et ce jusqu'à un champ critique H_c au-dessus duquel le matériau retrouve son état normal (non-supraconducteur). Les supraconducteurs de type II sont généralement des composés ou des alliages métalliques qui présentent des propriétés magnétiques différentes de celles du type I. Jusqu'à un champ noté H_{c1} , le supraconducteur se comporte de manière équivalente à un type I. Au-delà de H_{c1} , les lignes de champ traversent le matériau en formant des vortex, mais les propriétés supraconductrices persistent. Au-delà d'un champ critique noté H_{c2} , le matériau perd ses propriétés supraconductrices.

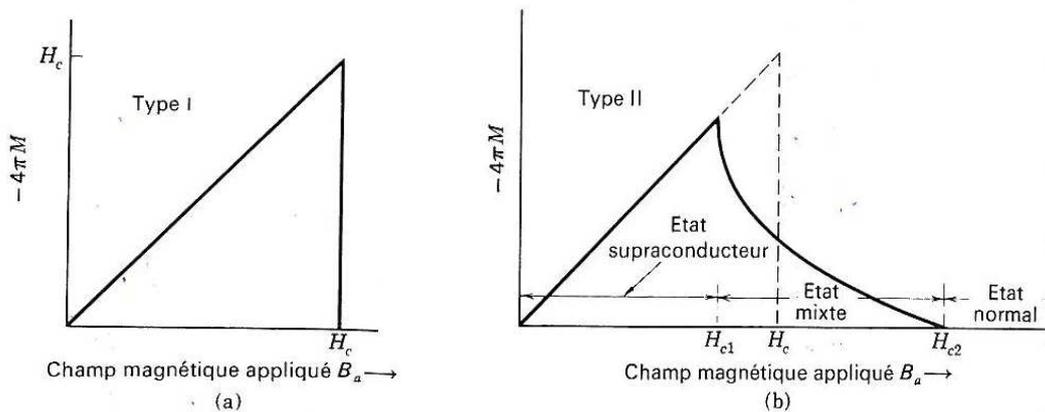


Figure 1-7 Courbe d'aimantation des supraconducteurs de type I (a) et de type II (b) [Kittel-1983]

Au cours des dernières décennies, plusieurs supraconducteurs exotiques avec des températures de transition élevées ont été découverts. Le mécanisme de formation des paires de Cooper et l'origine de la supraconductivité dans ces matériaux exotiques sont encore mal compris et il n'y a pas de théorie faisant consensus sur le fondement de cette supraconductivité exotique. Bednorz et Müller [Bednorz-1986] ont publié en 1986 des mesures de températures de transition supraconductrice élevées sur des composés oxydés à base de cuivre (cuprates), matériaux dont la supraconductivité n'avait encore jamais été observée. Rapidement des matériaux proches ont été étudiés [Wu-1987] et des températures de transition supraconductrice ont été obtenues au-dessus de la limite (pratique) de la température de liquéfaction de l'azote (77 K).

La supraconductivité découverte en 1911 est une branche « jeune » de la science moderne. La communauté scientifique est en quête de modèles expliquant les mécanismes de la supraconductivité exotique et d'un supraconducteur qui transiterait à température ambiante.

2- Conduction thermique dans les matériaux

Les liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique font appel à plusieurs processus physiques complexes, la supraconductivité traitée dans la partie précédente est l'un d'eux. Dans le premier chapitre, le fonctionnement des liaisons est décrit comme l'utilisation de la supraconductivité couplée à un empilement de miroirs à phonons.

Dans notre étude, nous supposons que la résistance thermique des couches est faible devant celle induite par les interfaces. Cette partie introduit les différents modes de transport de la chaleur dans les solides. Le but ici est à la fois de proposer une approche simplifiée de la conduction thermique et de démontrer que notre approximation est qualitativement convenable.

Dans un barreau, où règne un gradient thermique (dT/dx), traversé par un flux de chaleur (J_u), on détermine la conductivité thermique κ (ou son inverse : la résistance thermique R_{th}).

$$J_u = -\kappa \frac{dT}{dx} \quad (\text{Eq 2.1})$$

Dans un métal, la conductivité thermique est la somme du transport thermique imputable aux électrons et aux phonons.

2-1 Conduction thermique par les électrons

Dans un métal, les deux types de particules sont responsables du transfert thermique. Les électrons conduisent la chaleur par le transport d'énergie dans la bande de conduction. Les phonons sont également responsables pour une partie de la conduction thermique. Les électrons sont néanmoins prépondérants dans la conduction thermique (à basse température) car ils peuvent transporter plus d'énergie que les phonons. C'est pour cette raison que nous nous affranchissons de la conduction thermique des électrons par l'utilisation de liaisons et d'interconnexions à l'état supraconducteur.

Les électrons de conduction présents dans la région chaude du barreau, se dispersent dans toutes les directions. Ceux migrant vers une région moins chaude rencontrent d'autres électrons moins énergétiques ; un transfert thermique s'établit.

La conductivité thermique due aux électrons (κ_e) sera d'autant plus faible que les électrons rencontreront des obstacles lors de leur parcours sur le chemin du flux thermique. Ils peuvent être diffusés par des défauts du réseau ou par d'autres électrons. La longueur moyenne que parcourent les électrons avant une collision est appelée libre parcours moyen (l_e).

La conductivité thermique des électrons est exprimée en fonction de la chaleur spécifique des électrons (C_e), de la vitesse des électrons au niveau de Fermi (V_F) et du libre parcours moyen des électrons.

$$\kappa_e = \frac{1}{3} C_e \cdot V_F \cdot l_e \quad (\text{Eq 2.2})$$

a) Chaleur spécifique dans un métal

La chaleur spécifique dans un matériau est l'énergie nécessaire à apporter au matériau pour élever sa température d'un kelvin par unité de volume. Son unité est le $\text{J/K}\cdot\text{cm}^3$.

La forme générale de la chaleur spécifique d'un métal est la somme d'un terme dépendant des électrons en T et d'un terme dépendant des vibrations du réseau en T^3 selon le modèle de Debye, pour des températures inférieures aux températures de Debye et de Fermi du matériau.

$$C_g = \gamma \cdot T + \beta \cdot T^3 \quad (\text{Eq 2.3})$$

b) Chaleur spécifique des électrons

La chaleur spécifique des électrons est définie en fonction de la température de Fermi T_F , de la constante de Boltzmann k_B et du nombre d'électrons N de conduction [Kittel-1983] suivant le modèle du gaz d'électrons libres.

$$C_e = \frac{1}{3} \cdot \pi^2 \cdot N \cdot k_B \cdot \frac{T}{T_F} \quad (\text{Eq 2.4})$$

Dans un métal, la contribution des électrons à la chaleur spécifique est dominante à basse température (terme en T) par rapport à la contribution des phonons (terme en T^3).

c) Loi de Wiedemann-Franz

Il est possible de relier la conductivité thermique des électrons κ_e avec la conductivité électrique σ par loi de Wiedemann-Franz [Ashcroft-2002]. La charge d'un électron e vaut $1,602 \cdot 10^{-19}$ Coulomb.

$$\kappa_e = \frac{\pi^2}{3} \cdot \left(\frac{k_B}{e} \right)^2 \cdot \sigma \cdot T \quad (\text{Eq 2.5})$$

De cette loi, on définit la constante appelée nombre de Lorentz:

$$L = \frac{\pi^2}{3} \cdot \left(\frac{k_B}{e} \right)^2 = 2,45 \cdot 10^{-8} \frac{W \cdot \Omega}{K^2}$$

La loi de Wiedemann-Franz est vérifiée expérimentalement aux basses températures. Les collisions des électrons à ces températures sont majoritairement élastiques. Cette loi nous informe que la conduction thermique par les électrons dans un métal sera favorisée dans les « bons » conducteurs électriques. La loi de Wiedemann-Franz est valable dans un métal pour toutes les températures, mais à température moyenne ($T \sim 50$ K), la conduction des phonons devient prédominante (processus Umklapp). On peut dire que la loi décrit bien la conductivité thermique d'un métal lorsque la conductivité thermique des phonons est négligeable : c'est-à-dire à très basse température et à haute température.

2-2 Conduction thermique par les phonons

Le second mode de conduction de la chaleur dans les solides s'effectue par les vibrations du réseau (modes stationnaires), autrement dit par les phonons. Dans un matériau diélectrique, les électrons ne participent pas au transport thermique entre les deux zones présentant un gradient thermique ; pourtant un flux thermique s'établit.

Le flux thermique est alors transporté par l'intermédiaire des phonons. La structure et les défauts du cristal interviennent fortement dans la conductivité thermique des isolants. Le libre parcours moyen des phonons est augmenté par l'absence de diffusion des phonons dans un matériau ; une mauvaise conductivité thermique des phonons est synonyme de la présence de défauts dans une maille cristalline ou d'une mauvaise cristallisation (ex : matériau amorphe).

$$\kappa_{ph} = \frac{1}{3} \cdot C_{ph} \cdot V_s \cdot l_{ph} \quad (\text{Eq 2.6})$$

Dans un matériau diélectrique, la conductivité thermique du réseau est dépendante de la chaleur spécifique des phonons C_{ph} , de la vitesse des ondes acoustiques V_s et du libre parcours moyen des phonons l_{ph} dans le matériau.

a) Chaleur spécifique des phonons

Nous avons vu précédemment que dans un métal, la forme de la chaleur spécifique était fonction de deux termes. Dans un matériau diélectrique, seule la contribution des phonons, le terme en T^3 , intervient.

A haute température ($T \geq \Theta_D$), le modèle de Debye montre que la chaleur spécifique tend vers une limite également appelée loi de Dulong et Petit. Quel que soit le matériau, cette limite est calculée à $C_{ph} = 24,94 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$.

Pour les basses températures ($T < \Theta_D$), la chaleur spécifique des phonons suit une loi en T^3 . Si on fait tendre la température vers zéro, l'expression de la chaleur spécifique devient inversement proportionnelle au cube de la température de Debye Θ_D et proportionnelle au nombre d'atomes dans l'échantillon, N .

$$C_{ph} = \frac{12\pi^4}{5} \cdot N \cdot k_B \cdot \left(\frac{T}{\Theta_D} \right)^3 \quad (\text{Eq 2.7})$$

Néanmoins, cette formule de la chaleur spécifique décrit un comportement pour un échantillon avec des dimensions supérieures au libre parcours moyen. Dans un matériau avec une taille géométrique de faible dimension devant la longueur d'onde dominante des phonons, la loi devient dépendante des dimensions de l'objet (T^d avec d la dimensionnalité de l'objet) [Heron-2009].

La longueur d'onde dominante est utilisée à basse température pour définir la dimension d'un phonon et la comparer à la taille du matériau dans lequel évolue ce phonon. [Bourgeois-2008] et [Klitsner-1987] proposent une formulation de la longueur d'onde dominante des phonons issue de la fréquence dominante des phonons ν_{dom} . Cette longueur d'onde dominante λ_{dom} , est donnée en fonction de la vitesse du son dans le matériau V_s et de la température.

$$\nu_{dom} = 4,25 \cdot \frac{k_B \cdot T}{h} \quad \text{avec} \quad \lambda_{dom} = \frac{V_s}{\nu_{dom}} \quad \text{on a} \quad \lambda_{dom} = \frac{h \cdot V_s}{4,25 \cdot k_B \cdot T} \quad (\text{Eq 2.8})$$

Le modèle de Debye global montre la dépendance théorique de la chaleur spécifique, et de la même manière de la capacité calorifique (produit de la chaleur spécifique par le volume), en fonction de la température (figure 2-1).

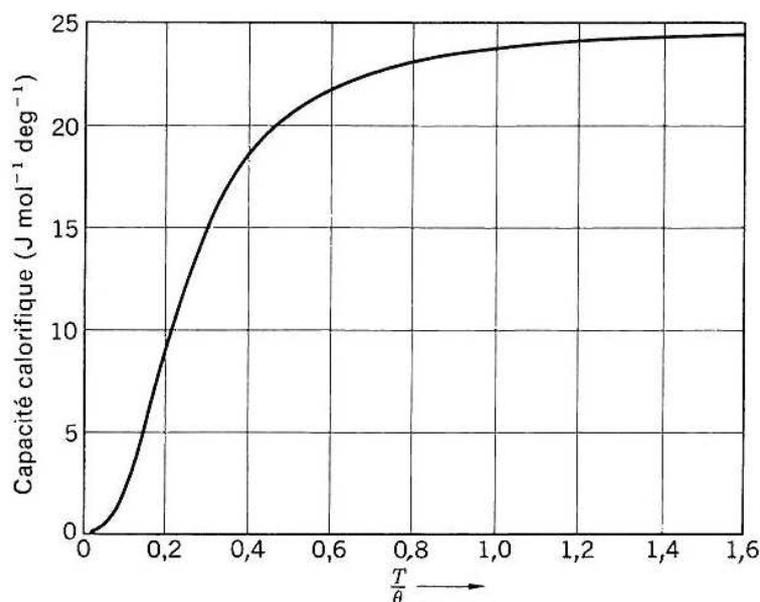


Figure 2-1 Capacité calorifique suivant l'approximation de Debye [Kittel-1983]

b) Le libre parcours moyen des phonons

Le libre parcours moyen des phonons à basse température atteint pour la plupart des matériaux une dimension importante ($> 1 \text{ cm}$). On remplace alors le libre parcours moyen par une constante dépendant des dimensions de l'échantillon. Nous verrons en annexe que si le transport thermique est confiné dans une fine poutre, tube ou nano-fil à basse température, le modèle du transport thermique est régi par le modèle de Casimir [Casimir-1938] [Berman-1955]. Dans un matériau massif la conductivité thermique à basse température évolue en T^3 .

La conductivité thermique des phonons est grande dans les matériaux présentant une structure cristalline de type monocristallin avec peu de défauts dans la maille. Cette propriété est associée à une des techniques utilisées par les diamantaires pour faire rapidement la différence entre un diamant qui est un assemblage monocristallin d'atomes de carbone et une copie ne présentant pas d'ordre cristallin (matériau amorphe). A température ambiante, lorsque le diamant est posé dans la main chaude, il apporte une sensation de froid de par sa forte conduction thermique, les phonons ont un grand libre parcours moyen. Par contre, une copie en verre de même volume donnerait une sensation de froid moins prononcée car la conductivité thermique des matériaux amorphes est médiocre.

La figure 2-2 illustre la conductivité thermique en fonction de la structure cristalline de la silice, suivant qu'elle est amorphe ou cristallisée (quartz). La figure 2-3 montre la mesure de la conductivité du cuivre. On remarquera que le maximum atteint par le quartz est proche de celui du cuivre, et ce, sans l'apport des électrons dans la conduction thermique, seulement grâce à la faible résistance que rencontrent les phonons dans le matériau avec une structure cristalline.

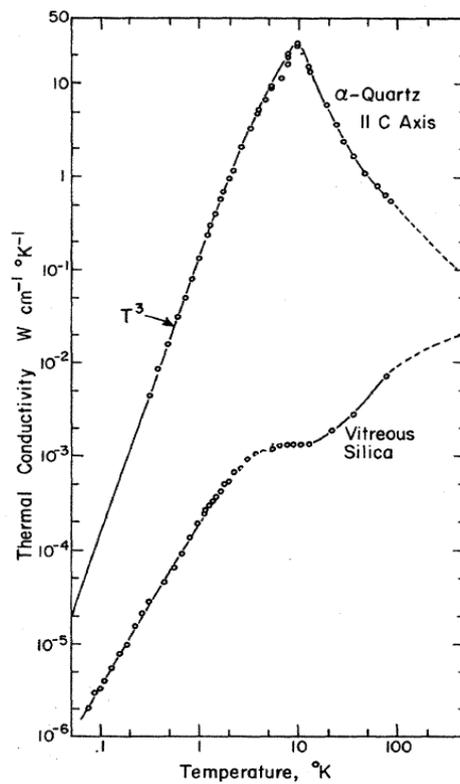


Figure 2-2 Conductivité thermique du quartz et du verre de silice [Zeller-1971]

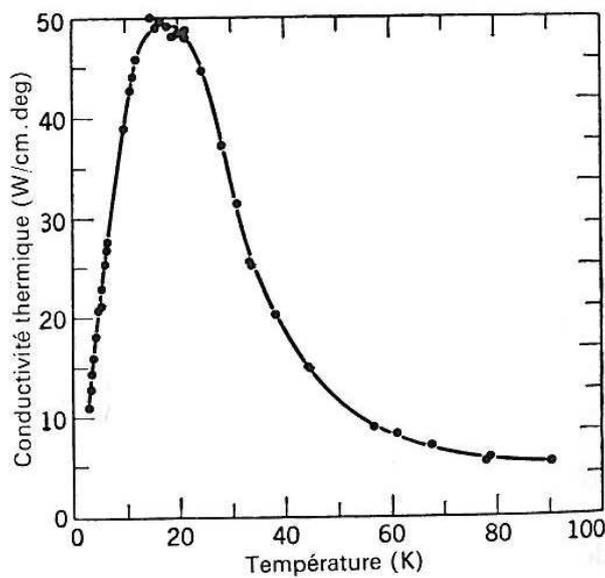


Figure 2-3 Conductivité thermique du cuivre [Berman-1952]

2-3 Conduction thermique dans les supraconducteurs

Nous avons vu dans la section précédente traitant de la supraconductivité que les paires de Cooper ne conduisent pas la chaleur. A une température suffisamment basse, on peut approximer la conduction thermique d'un supraconducteur à celle d'un diélectrique.

La référence [Chandrasekhar-1969], explique que le nombre de paires de Cooper dans un supraconducteur est dépendant de la température. Lorsque la température est juste supérieure de ΔT à la température de transition supraconductrice T_c , aucune paire ne se forme. A température nulle, toutes les paires de Cooper sont formées, et aucun électron célibataire n'est disponible. Le nombre N_{pc} de paires de Cooper normalisé s'exprime en fonction de T .

$$N_{pc} = 1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^4 \quad (\text{Eq 2.9})$$

Or seuls les électrons résiduels célibataires contribuent à la conduction thermique. C'est pour cette raison que les liaisons supraconductrices, telles que définies dans le premier chapitre (multicouches), opèrent préférentiellement à des températures faibles devant T_c .

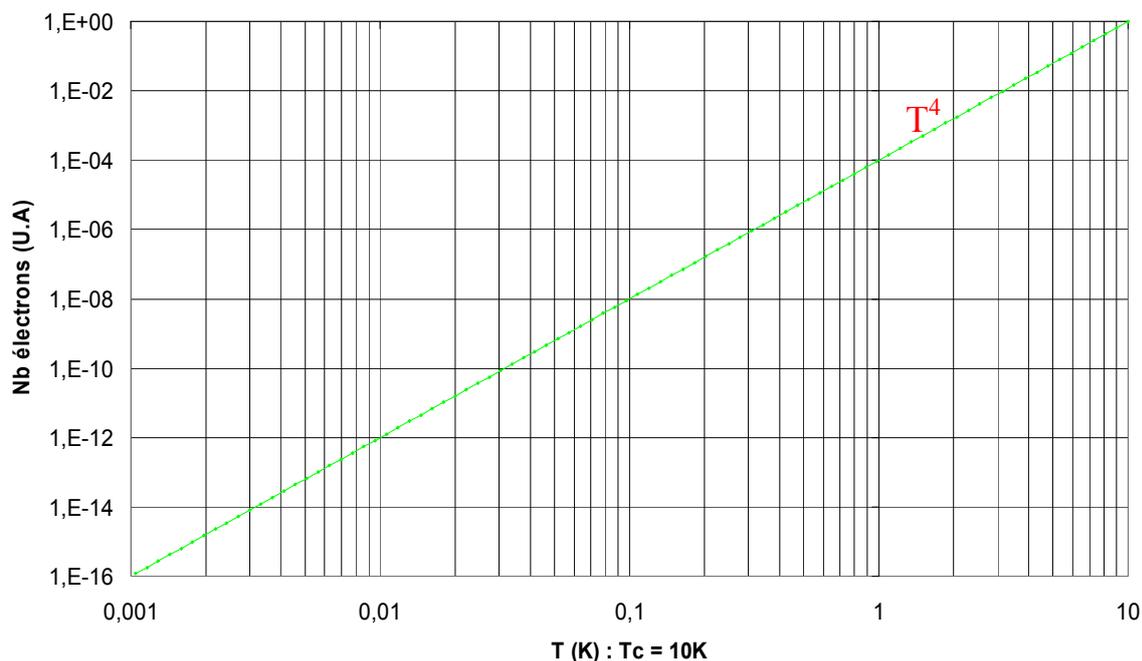


Figure 2-4 Evolution du nombre d'électrons résiduels normalisé dans un supraconducteur avec une T_c de 10 K

On prend pour approximation qu'un supraconducteur travaillant à une température inférieure à $0,1T_c$, ne comporte plus d'électron de conduction. La figure 2-4 montre qu'avec une température de travail inférieure à $T_c / 10$, la conduction thermique des électrons sera réduite d'un facteur supérieur ou égal à 10^4 .

La référence [Corak-1954], nous apprend que la chaleur spécifique utilisée pour calculer la conductivité thermique due aux électrons dans le cas d'un supraconducteur, à une température inférieure à 90% de T_c , suit une loi exponentielle décroissante en T . La conductivité thermique des phonons est inchangée dans un matériau supraconducteur. Le terme γ est le coefficient usuel pour définir la chaleur spécifique du terme électronique, C_{es} ; a est un facteur proche de la valeur 10.

$$C_{es} = a \cdot \gamma \cdot T_c \cdot e^{-\frac{\Delta}{k_B \cdot T}} \quad (\text{Eq 2.10})$$

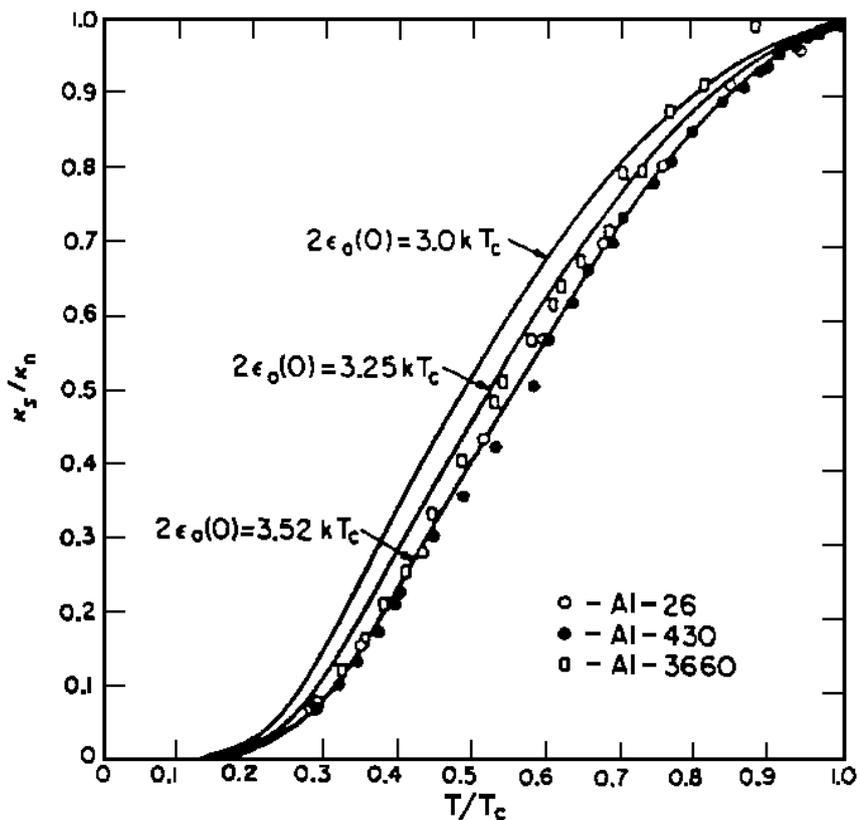


Figure 2-5 Conductivité thermique dans l'aluminium, à l'état supraconducteur, normalisée par rapport à la conductivité thermique du même matériau maintenu dans l'état normal par l'application d'un champ magnétique externe. La température est normalisée par rapport à la température de transition de l'Al ($T_c \sim 1,2$ K) [Satterthwaite-1962].

Dans la communauté scientifique, les supraconducteurs sont parfois utilisés pour leur faible conduction thermique et leur excellente conduction électrique. A l'intérieur des cryostats travaillant à des températures inférieures au kelvin, des fils de NbTi (niobium titane) sont couramment utilisés pour relier électriquement les détecteurs à l'électronique de lecture qui est placée à plus haute température tout en assurant une bonne isolation thermique. Les liaisons supraconductrices pourront remplacer ou améliorer cette fonction technologique.

2-4 Transfert thermique par radiations à basse température

Les liaisons supraconductrices réalisent la fonction d'isolation thermique entre différentes sources thermiques. Par l'utilisation de ce type de liaison, nous souhaitons bloquer la conduction thermique d'une interconnexion électrique. Malgré cette barrière, l'énergie thermique peut également être transférée entre les deux sources par d'autres modes. Ainsi, si la connexion n'est pas maintenue sous vide, mais sous gaz ou liquide caloporteur, un transfert thermique, dû en particulier à des échanges convectifs, peut apparaître, car les particules du milieu chauffées par la source chaude migrent vers la source froide en lui cédant leur énergie. Dans la plupart des cas, les détecteurs fonctionnent dans une enceinte sous vide, ce qui permet de rendre négligeable ce phénomène.

Un second phénomène peut réchauffer la source froide. Tout corps à une température non nulle ($T > 0$ K) émet des radiations. Plus le corps est chaud, plus la longueur d'onde de la radiation est courte. Typiquement, le corps humain (~ 310 K) émet des radiations dans le domaine de l'infrarouge ($\lambda \sim 10$ μm), alors que le soleil (~ 5700 K) irradie avec un spectre centré autour des longueurs d'ondes visibles ($\lambda \sim 500$ nm). Les radiations peuvent se propager dans le vide sans perte.

La loi de Stephan-Boltzmann [Blevin-1970] définit la puissance radiative Φ_r en fonction de la température T et de la surface S émettrice du corps source. Cette loi prend pour hypothèse que le corps émetteur est un « corps noir » (émissivité : $\varepsilon = 1$), c'est-à-dire qu'il ne filtre aucune longueur d'onde de radiation et qu'il absorbe parfaitement les radiations.

$$\Phi_r = \sigma_r \cdot \varepsilon \cdot S \cdot T^4 \quad (\text{Eq 2.13})$$

La constante de Stephan-Boltzmann σ_r peut être déterminée par la loi de Planck en fonction de la constante de Boltzmann k_B , de la constante de Planck h et de la vitesse de la lumière dans le vide (c). Blevin [Blevin-1971] détermine $\sigma_r = 5,6644 (\pm 0,0075) \cdot 10^{-8} \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-4}$.

$$\sigma_r = \frac{2 \cdot \pi^5}{15} \cdot \frac{k_B^4}{h^3 \cdot c^2} = (5,6696 \pm 0,0025) \cdot 10^{-8} \frac{\text{W}}{\text{m}^2 \text{K}^4} \quad (\text{EQ 2.14})$$

Pour estimer la puissance thermique transmise d'une source chaude vers une source froide uniquement par radiation, il faut connaître la surface en regard des deux sources et le coefficient d'émissivité des matériaux. Un corps noir a une émissivité $\varepsilon = 1$, alors qu'un métal poli a généralement une émissivité $\varepsilon < 0,1$. Le cas extrême d'un corps blanc présente une émissivité nulle.

La loi de Stephan-Boltzmann nous informe qu'il est difficile d'accumuler une quantité importante d'énergie dans un corps en augmentant sa température. La dépendance en T^4 fait qu'à très haute température l'énergie s'évacue massivement des objets par radiation.

A très basse température, les corps n'émettent presque plus de radiations. En première approximation pour le plan matriciel du détecteur XMS discuté dans le chapitre I, nous pouvons définir un ordre de grandeur de la puissance transmise par la plaque de prétraitement de l'électronique de lecture 'chaude' ($T = 250 \text{ mK}$) vers le plan matriciel 'froid'. Prenons pour hypothèse que la surface en regard soit de 4 cm^2 et un coefficient d'émissivité de 0,7 pour le silicium, la puissance irradiée vers le plan matriciel sera : $\Phi_r = 62 \text{ fW}$. Ce flux est un million de fois inférieur à la puissance maximum (250 nW par plan matriciel) que peut dissiper le cryostat embarqué dans le télescope.

3- Résistance thermique d'interface

La physique des liaisons supraconductrices repose sur des propriétés électromagnétiques de supraconduction spécifiques que nous avons développées précédemment et sur le comportement des phonons aux interfaces (résistance thermique). L'état supraconducteur des matériaux en couches minces utilisés dans la liaison permet un excellent transport électrique tout en limitant le flux thermique.

A très basse température, la résistivité thermique varie en T^{-3} . Si nous voulions isoler thermiquement l'interconnexion juste avec la résistivité thermique du matériau, nous devrions prévoir une épaisseur conséquente, inadaptée avec l'esprit de compacité que nous cherchons à obtenir.

Pour réduire fortement le transport thermique, des interfaces empilées opérant sous forme de « miroirs à phonons » sont insérées dans les interconnexions. La surface des liaisons sera la plus faible possible pour augmenter encore la résistance thermique. Ces miroirs sont empilés sur une faible épaisseur et apportent une forte réduction sur la conduction thermique à basse température. C'est ce que nous avons introduit dans le chapitre I, lors de la définition du sujet sur les liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique. Dans la dernière partie de ce chapitre, nous abordons les points importants qui ont fait l'objet d'un brevet que nous avons déposé à ce sujet [Goupy-2012].

3-1 L'observation de Kapitza

En 1941, le chercheur russe Pyotr Kapitza a mesuré une résistance thermique d'interface entre un solide (cuivre) et de l'hélium à l'état liquide [Kapitza-1941]. L'idée d'une discontinuité thermique entre ces deux matériaux a été énoncée par Kürti [Kürti-1936] avant Kapitza en 1936. Encore aujourd'hui, la résistance thermique entre l'hélium et un solide est appelé « résistance de Kapitza ». Cette résistance évolue avec la température en T^{-3} .

En 1952 Khalatnikov présente un modèle théorique qui propose une explication du phénomène observé par Kapitza [Khalatnikov-1952]. Cependant, ce modèle qui sera par la suite rebaptisé « Acoustic Mismatch Model (AMM) » propose des valeurs supérieures (facteur ~ 20 à 1 K) par rapport à ce qui est observé expérimentalement.

Les mesures à très basse température (~ 100 mK) ont montré une dépendance en pression de la résistance de Kapitza. Les premières couches atomiques d'hélium liquide en contact avec le matériau se solidifient par l'effet des forces de Van Der Waals¹.

¹ Interaction attractive de nature électrique de faible intensité entre deux corps.

L'augmentation de pression favorise l'augmentation de l'épaisseur de la couche d'hélium solide à l'interface. La résistance d'interface entre l'hélium solide et le cuivre est inférieure à celle de l'hélium liquide avec le cuivre.

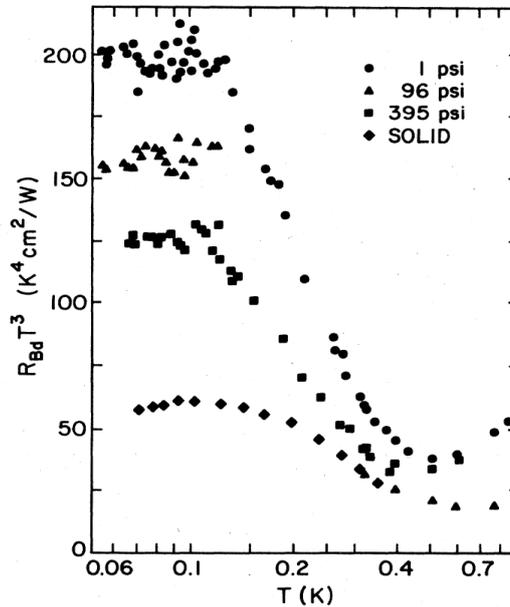


Figure 3-1 Résistance de Kapitza pour différentes pressions (1psi = 69 mbar) de l'hélium (liquide et solide) à basse température. La figure est obtenue à partir de [Anderson-1964]

3-2 Interface entre deux solides

Définissons la conductivité thermique à une interface, inverse de la résistivité thermique. Le flux thermique \dot{Q} est fonction de la conductivité thermique à l'interface κ_{Bd} , de la surface du contact A et du différentiel de température ΔT entre les deux matériaux de l'interface. Plus la surface en contact, le gradient de température et la conductivité thermique d'interface sont grands, plus le flux thermique sera important.

$$\dot{Q} = \kappa_{Bd} \cdot A \cdot \Delta T \quad (\text{Eq 3.1})$$

En 1959, Little adapte l'approche théorique de l'interface de Kapitza à une interface à deux solides [Little-1959]. Le terme résistance de Kapitza est à utiliser pour décrire une interface entre un liquide et un solide (ex : hélium et cuivre). Ce terme est parfois (mal) choisi pour décrire une résistance d'interface entre deux solides ; dans ce cas, il convient d'utiliser le terme générique « résistance d'interface » ou « résistance d'interface entre deux solides » pour éviter les confusions. A basse température, entre deux solides, la résistance thermique d'interface évolue également en T^{-3} . Dans la suite de ce manuscrit, nous étudierons la résistivité thermique d'interface, on la notera R_{Bd} et son unité est en $(K \cdot m^2/W)$.

Nous nous plaçons dans le cas où le flux thermique à l'interface n'est transporté que par les vibrations des atomes, les phonons. L'utilisation de matériaux diélectriques (ou supraconducteurs) empêche la conduction thermique des électrons de la bande de conduction. Un phonon se propage dans un premier milieu et atteint l'interface avec le second milieu. A l'interface entre ces deux matériaux, ce phonon est partiellement transmis ou totalement réfléchi. La probabilité de réflexion à l'interface d'un phonon dépend principalement des propriétés élastiques des deux milieux.

Les deux matériaux sont considérés isotropes et sans défaut à l'interface. Une hypothèse supplémentaire consiste à dire que la probabilité de transfert d'un phonon à l'interface ne dépend pas de la température.

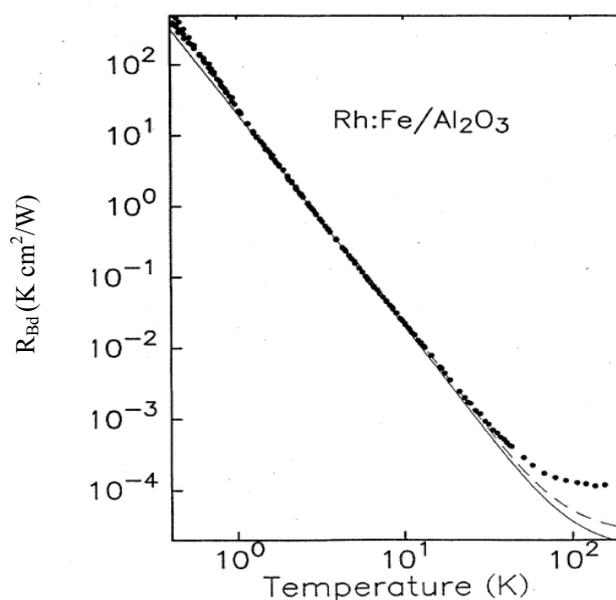


Figure 3-2 Résistance thermique d'interface (R_{Bd}) entre le rhodium (dopé avec du fer) et le saphir. Les lignes continues et discontinues sont les modèles théoriques discutés plus loin dans ce chapitre. Les points correspondent à la mesure réalisée par [Swartz-1987].

3-3 Modèles théoriques

Deux modèles théoriques sont utilisables pour décrire la résistivité thermique d'une interface. Le plus utilisé est l'Acoustic Mismatch Model (AMM) qui formalise la probabilité de transfert d'un phonon à l'interface en stipulant qu'il peut être soit réfléchi, soit transmis, en fonction de son angle d'incidence et des propriétés des deux matériaux constituant l'interface.

Le second modèle prend pour hypothèse que chaque phonon incident sera diffusé à l'interface et qu'une partie de l'énergie de l'onde de phonons sera transmise pendant qu'une autre sera réfléchie. Cette proportion dépendra uniquement des propriétés élastiques des deux matériaux.

a) Acoustic Mismatch Model (AMM)

Ce modèle prédit que chaque phonon incident à une interface est soit réfléchi spéculairement soit transmis suivant une direction et un mode définis. Aucune diffusion n'est prise en compte ici. Des changements de mode peuvent intervenir. Par exemple un phonon longitudinal incident peut être réfléchi ou transmis en mode transverse. Les phonons transverses peuvent également être transmis ou réfléchis à l'interface. A la différence des interfaces entre deux solides, dans le cas d'une résistance de Kapitza, proprement dite, seuls les phonons longitudinaux peuvent être transmis de l'hélium au solide.

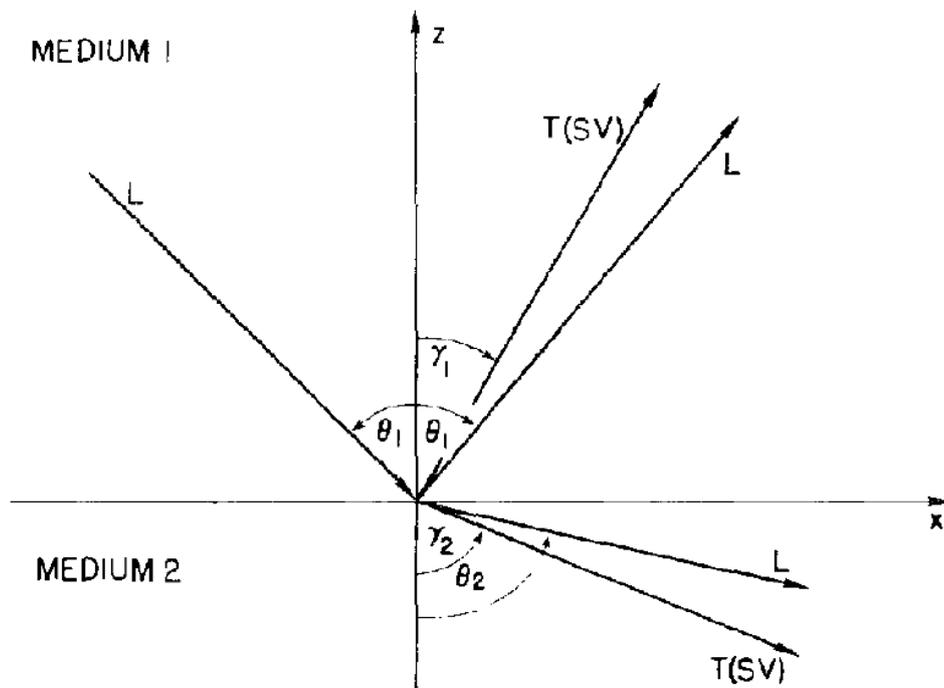


Figure 3-3 Propagation d'un phonon longitudinal à une interface [Kaplan-1979]

La figure ci-dessus montre les différentes possibilités pour un phonon longitudinal de propagation à une interface. D'après les lois de Snell-Descartes qui décrivent le comportement de la lumière à l'interface entre deux matériaux, et par analogie, il est possible de définir les angles correspondant aux différents modes de transmission ou de réflexion des phonons en fonction des vitesses du son des matériaux.

$$\frac{\sin \theta_1}{V_{1,L}} = \frac{\sin \theta_2}{V_{2,L}} = \frac{\sin \gamma_1}{V_{1,T}} = \frac{\sin \gamma_2}{V_{2,T}} \quad (\text{Eq 3.2})$$

Les vitesses du son en mode longitudinal V_L et en modes transverses V_T des deux matériaux sont importantes pour estimer les angles de propagation des phonons par rapport à l'angle du phonon incident, angle défini par rapport à la normale du plan de l'interface (axe z).

En optique géométrique, l'effet dioptrique (ou effet de réfraction) fournit une analogie directe. Dans notre exemple, où un phonon longitudinal incident se réfracte en un phonon longitudinal dans le milieu 2, et que $V_{2,L} > V_{1,L}$, il existe un angle d'incidence limite θ_{\max} pour lequel θ_2 sera égal à $\pi/2$. Dans ce cas limite et pour toutes valeurs supérieures à cet angle θ_{\max} , le phonon ne pourra pas être transmis et sera réfléchi avec un angle égal à l'angle d'incidence dans le premier milieu, on parle de réflexion totale.

Cet angle critique diminue quand le rapport $V_{2,L} / V_{1,L}$ augmente. Dans le cas d'une interface de Kapitza, le rapport des vitesses est extrême, l'angle critique (ou angle d'acceptance) est inférieur à 5° . Cela explique la valeur importante de la résistance de Kapitza [Peterson-1973]. Dans le sens inverse, où le phonon provient du milieu 2 et rencontre l'interface avec $V_{2,L} > V_{1,L}$, il n'y a pas d'angle critique et celui-ci a une plus faible probabilité d'être réfléchi ; il n'y a pas de cône d'acceptance dans ce cas. La transmission des phonons aux interfaces est plus complexe que celle des photons, cela provient du fait qu'il y a trois modes de propagation des phonons (1 mode longitudinal et deux modes transverses) dans les solides.

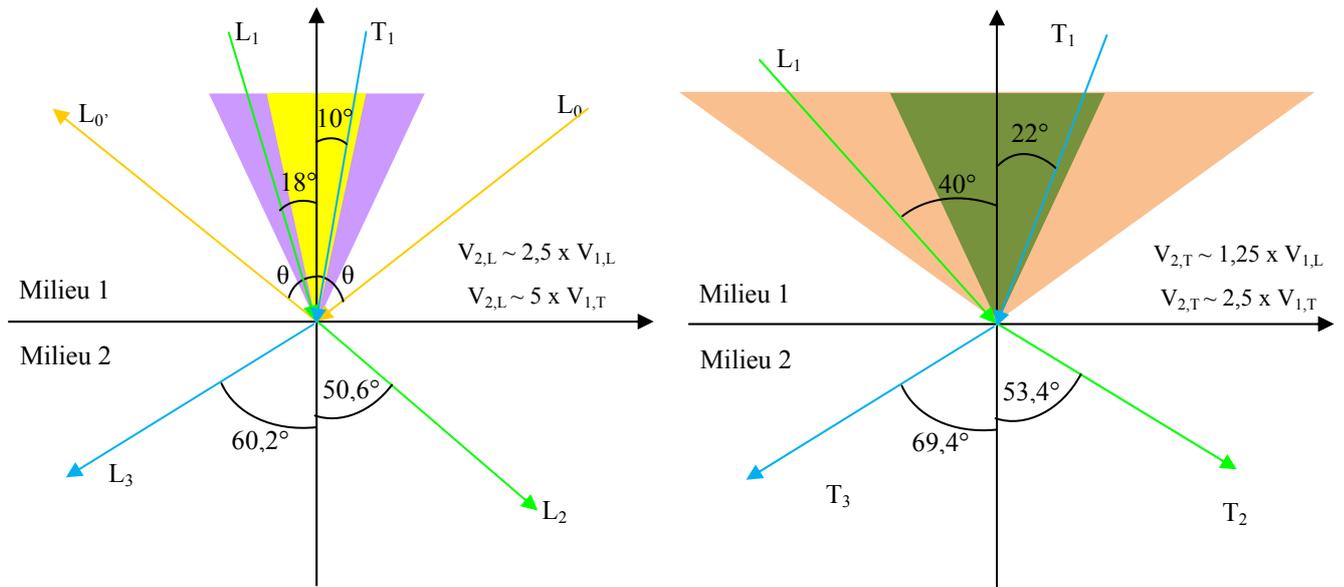


Figure 3-4 Représentation d'une interface et des cônes d'acceptance de phonons. Dans la figure de gauche, seules les réflexions et réfractions en modes longitudinaux sont représentées ; les cônes d'acceptance, jaune pour le mode transverse (11,5°) et violet pour le mode longitudinal (23,6°), sont représentés pour cet exemple. Dans la figure de droite, seules les réflexions et réfractions en modes transverses sont représentées ; les cônes d'acceptance, vert pour le mode transverse (23,6°) et rose pour le mode longitudinal (53,1°), sont représentés.

Little explique que l'onde incidente (longitudinale ou transverse) se divise en plusieurs ondes. Lorsque cette onde incidente rencontre l'interface, l'énergie de celle-ci est répartie suivant différentes directions. L'énergie de l'onde incidente peut être transmise en onde longitudinale ou transverse dans le second milieu. Le restant de l'énergie est réfléchi dans le premier milieu aussi bien en onde longitudinale que transverse. Dans le cas où l'angle d'incidence est supérieur à l'angle critique, la division de l'énergie n'implique que les deux modes du milieu incident.

Le coefficient de transfert d'énergie $\alpha_j(\theta)$ d'un phonon à l'interface est défini en fonction des amplitudes des ondes ($U_{i,j}$), des masses volumiques (ou densités) ρ_i , des vitesses du son $V_{i,j}$ et des angles d'incidences et de transmission $\theta_{i,j}$ [Cheeke-1973]. L'indice i correspond au milieu alors que l'indice j correspond au mode du phonon (T_1 et T_2 pour les deux modes transverses si ils sont différents et L pour le mode longitudinal).

$$\alpha_j(\theta_1) = \frac{U_{2,T}^2}{U_{1,j}^2} \cdot \frac{\rho_2 \cdot V_{1,j} \cdot \cos \theta_{2,T}}{\rho_1 \cdot V_{2,T} \cdot \cos \theta_1} + \frac{U_{2,L}^2}{U_{1,j}^2} \cdot \frac{\rho_2 \cdot V_{1,j} \cdot \cos \theta_{2,L}}{\rho_1 \cdot V_{2,L} \cdot \cos \theta_1} \quad (\text{Eq 3.3})$$

On en déduit le coefficient de transmission Γ pour tous les angles et pour tous les modes de phonon incident.

$$\Gamma_{1,j} = \int_0^{\pi/2} \alpha_j(\theta_1) \cdot \sin \theta_1 \cdot \cos \theta_1 \cdot d\theta_1 \quad (\text{Eq 3.4})$$

A basse température (devant la température de Debye des matériaux), l'expression de la résistance thermique d'interface peut être exprimée sous la forme générale :

$$\dot{Q} = \frac{2 \cdot \pi^5 \cdot k_B^4 \cdot S}{15 \cdot h^3} \left(\frac{\Gamma_{1,L}}{V_{1,L}^2} + \frac{\Gamma_{1,T1}}{V_{1,T1}^2} + \frac{\Gamma_{1,T2}}{V_{1,T2}^2} \right) \cdot (T_2^4 - T_1^4) \quad (\text{Eq 3.5})$$

Dans l'équation 3.5, les vitesses du son du milieu 2 sont implicitement incluses dans les facteurs $\Gamma_{1,j}$, qui dérivent de l'intégration des α_j , qui sont fonctions des $V_{1,j}$ comme des $V_{2,j}$.

La complexité dans ce calcul est l'estimation des différents coefficients Γ . [Cheeke-1976] propose un formalisme permettant de regrouper les coefficients de transmission d'une interface (dans une direction) en un seul coefficient global.

$$\Gamma_{1,tot} = \Gamma_{1,L} + \left(\frac{V_{1,L}}{V_{1,T}} \right)^2 \cdot (\Gamma_{1,T1} + \Gamma_{1,T2}) \quad (\text{Eq 3.6})$$

La difficulté réside dans l'estimation du coefficient de transmission (ou émissivité) total Γ_{tot} . [Cheeke-1976] a calculé et rassemblé un grand nombre de valeurs d'émissivité d'interface de matériaux normalisées en fonction de leurs vitesses du son en modes transverses et longitudinal, et du rapport entre leur densité.

Jusqu'à maintenant, nous nous sommes focalisés sur le transfert d'un phonon incident du milieu 1 vers le milieu 2. La résistance d'interface peut également être calculée dans le sens opposé d'incidence du phonon (incidence du phonon du milieu 2 vers le milieu 1). Dans son formalisme, Cheeke propose l'estimation de $\Gamma_{1,tot}$ dans le cas où $\rho_2 > \rho_1$. A partir de cette valeur $\Gamma_{1,tot}$, la valeur de $\Gamma_{2,tot}$ est calculable par le rapport suivant :

$$\frac{\Gamma_{2,tot}}{V_{2,L}^2} = \frac{\Gamma_{1,tot}}{V_{1,L}^2} \quad (\text{Eq 3.7})$$

La résistivité thermique d'interface est calculée à partir de la probabilité totale de transfert Γ_{tot} et de la vitesse du son en mode longitudinal du milieu incident.

$$R_{AMM} = \frac{15 \cdot \hbar^3}{\pi^2 \cdot k_B^4} \cdot \frac{V_{i,L}^2}{\Gamma_{i,tot}} \cdot T^{-3} \quad \text{en} \quad \left(\frac{K \cdot cm^2}{W} \right) \quad (\text{Eq 3.8})$$

Soit
$$R_{AMM} = 4,93 \cdot 10^{-11} \cdot \frac{V_{i,L}^2}{\Gamma_{i,tot}} \cdot T^{-3}$$

Avec les équations 3.8 et 3.7, on définit que la résistivité thermique est la même dans les deux sens à l'interface.

Nous nous servons des tables de Cheeke et du formalisme (Eq 3.8) dans la suite de ce manuscrit pour calculer les résistivités thermiques aux interfaces (R_{Bd}) de deux solides.

Une autre approche de la transmission des phonons a été proposée par [Weis-1969]. Il regarde la provenance d'une onde réfractée dans un milieu. Il définit que chaque onde réfractée est la conséquence de deux ondes incidentes dans le milieu opposé à l'interface: l'une longitudinale et l'autre transverse. Il prend également en compte qu'une partie de l'énergie des ondes incidentes est réfléchiée dans le milieu incident. Malgré cette approche différente, la formulation déterminée par [Weiss-1986] est analogue à celle de Little (Eq 3.5) utilisé par Cheeke et Swartz, pour les basses températures.

b) Diffuse Mismatch Model (DMM)

La principale hypothèse faite dans le modèle AMM est l'absence de diffusion à l'interface. Swartz [Swartz-1989] propose un second modèle qui, à l'inverse de l'AMM, prend pour hypothèse (extrême) que tous les phonons, atteignant une interface, sont diffusés. Dans le Diffuse Mismatch Model (DMM), toutes les réflexions et les réfractions acoustiques sont détruites par la diffusion. La probabilité de transfert thermique à l'interface est dans le cas du modèle DMM uniquement fonction des densités d'états de phonons des deux côtés de l'interface¹.

Dans le cas du modèle DMM, on ne se sert plus de l'effet dioptrique et des cônes d'acceptance pour estimer le coefficient de transfert de l'énergie du phonon incident. La principale différence entre les deux modèles (AMM et DMM) est l'estimation des coefficients de transmission.

Le phonon diffusé à l'interface perd toute information sur son mode de propagation et sur son angle de diffusion ; seule l'énergie d'un phonon incident (égale à $\hbar\omega$) est conservée lors d'une diffusion [Swartz-1989]. La probabilité de transmission n'est dépendante que des propriétés acoustiques des matériaux. On remarquera que la formulation du DMM (Eq 3.10) ne prend pas en compte les masses volumiques des matériaux. La notation des vitesses du son V_i et V_{3-i} sert à inter changer les milieux dans l'expression du coefficient de transmission pour le DMM, qui est identique des deux côtés d'incidence du phonon². Dans l'exemple le phonon est incident dans le milieu 2 ($i = 2$), V_i représente les vitesses du son dans le milieu incident (milieu 2) et V_{3-i} sont les vitesses dans le milieu de réfraction (milieu 1).

$$\Gamma_{i,j} = \frac{1}{2} \cdot \frac{\sum_j V_{3-i,j}^{-2}}{\sum_{i,j} V_{i,j}^{-2}} \quad (\text{Eq 3.9})$$

¹ La densité d'état des phonons est fonction du rapport $\frac{3}{2\pi^2} \cdot \frac{\omega^2}{V_s^3}$, défini par la fréquence des phonons et la vitesse du son dans le matériau [Ashcroft-2002].

² On rappelle ici que l'indice i correspond au milieu et l'indice j aux modes (transverses ou longitudinal) du phonon.

Dans la limite des basses températures, la résistivité thermique d'interface peut être calculée à partir de l'expression suivante [Swartz-1989]:

$$R_{DMM} = \frac{30 \cdot \hbar^3}{\pi^2 \cdot k_B^4} \cdot \frac{\left(\sum_{i,j} V_{i,j}^{-2} \right)}{\left(\sum_j V_{i,j}^{-2} \right) \cdot \left(\sum_j V_{3-i,j}^{-2} \right)} \cdot T^{-3} \quad (\text{Eq 3.10})$$

Soit $R_{DMM} = 9,8 \cdot 10^{-11} \cdot \frac{\left(\sum_{i,j} V_{i,j}^{-2} \right)}{\left(\sum_j V_{i,j}^{-2} \right) \cdot \left(\sum_j V_{3-i,j}^{-2} \right)} \cdot T^{-3}$ en $\left(\frac{K \cdot \text{cm}^2}{W} \right)$

Dans le cas de matériaux très dissimilaires, comme l'hélium et le cuivre par exemple, peu de phonons parviennent à passer à travers le cône d'acceptance étroit (uniquement en mode longitudinal dans l'hélium); la transmission acoustique des phonons à l'interface est alors supplantée par le phénomène de diffusion prépondérant. Pour les résistances de Kapitza, la prise en compte de la diffusion (ou « scattering » en anglais) augmente drastiquement la conductivité thermique de l'interface. Le modèle DMM constitue une limite basse (division de la résistance par un facteur ~ 4 à 1 K) pour l'estimation de la résistance de Kapitza.

La prise en compte du modèle de diffusion permet une meilleure estimation de la R_{Bd} d'une interface composée de matériaux avec des propriétés élastiques très différentes ou avec un nombre important de défauts à l'interface (rugosité, gap, etc...). Lorsque les matériaux ont des propriétés acoustiques proches, à une température suffisamment basse, le processus de transmission acoustique domine, les cônes d'acceptance sont larges. Dans ce cas de figure, les deux modèles fournissent des valeurs proches ($\pm 30\%$).

La partie suivante de ce chapitre présente l'impact de la qualité de l'interface sur la diffusion des phonons. Nous verrons que l'importance des différentes sources de diffusion est réduite lorsque que la température de travail l'est aussi.

3-4 Qualité d'interface et R_{Bd}

Dans l'hypothèse d'une interface idéalement parfaite (sans défaut), aucune diffusion ne peut intervenir. En réalité, ce n'est jamais le cas et toute interface présente des défauts susceptibles d'induire de la diffusion et généralement de réduire la résistivité thermique à l'interface.

La figure ci-dessous représente les deux principaux types de défauts d'interface. Le premier est la rugosité, l'interface n'est pas plane mais présente des pics et les vallées tout en restant continue ; \bar{A} est l'amplitude moyenne de ces défauts (écart pics et vallées). Le second type de défaut est l'existence d'un contact entre les deux milieux uniquement par une interface discontinue ; la dimension \bar{B} représente la séparation moyenne entre deux contacts.

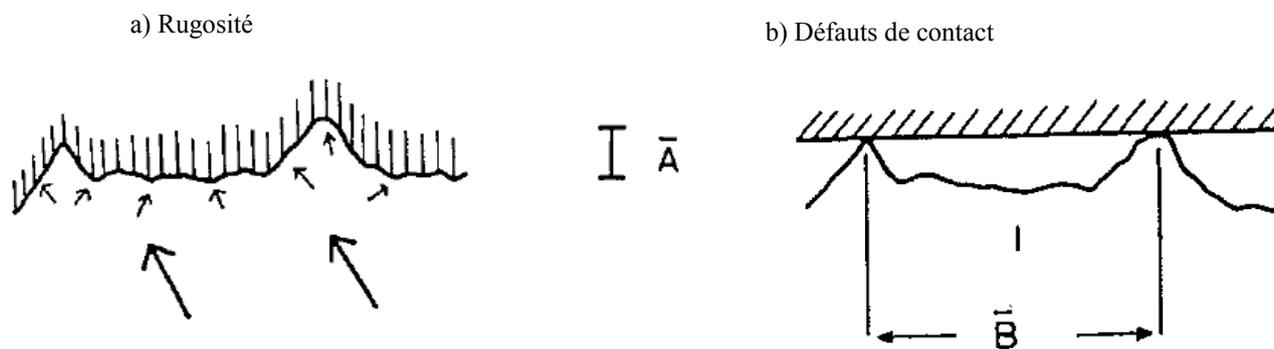


Figure 3-5 Représentation de deux types de défaut de surfaces [Little-1959] : a) la rugosité et b) les défauts de continuité de contact.

Dans le cas (a) d'une **interface rugueuse** (figure 3-5), il faut considérer la longueur d'onde dominante des phonons λ_{dom} et la rugosité moyenne \bar{A} .

Lorsque $\lambda_{dom} \gg \bar{A}$, la rugosité à l'interface n'apporte pas de diffusion: les grandes longueurs d'ondes sont insensibles aux défauts de rugosité dont les dimensions leur sont bien inférieures. Ces défauts à l'interface n'impactent pas le comportement acoustique des phonons à l'interface (voir figure 3-6).

Lorsque $\lambda_{dom} \leq \bar{A}$, la dimension des défauts devient importante devant la longueur d'onde du phonon incident, la surface est perçue comme erratique et devient une source de diffusion. La surface effective de contact augmente avec la diminution de la longueur d'onde dominante des phonons (ou l'augmentation de la température ou de la fréquence).

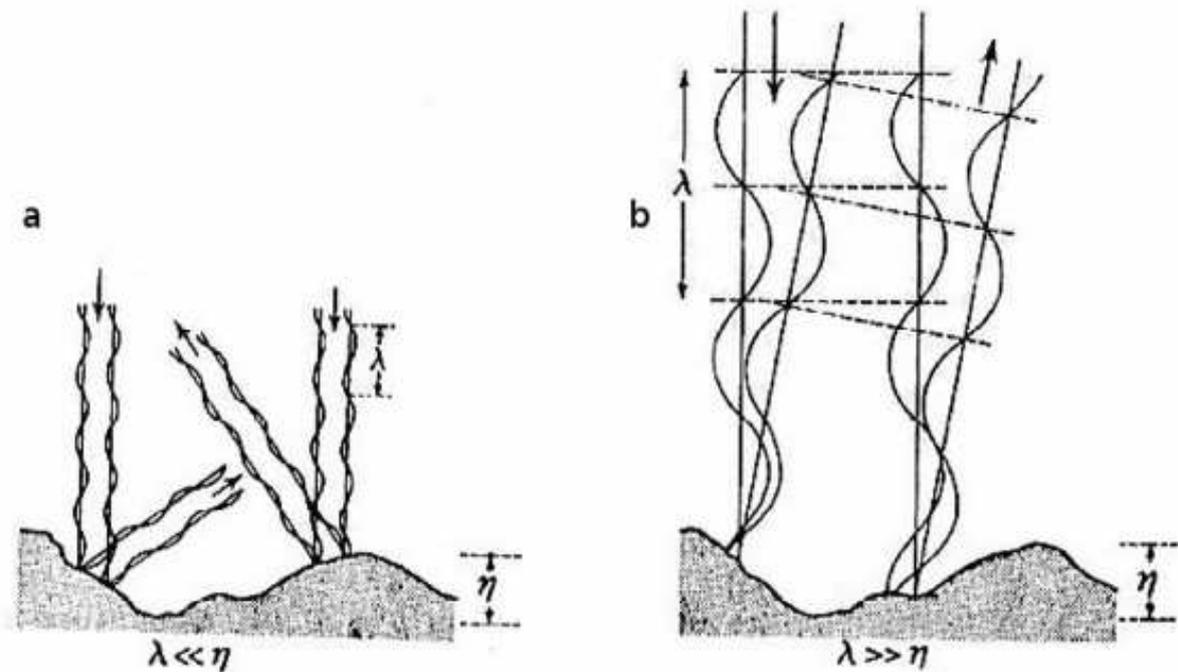


Figure 3-6 Représentation de phonons avec une longueur d'onde inférieure à la rugosité η , dans ce cas il y a diffusion à l'interface (a). Dans le cas où la longueur d'onde est supérieure à la rugosité, la diffusion est réduite: comportement quasi-spéculaire (b). [Bourgeois-2008]

Dans le cas (b) des **défauts de contact** (figure 3-5), la longueur d'onde dominante des phonons est comparée à la distance moyenne d'éloignement des points de contact à la surface. Si $\lambda_{dom} \gg \bar{B}$, le phonon parviendra à transmettre sa vibration malgré un faible nombre de points de contact et donc son énergie presque sans atténuation. Les phonons sont transmis en phase par tous les points de contact.

Lorsque $\lambda_{dom} \leq \bar{B}$, les phonons ne sont plus corrélés sur toute la surface et les points de contact transmettent les phonons de façon désordonnée (voire aléatoire). Dans cette condition, la surface effective de l'interface diminue et l'énergie transmise à travers l'interface diminue avec l'augmentation de la température. Une conséquence additionnelle de ces défauts de contact est la diminution de l'exposant de la dépendance en température. La R_{Bd} évolue en T^{-n} avec $n = 3$ dans le cas de l'estimation théorique (AMM ou DMM) ; par contre les défauts de contact à la surface vont diminuer l'exposant n .

Dans la section suivante, nous étudierons l'évolution de la résistivité thermique d'interface pour différentes gammes de température. L'impact de la qualité de l'interface et des diffusions induites est une caractéristique importante dans l'évolution de la R_{Bd} en fonction de la température.

3-5 Différentes gammes de températures

Le modèle AMM a initialement été développé dans l'approche théorique de la résistance thermique à l'interface entre l'hélium et un solide. Les premières observations étaient limitées à la température maximum de 4,2 K (température de liquéfaction de l'hélium). Dans le cas des interfaces à deux solides, il est possible d'utiliser ce modèle dans des gammes de température plus élevées. La prévalence des deux modèles (AMM et DMM) évolue en fonction de la température, des diffusions et des défauts à l'interface.

a) $T < 1K$; AMM

Dans le cas d'une interface idéale ou dans le cas d'une interface réelle mais avec une température que l'on fait tendre vers zéro, seules les transmissions acoustiques traversent l'interface : la R_{Bd} se rapproche de la valeur prédite par le modèle AMM.

Lorsque la température augmente et que la rugosité à l'interface devient non négligeable, les diffusions apparaissent. Si les deux matériaux sont (acoustiquement) très différents, l'énergie transmise par le phénomène de diffusion devient prédominante par rapport à la transmission spéculaire. Dans le cas d'une interface réelle (rugueuse), lorsque la température augmente, la résistivité thermique d'interface tend à se rapprocher du modèle DMM.

Lorsque les matériaux sont fortement dissimilaires, la diffusion à l'interface ajoute à la conductivité thermique, à travers l'interface, de par la faible probabilité que les ondes incidentes se trouvent dans les cônes d'acceptance.

Par contre, si les matériaux ont des propriétés acoustiques proches, les transmissions spéculaires (acoustiques) sont facilitées. Les phénomènes de diffusion (s'il y en a) ont un impact important dans la valeur de la résistance thermique d'interface.

Prenons le cas d'une interface entre deux matériaux avec des propriétés acoustiques proches mais présentant une interface fortement diffusive. A une température pour laquelle, il est possible d'observer les effets de diffusion définis précédemment, les phonons incidents voient des cônes d'acceptance très ouverts : la probabilité de transfert acoustique est alors favorisée. La diffusion à l'interface empêche une partie des réfractions acoustiques. L'énergie réfractée depuis le milieu incident est supérieure lors d'un transport acoustique que lors d'une diffusion ; dans ce cas de figure, les effets de la diffusion font augmenter la résistivité thermique par rapport à une interface composée des mêmes matériaux. Dans le cas extrême où les deux matériaux ont des propriétés acoustiques identiques (cas d'une interface virtuelle à l'intérieur d'un même matériau homogène) l'estimation de la résistance d'interface par le DMM est doublée par rapport à celle de l'AMM (figure 3-7).

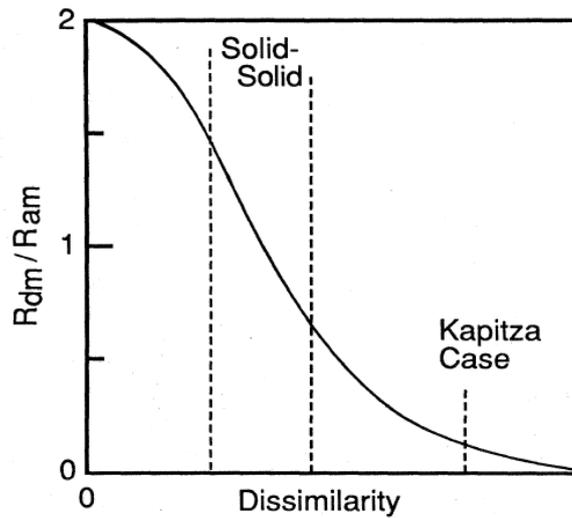


Figure 3-7 Représentation du rapport entre les valeurs données par le modèle DMM et le modèle AMM en fonction de l'écart (« Dissimilarity ») des vitesses du son des matériaux (unités arbitraires). On remarquera le facteur 2 pour deux matériaux identiques, la relative équivalence des deux modèles dans le cas des solides classiques et la prévalence du modèle DMM dans le cas de la résistance de Kapitza. On se trouve dans une gamme de température proche du kelvin. [Swartz-1989]

Dans le cas d'une interface de Kapitza, les diffusions sont prépondérantes dans le mécanisme de transfert thermique à l'interface. Sur la figure 3-8, on remarque que l'estimation théorique de la résistivité thermique donnée par les deux modèles est différente de deux ordres de grandeur.

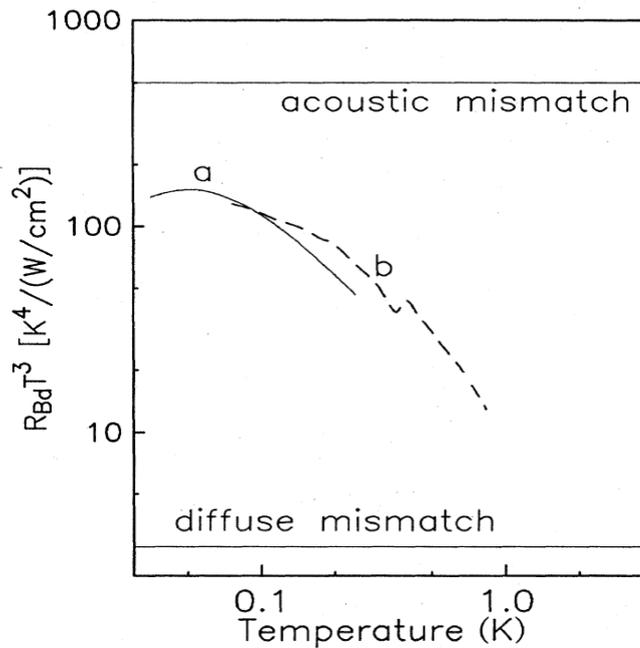


Figure 3-8 Mesure de la résistance de Kapitza réalisée à une interface de Cu - ⁴He. Courbes issues des références [Folinsbee-1974] pour la courbe (a) et [Anderson-1964] pour la courbe (b).

Dans le cas d'une interface entre deux solides, on trouve un faible écart ($\sim \pm 30\%$) entre les valeurs proposées par les deux modèles (AMM et DMM), ce qui contraste avec le cas de la résistance de Kapitza. Et cela d'autant plus que les propriétés acoustiques des deux matériaux composant, sans être identiques, ne sont pas trop différentes [Swartz-1989].

En dessous de 1 K, la longueur d'onde dominante des phonons dans la plupart des solides est supérieure à $\sim 100 \text{ \AA}$. Les détails de l'interface perdent de leur importance à mesure que la longueur d'onde des phonons augmente et/ou que la température diminue. En diminuant la température, la proportion de transmissions spéculaires à l'interface augmente. En dessous de 100 mK, les valeurs mesurées tendent généralement vers la valeur prédite par l'AMM.

b) $1 \text{ K} < T < 20 \text{ K}$; DMM

Avec l'augmentation de la température, la rugosité de l'interface réelle génère des canaux de diffusion. Cette diffusion peut soit augmenter soit diminuer la R_{Bd} selon que les propriétés acoustiques des deux matériaux sont respectivement proches ou éloignées.

La figure 3-9 présente une mesure réalisée pour une interface de rhodium (dopé en fer) sur un substrat de saphir (Al_2O_3) par [Swartz-1989]. Ce couple de matériaux se positionne avec un rapport $R_{\text{DMM}} / R_{\text{AMM}} > 1$. On remarque que pour cet exemple en dessous de 7 K, la mesure concorde avec le modèle AMM. Vers 6 K, les diffusions commencent à apparaître. Avec l'augmentation de la température, les valeurs mesurées se rapprochent de l'estimation du modèle DMM jusqu'à l'atteindre et se stabilise jusqu'à une vingtaine de kelvins. Au-dessus de cette température, les mesures divergent des estimations apportées par les modèles théoriques. Nous allons expliquer la cause de cette divergence dans la partie suivante. On remarquera dans cet exemple le faible écart, en termes de résistivité thermique, entre les deux modèles théoriques, dans le cadre d'une interface à 2 solides, à comparer avec l'écart évoqué dans la partie précédente pour une interface de Kapitza.

Les dimensions des rugosités sont prédominantes dans l'effet diffusif des interfaces. Swartz [Swartz-1989] propose une étude sur l'impact de différents modes de polissage (de l' Al_2O_3) sur l'évolution de la R_{Bd} du couple rhodium / saphir. Lorsque la longueur d'onde dominante des phonons devient comparable à la rugosité (hauteur moyenne des sommets aux vallées de l'interface), les défauts de l'interface ajoutent à la résistivité thermique. Une interface avec une forte rugosité apportera de la diffusion à plus basse température qu'une interface avec une faible rugosité [Bourgeois-2008].

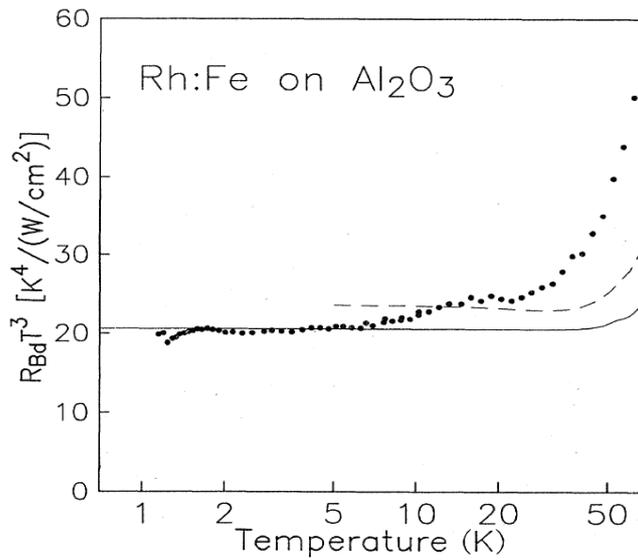


Figure 3-9 Mesure de la résistivité thermique d'interface, normalisée en T^3 , entre le Rhodium (dopé avec du fer) et un substrat de saphir. La ligne continue correspond à l'estimation du modèle AMM et la ligne discontinue au modèle DMM.

c) $T > 20 K$

Lorsque la longueur d'onde dominante des phonons devient du même ordre de grandeur que la distance interatomique ($T > 20 K$), d'autres effets surviennent et ajoutent à la résistance thermique de l'interface. A ces températures, la rugosité de surface, même minime, implique une diffusion de quasiment tous les phonons incidents.

La figure 3-10 présente les mesures réalisées par [Swartz-1987] sur une large gamme de température. La divergence à haute température ne peut pas se résumer à cette seule diffusion de surface. L'augmentation drastique à haute température de la R_{Bd} , est due aux défauts proches de l'interface. Les vides et les défauts de cristallisation de la surface et des premières couches atomiques sous la surface sont les sources principales de la diminution de la dépendance en température et de l'augmentation de la R_{Bd} . A haute température, on retrouve l'impact des défauts de contact et de cristallisation définis précédemment dans le paragraphe 3-4 de ce chapitre. Les joints de grains et les zones de matériau amorphe proches de la surface sont de bons exemples des causes de ce phénomène.

Cela revient à dire que la R_{Bd} décroît, en importance relative, devant la croissance de la résistance thermique des matériaux constituant la couche. Au-delà de 20 K, la longueur d'onde dominante des phonons devient inférieure à la distance interatomique. La résistance mesurée dans ces expériences est l'addition de la résistance thermique due à l'interface et celle due à l'épaisseur de la couche de matériau. De fait, lorsque le matériau comporte des défauts de cristallisation dans sa maille, il verra sa résistivité de couche augmenter rapidement et supplanter l'impact de la résistance thermique d'interface à plus basse température. La conductivité thermique des matériaux a été détaillée précédemment dans la section (2-2) de ce chapitre.

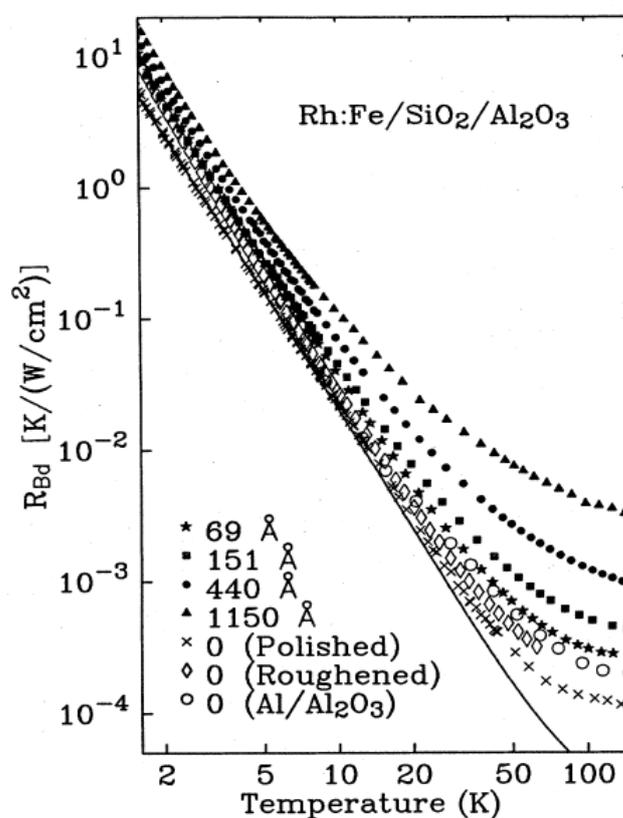


Figure 3-10 Evolution de la résistivité thermique en fonction de l'épaisseur (en Å) de la couche de verre (de silice) insérée dans la liaison entre la couche de rhodium (500nm d'épaisseur) et le substrat de saphir. On représente également la R_{Bd} de l'aluminium déposé sur un substrat de saphir, du rhodium sur substrat de saphir (sans verre) sans polissage puis avec polissage. [Swartz-1989]

Matsumoto [Matsumoto-1977] a également mesuré un phénomène analogue dans un sandwich composé d'une couche de matériau époxy entre deux morceaux de cuivre.

Swartz a démontré avec une étude dédiée que la R_{Bd} est relativisée à haute température par l'ajout d'une couche amorphe de SiO_2 (verre de silice). La figure 3-10 montre l'évolution de la « R_{Bd} » en fonction de l'épaisseur de la couche de verre. Plus l'épaisseur est grande, plus à haute température l'impact des défauts de cristallisation du matériau amorphe sera à l'origine de l'augmentation de la résistivité thermique de la liaison et plus la dépendance en température diminuera ; dans ce cas la résistance thermique du matériau massif domine sur la résistance d'interface.

Pour des températures au-dessus de 100 K, les « résistivités thermiques d'interface » se stabilisent, dans le cas général, vers une dépendance en T^n avec $-1 < n < 0$. Pour cette gamme de température, le libre parcours moyen des phonons est prépondérant dans le mécanisme de transfert thermique à travers la liaison (couches + interfaces). Un modèle théorique appelé théorie des réseaux dynamiques est utilisé pour estimer ces R_{Bd} à haute température. Nous ne développons pas ici ce modèle¹.

¹ Le lecteur intéressé pourra consulter les références [Cahill-2003] et [Stoner-1993].

3-6 Des miroirs thermiques dans les liaisons supraconductrices

Pour revenir au développement des liaisons supraconductrices, nous rappelons que la température d'utilisation est généralement $T < 1$ K dans les dispositifs de détection à haute résolution pour l'observation astronomique. Dans cette gamme de température, les modèles AMM ou DMM sont utilisables pour l'estimation des résistances thermiques d'interfaces.

Le principe des liaisons supraconductrices est fondé sur un empilement d'une alternance de deux couches de matériaux supraconducteurs. Les interfaces entre les couches réalisent l'essentiel de la fonction d'isolation thermique par un principe analogue à un effet miroir pour la lumière. Dans cette partie, nous allons étudier les caractéristiques des matériaux qui pourraient composer les liaisons. Nous donnerons quelques valeurs théoriques de R_{Bd} pour certains couples de matériaux supraconducteurs. Et nous évoquerons les bandes d'arrêt de phonons dans les multicouches.

a) Choix des matériaux supraconducteurs

Avant d'entamer le descriptif des propriétés des matériaux, nous nous intéressons à la possibilité d'utiliser des matériaux supraconducteurs pour réaliser des miroirs à phonons. La référence [Barnes-1963] présente la mesure de la R_{Bd} à l'interface d'un bloc d'étain (Sn, $T_c \sim 3,72$ K) et d'un bloc de cuivre (Cu). La mesure est faite pour l'interface dans le cas où l'étain est supraconducteur, ou à l'état normal¹ pour des températures allant de 1 K à 2 K. En résulte une bonne adéquation avec le modèle de conductivité thermique aux interfaces dans les métaux (développé précédemment dans ce chapitre), dans le cas où l'étain est maintenu à l'état normal. Les mesures de résistance d'interface avec Sn supraconducteur donnent des valeurs expérimentales ($R_{Bd} = 6,45 \cdot T^{-3}$ K·cm²/W) proches de ce qui est estimé par le modèle AMM.

Dans le cadre du choix des matériaux, nous rappelons que la température de transition supraconductrice de chaque matériau doit être la plus haute possible pour limiter la proportion d'électrons résiduels dans le supraconducteur qui transporterait le flux thermique à la température de travail. Nous présentons maintenant différents matériaux qui pourraient être utilisés pour constituer des résistances thermiques d'interfaces.

¹ L'état normal est maintenu à $T < T_c$ par l'application d'un champ magnétique supérieur au champ critique lors de la mesure.

Matériaux	T_c (K)	T_Θ (K)	Densité (g/cm ³)	V_L (km/s)	V_T (km/s)	Réf.
W	0,012	400	19,3	5,2	2,9	c), b)
Mo	0,92	450	10,3	6,5	3,6	e), c), b)
Al	1,2	428	2,7	6,6	3,3	e), c) d)
In	3,4	108	7,47	2,7	0,95	e), c), b)
Sn	3,7	200	7,38	3,5	1,8	e), c) d)
TiN	4,5	580	5,3	8,31	3,59	a), i)
Ta	4,4	240	16,7	4,17	2,08	e), c), b)
Pb	7,2	105	11,6	2,4	1,0	e), c) d)
Nb	9,2	275	8,5	4,13	2,26	e), c), a)
NbN	15,6	330	8,4	5	2	e), h), i)
MgB ₂	40	800	2,6	8,8	5,1	g), k)
YBaCuO	93	440	6,3	4,7	2,45	j), f)

Tableau 3-1 Liste non exhaustive des densités, des vitesses du son en mode longitudinal (V_L) et en modes transverses (V_T), des températures de transition (T_c) et de Debye (T_Θ) de différents matériaux supraconducteurs. Elles sont données à partir des références suivantes : a) déterminées dans ce manuscrit (matériaux déposés sur substrat tungstène), b) [Simmons-1971], c) [Kittel-1983], d) [Kaplan-1979], e) [Roberts-1964], f) [Kuzel-2001], g) [Buzea-2001], h) [Pellan-1990], i) [Gurvitch-1985], j) [Lei-1993], k) [Susner-2009]

Dans le modèle AMM, l'équation (Eq 3.8) indique que la R_{Bd} dépend de deux paramètres (V_L et Γ_{tot}). Avec la figure 3-11 suivante, on remarque que plusieurs paramètres influent sur le coefficient de transmission Γ_{tot} . Le rapport des vitesses du son en mode longitudinal ($V_{2,L} / V_{1,L}$) est celui qui a le plus d'impact sur la diminution de ce coefficient (à minimiser pour augmenter la R_{Bd}). Deux autres moyens permettent une diminution plus faible. Le premier moyen consiste à avoir un rapport des densités ρ_2 / ρ_1 conséquent. Et le second point est le rapport entre les vitesses en mode longitudinal et en mode transverse de chaque matériau ($\eta = V_L / V_T$), ce rapport doit être le plus faible possible.

Dans le cas général, on cherchera à avoir des matériaux avec des impédances acoustiques ($Z = V_L \times \rho$) les plus différentes possibles. Pour ces deux matériaux, leur rapport V_L / V_T sera le plus faible possible.

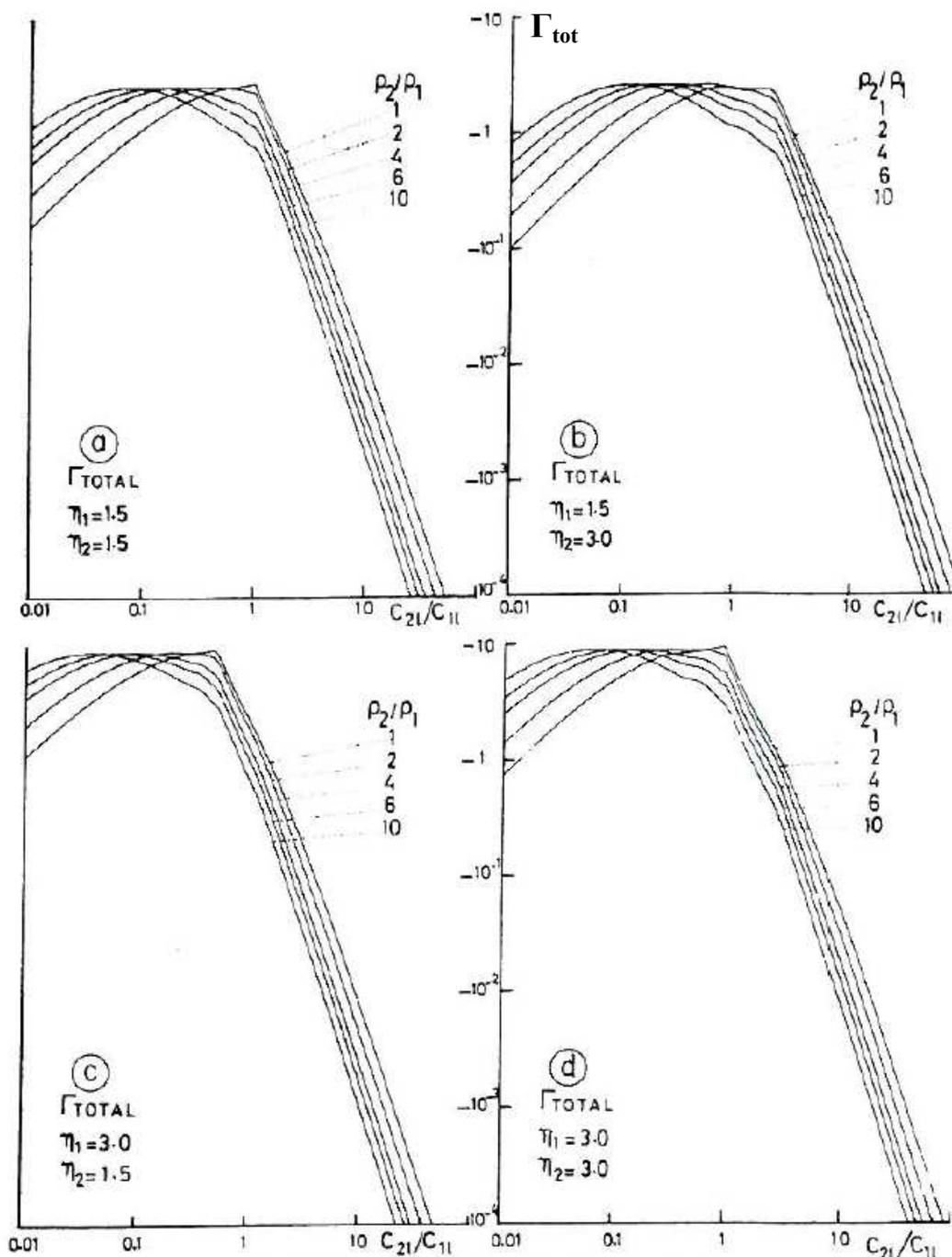


Figure 3-11 Courbes de Γ_{tot} issues de [Cheeke-1976]. On notera que pour les différentes courbes a), b), c) et d) les rapports η_1 et η_2 font évoluer la valeur de Γ_{tot} .

Pour le choix du couple de matériaux que nous avons fait pour la liaison supraconductrice intégrée au démonstrateur, nous avons cherché à obtenir une R_{Bd} importante à partir de supraconducteurs avec des T_c élevées. Notre choix s'est également porté sur des matériaux facilement disponibles pour la fabrication des liaisons supraconductrices avec les techniques de dépôt de couches minces utilisées dans les procédés de microélectronique classiques. Notre choix s'est porté sur deux matériaux facilement accessibles sur notre machine de dépôt qui sont le nitrure de titane (**TiN**) et le niobium (**Nb**).

b) Dimensionnement d'une multicouche

Le principe de la liaison supraconductrice est un empilement de miroirs à phonon réalisant une succession d'interfaces. Rappelons également que nous cherchons à mettre en série les miroirs à phonons afin d'augmenter la résistance thermique de la liaison supraconductrice globale. Pour atteindre cette condition, la longueur d'onde dominante des phonons doit être proche de la dimension d'une période de la multicouche. Si on s'écarte de cette condition, on se confronte principalement à deux effets.

« *Stop-Bands* » ($\lambda \leq 2d$)

Pour la fabrication des démonstrateurs, nous avons choisi de réaliser des couches de matériau avec une épaisseur identique (~ 60 nm par couche). A température définie, les phonons perpendiculaires à l'interface, qui ont une longueur d'onde (λ) deux fois plus grande que l'épaisseur (d) d'une couche, auront une probabilité accrue d'être réfléchi à l'interface, par un effet analogue au miroir de Bragg [Tamura-1988] [Narayanamurti-1979] [Cahill-2003]. Rappelons ici la longueur d'onde dominante λ_{dom} des phonons (Eq 2.8) et introduisons la loi de Bragg.

$$\lambda_{dom} = \frac{h \cdot V_s}{4,25 \cdot k_B \cdot T} \quad \text{et} \quad 2 \cdot d \cdot \sin \theta = n \cdot \lambda \quad (\text{Eq 3.11})$$

Les bandes (en longueur d'onde) de réflexion de phonons vont apparaitre pour différentes longueurs d'onde (tous les $2 \cdot d/n$ avec n entier). Ce sont les « **Stop-bands** » [Koblinger-1987].

Cet effet d'atténuation de la réfraction des phonons n'interviendra que :

- Si les réfractions acoustiques sont prédominantes
- Si l'onde est à l'intérieur du cône d'acceptance
- S'il n'y a pas de changement de mode lors de la transmission
- Et si la longueur d'onde du phonon est en rapport adéquat avec l'épaisseur de la couche (à n entier près)

En application, nous nous attendons à ce que ces effets cohérents soient négligeables. En effet, une sommation des amplitudes réfléchies dans la multicouche reste faible devant l'ensemble des énergies de la distribution de phonons thermiques. Ces effets de « *Stop-Bands* » sont représentés sur la figure 3-12. [Saci-2011] est arrivé à des conclusions similaires sur l'importance de ces effets cohérents dans des multicouches de GaAs. Cette notion de « *Stop-Band* » est utilisée dans les cristaux phononiques¹.

¹ <http://www.femto-st.fr/fr/Diffusion/Une-introduction-aux-cristaux-phononiques-2>

« *Continuum* » ($\lambda \gg 2d$)

Dans le cas où la longueur d'onde des phonons est très grande devant une période de la multicouche, ces phonons (à grande longueur d'onde) ne perçoivent plus les interfaces comme des obstacles, mais considèrent la multicouche périodique comme un continuum, dans lequel la résistance au passage de l'onde serait diminuée. C'est une analogie à notre développement (précédent) sur l'impact des défauts aux interfaces en fonction de la longueur d'onde des phonons, et donc de la température.

Cet effet de continuum est important, c'est lui qui va imposer l'ordre de grandeur des dimensions des couches constituant la multicouche. En fonction de la température de fonctionnement, l'épaisseur devra être ajustée afin de s'affranchir de cet effet de continuum. L'épaisseur des couches doit être proche de la moitié de la longueur dominante des phonons (à température définie).

Rappelons que les phonons de grande longueur d'onde ne transportent que peu d'énergie. Même, si à l'inverse des « stop-bands », cet effet de continuum devrait abaisser la résistance thermique de la multicouche, ces phonons de basse énergie ne devraient que faiblement impacter le fonctionnement de la liaison supraconductrice ; à condition de rester dans un domaine où la longueur d'onde dominante est proche des dimensions des couches.

Cela revient à dire que, plus le système fonctionne à basses températures, et plus l'épaisseur des couches composant la liaison supraconductrice devra être grande.

Cette dimension d'épaisseur de couches sera certainement en concurrence avec l'aspect pratique qui consiste à déposer des couches les plus fines possibles afin de fabriquer des multicouches, avec un nombre important d'interfaces, tout en ayant une épaisseur de liaison limitée.

Notons également qu'il existe une limite basse à l'épaisseur des couches qui est essentiellement fonction des effets perturbant la supraconductivité. Pour s'établir, la supraconductivité nécessite un volume de cohérence (de recouvrement des paires de Cooper) minimal qui ne doit pas être écrasé en deçà de 2 ou 3 mailles cristallines dans les couches de dimensions nanométriques. Il est préconisé de déposer des épaisseurs de couches supérieures à 3 nm.

La figure 3-12 illustre ces différents effets en fonction de plusieurs températures. Nous avons représenté la dimension d'une période de la multicouche (120 nm) et les différentes longueurs d'ondes dominantes des phonons pour les trois températures ; pour ce calcul, nous avons fixé la vitesse du son moyenne dans la multicouche à 6 km/s.

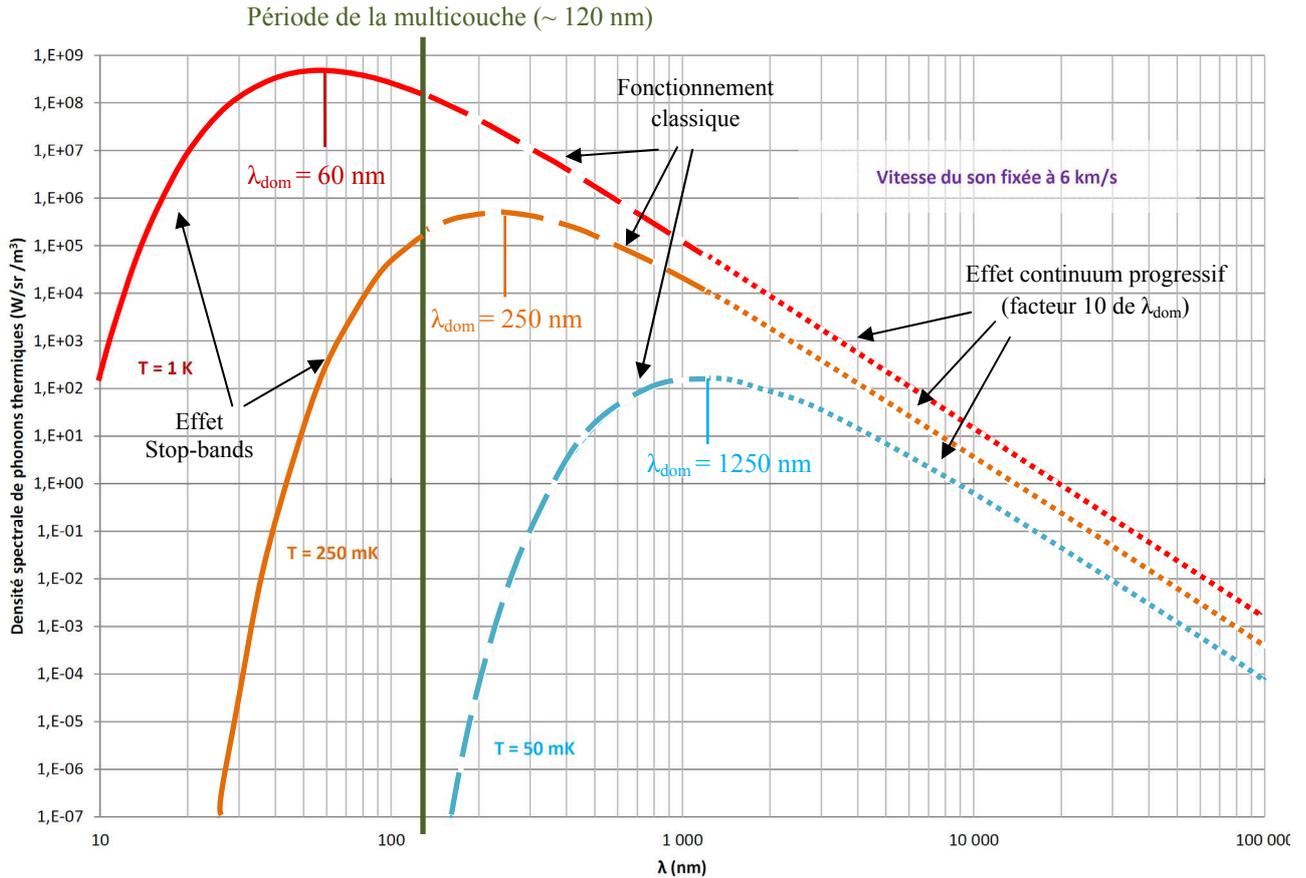


Figure 3-12 Courbes de densité spectrale des phonons à l'équilibre thermique pour trois températures (1 K, 250 mK et 50 mK). Pour une vitesse moyenne d'une multicouche de 6 km/s, on représente les distributions des phonons en fonction de leur longueur d'onde, pour les 3 différentes températures. Pour chaque température la longueur dominante des phonons est donnée. On représente pour cet exemple la dimension d'une période de la multicouche.

Sur la figure 3-12, nous avons représenté l'épaisseur d'une période qui correspond à ce que nous allons réaliser dans les liaisons supraconductrices déposées sur les démonstrateurs. Dans cet exemple, à 1 K, la quasi-totalité des phonons de la densité spectrale subiront les effets d'interface, avec les effets de stop bands ; cet effet ne présente pas une forte incidence sur la résistance thermique. A une température de 250 mK, on retrouve le fonctionnement classique et une plus petite partie présentant des stop-bands, mais si on considère que les effets de continuum ne deviennent progressivement notables qu'à partir d'une longueur d'onde 10 à 100 fois la période d'une multicouche, une partie des phonons de grande longueur d'onde rencontreront moins de résistance thermique d'interface de la part de la multicouche [Bourgeois-2012]. Quoiqu'il en soit, ces phonons de grande longueur d'onde transportent peu d'énergie ; il ne devrait pas y avoir d'incidence à 250 mK sur la mesure à travers la multicouche. A plus basse température (50 mK), une très grande partie des phonons présente une longueur d'onde éloignée de la période de la multicouche. Aux grandes longueurs d'ondes, une partie de ces phonons est à la limite de présenter un rapport 100 entre la longueur d'onde et la période de la multicouche. A cette température, et avec ces épaisseurs de couches, l'effet de continuum commence à prendre de l'importance. A des températures inférieures, on devrait pouvoir observer cet effet sur les mesures de résistances thermiques.

En se plaçant dans l'hypothèse où la dimension des couches est adaptée à la température d'utilisation, on peut fixer, pour la multicouche, le choix du nombre de couches à déposer pour atteindre l'isolation thermique adéquate en fonction de l'application visée. Nous proposons dans le tableau suivant quelques valeurs de résistance thermique d'interface pour différents couples de matériaux. Les résultats sont calculés à partir des modèles détaillés plus tôt dans cette section.

Couple de matériaux	Γ_{tot}^1	AMM - $R_{\text{Bd}} T^3$ ($\text{K}^4 \text{cm}^2/\text{W}$)	DMM - $R_{\text{Bd}} T^3$ ($\text{K}^4 \text{cm}^2/\text{W}$)
Sn - Pb	3,6	1,7	2,0
In - Mo	0,54	6,6	5,9
Al - Ta	2,7	7,9	6,7
TiN - Nb	5,2	6,5	8,0
MgB ₂ - TiN	3,1	12,3	16,7
MgB ₂ - Nb	3,1	12,3	13,1
MgB ₂ - NbN	3,2	11,9	12,7
In - W	0,55	6,5	4
In - Nb	1,4	2,6	2,6
W - Nb	1,9	4,5	5,7
Al – diamant *	0,25	76,6	67,6
He – Cu **	$\sim 6 \cdot 10^{-5}$	~ 500	2,73

Tableau 3-2 Différentes valeurs de résistivité thermique d'interface pour différents couples de matériaux supraconducteurs (sauf * et **). La dernière ligne est la valeur classique pour le couple He – Cu de la résistance de Kapitza

Nous n'avons pas cherché à optimiser le couple de matériaux sur le seul critère de la désadaptation acoustique, nous rappelons que le choix s'est porté sur le TiN et le Nb pour réaliser un compromis entre plusieurs problématiques. Nous verrons dans le chapitre IV que les vitesses du son sont en partie dépendantes de l'environnement de fabrication des couches de matériaux en couches minces. Les valeurs de R_{Bd} (Tableau 3-2) présentées dans cette section seront à ajuster en fonction des vitesses du son mesurées pour chaque matériau avec des caractéristiques proches de celles que les couches minces pourront présenter dans la multicouche.

¹ Estimé à partir des tables de [Cheeke-1976] et des propriétés répertoriées dans le tableau 3-1.

Faisons une estimation du nombre de couches nécessaires à chaque liaison dans le cas précis du futur détecteur XMS. Rappelons que pour une matrice du plan matriciel, la puissance frigorifique (Φ) rendue disponible par le cryostat embarqué est de 250 nW. La matrice du plan matriciel est composée de ~ 4000 pixels. Posons l'hypothèse (réaliste) que chacun des ~ 8000 plots (ronds) d'interconnexion ont un diamètre de 20 μm . La température de la plaque chaude est de 250 mK et celle du plan matriciel doit être maintenue à 50 mK.

Nous prenons pour hypothèse que chaque interface (N nombre d'interfaces) apporte une résistance thermique à la multicouche (de surface S), soit $R_{\text{th}} = N \times R_{\text{Bd}} / S$

Avec l'ensemble de ces données, on peut calculer le nombre minimum d'interfaces (N) que devra comporter la multicouche pour assurer une isolation thermique convenable selon le critère de flux limite. Pour cet exemple, nous prenons pour hypothèse que la R_{Bd} est égale à 6,5 $\text{K}^4\text{cm}^2/\text{W}$. Comme les températures d'utilisation sont inférieures à 1 K, nous utilisons l'estimation issue du modèle AMM.

$$N > \frac{A \cdot 8000}{\Phi} \int_{T_1}^{T_2} \frac{dT}{R_{\text{Bd}}(T)} \quad N > 15 \quad (\text{Eq 3.12})$$

Des jonctions composées alternativement de 8 couches de TiN et de 8 couches de Nb (soit 8 bicouches) rempliront cette fonction d'isolation thermique entre le plan matriciel et l'étage de l'électronique de lecture (à 250 mK). Les interfaces des dernière et première couches de la liaison avec les autres parties de l'interconnexion ajouteront à l'isolation thermique du système (mais elles seront d'une valeur négligeable).

Si on fixe l'épaisseur des couches à 50 nm, la hauteur de la liaison supraconductrice (du même diamètre que le plot de reprise de contact) ne serait que de 800 nm d'épaisseur. On aura bien réalisé l'intégration de la fonction d'isolation thermique en une brique technologique miniaturisée et insérable dans chaque interconnexion. La fabrication de cette brique technologique peut être introduite dans le déroulement d'un procédé de microélectronique et n'apporterait qu'un surcoût mineur, dans la mesure où, elle serait intégrée dans un processus commun de fabrication.

c) Impact de la qualité des interfaces

Avec les matériaux que nous avons choisis (TiN et Nb), l'impact de la rugosité ne pourrait être que bénéfique ($R_{DMM} > R_{AMM}$) pour l'isolation thermique. Dans la suite de ce manuscrit, nous tâcherons d'estimer la rugosité afin de tirer des conclusions sur les évolutions des courbes de résistance thermique que nous avons mesurées sur le démonstrateur.

Dans la gamme de température où fonctionne le détecteur XMS (250 mK – 50 mK), la qualité des interfaces dans les liaisons supraconductrices ne devrait pas apporter beaucoup de diffusion. Il faut toutefois prendre garde à ce que la rugosité n'ait pas une taille trop importante et que les imperfections de contact ne soient pas en trop grand nombre.

Si pour l'utilisation de ces liaisons, un autre couple de matériaux avait été choisi avec un rapport R_{DMM} / R_{AMM} faible, la qualité des interfaces serait à étudier avec attention, d'autant plus que la température d'utilisation serait haute.

Un autre effet d'interface pourrait perturber l'isolation thermique de la liaison : l'inter-diffusion. Imaginons qu'un des deux matériaux composant l'interface migre dans le second. L'interface serait moins bien définie dans cet alliage et les phonons verraient des propriétés acoustiques s'adapter à l'approche de l'interface au lieu d'observer une brisure franche d'impédance acoustique. **L'inter-diffusion** à l'interface serait une cause de diminution de la résistivité thermique d'interface.

Nous avons choisi pour former la liaison supraconductrice des **matériaux réfractaires**, pour diminuer l'inter-diffusion entre les couches. Dans les matériaux réfractaires, l'énergie nécessaire à la migration de l'un des matériaux dans son voisin est grande. La famille des matériaux réfractaires est (généralement) composée des éléments des colonnes 4 à 5 du tableau périodique, les nitrures de ces éléments sont aussi réfractaires [Pierson-1996].

3-7 Constantes et modules élastiques

Nous nous proposons ici de définir succinctement les différentes constantes et modules élastiques qui seront utilisés dans la suite de ce manuscrit. Nous nous limiterons à donner les relations générales valables pour des matériaux de symétrie isotrope (2 constantes élastiques indépendantes), cubique (3 constantes élastiques indépendantes) ou hexagonale (5 constantes élastiques indépendantes). Il faut noter que les matériaux étudiés dans ce travail (ex : TiN et Nb) ont une structure cristalline cubique et donc une symétrie élastique cubique. Cependant, le même matériau, polycristallin, pourra avoir une symétrie élastique « effective », hexagonale ou isotrope, selon s'il possède une texture cristallographique ou non.

L'élasticité est basée sur la loi de Hooke définissant la déformation ε en fonction de la contrainte σ .

$$\sigma = M\varepsilon$$

M désigne le tenseur des constantes élastiques et contient les constantes c_{ij} en notation matricielle de Voigt dans une matrice 6x6. Pour un matériau isotrope, nous pouvons définir deux modules élastiques indépendants [Francois-2009] :

$$\lambda = c_{12} \text{ (module de Lamé);} \quad c_{11} = c_{22} = c_{33} = \lambda + 2\mu ;$$

$$c_{66} = c_{55} = c_{44} = (c_{11} - c_{12})/2 = \mu \text{ (module de cisaillement);}$$

$$E = \mu \frac{3\lambda + 2\mu}{\lambda + \mu} \text{ (module de Young ou module d'élasticité longitudinale);}$$

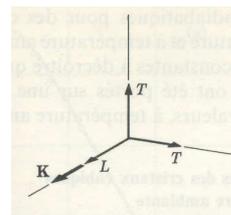
$$k = \lambda + \frac{2\mu}{3} \text{ (module de compressibilité);} \quad \nu = \frac{\lambda}{2(\lambda + \mu)} \text{ (coefficient de Poisson);}$$

Le module de Young caractérise la déformation parallèlement à une contrainte en traction (étirement), alors que pour le module de cisaillement c'est une contrainte en cisaillement qui est appliquée. Le module de compressibilité informe sur la capacité du matériau à se comprimer lors d'une pression externe isostatique. Le coefficient de Poisson retranscrit la contraction de la matière perpendiculairement à la contrainte en traction appliquée¹.

Les différentes constantes élastiques c_{11} , c_{12} et c_{44} ainsi que la masse volumique ρ des matériaux permettent de retranscrire les vitesses du son suivant le mode longitudinal (V_L) et transverse (V_T) dans les cristaux cubiques (cas d'un monocristal) [Kittel-1970]. Les expressions des vitesses sont différentes en fonction de la direction du plan de propagation. Dans le cas d'un matériau monocristallin à structure cubique, le tenseur d'élasticité ne présente que 3 constantes élastiques non nulles : $c_{11} = c_{22} = c_{33}$; $c_{13} = c_{23} = c_{12}$; $c_{44} = c_{55} = c_{66}$.

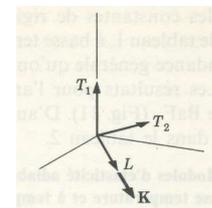
¹ Lorsque $\nu = 0,33$ alors on a $V_T = 0,5 V_L$

Dans la direction [100] → $V_L = \sqrt{\frac{c_{11}}{\rho}}$ $V_T = \sqrt{\frac{c_{44}}{\rho}}$

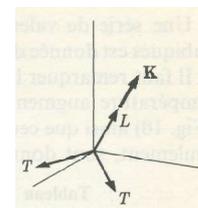


Dans la direction [110] → $V_L = \sqrt{\frac{1}{2} \cdot \frac{c_{11} + c_{12} + c_{44}}{\rho}}$

$V_{T_1} = \sqrt{\frac{c_{44}}{\rho}}$ $V_{T_2} = \sqrt{\frac{1}{2} \cdot \frac{c_{11} - c_{12}}{\rho}}$



Dans la direction [111] → $V_L = \sqrt{\frac{1}{3} \cdot \frac{c_{11} + 2 \cdot c_{12} + 4 \cdot c_{44}}{\rho}}$



$V_T = \sqrt{\frac{1}{3} \cdot \frac{c_{11} - c_{12} + c_{44}}{\rho}}$

Dans le cas d'un matériau polycristallin présentant une texture, composé de cristallites à structure cubique, la symétrie résultante est cylindrique : la direction de texture est considérée identique pour tous les cristallites, alors que les autres directions dans le plan sont considérées aléatoires (isotropie transverse). On assimile cette symétrie résultante à une symétrie cylindrique [Djemia-1998]. Les 5 constantes élastiques effectives indépendantes sont notées C_{ij} .

$C_{11} = C_{22}$; C_{12} ; $C_{13} = C_{23}$; C_{33} ; $C_{44} = C_{55}$;

$C_{66} = \frac{1}{2} \cdot (C_{11} - C_{12})$ (condition d'isotropie dans le plan)

Dans la direction [001] → $V_L = \sqrt{\frac{C_{33}}{\rho}}$ $V_T = \sqrt{\frac{1}{2} \cdot \frac{C_{11} - C_{12}}{\rho}}$

Dans la direction [100] → $V_L = \sqrt{\frac{C_{11}}{\rho}}$ $V_{T_1} = \sqrt{\frac{C_{44}}{\rho}}$

$V_{T_2} = \sqrt{\frac{1}{2} \cdot \frac{C_{11} - C_{12}}{\rho}}$

Conclusion:

Notre étude s'inscrit dans la continuité des premières avancées introduites par Kapitza en 1941, lorsqu'il a observé une discontinuité de température entre la surface d'un solide et de l'hélium liquide et qu'il a observé un flux thermique traverser l'interface entre ces deux milieux. Nous reprenons le formalisme de Little (1959) utilisé pour décrire un phénomène similaire à celui de Kapitza mais pour une interface entre deux solides. Ce développement a été repris par Cheeke en 1976 et par Swartz en 1989 pour faciliter l'estimation de la résistance thermique d'interface. De notre point de vue, nous appliquons ce développement théorique à des interfaces composées de différentes couches de matériaux composant la liaison supraconductrice.

En plus de la fonction de miroir à phonons, la liaison doit assurer une excellente conductivité électrique. Cette fonction est permise par l'état supraconducteur des matériaux composant la liaison. En dessous de la température de transition supraconductrice, une majorité des électrons s'assemble par paires. Les paires de Cooper n'échangent et ne transportent pas l'énergie. Dans notre application, la supraconductivité présente deux propriétés intéressantes : la conduction électrique parfaite et la médiocre conductivité thermique. Cette concordance est à l'opposé de ce qui est classiquement connu dans les métaux, dont la loi de Wiedemann-Franz est une illustration.

Du fait de la très faible épaisseur des couches composant la liaison supraconductrice, la conductivité thermique dans la couche est négligeable dans notre application. La presque intégralité de la résistance thermique est due aux miroirs à phonons empilés les uns sur les autres, constituant la fonction d'isolation thermique.

Bibliographie du Chapitre II

[Anderson-1964]: A. C. Anderson, J. I. Connolly, J. C. Wheatley, « Thermal Boundary Resistance between Solids and Helium below 1 K », *Phys. Rev.*, Vol. 135, N. 4A, p 910-921, (1964)

[Ashcroft-2002]: N. W. Ashcroft et N. D. Mermin, « Physique des solides », *Solid State Physics*, EDP Science, (2002)

[Bardeen-1957]: J. Bardeen, L. N. Cooper, J. R. Schrieffer, « THEORY OF SUPERCONDUCTIVITY », *Phys. Rev.*, Vol. 108, N. 5, p 1175-1204, (1957)

[Barnes-1963]: L. J. Barnes, J. R. Dillinger, « THERMAL BOUNDARY RESISTANCE BETWEEN SOME SUPERCONDUCTING AND NORMAL METALS », *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 10, N. 7, p 287-289, (1963)

[Bednorz-1986]: J. G. Bednorz, K. A. Müller, « Possible High T_c Superconductivity in the Ba-La-Cu-O System », *Z. Phys. B, Condensed Matter*, Vol. 64, p 189-193, (1986)

[Berman-1952]: R. Berman, D. K. C. MacDonald, «The thermal and electrical conductivity of copper at low temperatures », *Proc. Royal Soc. London*, Vol. 211, N. 1104, p 122-128, (1952)

[Berman-1955]: R. Berman, E. L. Foster, J. M. Ziman, « Thermal conduction in artificial sapphire crystals at low temperatures », *Proc. R. Soc. Lond.*, Vol. 231, p 130-144, (1955)

[Blevin-1970]: W. R. Blevin, W. J. Brown, « A Precise Measurement of the Stefan-Boltzmann Constant », *Metrologia*, Vol. 7, N. 1, p 15-29, (1971)

[Bourgeois-2008]: O. Bourgeois, HDR : « Thermique et Thermodynamique des Nanosystèmes », Institut Néel, CNRS, (2008)

[Bourgeois-2012]: O. Bourgeois, chercheur au CNRS, communication orale, (2012)

[Buzea-2001]: C. Buzea, T. Yamashita, « Review of superconducting properties of MgB_2 », *Supercond. Sci. Technol.*, Vol. 14, (2001)

[Cahill-2003]: D. G. Cahill, W. K. Ford, K. E. Goodson, G. D. Mahan, A. Majumdar, H. J. Maris et al., « Nanoscale thermal transport », *Jour. App. Phys. Rev.*, Vol. 93, N. 2, p 793-818, (2003)

[Casimir-1938]: H. B. G. Casimir, « NOTE ON THE CONDUCTION OF HEAT IN CRYSTALS », *Physica*, Vol. 5, N. 6, p 495-500, (1938)

[Chandrasekhar-1969]: B. S. Chandrasekhar, « Early Experiments and Phenomenological Theories », *Superconductivity*, Vol. 1, R. D. Parks, (1969)

[Cheeke-1973]: J. D. N. Cheeke, B. Hebral, C. Martinon « Transfert de chaleur entre deux solides en dessous de 100 K », journal de physique, Vol. 34, N. 2-3, p 257-272, (1973)

[Cheeke-1976]: J. D. N. Cheeke, H. Ettinger, B. Hebral, « Analysis of heat transfer between solids at low temperatures », Can. Jour. Phys., Vol. 54, p 1749-1771, (1976)

[Cooper-1956]: L. N. Cooper, « Bound Electron Pairs in a Degenerate Fermi Gas », Phys. Rev., Vol. 104, N. 4, p 1189-1190, (1956)

[Corak-1954]: W. S. Corak, B. B. Goodman, C. B. Satterthwaite, A. Wexler, « Exponential temperature dependence of the electronic specific heat of superconducting vanadium », Phys. Rev., Vol. 96, N. 5, p 1442-1444, (1954)

[Diu-1989]: B. Diu, D. Lederer, B. Roulet, « Eléments de physique statistique », Hermann, (1989)

[Djemia-1998]: P. Djemia, Thèse de doctorat : « Diffusion Brillouin dans des Couches et Multicouches Ultraminces », Université Paris-Nord, CNRS, (1998)

[Folinsbee-1974]: J. T. Folinsbee, A. C. Anderson, « The Kapitza Resistance to a Variety of Metallic Surfaces Below 0.3 K », Journ. Low Temp. Phys., Vol. 17, N. 5/6, p 409-424, (1974)

[Francois-2009]: D. François, « Elasticité et plasticité », Hermes, Lavoisier, (2009)

[Goupy-2012]: J. Goupy, C. Pigot, J. C. Villégier, J. L. Sauvageot, Brevet : « Dispositif de connexion électrique multicouche de matériaux supraconducteurs entre deux circuits », N° 12 53890, (2012)

[Gurvitch-1985]: M. Gurvitch, J. P. Remeika, J. M. Rowell, J. Geerk, W. P. Lowe, « TUNNELING, RESISTIVE AND STRUCTURAL STUDY of NbN and other SUPERCONDUCTING NITRIDES », IEEE Trans. Magnetics, Vol. Mag-21, N. 2, p 509-513, (1985)

[Heron-2009] : J. S. Heron, Thèse de doctorat : « Transport des phonons à l'échelle du nanomètre », Institut Néel, CNRS, (2009)

[Khalatnikov-1952]: I. M. Khalatnikov, « Heat exchange between a solid body and He-II », Zh. Eksp. Teor. Fiz., Vol. 22, N. 6, p 667-704, (1952)

[Kapitza-1941]: P. L. Kapitza, « Heat Transfer and Superfluidity of Helium II », Phys. Rev., Vol. 60, p 354-355, (1941)

[Kaplan-1979]: S. B. Kaplan, « Acoustic Matching of Superconducting Films to Substrates », Journ. Low Temp. Phys., Vol. 37, N. 3/4, p 343-365, (1979)

[Kittel-1970]: C. Kittel, « Introduction à la physique de l'état solide », Dunod Paris, 2^e édition, (1970)

- [Kittel-1983]:** C. Kittel, « Physique de l'état solide », Dunod Université, 5^e édition, (1983)
- [Klitsner-1987]:** T. Klitsner, R. O. Pohl, « Phonon scattering at silicon crystal surfaces », Phys. Rev. B, Vol. 36, N. 12, p 6551-6565, (1987)
- [Koblinger-1987]:** O. Koblinger, J. Mebert, E. Dittrich, S. Döttinger, W. Eisenmenger, « Phonon stop bands in amorphous superlattices », Phys. Rev. B, Vol. 35, N. 17, p 9372-9375, (1987)
- [Kürti-1936]:** N. Kürti, B. V. Rollin, F. Simon, « Preliminary experiments on temperature equilibria at very low temperatures », Physica, Vol. 3, N. 1-4, p 266-274, (1936)
- [Kuzel-2001]:** P. Kuzel, C. Dugauthier, P. Moch, « Comparative study of hypersonic propagation in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals and thin films », J. Phys. Condens. Matter, Vol. 13, p 167-175, (2001)
- [Lei-1993]:** M. Lei, J. L. Sarrao, W. M. Visscher, T. M. Bell, J. D. Thompson, A. Migliori, U. W. Welp, B. W. Veal, « Elastic constants of a monocrystal of superconducting YBaCuO », Phys. Rev. B, Vol. 47, N. 10, p 6154-6156, (1993)
- [Little-1959]:** W. A. Little, « The Transport of Heat Between Dissimilar Solids at Low Temperatures », Can. J. Phys., Vol. 37, N. 3, p 334-349, (1959)
- [Matsumoto-1977]:** D. S. Matsumoto, C. L. Reynolds, Jr., A. C. Anderson, « Thermal boundary resistance at metal-epoxy interfaces », Phys. Rev. B, Vol. 16, N. 8, p 3303-3307, (1977)
- [Narayanamurti-1979]:** V. Narayanamurti, H. L. Störmer, M. A. Chin, A. C. Gossard, W. Wiegmann, « Selective Transmission of High-Frequency Phonons by a Superlattice : The "Dielectric" Phonon Filter », Phys. Rev. Lett., Vol. 43, N. 27, p 2012-2016, (1979)
- [Pellan-1990]:** Y. Pellan, G. Dousselin, J. Pinel, Y. U. Sohn, « Temperature and Magnetic Field Dependence of NbN Film Resistivity: 3D Weak Localization Effects », J. Low Temp. Phys., Vol. 78, N. 1/2, p 63-77, (1990)
- [Perinati-2008]:** E. Perinati, M. Barbera, S. Varisco, E. Silver, J. Beeman, C. Pigot, « Experimental evidence of an incomplete thermalization of the energie in an X ray microcalorimeter with a Ta/Au absorber », Rev. Scient. Instr., Vol. 79, N. 053905, (2008)
- [Peterson-1973]:** R. E. Peterson, A. C. Anderson, « The Kapitza Thermal Boundary Resistance », Jour. Low Temp. Phys., Vol. 11, N. 5/6, p 639-665, (1973)
- [Pierson-1996]:** H. O. Pierson, « Handbook of Refractory Carbides and Nitrides », Noyes Publications, (1996)
- [Roberts-1964]:** B. W. Roberts, « Superconductive materials and some of their properties », General Electric Research laboratory, Schenectady, N.Y., USA, (1963)

[Saci-2011]: A. Saci, Thèse de doctorat : « Transport thermique dans les milieux nano-structurés (GaAs)_n/(AlAs)_n », INSP, CNRS, (2011)

[Satterthwaite-1962]: C. B. Satterthwaite, « Thermal Conductivity of Normal and Superconducting Aluminum », Phys. Rev., Vol. 125, N. 3, p 873-876, (1962)

[Simmons-1971]: G. Simmons, H. Wang, « Single Crystal Elastic Constants and Calculated Aggregate Properties », The M.I.T Press, Second edition, (1971)

[Stoner-1993]: R. J. Stoner, H. J. Maris, « Kapitza conductance and heat flow between solids at temperatures from 50 to 300 K », Phys. Rev. B, Vol. 48, N. 22, p 16373-16387, (1993)

[Susner-2009]: M. A. Susner, M. Bhatia, M. D. Sumption, E. W. Collings, « Electrical resistivity, Debye temperature, and connectivity in heavily doped bulk MgB₂ superconductors », J. App. Phys., Vol. 105, N. 103916, (2009)

[Swartz-1987]: E. T. Swartz, R. O. Pohl, « Thermal resistance at interfaces », Appl. Phys. Lett., Vol. 51, N. 26, p 2200-2202, (1987)

[Swartz-1989]: E. T. Swartz, R. O. Pohl, « Thermal boundary resistance », Rev. Mod. Phys., Vol. 61, N. 3, p 605-668, (1989)

[Tamura-1988]: S. Tamura, D. C. Hurley, J. P. Wolfe, « Acoustic-phonon propagation in superlattices », Phys. Rev. B, Vol. 38, N. 2, p 1427-1449, (1988)

[Wagner-1971]: D. K. Wagner, J. C. Garland, R. Bowers, « Low-Temperature Electrical and Thermal Resistivities of Tungsten », Phys. Rev. B, Vol. 3, N. 10, p 3141-3149, (1971)

[Weis-1969] O. Weis, « Thermal Phonon Radiation », Z. Angew. Phys., Vol. 26, p. 325-334, (1969)

[Weis-1986] O. Weis, « Phonon Radiation across Solid/Solid Interfaces within the Acoustic Mismatch Model », Nonequilibrium Phonons in Nonmetallic Crystals, W. Eisenmenger and A. A. Kaplyanskii, p 1-50, (1986)

[Wu-1987]: M. K. Wu, J. R. Ashburn, C. J. Torng, P. H. Hor, R. L. Meng, L. Gao, Z. J. Huang, Y. Q. Wang, C. W. Chu, « Superconductivity at 93 K in a New Mixed-Phase Y-Ba-Cu-O Compound System at Ambient Pressure », Phys. Rev. Lett., Vol. 58, N. 9, p 908-910, (1987)

[Zeller-1971]: R. C. Zeller, R. O. Pohl, « Thermal Conductivity and Specific Heat of Noncrystalline Solids », Phys. Rev. B, Vol. 4, N. 6, p 2029-2041, (1971)

Chapitre III: Conception de liaisons supraconductrices à forte résistance thermique à base d'interfaces TiN/Nb

Dans ce chapitre, nous détaillons les moyens et les matériaux utilisés pour la mise en œuvre des démonstrateurs pour la mesure de la résistivité thermique des liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique.

Toute une série de caractérisations ont été réalisées sur les couches simples de chaque matériau afin d'en extraire les caractéristiques nécessaires à l'estimation de la résistivité thermique surfacique des interfaces dans la liaison. Plusieurs échantillons spécifiques composés d'une monocouche ou d'une bicouche ont été fabriqués dans cette optique.

A la fin de ce chapitre, le procédé de fabrication et d'assemblage du démonstrateur est détaillé. Le début du chapitre met en avant le principe de dépôt selon lequel les couches sont déposées et les substrats que nous avons utilisés pour nos différents échantillons. Dans le chapitre suivant, nous verrons que les trois types de substrats utilisés dans notre étude, ont un impact sur la microstructure des couches déposées sur ceux-ci.

1- Les dépôts par pulvérisation cathodique	113
1-1 Principe	113
1-2 Structure des films déposés.....	115
1-3 Dépôt réactif de TiN	117
2- Les différents substrats utilisés.....	119
2-1 Substrats Si et Al ₂ O ₃	119
2-2 Substrat W.....	120
3- Echantillons spécifiques pour les caractérisations physico-chimiques du Ti_{1-x}N_x et du Nb	123
3-1 Les différents échantillons réalisés	123
3-2 Mesure d'épaisseur	126
4- Fabrication des liaisons supraconductrices	128
4-1 Structure du démonstrateur	128
4-2 Réalisation des liaisons	129
5- Assemblage du démonstrateur par hybridation	134
5-1 Assemblage par thermo-compression	134
5-2 Assemblage par fusion de la brasure suivie d'une force d'appui	135
5-3 Assemblage par hybridation avec une régulation en Z.....	136
Bibliographie du Chapitre III	141

1- Les dépôts par pulvérisation cathodique

Il existe plusieurs méthodes permettant le dépôt de films minces de matériaux sur un substrat. Les deux grandes catégories de dépôt sont les dépôts chimiques et les dépôts physiques. Les dépôts physiques fonctionnent principalement soit par évaporation soit par pulvérisation.

La pulvérisation cathodique est détaillée dans ce paragraphe. Elle sera utilisée pour la fabrication de liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique. Nous avons choisi cette technique de dépôt pour deux raisons majeures. Les matériaux que nous souhaitons réaliser en couche mince étaient tous disponibles sur la machine de pulvérisation cathodique. La grande disponibilité de la machine était compatible avec notre étude dont le développement nécessitait un temps conséquent d'utilisation machine.

1-1 Principe

La pulvérisation cathodique peut être mise en œuvre soit dans la configuration dite de « diode » : le plasma est établi par une différence de potentiel entre deux électrodes (la cible et le substrat), soit par des techniques utilisant une source de plasma externe.

Dans notre cas l'effet diode est réalisé en courant continu appliqué. C'est le cas le plus répandu pour les dépôts de matériaux métalliques. Mais il existe un fonctionnement avec une tension alternative à une fréquence de quelques MHz. Ce cas est appliqué au dépôt des matériaux isolants pour éviter une auto-polarisation de la cible bloquant le courant continu.

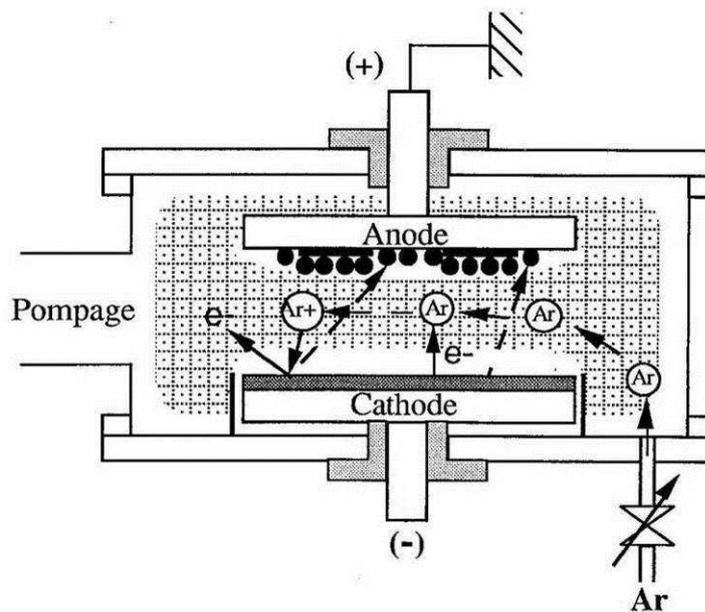


Figure 1-1 Schéma de principe de la pulvérisation cathodique. L'anode est utilisée comme porte-substrat et la cathode est connectée à l'alimentation électrique de puissance

Un champ électrique est appliqué entre les deux électrodes sous pression réduite, le gaz de travail (ici l'argon : Ar) est ionisé par l'éjection d'un électron de la couche périphérique, une décharge électroluminescente (ou plasma) est créée. Un courant électrique s'établit entre les deux électrodes, il y a déplacement des électrons vers l'anode (porte substrat) et des ions positifs accélérés par effet du champ électrique vers la cathode (cible à pulvériser). On observe un recouvrement du substrat par le matériau constituant la cible (en l'absence d'autre gaz réactif dans le plasma). Cet effet fut observé pour la première fois par Grove en 1852 [Grove-1852].

L'effet de pulvérisation est lié à l'impact des ions du gaz de travail avec la surface de la cible. Plusieurs interactions des ions avec la surface du matériau cible sont possibles.

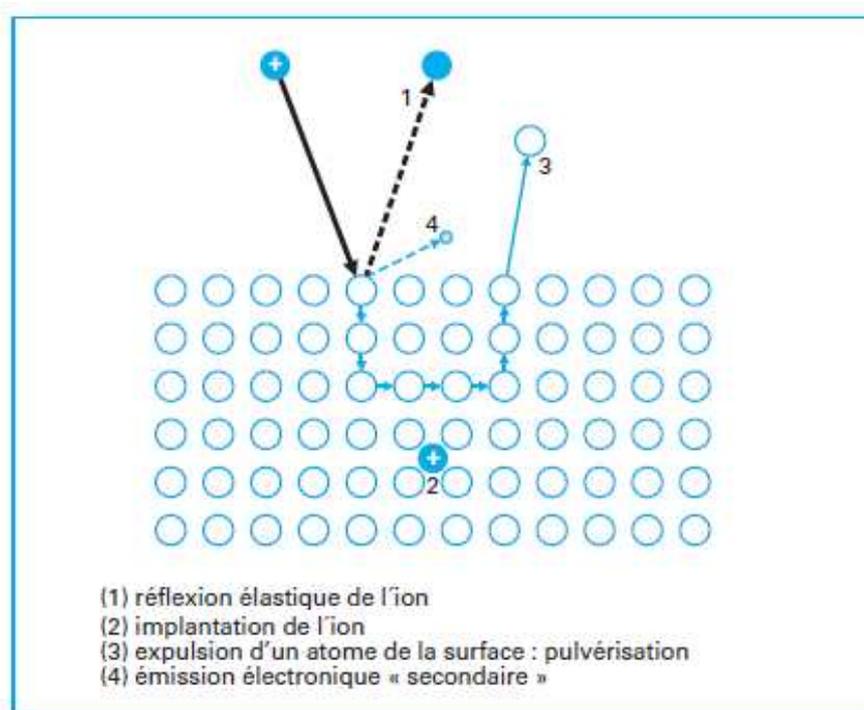


Figure 1-2 Interactions des ions avec la surface de la cible bombardée

Ce qui nous intéresse, ce sont les atomes éjectés de la cible par pulvérisation (interaction 3 sur la figure ci-dessus). Aux énergies d'utilisation, l'interaction entre les ions incidents et les atomes de la cible peut être vue comme une suite de collisions binaires de type « boules de billard » : L'éjection des atomes de la cible est due à un choc mécanique [Sigmund-1969] et [Stark-1909]. La modélisation par Monte-Carlo simule bien le processus de pulvérisation cathodique (TRIM.SP).

Les atomes pulvérisés de la cible se déposent dans l'enceinte et donc sur le substrat en regard de la cible. La nucléation commence par former des îlots, puis la coalescence de ces îlots finit par former une couche continue de matière.

1-2 Structure des films déposés

La structure des films minces n'est en général pas aussi uniforme et homogène que dans un matériau massif bien cristallisé. La microstructure formée lors du dépôt dépend essentiellement de la température et de la pression du gaz de travail (Ar dans notre cas), et dans une moindre mesure de l'épaisseur totale de la couche.

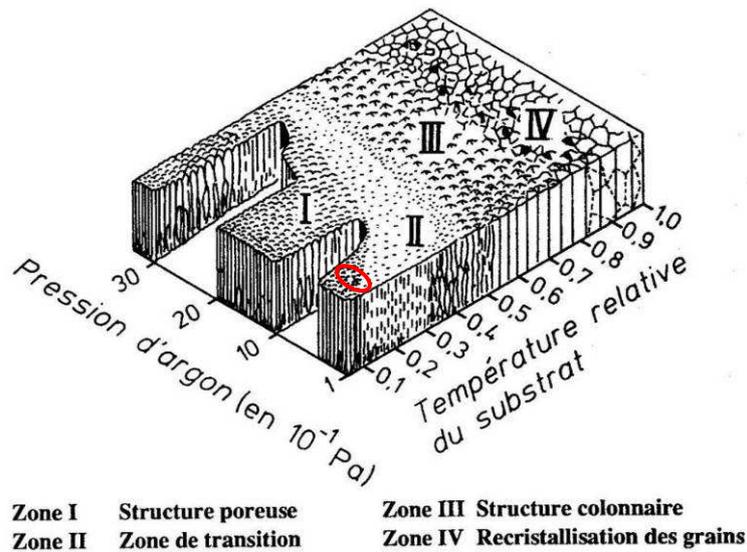


Figure 1-3 Structure de couches minces pulvérisées en fonction des conditions lors du dépôt [Movchan-1969].

La température relative du substrat est exprimée par le rapport T / T_M avec $T(K)$ la température du substrat et $T_M (K)$ la température de fusion du matériau.

Dans notre cas, nous ne pouvons qu'estimer la région dans laquelle se trouvent les dépôts de TiN et Nb sans toutefois connaître avec précision la température du substrat pendant le dépôt. Lors de l'un de nos dépôts, la température était approximativement comprise entre 320 K et 400 K, et la structure du dépôt se situait à la limite des régions I et II sur la figure 1-3 (cercle rouge)¹:

- Pour le Nb : $P_{Ar} = 0,3 \text{ Pa}$; $T_M = 2750 \text{ K}$;

- Pour le TiN : $P_{Ar} = 0,2 \text{ Pa}$; $T_M = 3200 \text{ K}$

Sur la figure 1-3 on voit que si on cherche à obtenir une couche homogène et à gros grains cristallins, il faudra faire le dépôt sur un substrat chauffé à haute température. Une autre possibilité serait de faire un recuit à forte température après un dépôt à faible température.

¹ 1 Torr = 1,33 mbar = 133 Pa

La machine utilisée pour réaliser les dépôts de nos couches minces à la PTA (Plateforme Technologique Amont), au CEA de Grenoble, est une machine de pulvérisation DC magnétron. L'ajout d'un champ magnétique à la pulvérisation classique, lors du dépôt, permet l'augmentation de la vitesse de dépôt et la diminution de la température pendant la pulvérisation. La technique basée sur l'effet magnétron est la superposition d'un champ magnétique perpendiculaire au champ électrique. Ainsi les électrons s'enroulent autour des lignes de champ magnétique, alors que les ions impactent directement sur la cathode sans être perturbés par le champ magnétique grâce à leur masse élevée. Les électrons sont piégés au voisinage de la cible pour augmenter le taux d'ionisation. C'est un effet de confinement.

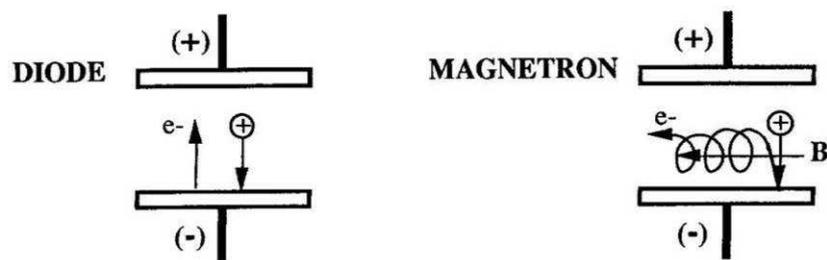


Figure 1-4 Principe du magnétron

1-3 Dépôt réactif de TiN

Il est possible de déposer une couche de type céramique telle que TiN par pulvérisation cathodique magnétron [Billard-2005]. L'introduction d'un gaz réactif, l'azote (N) dans notre cas, lors du dépôt permet la conversion de la surface métallique de la cible en un composé nitruré. Lorsque les ions argons pulvérisent la surface de la cible, les atomes provenant du gaz réactif sont éjectés et associés aux atomes du métal. On forme ainsi sur le substrat une couche de nitrure TiN avec une stœchiométrie (rapport Ti / N) dépendant du débit de gaz réactif dans la chambre.

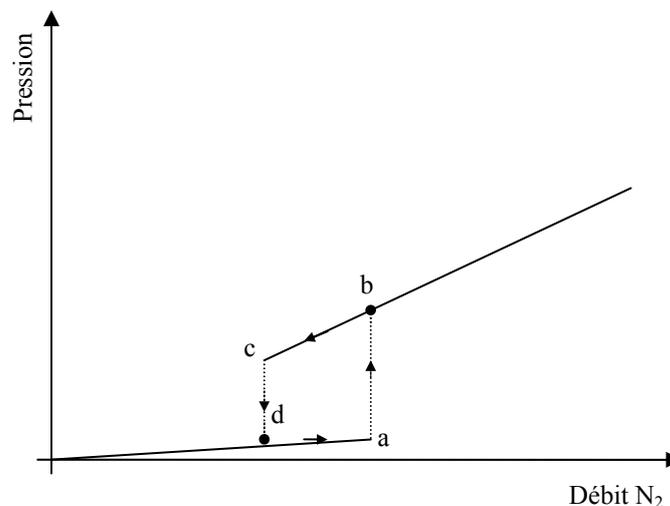


Figure 1-5 Caractéristique d'un dépôt avec un gaz fortement réactif tel que l'azote pour le titane. Cette courbe représente la pression partielle en fonction du débit de gaz réactif.

On observe une relation d'hystérèse entre la pression de dépôt et le débit d'azote lors de la pulvérisation des couches de TiN (figure ci-dessus). Jusqu'à un certain débit (a), dit de décrochage, les parois de l'enceinte se couvrant de titane adsorbent l'azote ('effet getter') ; la cible reste majoritairement métallique. Le point (b) indique une saturation de la réactivité des parois. L'augmentation de l'injection d'azote induit une forte nitruration de la cible. A partir de ce point l'azote ajouté en plus fera monter la pression de manière proportionnelle, puisque toutes les surfaces sont saturées. Pour être précis, la cible continue de se pulvériser tout en se nitrurant avec l'augmentation du débit d'azote, mais le taux de pulvérisation est moindre qu'avant le débit de décrochage. Nous verrons une illustration de cet effet avec l'étude de la stœchiométrie du film TiN dans la suite de ce chapitre.

En diminuant la quantité de N₂ injecté dans le réacteur alors que le débit de décrochage est dépassé, on observe un effet de retard au retour à l'état métallique de la surface de la cible, ce qui repousse le retour (c) vers un dépôt plus métallique. De manière à éviter de se retrouver dans la zone instable (entre c et b), nous avons réalisé les dépôts de couche de TiN pour les liaisons au-dessus du débit de décrochage.

Nous verrons dans la suite de ce manuscrit que les couches réalisées par pulvérisation cathodique DC magnétron ont des caractéristiques spécifiques. Plusieurs paramètres de dépôt servent à ajuster les caractéristiques physiques des matériaux déposés. En jouant sur la pression de dépôt, il est possible de faire varier la contrainte dans la couche. La stœchiométrie du $Ti_{1-x}N_x$ peut être ajustée en fixant à des valeurs différentes le débit du gaz réactif (l'azote dans ce cas) lors du dépôt.

2- Les différents substrats utilisés

Au cours de notre étude, plusieurs types de substrats ont été utilisés. Certains ont fait l'objet d'amincissements ou de polissages liés aux besoins de l'étude.

2-1 Substrats Si et Al₂O₃

Le substrat de base qui est le plus utilisé en microélectronique est une fine tranche de **silicium** monocristallin appelée 'wafer'. Ce matériau de couleur grise (métallique) est un semi-conducteur, on le trouve en abondance sur notre planète. Le silicium que nous utilisons dans notre étude est sous forme de wafer avec un diamètre de 2 pouces (5,08 cm = 2"). Il se présente sous forme monocristalline avec une orientation (100). Son épaisseur est de l'ordre de 270 µm et sa résistivité autour de 10 Ω·cm.

Un grand nombre de couches étudiées dans ce chapitre ont été déposées par pulvérisation cathodique sur des substrats 2 pouces en silicium (Si) monocristallin.

Au début de l'étude des contraintes internes des couches déposées (voir chapitre IV), nous avons utilisé une méthode de mesure de la contrainte interne qui était fonction de la courbure du substrat. Pour ce faire, le substrat utilisé devait présenter une épaisseur réduite pour augmenter cet effet de courbure pour une couche déposée de même épaisseur. Dans un premier temps, nous avons cherché à observer la déformation à l'œil nu.

Avec Alain Gueugnot (technicien au LPA), nous avons aminci un wafer de silicium 2 pouces d'une épaisseur de 270 µm jusqu'à 50 µm. La manipulation d'un tel objet nécessite de la minutie tant l'objet est fragile. Nous avons aminci le substrat avec une machine de polissage (PM5) équipée d'un plateau en fonte. Une solution aqueuse dans laquelle sont en suspension des particules cristallines de carbone (diamant) d'un diamètre de 3 µm, est appliquée entre la face du wafer à amincir et le plateau en fonte. Une force est appliquée (par une masse) sur le wafer pour le maintenir plaqué au plateau. Le plateau est mis en rotation alors que le wafer est fixe. Le passage du plateau mouillé par la solution abrasive sous la surface du wafer va réaliser l'abrasion.

A la fin de l'amincissement, le wafer est fortement contraint. En effet, les sillons et les dislocations de surface engendrés par les grains de diamant sont à l'origine d'une contrainte de surface importante. Nous avons observé une déformation de 5 mm de hauteur entre le sommet et le bas du substrat juste après amincissement, le wafer avait la forme d'une « chips ». Afin d'éliminer la contrainte de surface résiduelle, une gravure physique par plasma, de la plaque amincie, a été réalisée sur une profondeur de 200 nm. Après cette étape, d'ablation des couches atomiques de surface contraintes, le wafer retrouve sa planéité initiale ; la contrainte de surface est éliminée.

Ensuite, le dépôt par pulvérisation d'une couche mince en surface du 'wafer' a permis de mettre en évidence des niveaux de contrainte faibles. Cette technique de mesure de contrainte a été abandonnée car elle nécessitait trop de temps de préparation sur le substrat. Par la suite nous avons utilisé une technique ne nécessitant pas de préparation du substrat. Cette technique sera présentée dans le paragraphe dédié aux mesures de contrainte dans le prochain chapitre.

Un second type de substrat monocristallin a été utilisé. Certaines caractérisations ont imposé d'avoir un substrat présentant des caractéristiques mécaniques de rigidité plus grande que la couche déposée à sa surface. Nous avons choisi un matériau fréquemment utilisé dans le monde de la microélectronique, à savoir le **saphir** (Al_2O_3). Ce type de substrat a été utilisé pour estimer l'impact dû au substrat sur la croissance des matériaux déposés par pulvérisation cathodique.

2-2 Substrat W

Les mesures en cryostat des liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique nécessitent un montage pour lequel le substrat a son importance. Le substrat choisi devait présenter les caractéristiques d'un bon conducteur, à la fois, électrique et thermique à basse température, ce qui n'est pas le cas du silicium. Nous avons sélectionné le **tungstène** (W) comme matériau pour le substrat des démonstrateurs.

Nous avons approvisionné une plaque de W fritté. Dans cette plaque, des morceaux (de 2 mm x 10 mm x 5 mm) ont été découpés à l'aide d'une scie à fil. Ces morceaux d'aspect très rugueux nécessitaient un polissage de surface. La face arrière est polie succinctement pour tendre vers une surface compatible avec un assemblage sur le doigt froid du cryostat de test. La face avant des substrats en W, doit tendre vers une rugosité minimum afin d'éviter les défauts de croissance lors des dépôts.

Nous avons mis en œuvre une méthode de polissage pour obtenir, à partir de la surface des substrats fortement rugueux, une surface presque parfaitement polie. Le polissage s'est effectué avec les mêmes moyens que pour l'amincissement des substrats en Si, à ceci près que le but recherché était une amélioration de la rugosité de surface à la place d'une diminution de l'épaisseur. Plusieurs méthodes (avec la machine PM5) ont été essayées pour le polissage des substrats de W. Le protocole qui a donné les résultats les plus probants est décrit ci-après.

Un premier polissage est effectué avec une solution aqueuse dans laquelle des grains d'alumine (Al_2O_3) de diamètre de 12 μm sont en suspension. La solution et les substrats sont mis en rotation sur le plateau en fonte à une vitesse de 20 tours par minute pendant 30 minutes. Une force de 4 kg est appliquée sur les substrats de tungstène afin de forcer le contact de la surface à polir avec le plateau en fonte.

Cette étape est suivie d'un second polissage avec cette fois-ci une solution comportant des grains de diamant de 3 μm . Le plateau en fonte est remplacé par un plateau en textile tissé. La vitesse de rotation et la force appliquée restent inchangées, le temps de polissage pour cette étape est de 2 heures.

La dernière étape dite de « superfinition » consiste à utiliser une solution aqueuse avec de la silice colloïdale en suspension. La taille de ces grains de silice est de 50 nm. Le plateau de polissage est un revêtement en feutre. Dans des conditions identiques à celle de l'étape précédente, la superfinition prend une heure.

Nous avons fait des mesures de la surface polie des substrats de tungstène avec un profilomètre optique. Nous pouvons observer sur la figure 2-1 que le rendu d'un tel polissage est convenable pour notre application. Les défauts les plus importants observés ici sont de 500 nm de hauteur, mais leur densité est faible. L'image 2-2 réalisée par microscopie électronique à balayage (MEB) confirme (au premier plan) que le polissage que nous avons effectué sur ces substrats est correct. Au premier plan de cette image on remarquera l'état de surface du substrat tungstène. Les défauts (bosses) que l'on peut observer à la surface de la multicouche sont dus à un défaut initial de l'état de surface du substrat. Une mesure de la rugosité du tungstène est détaillée dans le chapitre IV. Avec l'image 2-2, on estime que la dimension maximum des défauts est inférieure à 500 nm.

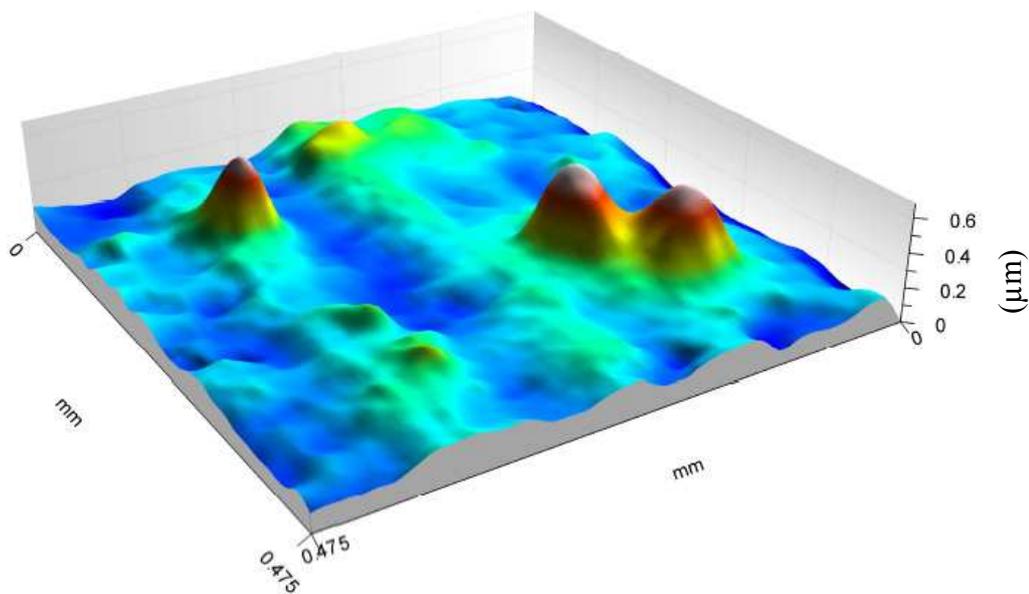


Figure 2-1 Mesure de rugosité de surface au profilomètre optique pour une section de 0,5 x 0,5 mm² d'une surface de substrat tungstène (W) poli.

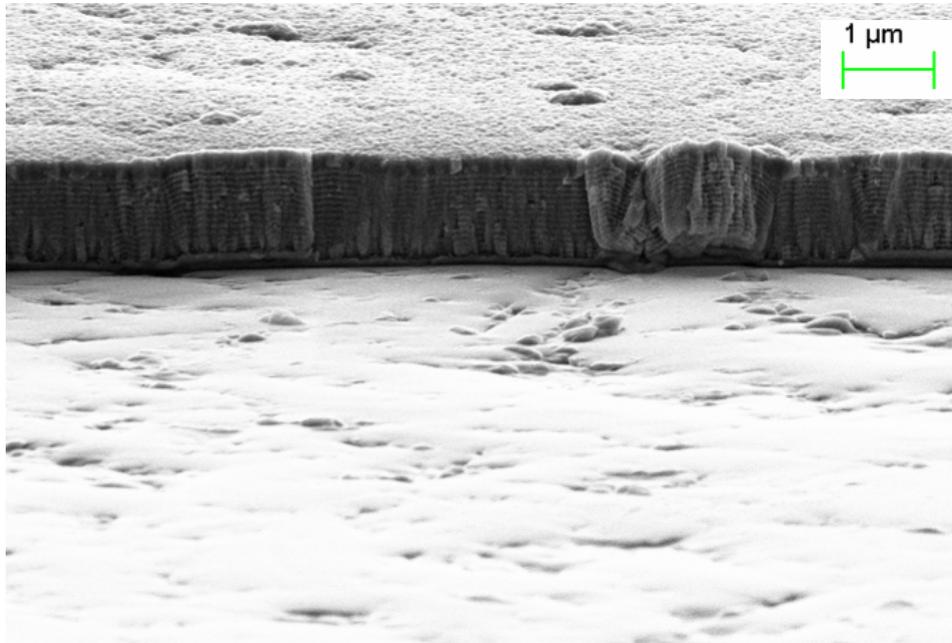


Figure 2-2 Image MEB de l'état de surface du substrat tungstène (au premier plan) sur lequel a été déposé une multicouche (second plan).

Une dernière étape de préparation des substrats W consiste à préparer la face arrière des substrats. La mesure en cryostat nécessite plusieurs connexions du démonstrateur avec des thermomètres, une résistance de chauffage et des fils pour la mesure de conductivité électrique. Afin d'améliorer le contact électrique et la surface d'accroche des substrats tungstène, nous avons déposé une fine couche d'or (Au) sur la face arrière et les côtés des substrats. Pour ce faire, les substrats ont été reportés face avant (face polie) plaquée sur un wafer Si (standard du commerce). Un dépôt de 300 nm d'or est réalisé par pulvérisation cathodique (dépôt standard). Après ce dépôt, les wafers sont couverts par une dorure sur la totalité de la surface sauf sur la face avant (polie). C'est sur cette face avant que nous allons réaliser la liaison supraconductrice à forte résistivité thermique.

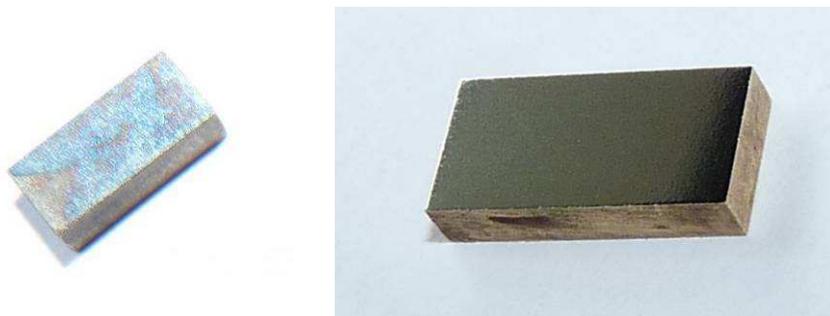


Figure 2-3 Image d'un substrat de tungstène avant (à gauche) et après (à droite) polissage ($5 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$)

3- Echantillons spécifiques pour les caractérisations physico-chimiques du $Ti_{1-x}N_x$ et du Nb

Tout au long de ce travail de thèse, plusieurs échantillons ont été réalisés pour étudier spécifiquement une ou plusieurs propriétés des matériaux déposés sur les substrats adéquats.

3-1 Les différents échantillons réalisés

Les deux principaux matériaux étudiés pour la réalisation des liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique sont : le niobium (Nb) et le nitrure de titane (TiN). Pour le Nb, un nombre important de dépôts ont été réalisés pour l'étude des contraintes internes. Ces dépôts ont servi à déterminer des paramètres de dépôt optimisés afin de limiter la contrainte des couches (Nb) déposées sur substrat silicium. Cette étude s'est étendue à quelques couches de titane (Ti) et d'or (Au).

Le TiN a nécessité plus d'investigations et par conséquent c'est pour ce matériau que nous avons réalisé le plus d'échantillons. Une attention importante a porté sur la maîtrise de la stœchiométrie du $Ti_{1-x}N_x$. Sur soixante dépôts TiN, une partie a permis de comprendre l'importance des paramètres de dépôt sur l'évolution de la stœchiométrie du $Ti_{1-x}N_x$.

La machine de pulvérisation cathodique : Nordiko 2550 de la PTA a été utilisée pour effectuer tous ces dépôts. Des séquences préprogrammées sont éditées afin d'ajuster les paramètres du dépôt. Ces séquences ainsi préréglées sur la machine sont lancées les unes après les autres à notre convenance. Pour chaque dépôt, il est possible de régler : la distance entre la cible et l'échantillon, la puissance à laquelle sera fait le dépôt, le débit des deux gaz disponibles dans la machine pendant la pulvérisation cathodique (l'azote (N) et l'argon (Ar)) et enfin l'ouverture de la vanne de pompage entre la pompe secondaire et la chambre.

Les différents paramètres réglés par l'utilisateur influent sur différentes caractéristiques de la couche déposée. La puissance de dépôt sera à l'origine de la température du dépôt et donc des formes structurales de la couche (voir la figure 1-3). Dans le cas du TiN, la puissance de dépôt impacte également la stœchiométrie du film. Les débits des gaz et l'ouverture de la vanne vont permettre un réglage indirect de la pression lors du dépôt. La pression influence principalement sur la contrainte dans la couche. Dans le cas du TiN, le rapport entre les deux gaz et la concentration d'azote vont permettre d'ajuster la stœchiométrie.

La machine de pulvérisation cathodique nous retourne des informations relatives aux paramètres que nous avons fixés. Nous pouvons lire sur le cadran de contrôle : la pression limite avant le dépôt, la pression lors du dépôt et la puissance injectée dans le plasma. L'information sur la pression résiduelle de l'enceinte ('vide limite') est importante, c'est avec un vide limite poussé avant dépôt que l'on obtient des dépôts faiblement contaminés par des impuretés.

Trois phases de fabrication ont été successivement menées à terme. La première a porté principalement sur la compréhension de l'influence de certains paramètres de la machine de pulvérisation cathodique sur les couches déposées. Notamment, l'influence de la pression sur la contrainte dans les couches de Nb a été observée lors de cette première phase. La seconde phase a consisté à élaborer des couches pour les études des caractéristiques (vitesses du son, microstructures, températures de transition supraconductrice...) des matériaux. La troisième phase a porté sur l'élaboration de liaisons pour le démonstrateur. Cette troisième phase sera abordée plus loin dans ce chapitre. La première phase ne sera pas présentée ici, le catalogue des différents paramètres de cette multitude d'échantillons réalisés ne présente pas un intérêt fondamental.

La série de dépôts réalisés dans le but de fabriquer des échantillons permettant la caractérisation des matériaux est présentée dans cette partie. Le tableau ci-dessous n'est pas exhaustif, mais reprend les différents dépôts et certains des paramètres liés à ces derniers.

Le débit d'argon est pour chaque dépôt de 60 sccm¹. La puissance utilisée pour les dépôts de Nb était de 2,5 kW et 800 W pour les dépôts de TiN. La température de l'échantillon lors du dépôt n'est pas régulée. Nous n'avons pas non plus de retour d'information sur la température effective du substrat pendant le dépôt.

Le tableau ci-dessous (tableau 3-1) reporte les épaisseurs des couches, le débit d'azote, l'ouverture de la vanne et la pression mesurées lors du dépôt. On indique également si l'échantillon contient une sous-couche (matériau et épaisseur) ou une couche de couverture (idem).

¹ sccm = « Standard Cubic Centimeters per Minute »

Echantillon	Ep couche	N2 (sccm)	Vanne (%)	Pr (mTorr)	Ep couverture	Ep base	Substrats
TiN Sp2	113 nm (± 10)	5,1	75	1,85	20 nm (± 5) (Nb)	0	Si et saphir
TiN Sp3	100 nm (± 20)	4,9	75	1,85	20 nm (± 5) (Nb)	0	Si
TiN Sp4	165 nm (± 10)	4,6	75	1,75	20 nm (± 5) (Nb)	0	Si et saphir
TiN Sp6	127 nm (± 10)	4,8	75	1,85	20 nm (± 5) (Nb)	0	Si et saphir
TiN Sp8	50 nm (± 20)	5,5	75	1,9	0	0	Si
TiN Sp9	177 nm (± 10)	4,2	75	1,75	0	0	Si et saphir
TiN Sp10	63 nm (± 10)	7	75	2	0	0	Si et saphir
TiN Sp11	79 nm (± 10)	15	75	2,3	0	0	Si et saphir
TiN Sp2b	1250 nm (± 10)	5,1	75	1,85	0	110 nm (± 5) (Nb)	Si et saphir
TiN Sp4b	1030 nm (± 10)	4,6	75	1,75	0	110 nm (± 5) (Nb)	Si et saphir
TiN Sp6b	1080 nm (± 10)	4,8	75	1,85	0	110 nm (± 5) (Nb)	Si et saphir
TiN Sp9b	790 nm (± 10)	4,2	75	1,75	0	110 nm (± 5) (Nb)	Si et saphir
TiN Sp10b	545 nm (± 10)	7	75	2	0	110 nm (± 5) (Nb)	Si et saphir
TiN Sp11b	510 nm (± 10)	15	75	2,3	0	110 nm (± 5) (Nb)	Si et saphir
Nb bis	890 nm (± 10)	0	61	2,5	0	220 nm (± 5) (TiN)	Si et saphir
TiN/W	270 nm (± 10)	5,1	75	1,9	0	0	Si et W
Nb/W	305 nm (± 10)	0	61	2,55	0	0	Si et W

Tableau 3-1 Présentation (non exhaustive) des paramètres de dépôt des différents échantillons utilisés pour les caractérisations discutées dans ce manuscrit

3-2 Mesure d'épaisseur

Les différentes incertitudes sur les épaisseurs sont principalement dues aux moyens de mesure. Nous avons réalisé les mesures d'épaisseur par trois méthodes différentes.

La première consiste à appliquer un morceau de ruban adhésif (Kapton) sur le substrat vierge avant dépôt. Après le dépôt et le retrait du morceau de ruban, la mesure de l'épaisseur de la couche déposée est faite avec un profilomètre (optique ou mécanique). On mesure la marche en épaisseur du plateau de la couche par rapport à la référence plane du substrat protégé lors du dépôt par le ruban adhésif.

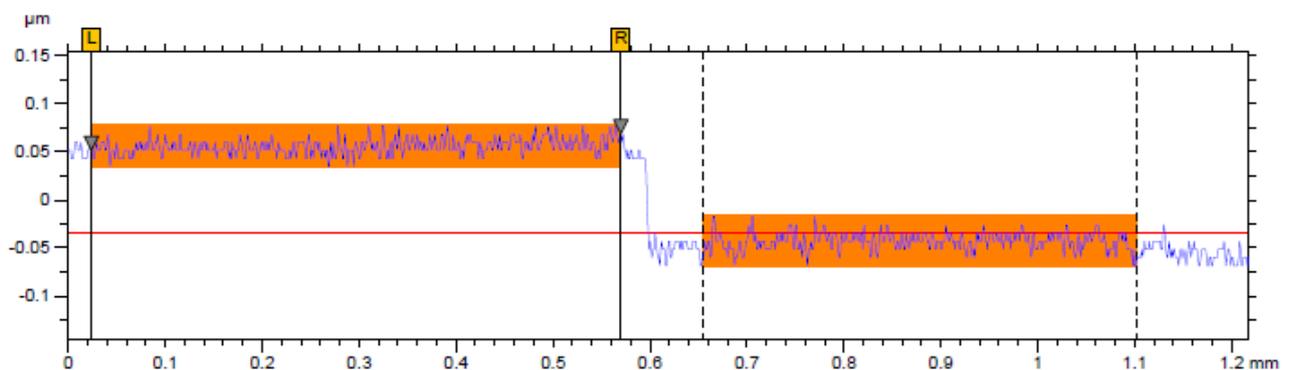


Figure 3-1 Exemple de mesure d'une marche couche-substrat par profilomètre optique

L'inconvénient avec ce type de mesure, c'est l'incertitude. Elle est presque de 50 nm pour le profilomètre optique que nous utilisons et 40 nm pour le profilomètre mécanique de la PTA. Néanmoins cette méthode étant peu onéreuse et rapide d'emploi, nous l'avons largement utilisée. Un affinage des données a été fait avec les deux autres méthodes, lorsque cela s'est avéré nécessaire.

La seconde méthode nécessite un microscope électronique à balayage (MEB). En clivant le wafer sur lequel est déposée la couche de matériau, il est possible d'obtenir une coupe franche du substrat et de la couche dont on cherche à mesurer l'épaisseur. En observant cette tranche, on peut zoomer sur la couche et mesurer son épaisseur. La mesure semble présenter une précision de ± 10 nm. Toutefois la précision de cette méthode est liée à la calibration de l'appareil. Il n'est donc pas certains que la précision par cette méthode de mesure soit accrue.

Les courbes que l'on peut obtenir par la mesure de la réflectivité en rayonnement X (XRR) permettent d'obtenir entre autre l'épaisseur de la couche. Cette technique est introduite plus loin dans ce manuscrit au paragraphe portant sur le calcul de la masse volumique. Tout comme les images MEB, cette technique permet également d'obtenir l'épaisseur des couches et sous-couches. Ici l'incertitude dépend de l'épaisseur, des caractéristiques des couches et de leur modélisation. Nos échantillons n'étant pas simples, nous avançons une précision à ± 10 nm.

Avec la connaissance des épaisseurs et de la durée du dépôt, il est possible de remonter à la vitesse de croissance du matériau. Pour les différentes couches de Nb, les vitesses de dépôt sont restées relativement invariables à 7 \AA/s (± 0.2). Pour une même puissance de 800 W appliquée à la cathode, la vitesse de dépôt des couches de $\text{Ti}_{1-x}\text{N}_x$ évolue en fonction du débit d'azote.

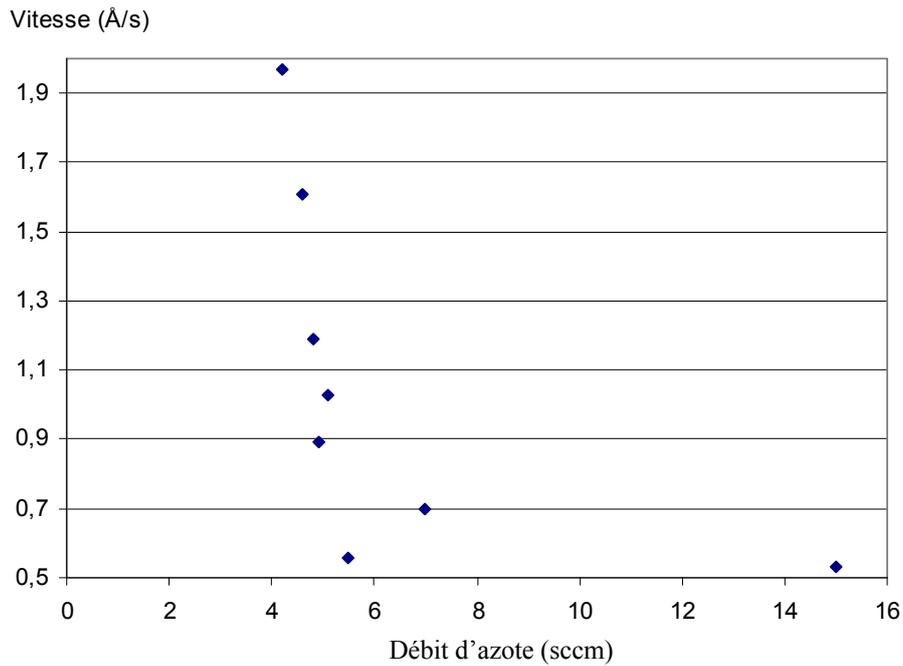


Figure 3-2 Vitesse de croissance des couches $\text{Ti}_{1-x}\text{N}_x$ en fonction du débit d'azote, les autres paramètres sont fixés

Nous pouvons observer sur la courbe du $\text{Ti}_{1-x}\text{N}_x$ ci-dessus, que jusqu'à un débit d'azote de 5 sccm, la vitesse de dépôt diminue et qu'au-delà de cette limite, un effet de saturation survient autour de $0,6 \text{ \AA/s}$. Un effet d'hystérésis est observé par [Hadacek-2002] pour TiN et [Billard 2005] pour un dépôt réactif différent. Nos observations sont proches de ce qui est décrit dans ces références pour des dépôts avec un gaz réactif.

4- Fabrication des liaisons supraconductrices

Dans le chapitre suivant, nous allons étudier les différents paramètres de chaque couche : les densités, les vitesses du son, les structures cristallines et l'impact des substrats sur ces propriétés. Dans cette partie, nous étudions la fabrication d'un démonstrateur dédié à la mesure à basse température d'une liaison supraconductrice afin d'en estimer les performances en termes de résistance thermique.

4-1 Structure du démonstrateur

Un choix a été fait pour la géométrie des démonstrateurs. Ce choix prend en compte la faisabilité du procédé de fabrication et l'adaptation du démonstrateur au cryostat de mesure. Deux briques identiques sont assemblées pour former le démonstrateur. L'assemblage de ces deux pièces est réalisé par brasure. Ce point est étudié dans la deuxième partie de ce paragraphe.

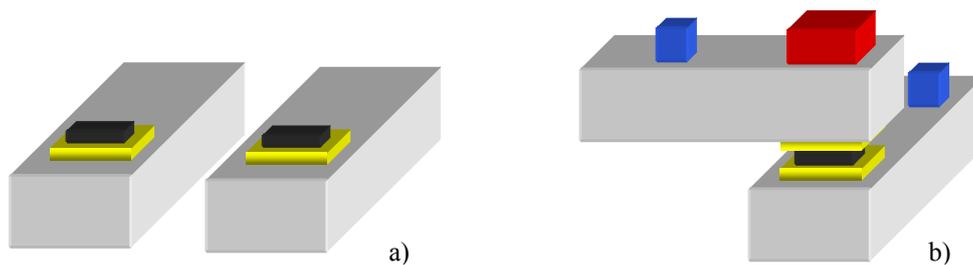


Figure 4-1 Deux briques de base (a) sont assemblées par hybridation pour former le démonstrateur (b)

On peut voir sur la figure 4-1 ci-dessus qu'une fois assemblé, le démonstrateur (b) nécessitera l'ajout de deux sondes de température (en bleu) et d'une résistance chauffante (en rouge). Ce point sera détaillé dans le chapitre portant sur le test du démonstrateur.

Les deux briques de base (a) sont fabriquées à l'identique et sont formées d'une multicouche composée d'un empilement de couches de niobium (Nb) avec entre chaque couche, une couche de nitrure de titane (TiN) intercalée. La multicouche (en jaune sur la figure ci-dessus) sera déposée sur un substrat en tungstène (W), préalablement poli en face avant. Une couche de matériau à braser est déposée sur la multicouche, elle servira à l'hybridation des deux briques de base. Le paragraphe suivant traite de la fabrication de ces briques de base.

4-2 Réalisation des liaisons

La fabrication du démonstrateur a été réalisée en trois temps. Le premier a porté sur la préparation de la surface des substrats constituant chacune des deux briques. La seconde étape consiste à déposer les multicouches de la liaison sur les substrats, nous allons détailler ce point dans ce paragraphe. La dernière partie de la fabrication du démonstrateur est l'assemblage des deux briques par hybridation, ce point sera étudié dans le paragraphe suivant.

Nous ne traiterons pas ici des paramètres des matériaux composant les couches de la liaison. Ces paramètres sont décrits dans une autre partie du manuscrit. Cette étude a permis de choisir les paramètres de dépôt à utiliser pour les matériaux constituant la liaison.

L'empilement de l'interconnexion sera constitué de la liaison déposée sur le substrat en tungstène (W) et des plots de métal à braser déposés à la surface de la liaison. Les plots de métal à braser ont été réalisés en indium (In). La température de transition supraconductrice de l'In est de 3,4 K, ce matériau est couramment utilisé dans les interconnexions car sa température de fusion est faible (156°C). Les 16 plots d'In déposés ont une surface de 300 µm par 300 µm. L'espacement entre chaque plot est de 300 µm, les plots sont donc au pas de 600 µm.

De manière à éviter les court-circuits thermiques de la liaison, nous avons choisi de déposer la multicouche sur une surface plus grande que celle occupée par les plots d'In. La surface de la liaison est de 4 mm par 4 mm. La dernière couche de la liaison est compatible avec l'indium, il est possible que les plots d'In migrent ou s'étalent à la surface de la liaison lorsque le point de fusion est dépassé. Nous verrons dans la suite de ce chapitre que le procédé d'hybridation intervient pour une part importante dans la localisation de l'In lors de l'hybridation.

La première méthode que nous avons explorée pour faire un masquage des liaisons puis des 16 plots d'In, fait intervenir un film adhésif (Sticky) sur lequel nous avons, avec Gilles Lasfargues (Ingénieur de recherche au LPA), gravé les motifs avec un laser de retouche (LaserMill).

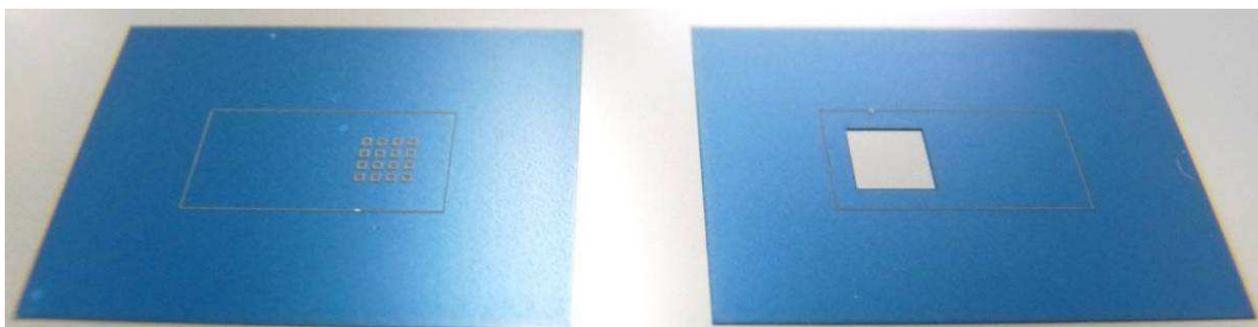


Figure 4-2 Masques en Sticky gravés par laser. Sur le masque de gauche, chaque petit carré mesure 300 µm de côté, et l'ouverture du masque à droite fait 4 mm de côté.

Ce procédé a fourni des résultats intéressants, mais quelques problèmes persistent. A certains endroits, le placage du masque adhésif n'est pas parfait et/ou présente une bulle d'air proche du bord de la zone de dépôt. Certaines zones se retrouvent soulevées comme sur l'image suivante.

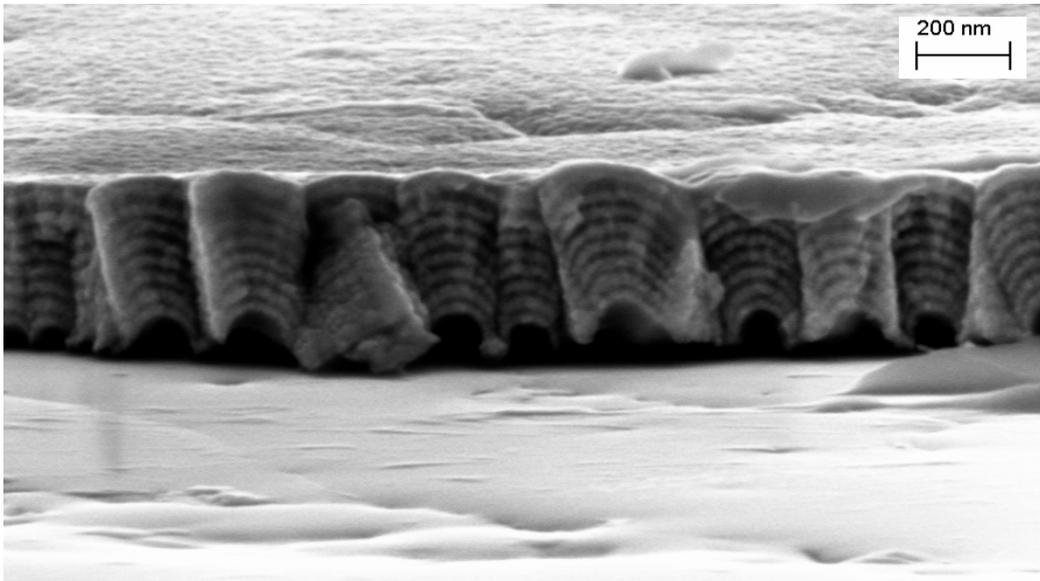


Figure 4-3 Défauts de décollement sur une liaison formée d'un empilement de 8 bicouches Nb/TiN

La colle présente dans le masque adhésif favorise la formation de résidus organiques carbonés parfois même en contact avec la multicouche, ce point est rédhibitoire. On observe également la formation de zones à l'aspect ombré qui correspondent à un bord de la multicouche ne présentant pas une section franche, mais plutôt un dégradé d'épaisseur. Ce point est la conséquence d'un décollement local du masque pendant le dépôt.

Nous avons cherché une solution qui ne nécessite pas de collage. La fabrication d'un masque métallique a ouvert une nouvelle piste pour le masquage de la liaison. Le masque métallique a été étudié pour fabriquer 4 échantillons à la fois avec une surface d'ouverture carrée de 16 mm². Ce masque a été dessiné par Jean-Chales Cigna (technicien principal au CEA / LETI / LPA).

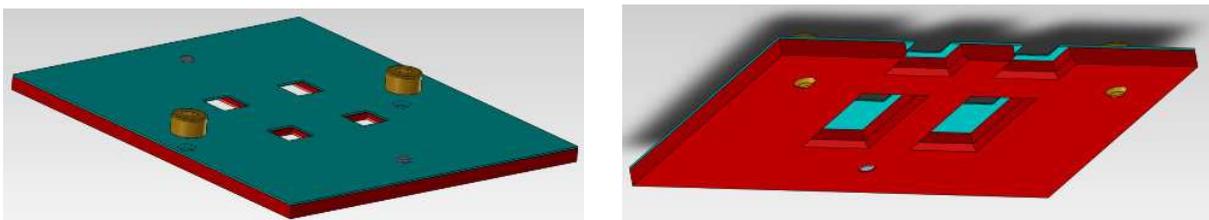


Figure 4-4 Schéma du masque métallique. A gauche on voit les ouvertures de 4 mm de côté, et sur la vue en coupe de droite, on voit les emplacements pour les substrats de tungstène.

La plaque métallique dans laquelle les ouvertures ont été usinées ne présente pas une planéité parfaite. De ce fait, le substrat n'est pas plaqué sur toute sa surface surtout à l'ouverture du masque. Le gap entre le substrat et l'ouverture du masque va permettre à la matière de se déposer en dégradé. On retrouve un effet d'ombrage. Sur la figure ci-dessous d'un échantillon test, apparaît un effet d'ombre.



Figure 4-5 Image d'un échantillon test après dépôt de multicouche

L'échantillon de la figure 4-5 présente deux zones sur lesquelles ont été déposées des multicouches. La zone de gauche présente un dépôt d'une liaison avec un masquage au Sticky. On voit les 16 plots d'In à la surface de la multicouche. Les deux petites taches sombres sont des défauts de collage du masque. La zone de droite, présente un dépôt avec le masque métallique. Les pourtours de la liaison sont larges (nord et ouest). C'est l'effet de la non-uniformité de contact sur le substrat du masque (masque voilé). On notera que la dernière couche du dépôt de multicouche de test à droite est en Nb, cela explique la surface de couleur métallique. Alors que la dernière couche du dépôt de gauche est en TiN (type Sp2).

Les problèmes étant identifiés, nous avons déterminé une nouvelle méthode pour le masquage des liaisons. Le masque devra être au plus près du substrat et ne présentera plus de problèmes de bulles d'air ou de décollement. Comme solution, nous avons utilisé une résine épaisse avec un procédé de photolithographie.

Quatre échantillons sont fabriqués en même temps. Les quatre substrats sont polis en face avant selon le procédé défini plus avant dans ce chapitre, ils sont également dorés en face arrière. En face avant, on étale une résine positive (on retire ce que l'on insole) de type AZ4562 sur l'ensemble (sauf la face arrière) de chaque échantillon. Avec une vitesse de rotation de 4000 tours/minute pendant une minute, l'étalement de cette résine donne une épaisseur de 6,2 μm . Cette épaisseur a été suffisante pour nos applications, mais en cas de dépôt de multicouche supérieur à 4 μm , il est recommandé de former une résine plus épaisse. Les échantillons sont recuits à 100°C pendant une minute et demie. On insère les quatre échantillons dans le masque métallique et on réalise une insolation de 105 secondes. L'insolation aux rayons ultraviolets va déclencher une réaction photochimique dans la résine. Ce mécanisme va modifier drastiquement la solubilité (avec le développeur) de la résine insolée.

Les échantillons sont ensuite retirés avec précaution du masque métallique, ce dernier sera nettoyé avec soin à l'acétone. Après un développement de 3 minutes à l'« AZ developer » dilué à 50% avec de l'eau dé-ionisée, on voit apparaître sur les échantillons l'ouverture du masque de résine dans laquelle la liaison sera formée. On vérifie qu'il ne reste pas de résine au fond de la cavité et on mesure l'épaisseur de la couche de résine avec un profilomètre mécanique.

Le dépôt des multicouches est fait dans la machine de pulvérisation cathodique DC magnétron introduite précédemment dans ce chapitre. On réalise préalablement un nettoyage de surface (« Etch ») retirant environ 6 nm de matière par plasma argon. La première couche déposée est une couche de Nb, avec les paramètres optimum en termes de contrainte. On a préféré une première couche en Nb car son adhérence au substrat est meilleure que celle du TiN. Puis la seconde couche déposée est en TiN avec des paramètres de type 'Sp2' (pour le TiN). Ces deux couches forment une bicouche de base. Nous avons réalisé plusieurs liaisons avec 16 ou 48 bicouches empilées.

L'épaisseur de chaque couche est identique dans chaque multicouche, nous l'avons fixée à 30 nm ou 60 nm. Sur la dernière couche de TiN de la bicouche supérieure, on dépose une couche de Nb de même épaisseur puis une couche d'or de 300 nm avec des paramètres de dépôt standard. Cet ensemble de dépôts est réalisé sans remise à l'atmosphère ambiante entre les étapes de dépôt.

Les échantillons sont trempés pendant une heure dans l'acétone pour retirer la résine et le métal présent au-dessus de la résine, ne laissant plus que la multicouche en contact direct avec le substrat W, cette action est appelée « lift off ».

Un masque en Sticky est positionné sur chaque échantillon. L'alignement des 16 ouvertures dans le masque est réalisé à l'œil nu pour les centrer au maximum au milieu de la liaison. Un dépôt d'indium (In) est réalisé avec une machine d'évaporation (Eva 500) de la ligne de la plateforme LETI. L'épaisseur d'In que nous déposons pour un bon fonctionnement de l'assemblage est de 6 μm . Les masques en Sticky sont retirés pour ne laisser que les 16 plots d'In au pas de 600 μm . Les échantillons sont prêts à être assemblés.



Figure 4-6 Deux échantillons prêts à être assemblés photographiés à la fin du procédé détaillé dans le texte

En conclusion de cette description du procédé de fabrication, nous pouvons dire que nous avons recherché un procédé de réalisation simple et rapide, mais nous avons observé des défauts de fabrication qui ont rendu la méthode utilisée plus complexe et plus longue à mettre en œuvre que prévu. Au final, chacun des trois aspects des méthodes étudiées sont réutilisés dans le procédé final. Enfin cette brique technologique est tout à fait compatible avec des étapes technologiques de microélectronique.

5- Assemblage du démonstrateur par hybridation

Le démonstrateur est composé de deux échantillons identiques qui sont assemblés par brasure. Cette hybridation consiste à mettre en regard chaque partie à assembler, de faire un alignement, de mettre en contact les 2 zones et de porter à la température de fusion le matériau utilisé pour la brasure [Humpston-2004].

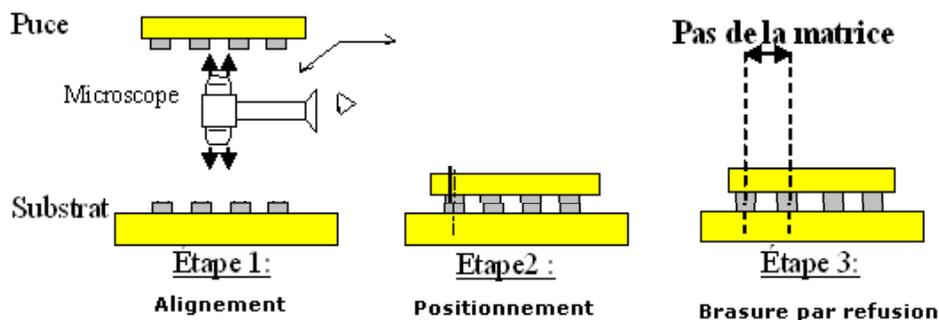


Figure 5-1 Procédé d'assemblage 'flip-chips' par hybridation

Dans notre cas, les deux puces hybridées sont des échantillons identiques dont le procédé de fabrication est détaillé dans la partie précédente. Le matériau d'assemblage correspond à 16 plots d'indium au pas de 600 μm (carrés de 300 μm de côté espacés de 300 μm).

5-1 Assemblage par thermocompression

Pour réaliser l'hybridation, nous avons exploré plusieurs pistes. L'indium s'oxyde rapidement à l'atmosphère ambiante, il est nécessaire de désoxyder les plots pour réaliser une brasure à la température de fusion de l'In.

La première solution explorée réside dans un procédé n'utilisant pas de flux désoxydant. Cette technique consiste à mettre en contact les plots d'indium et à chauffer les matériaux à une température inférieure à celle de la fusion (156°C pour l'In) et à appliquer une forte pression sur les deux puces en regard. L'énergie apportée aux surfaces en contact va entraîner une inter-migration des atomes des deux surfaces l'une vers l'autre: c'est la thermocompression.

A partir des données de [Plötner-1991], nous avons réalisé des essais comparatifs afin de voir si avec des pressions similaires, nous reproduisons cet effet de thermocompression sur des surfaces plus grandes.

Les résultats obtenus ont démontré que la solution n'est pas simple à mettre en œuvre car si la planéité n'est pas parfaitement contrôlée, l'hybridation ne se fait que sur une surface réduite. De plus les forces à mettre en œuvre dans cette action de scellement sont non négligeables. Pour des essais en pleine plaque avec une surface à hybrider de 1 cm^2 , nous avons appliqué un poids de 80 kg à 120 kg à une température de 130°C pendant 5 minutes.

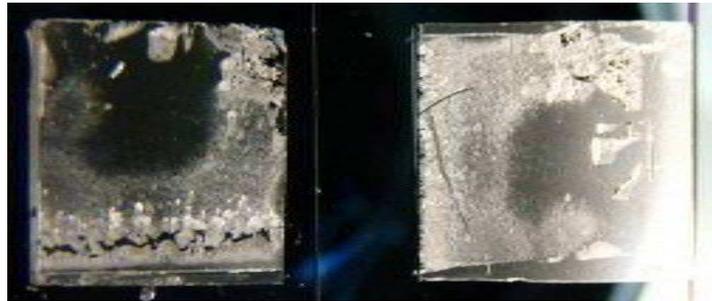


Figure 5-2 Les deux parties d'un échantillon (1 cm de côté) hybridées par thermocompression à 120 kg

L'image de la figure 5-2 montre une hybridation de scellement réalisée par thermocompression. L'assemblage a été désolidarisé par une action de cisaillement latérale. Le scellement s'est effectué sur le pourtour de l'échantillon, laissant le centre de l'échantillon intact. La force nécessaire à l'arrachage par cisaillement de cet assemblage a été de 16,9 kg.

Les forces à mettre en œuvre et la complexité du contrôle de la planéité sur de grandes surfaces, nous ont amené à rechercher d'autres solutions pour la technique d'assemblage.

5-2 Assemblage par fusion de la brasure suivie d'une force d'appui

Une autre possibilité pour assembler les deux échantillons consiste à mettre en fusion les deux plots d'In en contact, puis de refroidir pour former l'assemblage. Cette solution nécessite l'application d'un flux désoxydant à la surface des plots avant leur mise en contact.

Au cours des premiers essais, nous avons mis en contact des échantillons de test avec un dépôt d'In ($10 \mu\text{m}$ d'épaisseur) en pleine plaque sur des substrats en silicium recouverts au préalable d'une fine couche d'or (200 nm). Nous avons chauffé l'ensemble à 190°C et nous avons appliqué une force verticale inférieure au kilogramme. Les hybridations se sont faites sur l'ensemble de la surface à braser. Le gaz présent dans le flux qui s'évapore autour de 120°C , se retrouve bloqué entre les deux surfaces. On observe alors la formation d'une (ou plusieurs) zone vide de brasure correspondant à la bulle (ou à plusieurs bulles) de gaz accumulé lors de l'évaporation du flux. De plus, les résidus carbonés des constituants du flux, ne peuvent pas s'échapper et se redéposent dans la brasure.

Pour ces deux raisons, nous avons réalisé des sillons dans les couches d'In avec une lame de scalpel, pour que le gaz du flux s'échappe de l'interconnexion lors de la brasure. Les résidus carbonés se redéposent dans les sillons ce qui laisse une brasure avec moins de pollution.

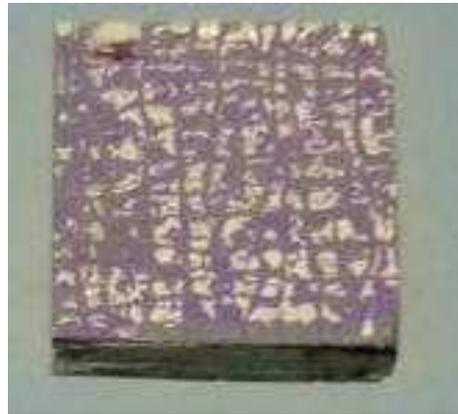


Figure 5-3 Echantillon (7 mm de côté) hybridé par fusion, utilisation de sillons, force d'appui de 60 g

La seconde remarque est que l'indium à l'état liquide migre sur les surfaces mouillables. Notre procédé de fabrication ne comprend pas de couche de finition (passivation) empêchant la mouillabilité de la brasure. Ce non-contrôle de la migration de l'indium liquide est critique puisque nous cherchons à maintenir une localisation initiale de l'In afin d'éviter la formation de ponts (ou court-circuits thermiques) entre les deux briques en tungstène à assembler.

Nous avons diminué la force appliquée au dispositif lors de l'hybridation jusqu'à la limite basse de la machine (< 100 g). Certains assemblages continuaient de présenter des rejets d'In aux bords de l'assemblage.

5-3 Assemblage par hybridation avec une régulation en Z

Dans le but de maîtriser la localisation de l'In lors de la fusion, nous avons choisi de contrôler l'écrasement des plots d'In lors de l'hybridation. La dernière méthode que nous avons utilisée consiste non-plus à appuyer sur l'assemblage pour faire le contact des surfaces, mais à réguler la hauteur d'écrasement de la brasure pendant l'hybridation. C'est l'hybridation en Z.

Pour limiter la migration de l'In, une technique de désoxydation a été spécifiquement mise en œuvre. Au cours des essais précédents, le flux désoxydant était appliqué sur la totalité de la surface de l'échantillon. Le flux améliore la mouillabilité de l'In. Nous avons choisi d'appliquer le flux uniquement à la surface de chaque plot à l'aide d'un pinceau et d'une « touche de dextérité ».

Trois générations de démonstrateur ont été élaborées. Chacune de ces générations a utilisé un procédé d'hybridation en Z différent (temps de fusion, zone d'application du flux, profondeur d'écrasement et d'étirement). Les deux premières générations présentaient des défauts d'hybridation. La troisième génération de démonstrateurs a été assemblée avec le procédé optimisé d'hybridation en Z, détaillé à la fin de cette partie.

Dans le cas des deux premières générations de démonstrateurs, les multicouches étaient recouvertes de 16 plots (carrés) d'In de 12 μm d'épaisseur (au pas de 600 μm). Les deux échantillons sont alignés, mis en contact puis portés à une température de 190°C. On applique alors un écrasement de 6 μm et après 5 secondes, on relève de 4 μm (soit un écrasement final de 2 μm) avant de retourner à température ambiante. Un enfoncement minimal est nécessaire pour rattraper les défauts de planéité ou la présence d'espaces entre les plots en contact.

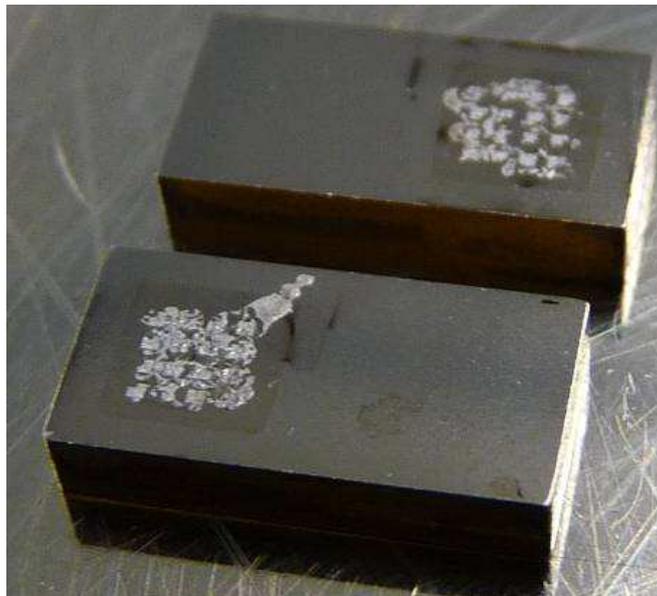


Figure 5-4 Hybridation présentant une coulure d'In en dehors de la surface de la liaison.
Les substrats de W ont des dimensions de notre standard (2 x 5 x 10 mm³)

Ces premiers essais d'hybridation en Z ont permis de comprendre l'importance de deux points. Il s'est avéré primordial de faire un contrôle de la planéité des deux surfaces en contact avant chaque hybridation. Une calibration succincte de la planéité de la machine est à effectuer avant chaque hybridation de démonstrateur.

Lorsque l'assemblage présente un défaut de planéité, on a souvent observé des « giclures » après désassemblage des deux puces comme dans la figure 5-4. Le second point qui s'est avéré important dans ce type d'hybridation est la diminution de la profondeur d'écrasement lors de la séquence d'hybridation.

Les démonstrateurs de troisième génération ont été assemblés par une hybridation en Z avec des paramètres optimisés. Un réalignement de la planéité a été effectué à chaque assemblage. Les 16 plots d'In d'épaisseur 6 μm sont écrasés de 2 μm à 190°C et une remontée de 4 μm est faite avant le refroidissement. Ce procédé implique un écrasement de 2 μm des plots puis un étirement de la brasure de 4 μm . Avec ce procédé, nous n'avons pas observé de migration d'In à l'extérieur de la surface de la couche de finition en or de la multicouche. Cette couche d'or de finition fait office de couche de mouillage pour la brasure et de passivation pour la dernière couche de la liaison à savoir la couche de Nb.



Figure 5-5 Démonstrateur composé de deux échantillons assemblés

Au cours de cette étude d'hybridation, plusieurs couches d'accroche ont été essayées. On entend par couche d'accroche, la couche de matériau sur laquelle est déposée la couche d'In puis les plots d'In, cette couche doit présenter une bonne adhérence mécanique pour assurer un assemblage rigide des deux parties massives en tungstène. La couche de nitrure de titane sur laquelle est déposée une couche d'or puis les plots d'In présente la force d'accroche la plus médiocre. Une force inférieure à 200 g est suffisante pour séparer l'assemblage composé de 16 plots. Le même exercice avec Nb / Au / In demande une force d'arrachement proche de 450 g. La meilleure accroche est observée sans multicouche soit la couche d'or directement déposée sur le substrat en tungstène et les 16 plots en In sur la couche d'or. Il a fallu une force de 1,1 kg pour désolidariser ce démonstrateur test. Cette force est facilement atteinte lors d'un choc accidentel, le démonstrateur est donc fragile.

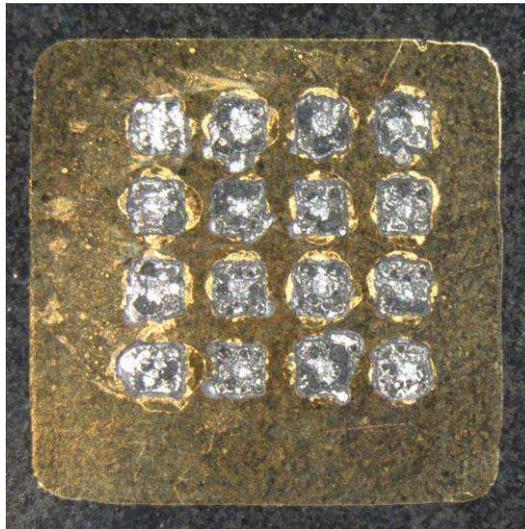


Figure 5-6 Hybridation de 16 plots (de 300 μm de côté) d'In déposés sur une multicouche (16 bicouches) sur substrat W

La figure 5-6 montre une image d'une des surfaces de l'hybridation après un arrachement par traction. On notera qu'avec l'hybridation en Z faite avec un écrasement de 2 μm et un étirement de 4 μm (cas des démonstrateurs de troisième génération), les plots d'indium restent (presque) tous bien formés. Cette technique limite la dispersion de l'indium lors de sa fusion. On voit également que tous les plots ont cédé à la traction dans l'épaisseur d'indium. Cela montre que l'accroche du plot et de la couche d'or sur le substrat en tungstène est forte.

La référence [Humpston-2004] introduit la nécessité d'une couche faisant office de barrière de diffusion entre la couche d'Au et la couche d'accroche. Dans notre cas, nous nous affranchissons de cette couche, puisque les matériaux utilisés dans la liaison (Nb et TiN) sont réfractaires. Le Nb fait à la fois fonction de couche d'adhérence et de barrière de diffusion.

Bibliographie du Chapitre III

[Billard-2005]: A. Billard, F. Perry, « Pulvérisation cathodique magnétron », Techniques de l'ingénieur, Référence : M1654, (2005)

[Grove-1852]: W. R. Grove, « On the Electro-chemical Polarity of Gases », Philosophical Transactions of the Royal Society of London, Vol. 142, p 87-101, (1852)

[Hadacek-2002] : N. Hadacek, Thèse de doctorat : « Etude de films minces et de jonctions Josephson en nitrures supraconducteurs (TiN et NbN); application à la logique RSFQ », Université de Grenoble, (2002)

[Humpston-2004]: G. Humpston, « Principles of soldering », ASM International, Materials Park, p 199-201, (2004)

[Movchan-1969]: B. A. Movchan, A. V. Demchishin, « Study of the structure and properties of thick vacuum condensates of nickel, titanium, tungsten, aluminium oxide and zirconium dioxide ». Phys. Met. Metallogr., Vol. 28, p 83–90, (1969)

[Plötner-1991]: M. Plötner, G. Sadowski, S. Rzepka, G. Blasek, « Aspects of indium solder bumping and indium bump bounding useful for assembling cooled mosaic sensors », British Library, Hybrid Circuits, Vol. 25, p 27-30, (1991)

[Sigmund-1969]: P. Sigmund, « On the number of atoms displaced by implanted ions or energetic recoil atoms », App. Phys. Lett., Vol. 14, N. 3, p 114-117, (1969)

[Stark-1909]: J. Stark, « On the experimental choice between the ether wave hypothesis and quantum hypothesis of the light I. Röntgen radiation », Phys. Zeits., Vol. 23, N. 902, (1909)

Chapitre IV: Caractérisation des couches composant les liaisons supraconductrices

Ce chapitre présente les différentes caractérisations que nous avons réalisées sur les couches de TiN et de Nb. Nous cherchons à mesurer les propriétés essentielles à l'estimation de la résistance thermique des démonstrateurs en utilisant les modèles théoriques AMM et DMM décrits dans le chapitre II. Les vitesses du son et la masse volumique sont comparées aux propriétés de la microstructure des couches minces. Le chapitre se termine par des mesures de transition supraconductrice pour les couches de matériaux qui seront déposés dans les multicouches des démonstrateurs.

1- Propriétés structurales des couches minces de $Ti_{1-x}N_x$ et de Nb	146
1-1 Mesure de la stœchiométrie en azote	146
a) <i>L'œil de l'observateur</i>	146
b) <i>Ellipsométrie</i>	146
c) <i>Spectrométrie de rétrodiffusion d'ions (RBS)</i>	148
d) <i>Les éléments contaminants</i>	151
1-2 Diffraction de rayons X	153
a) <i>Diffraction de rayons X dans un matériau cristallin</i>	154
b) <i>Différentes structures cristallines</i>	153
c) <i>Principe des mesures en diffraction X</i>	155
d) <i>Le diffractomètre utilisé</i>	158
e) <i>Mesure $\theta/2\theta$: Cas de l'échantillon Sp_2 sur Si</i>	158
f) <i>Analyse quantitative des résultats expérimentaux</i>	160
g) <i>Scans ω</i>	162
h) <i>Figures de pôles</i>	164
i) <i>Evolution du paramètre de maille en fonction de la concentration d'azote</i>	166
j) <i>L'impact du substrat sur la croissance cristallographique</i>	169
k) <i>Conclusions de l'étude des couches minces par diffraction X</i>	172
1-3 Etude de la microstructure des couches de TiN et de Nb	173
a) <i>Morphologie</i> :	173
b) <i>Topologie</i>	175
1-4 Estimation de la masse volumique.....	180
a) <i>La densité déduite des mesures RBS</i>	180
b) <i>Mesure de la densité par réflectivité de rayons X</i>	181
c) <i>La densité calculée à partir du paramètre de maille</i>	183
2- Propriétés élastiques et mécaniques	187
2-1 Contrainte résiduelle dans les couches	187
2-2 Vitesse du son en mode longitudinal	191
a) <i>Principe d'une mesure d'acoustique picoseconde</i>	191
b) <i>Mesure d'acoustique picoseconde sur substrat saphir</i>	194
c) <i>Mesure sur substrat W</i>	195
d) <i>Analyse de la qualité des interfaces dans les multicouches</i>	195
e) <i>Evolutions en température</i>	197
2-3 Vitesse du son en mode transverse	198
a) <i>Principe de la diffusion Brillouin de surface</i>	198
b) <i>Les mesures sur substrat tungstène (W)</i>	200
c) <i>Les mesures sur substrat Si</i>	202
2-4 Nano-indentation.....	205

3- Caractéristiques électriques	208
3-1 Mesure de la résistivité électrique à température ambiante	208
3-2 Température de transition supraconductrice pour le $Ti_{1-x}N_x$ et le Nb.....	209
Bibliographie du Chapitre IV	211

1- Propriétés structurelles des couches minces de $Ti_{1-x}N_x$ et de Nb

Cette section traite principalement des études réalisées pour qualifier ou quantifier les caractéristiques des structures atomiques des couches des matériaux utilisés dans la fabrication des liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique : Le niobium (Nb) et le nitrure de titane ($Ti_{1-x}N_x$).

1-1 Mesure de la stœchiométrie en azote

L'un des matériaux utilisés dans la liaison thermique est un composé binaire, les deux espèces chimiques présentes sont le titane (Ti) et l'azote (N). Plusieurs propriétés de ce composé $Ti_{1-x}N_x$ évoluent en fonction de sa stœchiométrie. Nous avons cherché à observer l'évolution de la vitesse du son, du paramètre de maille, de la densité, ou encore de la rugosité de surface en fonction de la stœchiométrie du $Ti_{1-x}N_x$. Plusieurs méthodes complémentaires ont été utilisées.

a) L'œil de l'observateur:

Plusieurs techniques de mesures ont été utilisées pour estimer le taux d'azote dans le $Ti_{1-x}N_x$. Le contrôle visuel permet une première estimation qualitative de la concentration d'azote dans la couche mince. En faisant varier le débit d'azote d'un dépôt à l'autre, les couches minces déposées prennent des couleurs différentes allant du gris métal pour les moins nitrurées, en passant par une couleur ressemblant à celle d'une couche d'or à la proximité de la stœchiométrie TiN et finissant vers le brun ou le rougeâtre pour les dépôts les plus nitrurés. Ces observations visuelles sont bien insuffisantes pour déceler des variations de stœchiométrie de quelques %. De plus ces couleurs varient en fonction de la puissance de dépôt et de la pression totale des gaz injectés lors de la pulvérisation cathodique [Hadacek-2002]. En dessous de 150 nm, la couleur de la couche est également fonction de l'épaisseur.

b) Ellipsométrie

En gardant la même approche, tout en recherchant plus de précision, certaines couches ont fait l'objet d'une caractérisation par ellipsométrie. Les mesures de réflectivité optique ont été réalisées par le Professeur Abadias de l'Université de Poitiers au DPMM. Ce principe consiste en une analyse optique basée sur le changement de polarisation de la lumière lors d'une réflexion en incidence oblique sur une surface plane. Cette technique est adaptée pour déterminer l'épaisseur d'une couche mince dans le domaine de la microélectronique. La référence [Benhamida-2006] utilise cette méthode pour la détermination de la stœchiométrie du $Ti_{1-x}N_x$.

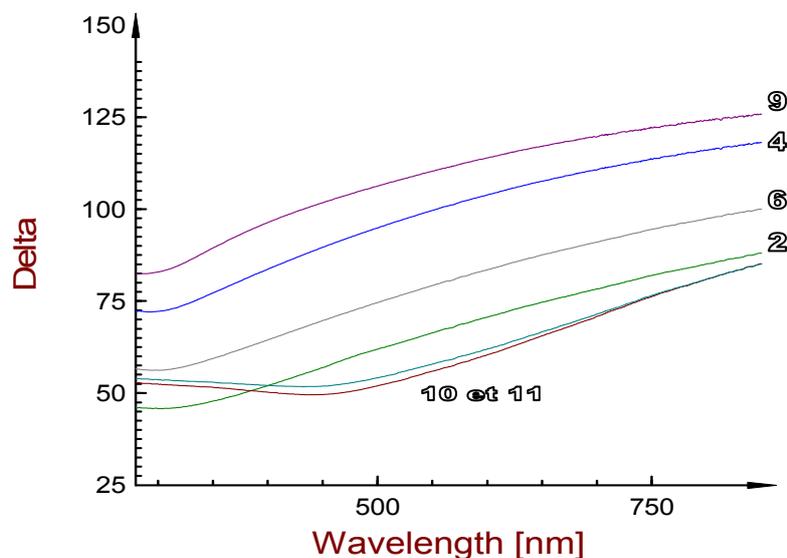


Figure 1-1 Mesure par ellipsométrie de couches de $Ti_{1-x}N_x$ de stœchiométries différentes. Les numéros des courbes correspondent aux numéros des échantillons que nous avons réalisé (Sp2b à Sp11b: voir chapitre III).

Le paramètre Δ représente le déphasage de la lumière après avoir traversé la couche ; il dépend de l'absorption spécifique du $Ti_{1-x}N_x$. Plus la concentration en azote est grande dans la couche, plus Δ est petit et l'absorption est grande ($\lambda > 500$ nm). La figure 1-1 nous montre qu'une estimation qualitative de la stœchiométrie du $Ti_{1-x}N_x$ est possible avec cette méthode. En effet nous verrons par la suite que les échantillons reportés sur la courbe suivent l'évolution monotone en composition d'azote.

Cette technique n'est cependant pas adaptée aux mesures précises de concentration nécessaires à la caractérisation de la composition en azote des couches mince de $Ti_{1-x}N_x$ pour notre étude. Toutefois, cette technique, peu onéreuse, pourrait être utilisée pour une première estimation de la stœchiométrie de certains échantillons. Il serait possible de déterminer la stœchiométrie d'un échantillon en le comparant avec un ensemble d'échantillons préalablement mesurés dont la stœchiométrie a été déterminée par une méthode plus précise ; c'est-à-dire que cette méthode pourrait être calibrée. Malheureusement, pour des échantillons dont la concentration en azote est supérieure à 50 %, cette mesure ne semble plus adaptée. En effet, on observe, sur la figure ci-dessus, que pour des échantillons qui présentent une concentration en azote supérieure à celle du titane (Sp10 et Sp11), les courbes se resserrent et il devient compliqué de faire l'estimation de la concentration en azote dans le $Ti_{1-x}N_x$; la méthode perd, donc, sa sensibilité.

Des couches de TiN ont été étudiées par [Humlicek-1998], dans le but de mesurer la conductivité électrique de couche mince de ce matériau déposé en couche mince sur un substrat en silicium.

c) Spectrométrie de rétrodiffusion d'ions (RBS)

La stœchiométrie des couches de $Ti_{1-x}N_x$ a été évaluée par spectrométrie de rétrodiffusion Rutherford, plus connue sous l'acronyme RBS (Rutherford Backscattering Spectrometry) [Chu-1978]. Les mesures RBS et NRA (Nuclear Reaction Analysis) ont été réalisées par la société Arcane à Gradignan, elles ont été supervisées au LETI par François Pierre du DTSI. Le principe repose sur la diffusion élastique d'un flux d'ions incident de haute énergie, phénomène résultant de l'interaction coulombienne entre les noyaux projectiles et ceux des atomes du matériau sondé. La RBS est utilisée pour estimer la concentration atomique d'éléments lourds. Pour les éléments légers, la technique NRA comble le déficit de précision de la RBS.

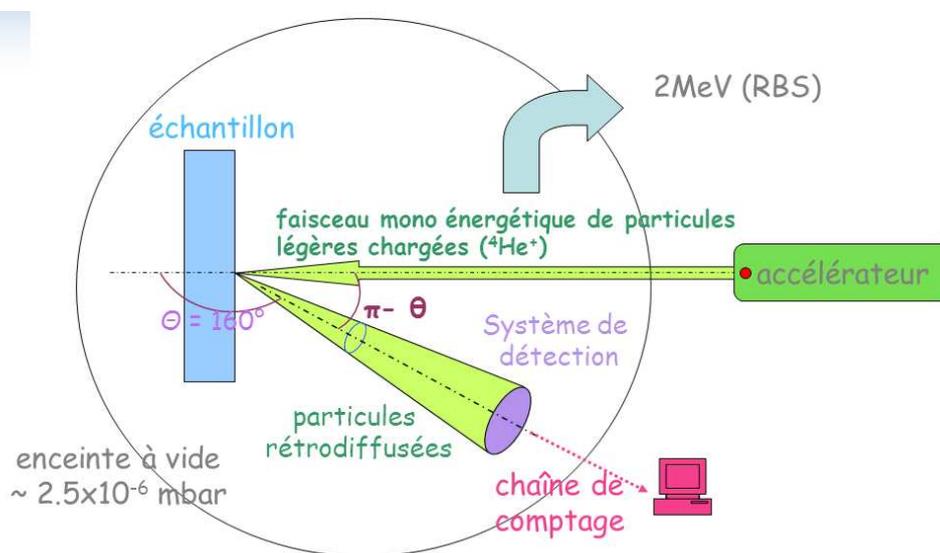


Figure 1-2 Principe de la détection par spectrométrie de rétrodiffusion d'ions à haute énergie

L'échantillon est placé dans une chambre d'analyse dans laquelle règne un vide de l'ordre de 2×10^{-6} mbar. Il est orienté perpendiculairement au faisceau de particules incidentes. Ce faisceau est constitué d'un flux monocinétique d'ions $^4\text{He}^+$ d'énergie 2 MeV, délivré par un accélérateur électrostatique. Les particules incidentes, rétrodiffusées par les noyaux des atomes cibles, sont comptées et analysées en énergie à un angle de 160° par rapport à la direction initiale. Sur les spectres obtenus après traitement par la chaîne d'acquisition, l'énergie des particules rétrodiffusées, convertie en numéro de canal, est portée en abscisse, tandis que leur nombre figure en ordonnée. L'énergie mesurée sera d'autant plus faible que l'élément cible est léger, et que l'interaction a lieu à plus grande profondeur dans l'échantillon. Ainsi, l'étalement spectral sera plus important dans le cas des matériaux massifs, comme ici pour le substrat de silicium, que dans celui des couches minces, où la réponse prend la forme de créneaux ou pics plus ou moins étroits, selon l'épaisseur du film traversée par le faisceau incident. D'autre part, à toute énergie (ou indice de canal), donc à toute profondeur, le nombre de particules rétrodiffusées (en ordonnée) est proportionnel à la concentration atomique de l'élément considéré. Les spectres RBS fournissent ainsi une information quantitative sur la distribution en profondeur des éléments constitutifs de la cible.

Le spectre RBS enregistré sur l'échantillon Sp2 est reporté sur la figure 1-3, avec le modèle fournissant le meilleur ajustement numérique. On peut observer le titane et l'azote représentatifs de la couche de TiN de 93 nm d'épaisseur. La signature de la couche de niobium, déposée en surface, épaisse d'environ 20 nm, apparait de manière bien individualisée dans le spectre. On remarque également la présence de pollutions, carbone mais surtout oxygène, et ce, sur l'ensemble des échantillons analysés.

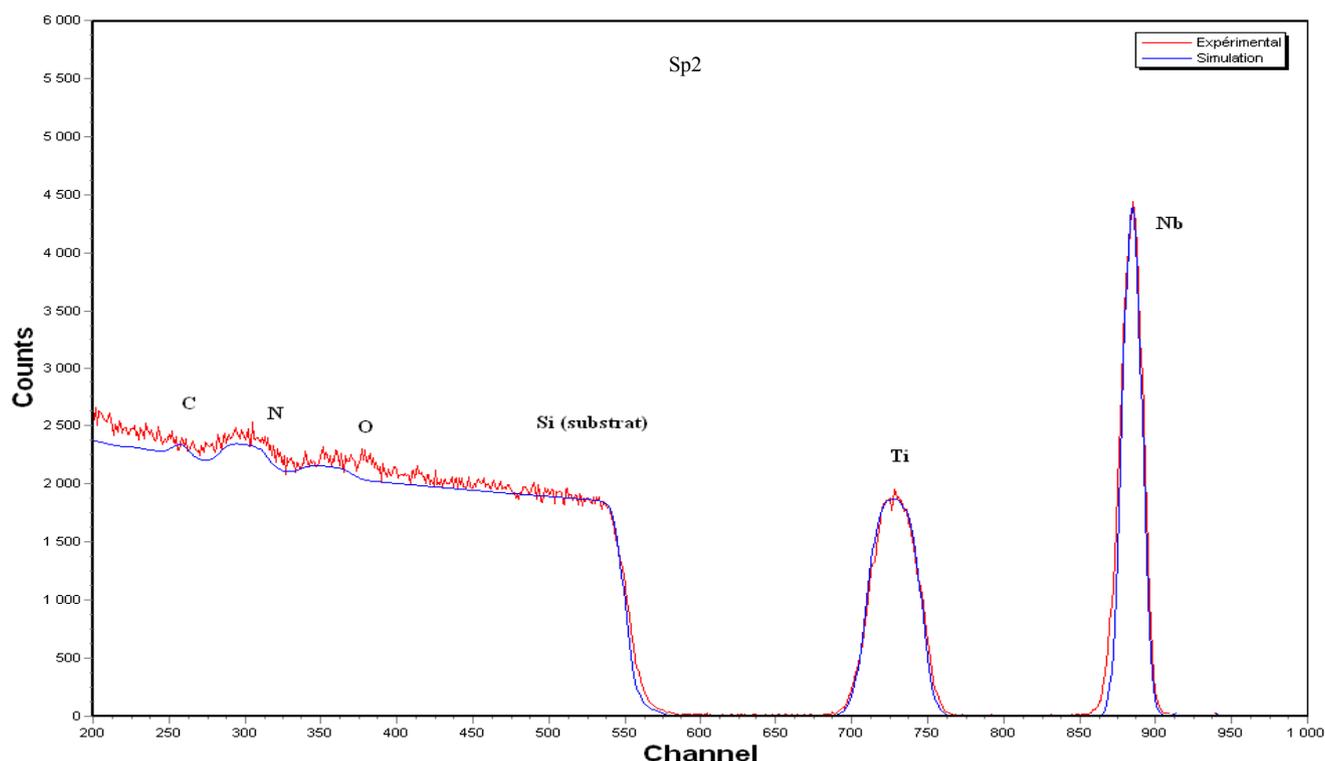


Figure 1-3 Spectre RBS de l'échantillon Sp2. La courbe rouge indique la mesure expérimentale et la bleue représente une simulation

Le dosage par RBS d'éléments légers comme l'azote ou l'oxygène est délicat dans la plupart des cas, car leur section efficace de rétrodiffusion est faible d'autant que leurs pics s'ajoutent ici avec le signal relatif au substrat silicium. Dans la gamme d'énergie accessible sur les accélérateurs d'ions les plus courants, la technique NRA, permet de pallier cette difficulté. Elle est particulièrement adaptée pour la détection d'éléments légers contenus dans des matrices d'éléments plus lourds. Le choix de la particule incidente, de son énergie et de la géométrie d'analyse dépend de l'élément à quantifier. Dans le cas présent, le dosage de l'azote a été effectué au moyen d'un faisceau de deutons (noyaux de deutérium) incident de 1,8 MeV. Le franchissement de la barrière coulombienne du noyau cible ^{14}N provoque l'émission de protons à une énergie caractéristique de l'azote. L'aire sous le pic correspondant dans le spectre est comparée à celle mesurée sur un échantillon de référence, permettant le dosage absolu (en atomes / cm^2) de l'azote. Les valeurs obtenues par NRA pour l'azote sont réintroduites dans la simulation RBS, afin d'obtenir une estimation plus précise de la composition atomique.

Echantillon	Débit N ₂ (sccm)	Epaisseur (nm)	Ti [$\pm 0,15$] (10 ²² at/cm ³)	N [$\pm 0,1$] (10 ²² at/cm ³)	x (%) : Ti _{1-x} N _x	y : TiN _y
Sp9	4,2	177	5,31	2,05	27,8	0,385
Sp4	4,6	145	5,10	2,76	35,1	0,541
Sp6	4,8	107	3,41	2,85	45,5	0,836
Sp2	5,1	93	3,33	3,17	48,8	0,952
Sp3	4,9	80	3,88	3,75	49,2	0,968
Sp10	7	63	3,65	3,75	50,6	1,03
Sp11	15	80	3,94	4,46	53,1	1,13

Tableau 1-1 Récapitulatif des concentrations atomiques collectées avec l'analyse RBS /NRA sur les différentes couches de Ti_{1-x}N_x. La concentration atomique en (at / cm²) obtenue par RBS/NRA est divisée par l'épaisseur préalablement déterminée.

Le tableau ci-dessus regroupe les concentrations absolues (en atomes/cm³) ainsi que les stoechiométries des différents échantillons mesurés. Les incertitudes sont calculées à partir des erreurs statistiques des mesures ramenées aux incertitudes des mesures d'épaisseur moyenne exposées dans le tableau 3-1 du chapitre III.

La mesure d'épaisseur impacte fortement les valeurs de concentration. La concentration mesurée par RBS est également fortement sensible aux imperfections de la maille cristalline. Les manques ou les vides entre les grains des matériaux polycristallins abaisseront les valeurs de concentration des matériaux. Nous reprendrons dans la suite de ce chapitre, lors de l'analyse des masses volumiques, les informations issues du tableau 1-1.

La mesure NRA (de la concentration d'azote) est calibrée avec une référence Si₃N₄ étalonnée déposée sur substrat silicium.

Le graphe de la figure suivante montre qu'il est possible d'ajuster la stoechiométrie en maîtrisant le débit d'azote lors du dépôt de Ti_{1-x}N_x. Un faible augmentation de débit suffit à faire passer la concentration en azote de 27% à 45%. En revanche, pour introduire une sur-nituration ($y > 1$ ou concentration en azote $x > 50\%$), il faut fournir au système un débit d'azote important.

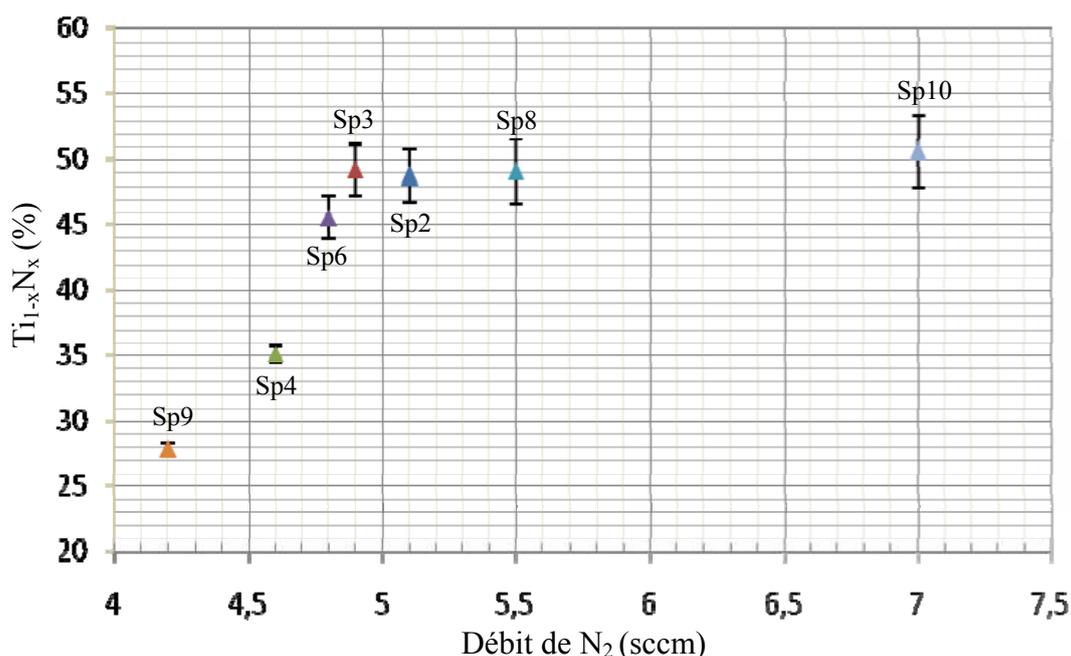


Figure 1-4 Stœchiométrie mesurée en fonction du débit d'azote utilisé pendant la formation de la couche de $Ti_{1-x}N_x$. Le point à 15 sccm (Sp11) pour $53,1\% \pm 2,35\%$ n'est pas représenté sur ce graphe. Le point Sp8 a été rajouté par rapport au tableau 1-1, la qualité de ce point est discutable.

d) Les éléments contaminants

Les mesures RBS et NRA ont révélé la présence d'une contamination en oxygène dans presque toutes les couches de $Ti_{1-x}N_x$ dont la stœchiométrie en azote est supérieure à 35%. Cette présence d'oxygène est comprise entre 10 à 15% selon les couches.

Pour rechercher la cause de la présence d'oxygène, nous avons réalisé une mesure pour visualiser la localisation et déterminer la concentration de cette contamination, dans la couche de l'échantillon Sp6. La méthode de mesure utilisée est l'analyse par Micro-Auger réalisée par Eugénie Martinez au LETI (DTSI) au CEA Grenoble.

Cette technique consiste à déterminer la nature chimique des atomes en analysant les électrons Auger émis par le matériau bombardé par un canon à électrons.

La figure 1-5, ci-dessous, représente la mesure par micro Auger d'un échantillon dont la stœchiométrie est très proche de celle mesurée pour l'échantillon Sp6. La concentration en oxygène est présente de manière uniforme dans l'épaisseur de la couche. On notera que la présence d'or dans la mesure est due à une couche de couverture de 20 nm d'or (déposée 'in-situ'). Cette couche a une fonction de protection pour limiter l'oxydation de la couche de TiN lors de la sortie de l'échantillon à l'atmosphère. Aucune marche en polyamide n'a été utilisée lors de la fabrication de cet échantillon.

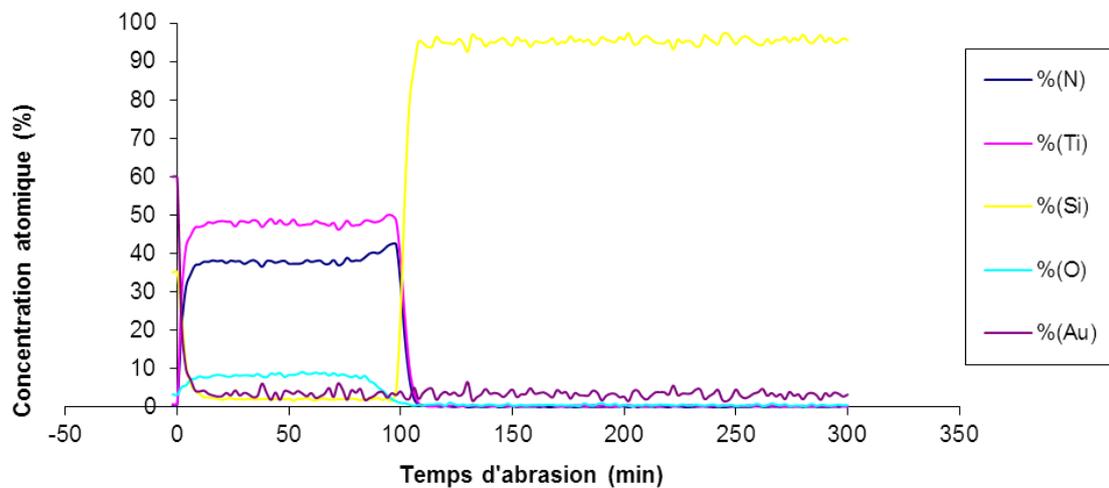


Figure 1-5 Mesure par micro Auger de la répartition en profondeur des éléments composant la couche Sp6.

Aujourd'hui encore, nous ne connaissons pas avec certitude la cause de cette présence d'oxygène. L'impact d'une fuite lors du dépôt n'est pas à écarter. Une possibilité de dégazage des parois de l'enceinte est une autre cause possible. Les dépôts d'or de faible épaisseur sont parfois susceptibles de former des îlots plutôt qu'une couche uniforme, ce qui rend potentiellement la couche de recouvrement perméable à l'oxygène. Si tel est le cas, il est possible d'avoir une diffusion de l'oxygène dans le profil de la couche, [Logothetidis-1998] observe ce phénomène d'oxydation et dans des proportions analogues aux nôtres. Identifier l'origine et réduire cette pollution à l'oxygène nécessite une investigation supplémentaire conséquente.

Avec les résultats de l'étude en diffraction X, nous verrons que l'oxygène est absent de la composition des phases cristallines observées, seules les cristallites de $Ti_{1-x}N_x$ ressortent des mesures. L'hypothèse la plus crédible serait que les inclusions d'oxygène ne se fassent que dans les parties poreuses ou les joints de grains de la couche de $Ti_{1-x}N_x$. Si l'oxygène mesuré en micro Auger est dû à une oxydation à pression ambiante après dépôt, cette pollution n'affectera pas la réalisation des multicouches déposées les unes après les autres sans remise à l'air. En conclusion, nous négligerons en première approximation cette pollution de nos couches par l'oxygène dans notre étude consistant à démontrer la faisabilité de liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique.

1-2 Diffraction de rayons X

La diffraction de rayons X par des matériaux cristallins permet la caractérisation de leur structure atomique et ainsi de déterminer la nature de la phase cristalline, le paramètre de maille, une possible orientation préférentielle, la taille des cristallites et les contraintes internes. L'étude des paramètres cristallins par diffraction X a été réalisée en étroite collaboration avec Stéphanie Pouget, chef du groupe SGX à l'INAC au CEA à Grenoble.

Les rayons X interagissent avec la matière. Ils peuvent soit être diffusés, soit être absorbés par les atomes. L'effet photoélectrique qui intervient pour des rayons X absorbés, induit la réémission de deux types de rayonnements : des électrons éjectés de leur orbitale et des rayons X dit de fluorescence avec une longueur d'onde caractéristique de l'atome impacté. Dans le cas de la diffusion du rayonnement X, on observe deux modes : la diffusion inélastique où la longueur d'onde est modifiée (l'effet Compton) et la diffusion élastique sans modification de longueur d'onde qui est liée à la diffusion par l'ensemble des électrons du cortège atomiques des atomes liés du cristal. C'est ce second mode qui est à l'origine du phénomène de diffraction [Guinier-1956].

a) Différentes structures cristallines

Les matériaux solides peuvent présenter différents types d'arrangements atomiques. Le verre (silice SiO_2) par exemple, est un matériau amorphe. Même si le voisinage de chaque atome de Si est bien défini, à longue distance, le verre ne présente pas d'ordonnement atomique ; on parle alors de corrélations à courte portée.

D'autres matériaux comme, par exemple, le sel (NaCl), le sucre, le fer ou le diamant présentent un arrangement périodique des atomes les composant. Une unité élémentaire ou maille élémentaire est reproduite à l'infini. Ce type de matériaux est dit cristallin.

On distingue plusieurs types de matériaux cristallins. Ainsi, si l'orientation des mailles est reproduite à l'identique dans tout le volume (dans toutes les directions) de l'échantillon, on parle d'un monocristal.

Un polycristal est un ensemble de petits monocristaux (ou cristallites) d'orientations relatives aléatoires.

Il est cependant possible que les cristallites présentent des orientations préférentielles dans un polycristal. Ainsi, les cristallites peuvent aligner l'une de leurs directions tout en restant désorientés dans le plan perpendiculaire à cette direction unique préférentielle ; on parle dans ce cas d'un matériau texturé.

b) Diffraction de rayons X dans un matériau cristallin

En réponse à l'excitation par l'onde électromagnétique incidente, les atomes émettent des ondes sphériques de même longueur d'onde. Ces ondes interfèrent. L'arrangement périodique des atomes dans un matériau cristallin est à l'origine de l'existence d'ondes planes diffractées. Elles apparaissent lorsque les conditions d'interférences constructives sont vérifiées.

Les conditions d'interférences constructives sont traduites par la loi de Bragg. Un cristal pouvant être considéré comme un empilement de plans atomiques parallèles et équidistants, la loi de Bragg lie l'angle d'incidence θ sur les plans atomiques, la distance inter-réticulaire d entre les plans et la longueur d'onde λ . L'ordre de diffraction n est un entier positif.

$$n\lambda = 2d \cdot \sin \theta \quad (\text{Eq 1.1})$$

Les différentes familles de plans atomiques sont repérées par des indices (h k l). Nous ne donnerons pas ici la définition générale de ces indices. Les matériaux étudiés dans ce manuscrit présentent une structure cubique, nous nous limiterons à mentionner que dans un cristal cubique la famille de plans (h k l) est perpendiculaire à la direction [h k l] dans le cube. Dans la suite de ce paragraphe, nous utiliserons la formule liant les indices (h k l) à la distance inter-réticulaire d_{hkl} de la famille de plans correspondante. L'équation 1.2 représente cette formule pour un cristal cubique. Le paramètre de maille a correspond à la longueur d'une arête du cube élémentaire (maille) qui se répète.

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \quad (\text{Eq 1.2})$$

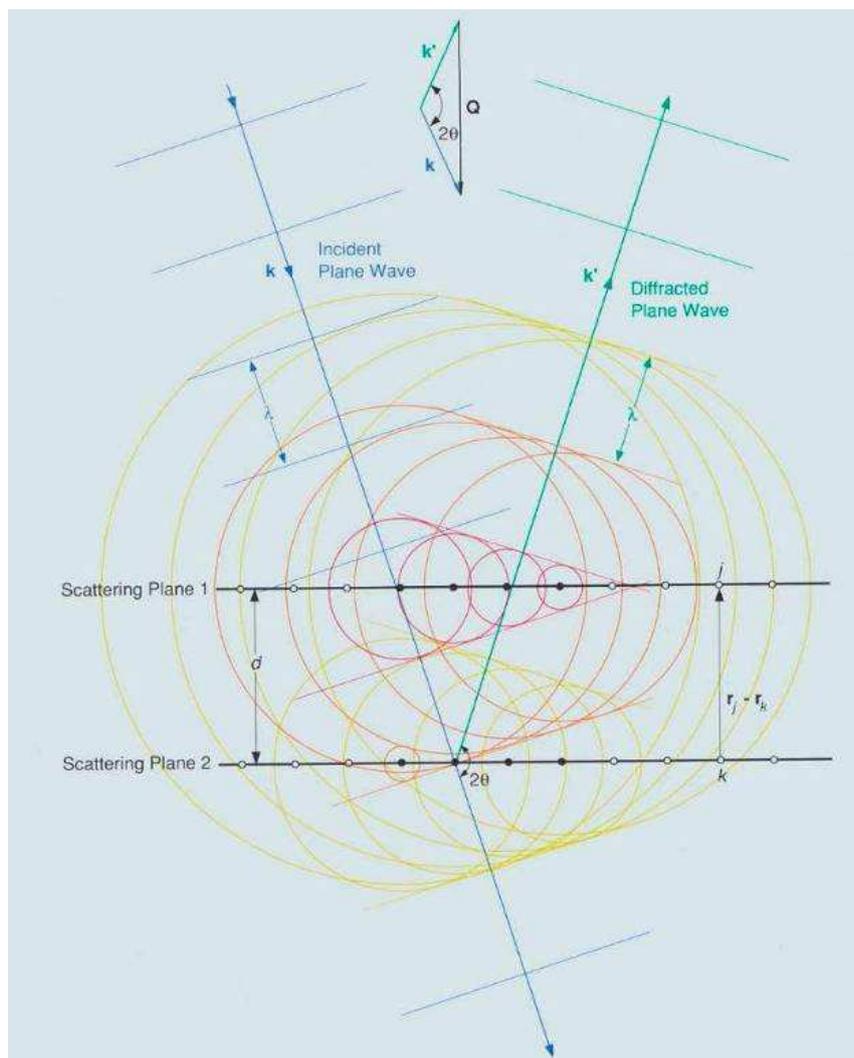


Figure 1-6 Schéma de formation de l'onde plane émergente diffractée

c) Principe des mesures en diffraction X

Sur un diffractomètre, deux angles sont pilotables indépendamment : l'angle 2θ entre les faisceaux incident et diffracté, et l'angle ω d'incidence sur la surface de l'échantillon.

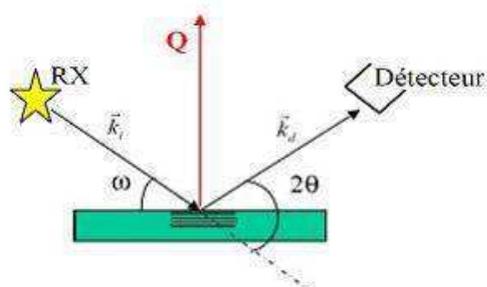


Figure 1-7 Schéma de principe de la diffraction de rayons X par un matériau cristallin en couche mince

Un paramètre important dans une expérience de diffraction, est le vecteur moment transféré \vec{Q} (voir figure 1-7), défini comme étant la différence des vecteurs d'onde diffractée \vec{k}_d et incidente \vec{k}_i . Lors d'une expérience de diffraction, seul l'agencement atomique le long de la direction du vecteur \vec{Q} est sondé.

L'intensité des interférences constructives est proportionnelle au carré du facteur de structure. Le facteur de structure est défini par la somme pour chaque position des atomes dans la maille, du produit du pouvoir diffusant ($f_j(\vec{Q})$) et d'un terme de déphasage lié à l'orientation relative de la position sondée et de la position des atomes dans la maille.

$$F(\vec{Q}) = \sum_{r_j}^{maille} f_j(\vec{Q}) \cdot e^{i\vec{Q} \cdot \vec{r}_j} \quad (\text{Eq 1.3})$$

L'intensité est liée à la position des atomes dans la maille. Certaines symétries annihilent l'intensité de certaines interférences constructives et ce pour différentes structures cristallines.

**La mesure $\theta/2\theta$:*

Elle consiste en un balayage en 2θ et ω , en imposant $\omega = \theta$. Dans ce cas, le vecteur \vec{Q} est perpendiculaire à la surface de l'échantillon. La figure ci-dessous est un exemple de diffractogramme obtenu à partir d'une mesure $\theta/2\theta$ à partir d'un échantillon de silicium monocristallin.

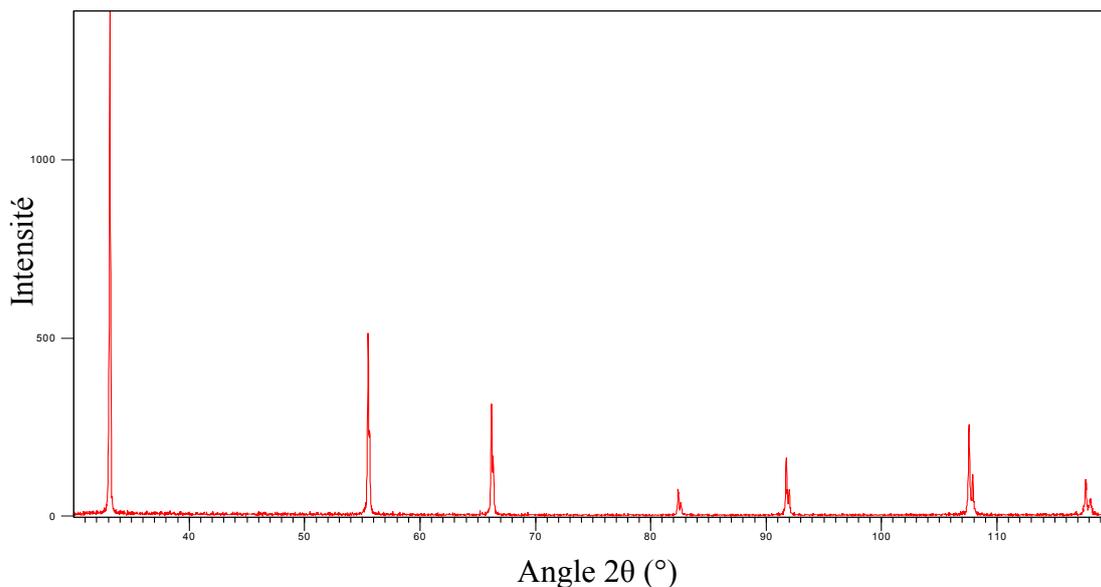


Figure 1-8 Diffractogramme d'un échantillon de silicium polycristallin

Par la relation de Bragg, les positions des pics renseignent sur les familles de plans (h k l) parallèles à la surface. Dans le cas particulier d'un matériau polycristallin, les cristallites ont des orientations aléatoires. Sur le diffractogramme apparaissent les pics de diffraction par les différentes familles de plans de la phase cristalline présente. C'est un spectre dit de poudre.

Dans le cas d'un matériau monocristallin, seuls les pics correspondant à la famille de plans parallèles à la surface apparaîtront lors de la mesure $\theta/2\theta$. Par exemple, dans un substrat de silicium [100], les plans parallèles à la surface sont les plans (100), le diffractogramme ne présentera que le pic (400), car les autres pics (100), (200) et (300) n'apparaissent pas pour des raisons de symétrie cristalline : leur facteur de structure est nul. Dans ce manuscrit, nous ne traiterons pas de l'étude des intensités de pics, tout en observant les spectres sous l'aspect qualitatif quand c'est nécessaire.

Dans un matériau polycristallin, la largeur des pics dépend de la taille des cristallites suivant l'axe perpendiculaire à la surface, ainsi que d'un éventuel gradient du paramètre de maille également selon l'axe perpendiculaire à la surface.

**Le balayage suivant l'angle ω (ou « rocking curve »):*

Pour ce type de mesure, le détecteur est fixe, à une position correspondant à un pic de diffraction. L'angle 2θ est fixe et seul l'angle ω est balayé.

Dans le cas d'un matériau polycristallin, les cristallites présentant des orientations quelconques, la variation de l'angle d'incidence ω est sans effet : l'intensité de la « rocking curve » est constante et plate.

Dans le cas d'un échantillon monocristallin ou texturé (perpendiculairement à la surface), l'intensité décroît lorsque l'angle ω s'éloigne de l'angle θ . La largeur du pic dépend de la mosaïcité de la famille de plans parallèles à la surface, ainsi que de la taille des cristallites dans le plan de la couche (parallèlement à la surface).

d) Le diffractomètre utilisé

La machine d'acquisition de diffraction X utilisée est un système X'Pert de chez Panalytical. Le faisceau de rayonnements X est obtenu à partir d'une anode de Cobalt, les longueurs d'ondes des raies d'émissions sont : $\lambda_{K_{\alpha 1}} = 1,7890 \text{ \AA}$; $\lambda_{K_{\alpha 2}} = 1,7927 \text{ \AA}$; $\lambda_{K_{\beta}} = 1,6207 \text{ \AA}$ étant en grande partie filtrée. Les données mesurées sont dépouillées par logiciel et ensuite analysées.

Deux fonctions mathématiques Pseudo-Voigt et Pearson VII (voir formules ci-dessous) sont utilisées pour ajuster les pics $\theta/2\theta$. La fonction Pseudo-Voigt est un ajustement mixte Lorentzien / Gaussien. La fonction Pearson VII est utilisée dans notre cas pour les courbes de « rocking curve » pour le niobium. $HWHM$ correspond à la demi-largeur à mi-hauteur du pic, η et m sont des paramètres d'ajustement.

$$I(x) = I_0 \left(\eta \frac{1}{1 + \frac{(x-x_0)^2}{HWHM^2}} + (1-\eta) e^{-\ln 2 \frac{(x-x_0)^2}{HWHM^2}} \right)$$

Fonction Pseudo-Voigt

$$I(x) = \frac{I_0}{\left(1 + \frac{2^m - 1}{HWHM^2} (x-x_0)^2 \right)^m}$$

Fonction Pearson VII

e) Mesure $\theta/2\theta$: Cas de l'échantillon Sp2 sur Si

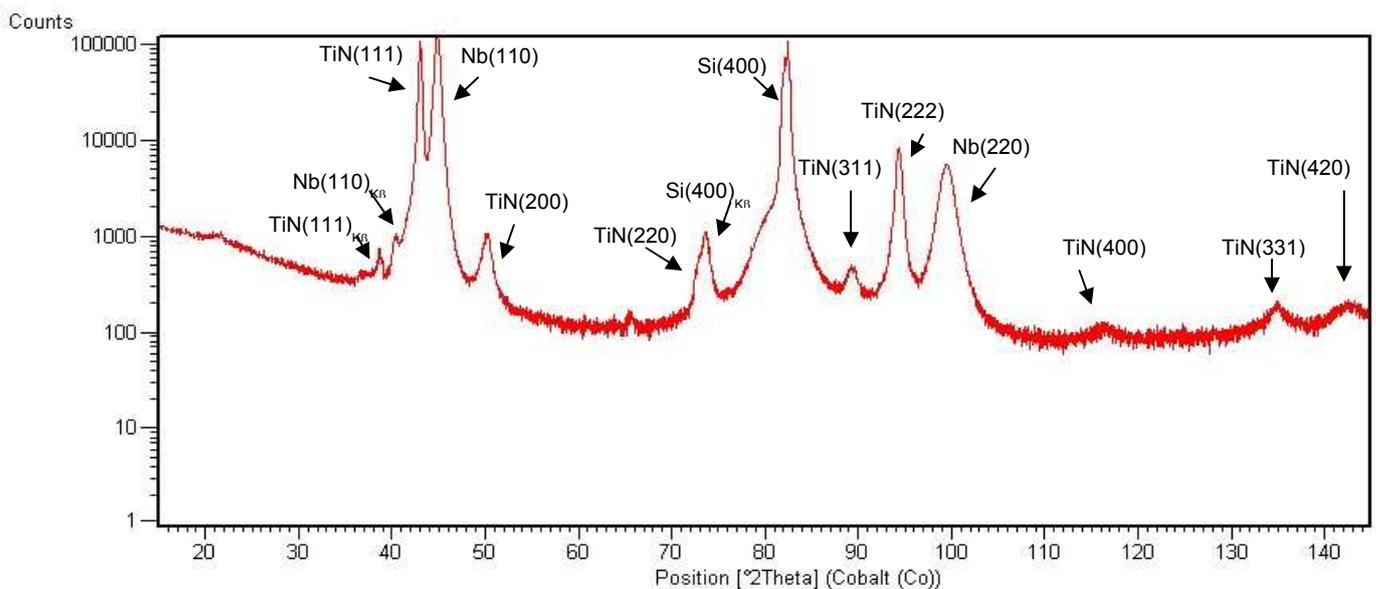


Figure 1-9 Scan $\theta/2\theta$ pour un échantillon contenant des couches de Nb et de TiN (Sp2)

La figure 1-9 présente une mesure $\theta/2\theta$ traitée d'un échantillon comportant une couche de niobium et une couche de nitrure de titane de type Sp2 déposées sur un substrat de silicium monocristallin [100]. L'identification de phase a été faite en comparant les positions des pics mesurés avec celles attendues pour les phases TiN et Nb.

On dispose d'une base de données (ICDD – version 2011) contenant les positions attendues des différents pics de diffraction pour un large éventail de phases cristallines pour les polycristaux. Cette base de données renseigne également sur les intensités relatives attendues pour chaque pic de la phase polycristalline étudiée.

Sur la figure 1-9, les pics relatifs au TiN sont tous présents aux angles attendus en concordance avec les données des fiches de référence : 04-009-8169 ([Huneau-2000]) et 04-013-7253 ([Mayrhofer-2006]). Il est cependant important de noter que les pics (111) et (222) ont une intensité renforcée par rapport à celle de la poudre polycristalline. Cette caractéristique indique que la couche de TiN de l'échantillon Sp2 présente une orientation préférentielle importante ; elle est texturée.

Seuls les pics (110) et (220) du niobium sont présents aux angles attendus en concordance avec la fiche de référence : 04-014-0261 ([Dai-2006]). Le fait de ne voir ressortir que les pics de la famille de plan (110) pour le Nb, implique que la couche de Nb de l'échantillon Sp2 est totalement texturée. Les mesures $\theta/2\theta$ ne renseignent pas sur l'orientation des cristallites dans le plan de la couche. Nous verrons plus loin dans ce paragraphe, lors de l'analyse des figures de pôles, que l'orientation des autres plans est aléatoire, c'est-à-dire que les cristallites ne présentent pas d'orientations préférentielles dans le plan de la couche.

La mesure présente un autre pic de forte intensité centré sur 83° . Ce pic est la raie (400) du silicium monocristallin (fiche de référence : 04-007-8736 [Parrish-1960]) qui compose le substrat sur lequel sont déposées les couches de TiN et de Nb. Le pic à l'angle 74° est une résiduelle du silicium et masque en partie la raie (220) du TiN.

f) Analyse quantitative des résultats expérimentaux

La résolution de l'équipement pour les mesures en $\theta/2\theta$ a été mesurée sur un échantillon de Si polycristallin. Une largeur à mi-hauteur de $0,10^\circ (\pm 0,01)$ est observée sur la gamme 40° à 50° de 2θ et $0,12^\circ (\pm 0,01)$ pour la gamme 90° à 100° .

**Le paramètre de maille :*

Nous avons vu que la position des pics donne accès aux paramètres de maille en utilisant la loi de Bragg (Eq 1.1) et la relation (Eq 1.2).

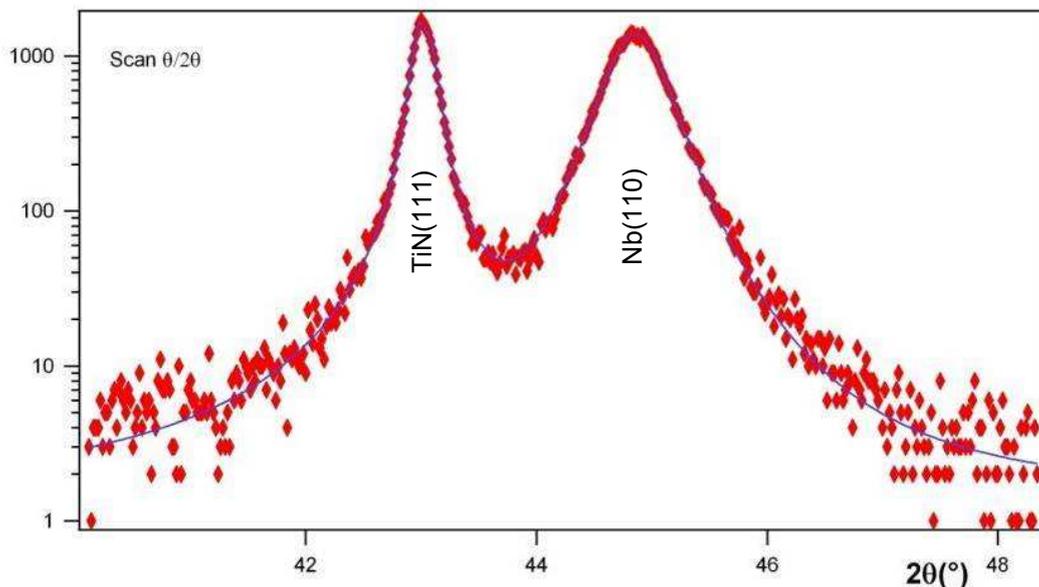


Figure 1-10 Scan $\theta/2\theta$: pics (111) du TiN et (110) du Nb

Avec le dépouillement des résultats par simulation, on calcule un paramètre de maille pour le **TiN** de l'échantillon Sp2 à l'angle $42,987^\circ (\pm 0,001)$ pour le plan (111) de **4,228 Å** ($\pm 0,005$).

Pour le **Nb**, on calcule pour l'angle $44,823^\circ (\pm 0,003)$ pour le plan (110) un paramètre de maille égale à **3,318 Å** ($\pm 0,005$).

**Exploitation des largeurs des pics :*

Les largeurs des pics mesurées en scan $\theta/2\theta$ vont nous apporter des informations importantes sur la taille des cristallites perpendiculaires à la couche et sur le gradient de paramètre de maille.

- Si on se place dans l'hypothèse que le gradient de paramètre de maille est négligeable, le calcul de la taille des cristallites à partir de la largeur totale à mi-hauteur (FWHM) se fait avec la formule de Scherrer.

$$\Delta(2\theta) = \frac{K\lambda}{L_{perp} \cdot \cos \theta} \quad (\text{Eq 1.4})$$

K est un paramètre qui dépend de la forme des cristallites ainsi que du choix de considérer la largeur totale à mi-hauteur. Dans notre cas, nous fixons le facteur K à 1. Mais, il est important de souligner que l'utilisation de la formule de Scherrer repose sur différentes hypothèses ; les résultats obtenus sont assortis d'une incertitude relativement importante, de l'ordre de 20%.

- Si la taille des cristallites est suffisamment grande pour que l'élargissement des pics dont elle est à l'origine soit négligeable, la relation entre la largeur du pic et le gradient de paramètre de maille est :

$$\Delta(2\theta) = 4\varepsilon_{perp} \cdot \tan \theta \quad \text{avec} \quad \varepsilon = \frac{|a - \bar{a}|}{\bar{a}} \quad (\text{Eq 1.5})$$

- Dans le cas général où les 2 effets contribuent, on utilise la formule suivante :

$$\Delta(2\theta) = 4\varepsilon_{perp} \cdot \tan \theta + \frac{K\lambda}{L_{perp} \cdot \cos \theta} \quad (\text{Eq 1.6})$$

L'analyse des résultats obtenus a démontré que dans le cas des couches de Nb et de $\text{Ti}_{1-x}\text{N}_x$, l'élargissement des pics est essentiellement dû au gradient de paramètre de maille.

Les valeurs estimées pour l'échantillon Sp2 sont :

- $\varepsilon_{perp} = \mathbf{0,15\%}$ pour le TiN (Sp2)
- $\varepsilon_{perp} = \mathbf{0,6\%}$ pour le Nb

Le fait que l'élargissement des pics, dû à l'effet de taille L_{perp} des cristallites, soit négligeable implique que $L_{perp} \sim > \mathbf{100 \text{ nm}}$.

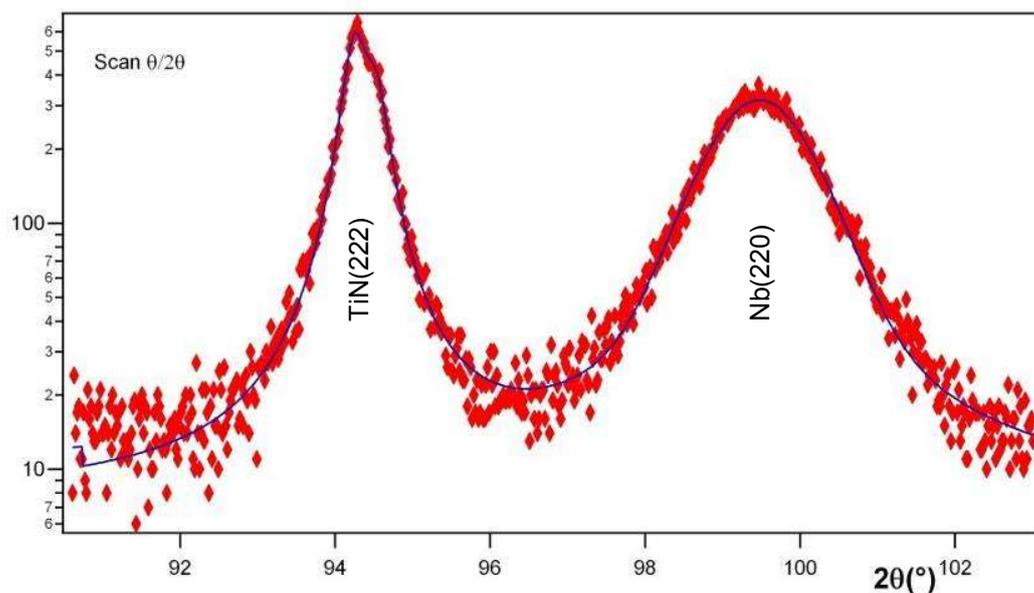


Figure 1-11 Scan $\theta/2\theta$: pics (222) du TiN et (220) du Nb

g) Scans ω

Une courbe en ω ou « rocking curve » permet une exploration d'informations sur la dimension des cristallites parallèles à la surface et sur la mosaïcité ou le « tilt » : distribution angulaire de la direction de texture (direction préférentielle).

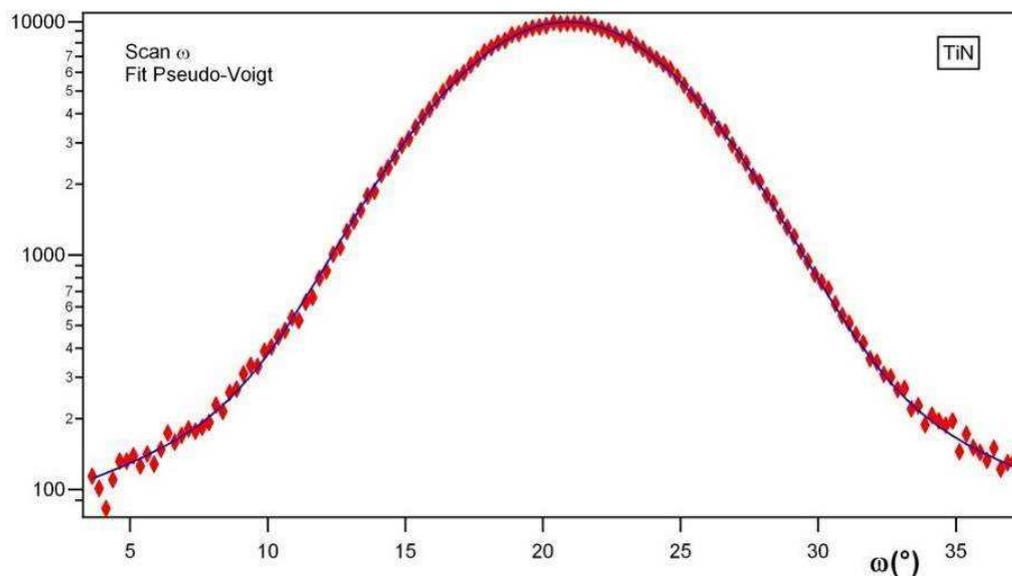


Figure 1-12 Scan ω centré sur le pic du TiN (111) (Sp2)

La valeur de la mosaïcité peut être calculée à partir de la largeur totale à mi-hauteur de la distribution de l'angle mesurée en ω . Plus la mosaïcité est grande, plus l'orientation des cristallites s'écarte de l'orientation préférentielle. Un matériau fortement texturé aura une valeur de mosaïcité faible.

L'estimation de la mosaïcité et de la largeur, parallèlement à la surface, des cristallites se fait avec la formule suivante :

$$\Delta(2\theta) = Tilt + \frac{K\lambda}{2 \cdot L_{par} \cdot \sin \theta} \quad (\text{Eq 1.7})$$

En mesurant les « rocking curves » pour plusieurs pics différents de la même famille de plans, il est possible de déterminer chacun des deux paramètres à partir de la valeur de la largeur du scan ω .

Dans notre cas, l'ensemble des mesures effectuées sur nos échantillons a révélé une largeur importante parallèlement à la surface. Cette grande largeur des cristallites implique que la largeur des pics des scans ω est essentiellement due à la mosaïcité. La largeur, parallèlement à la surface, des cristallites est estimée supérieure à $L_{par} \sim > 50 \text{ nm}$.

La mosaïcité (Tilt) calculée à partir de la formule (Eq 1.6) et des « rocking curves » pour l'échantillon de type Sp2 est :

- $8,9^\circ (\pm 0,2)$ pour le TiN
- $5,6^\circ (\pm 0,1)$ pour le Nb

Nous noterons avec la figure ci-dessous, l'importance d'adapter la fonction mathématique lors de l'ajustement numérique. Pour les scans ω du Nb, afin d'améliorer la précision de l'analyse de la forme de la courbe, nous utilisons une fonction mathématique différente (PearsonVII) de celle utilisée (Pseudo-Voigt) pour les « rocking curve » du $Ti_{1-x}N_x$ ou pour l'ensemble des scans $\theta/2\theta$.

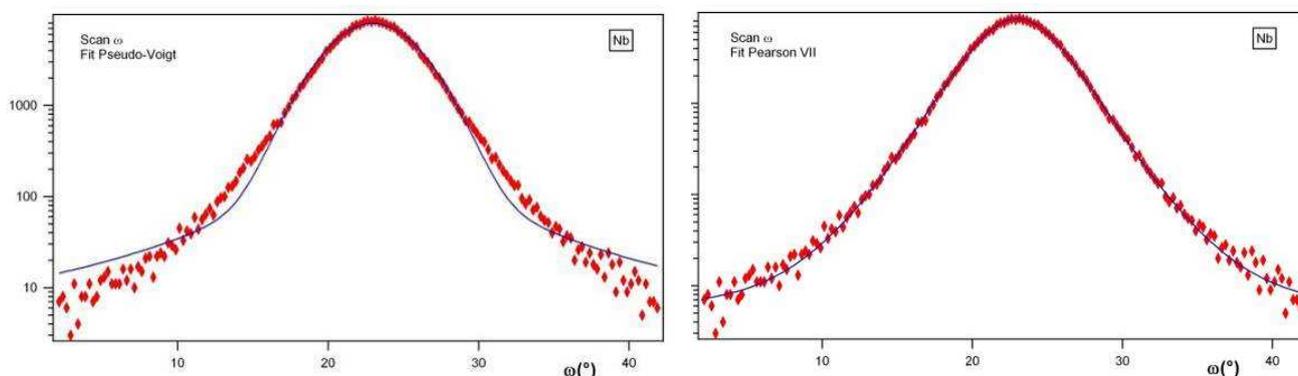


Figure 1-13 Scans ω pour le Nb : les deux fonctions mathématiques (lignes continues bleues) sont représentées

h) Figures de pôles

Une orientation préférentielle de nos couches apparaît avec les scans $\theta/2\theta$. A ce stade deux hypothèses sont possibles : soit les couches sont monocristallines (hypothèse posée surtout pour le Nb), soit les matériaux sont texturés et alors les directions des autres plans sont diverses.

Le principe de la mesure de figure de pôles réside dans la recherche des différentes orientations d'une famille de plans donnée (h k l), présentes dans le matériau. Pour ce faire, on fixe l'angle de diffraction 2θ à la valeur déterminée par la loi de Bragg pour la famille (h k l). Puis on applique différentes rotations à l'échantillon, par les angles de déclinaison χ et d'azimut φ , tout en enregistrant l'intensité diffractée pour chaque position de l'échantillon. On obtient une cartographie en deux dimensions.

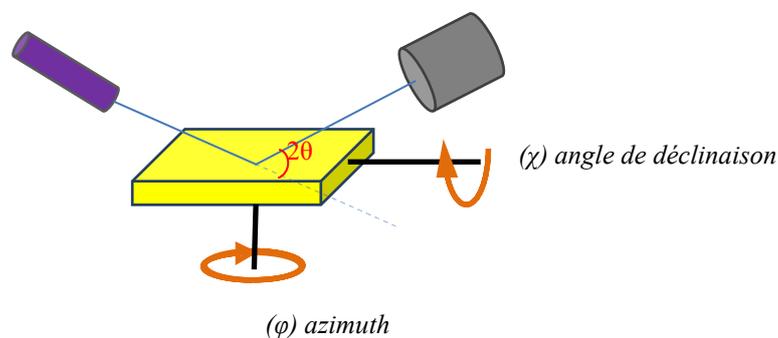


Figure 1-14 Schéma de principe d'une mesure de figures de pôles

Pour réaliser une figure de pôles (110) sur un silicium monocristallin d'orientation (100), on positionne le détecteur de manière à avoir $2\theta = 2\theta_{(110)}$. Alors, on observe quatre positions de l'échantillon pour lesquelles on enregistre un faisceau fortement diffracté. Elles sont telles que pour chacune d'entre elles, les plans (101), (110), (10 $\bar{1}$), (1 $\bar{1}$ 0), se trouvent en position de Bragg.

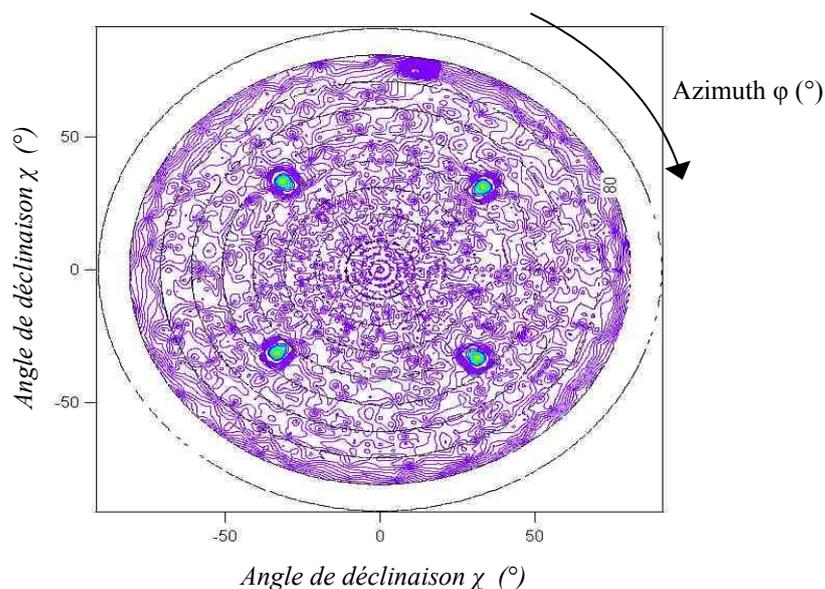


Figure 1-15 Figure de pôles (110) sur un substrat plan silicium monocristallin orienté (100)

La valeur de l'angle de déclinaison χ , pour laquelle on enregistre la diffraction par une famille de plans (h k l), correspond à l'angle que font les directions [100] de croissance du silicium et la direction [110].

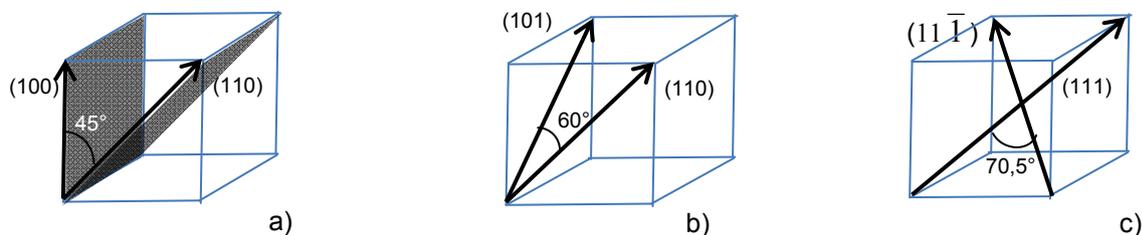


Figure 1-16 Représentation des plans pour les mesures du Si a), du Nb b) et du TiN c).

Des figures de pôles ont été réalisées pour les couches de TiN et Nb sur l'échantillon Sp2. Pour la mesure du Nb, le détecteur est positionné de manière à avoir $2\theta = 2\theta_{(110)}$ du Nb. Pour la mesure du TiN, le détecteur est positionné de manière à avoir $2\theta = 2\theta_{(111)}$ du TiN.

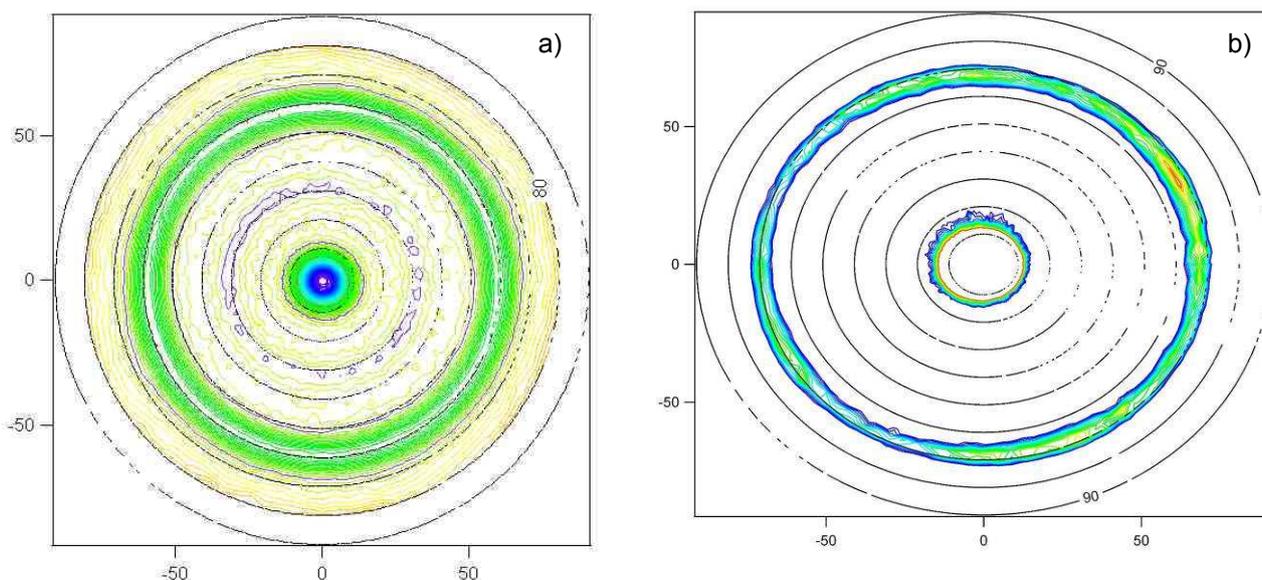


Figure 1-17 Figure de pôles (110) du Nb en a) et figure de pôles (111) du TiN Sp2 en b)
(les dispersions par rapport à l'angle 70,5° sont dues au code couleur utilisé pour retranscrire les intensités)

Dans l'exemple du Nb, l'intensité centrale correspond à la diffraction par la famille (110) dont l'orientation suit la texture. L'anneau correspond à la diffraction par les familles (101), (10-1), (011), (01-1), dont seul l'angle avec la normale à la couche est imposé (60° dans le cas du Nb). L'orientation dans le plan de la couche étant aléatoire, on obtient un anneau en φ . Le cas du TiN est analogue au Nb, à la différence que l'anneau se trouve à un angle de 70,53°.

Les couches de TiN et de Nb sont bien des couches polycristallines texturées. Les deux figures de pôles présentent une forme en anneau.

Une somme radiale (Fig 1-18) est réalisée pour les figures de pôles (Fig 1-17) du Nb et TiN de l'échantillon Sp2. La somme radiale consiste à faire la moyenne des intensités enregistrées aux différents angles φ pour chaque valeur des angles χ .

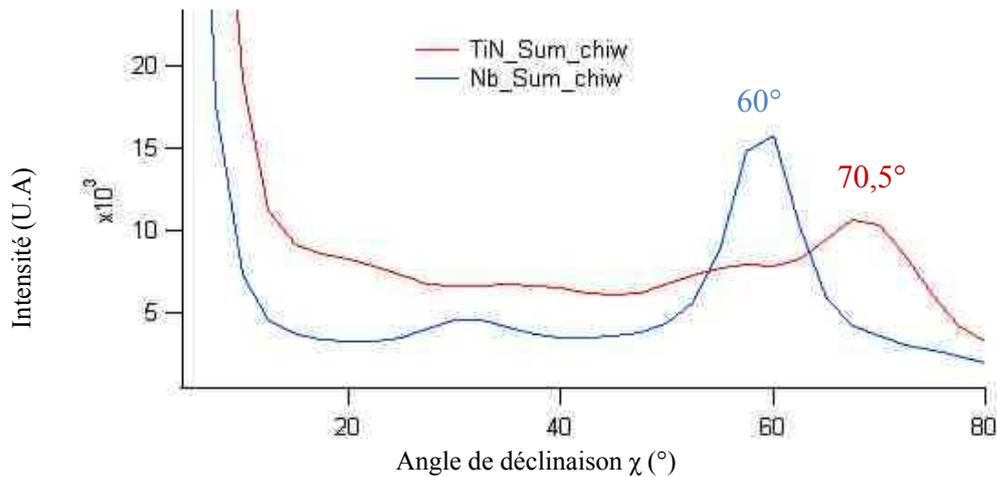


Figure 1-18 Somme radiale des figures de pôles pour le Nb et le TiN (Sp2)

Les angles de déclinaison que l'on mesure avec la somme radiale (figure 1-18) sont cohérents avec les angles déterminés dans les schémas des plans de la figure 1-16.

i) Evolution du paramètre de maille en fonction de la concentration d'azote

Une série de dépôts de TiN avec des stœchiométries différentes a été fabriquée dans le but d'une comparaison. Les mesures par diffraction X sont longues. Nous avons sélectionné quatre échantillons pour réaliser cette étude cristallographique : les Sp4, Sp6, Sp2 et Sp11; soit les extrémités et deux intermédiaires.

Le tableau ci-dessous récapitule les résultats sur le paramètre de maille, la mosaïcité et le gradient du paramètre de maille pour les 4 échantillons.

Couches	Ti _{1-x} N _x : x (%)	a (± 0,005) (Å)	Tilt (± 0,5) (°)	ϵ_{perp} (%)
Ti _{1-x} N _x Sp4	35,1	4,215	9,9	0,7
Ti _{1-x} N _x Sp6	45,5	4,226	9,9	0,23
Ti _{1-x} N _x Sp2	48,8	4,228	9,1	0,15
Ti _{1-x} N _x Sp11	53,1	4,275	9,9	0,18

Tableau 1-2 Paramètres cristallographiques en fonction de la stœchiométrie des couches de TiN

La mosaïcité n'évolue pas avec la stœchiométrie. L'hypothèse expliquant le fort écart du gradient de paramètre de maille pour le Sp4 consiste à dire que des défauts de cristallisation apparaissent de manière massive à l'approche de la stœchiométrie critique pour laquelle le TiN bascule dans la phase tétragonal Ti_2N ($Ti_{1-x}N_x$: $x = 33,3\%$, fiche de référence : 04-004-3072).

Notons que le paramètre de maille du TiN résulte à la fois de la stœchiométrie et de la présence de contraintes dans la couche. Nous verrons dans la suite de ce chapitre que la contrainte pour le Sp4 et le Sp11 est importante. Cette contrainte explique la divergence importante du paramètre de maille de l'échantillon Sp11.

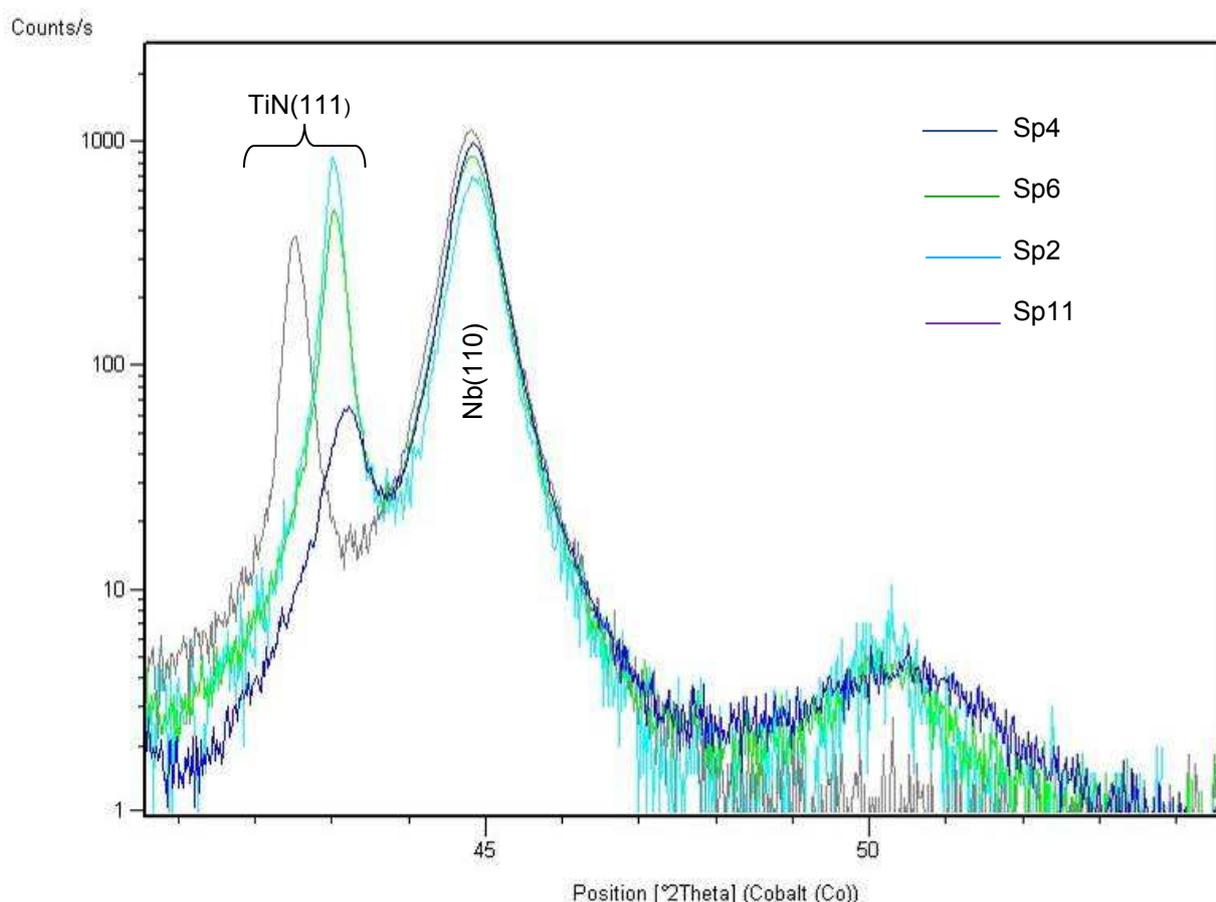


Figure 1-19 Comparaison des courbes $\theta/2\theta$ entre les différentes pour des échantillons avec une concentration d'azote différente : Sp2 (azur) Sp4 (marine) Sp6 (vert) et Sp11 (violet).

Une décroissance de l'angle 2θ de la raie pour le $Ti_{1-x}N_x$ (111) apparaît avec l'augmentation de la stœchiométrie du dépôt. Les raies de Nb (110) restent constantes en intensité et en angle.

La courbe (Fig 1-20) compile les résultats de paramètre de maille mesurés par diffraction X et une comparaison avec la littérature (courbe pleine).

L'évolution du paramètre de maille est cohérente avec les données de la littérature. Seul le point à 53,1% est fortement supérieur à la valeur attendue. Les valeurs de paramètres de maille mesurées par [Nagakura-1975] sont comparables à nos mesures. Rappelons que les points à 35,1 et 53,1 en pourcentage d'azote ont une contrainte interne importante, ce qui a une conséquence sur le paramètre de maille.

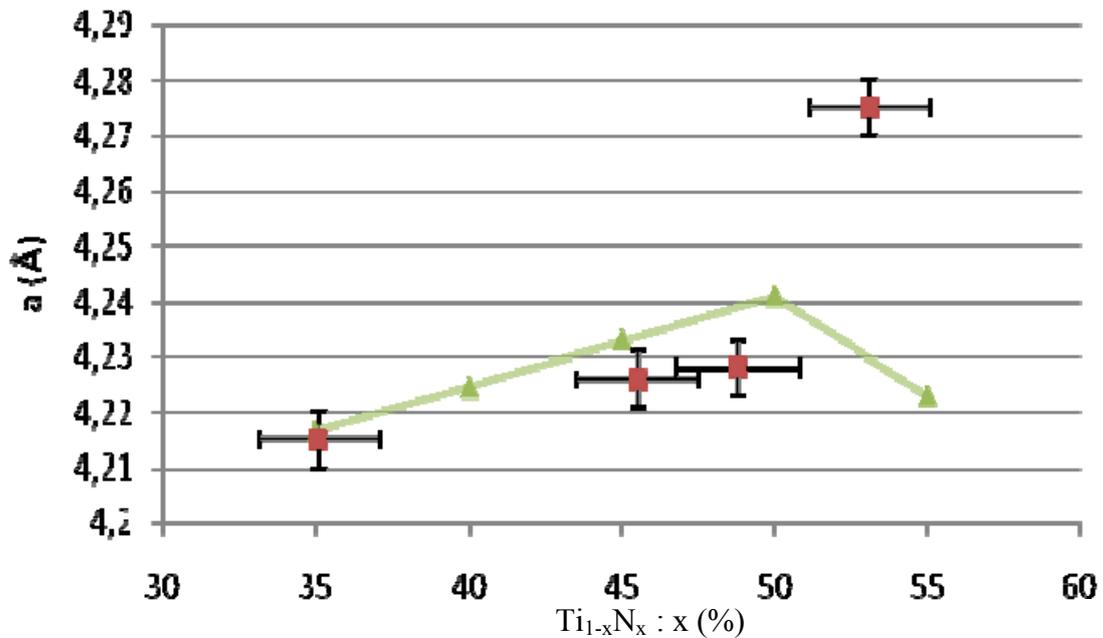


Figure 1-20 Mesure du paramètre de maille a des films $Ti_{1-x}N_x$ en fonction de la concentration d'azote (carrés) sur substrat silicium (100). La ligne continue et les triangles verts sont issus de [Wriedt-1987].

La référence [Imamura-1989] mesure une variation du paramètre de maille due à la contrainte interne dans une couche de Nb déposée par pulvérisation cathodique. Nous verrons dans la suite de ce chapitre que les couches de $Ti_{1-x}N_x$ que nous déposons sont elles aussi contraintes (fortement pour certaines). Le paramètre de maille mesuré par diffraction X dépend de deux facteurs : la stœchiométrie et la contrainte interne dans la couche de $Ti_{1-x}N_x$. Nous noterons que la contrainte interne d'une couche de TiN avec les caractéristiques du Sp2 ne présente qu'une contrainte interne minimale (voir plus loin dans le paragraphe traitant des contraintes internes).

j) L'impact du substrat sur la croissance cristallographique

Un échantillon de TiN, de type Sp² déposé sur saphir (Al₂O₃) monocristallin, a été mesuré en diffraction X afin d'analyser l'impact du substrat sur les paramètres cristallographiques. De même, nous avons vu que pour le démonstrateur, le substrat utilisé est un bloc de tungstène (W) polycristallin.

Echantillon	a (± 0,005) (Å)	Tilt (± 0,5) (°)	ε _{perp} (%)
TiN / Si	4,228	9	0,2
TiN / Al ₂ O ₃	4,225	6	0,3
Nb / Si	3,318	5	0,6
Nb / Al ₂ O ₃	3,327	0,6	0,5
Nb / W	3,310	20	0,8
TiN / W	4,250	/ *	0,1

* Scans ω inexploitable du fait du caractère polycristallin du Nb

Tableau 1-3 Paramètres cristallographiques des dépôts sur substrats silicium et saphir

Le substrat influe fortement sur la cristallisation des couches de TiN et de Nb. L'estimation de la taille des cristallites des couches déposées sur substrat W reste toutefois proche des estimations que nous avons faites pour des couches déposées sur substrat Si.

Nos observations de fin de thèse ont montré que les couches de TiN et de Nb déposées sur substrat de saphir étaient de type monocristallin maclé¹ ; c'est-à-dire que la couche n'est pas texturée puisque les orientations dans le plan ne sont pas aléatoires, mais présentent des orientations préférentielles ; néanmoins la couche n'est pas de type parfaitement monocristallin puisqu'elle ne présente pas une orientation unique dans le plan (mais plusieurs orientations définies), on parle d'un monocristal maclé. D'autres observations seraient nécessaires pour confirmer ces observations préliminaires. Comme le substrat saphir n'était pas important ni pour le dispositif final, ni pour le démonstrateur, nous n'avons réalisé ces observations que tardivement dans la thèse. Nous mentionnons ici cet aspect monocristallin (maclé) des couches déposées sur Al₂O₃, de manière à ouvrir une piste pour les futures réalisations qui s'appuieraient sur mon travail de thèse.

Les figures de pôles pour les couches de TiN (Sp²) et de Nb déposées sur substrat saphir, sont consultables en annexe.

¹ Un cristal maclé est la réunion de deux cristaux associés autour d'un plan commun particulier, dit plan de macle, de façon à être symétriques par rapport à ce plan. Les macles sont fréquentes dans les cristaux naturels

Nous terminons cette étude cristallographique par les mesures réalisées sur des multicouches de TiN et de Nb sur substrat tungstène polycristallin (W).

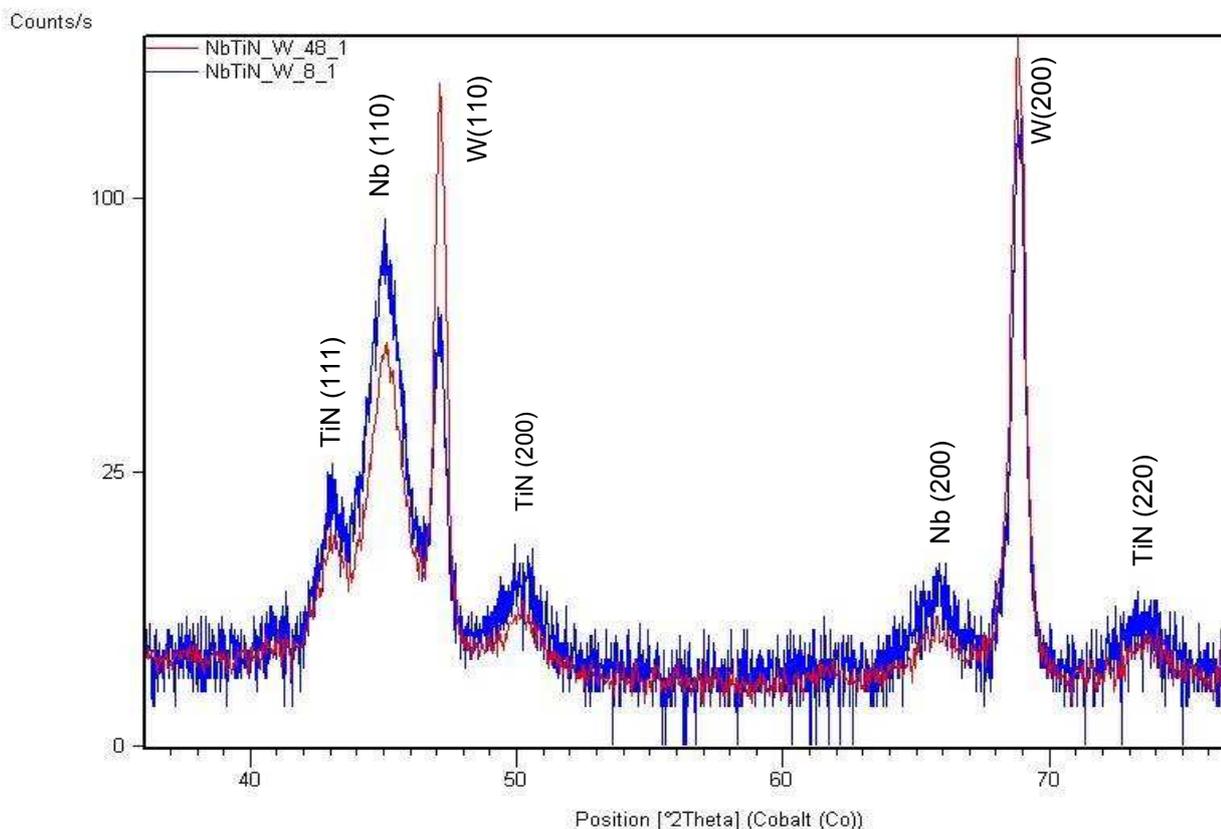


Figure 1-21 Scans $\theta/2\theta$ des 8 bicouches (en rouge) et 48 bicouches (en bleu)

La première observation à faire, sur les mesures de diffraction X réalisées sur les multicouches, est que toutes les familles de plans apparaissent sur les diffractogrammes. Cette observation implique que nous avons à faire à des couches polycristallines (Nb et TiN) sur un substrat polycristallin (W). Cette observation est cohérente avec celles réalisées sur les monocouches de TiN et de Nb déposées sur substrat W. D'un point de vue qualitatif, nous comparons les intensités des différents pics afin de rechercher une éventuelle orientation préférentielle. Les intensités relatives des couches de TiN et Nb sont comparées aux fiches de la base de données (précédemment citées), pour le W on utilise la fiche de référence : 04-004-8468 ([Greenaway-1951]).

Le caractère polycristallin est plus marqué pour les multicouches que pour les monocouches déposées sur substrat tungstène.

	Rapport attendu	Rapport mesuré	Orientation
TiN ₍₁₁₁₎ & TiN ₍₂₀₀₎	0,72	2,31	TiN (111)
Nb ₍₁₁₀₎ & Nb ₍₂₀₀₎	7,24	9,49	Nb (110)
W ₍₁₁₀₎ & W ₍₂₀₀₎	7,19	0,95	W (200)

Tableau 1-4 Comparatif des intensités de pics mesurés en DRX des films TiN et Nb sur substrat W avec les intensités attendues pour des poudres polycristallines.

Le tableau 1-4 compare les intensités relatives attendues tirées de la base de données pour des échantillons polycristallins, sans orientation préférentielle, et les intensités des pics mesurés sur les multicouches (8 et 48 bicouches). Une orientation préférentielle dans la direction [200] apparaît pour le substrat en tungstène, l'intensité du pic (200) est supérieure à celle attendue pour un matériau parfaitement polycristallin. Le niobium et le nitrure de titane présentent également une orientation préférentielle selon les directions respectives [110] [111]. Ces directions sont identiques à celles observées dans les couches déposées sur substrat silicium. Toutefois, les orientations du Nb et du TiN sont moins marquées sur substrat polycristallin W (avec une faible orientation préférentielle [200]) que sur substrat monocristallin Si (avec une direction de coupe [100]). Ces résultats sur multicouches sont analogues aux résultats obtenus sur monocouche sur substrat W.

k) Conclusions de l'étude des couches minces par diffraction X

La mesure $\theta/2\theta$ est le moyen le plus précis de caractérisation pour extraire le paramètre de maille des matériaux polycristallins. Nous réutiliserons les paramètres de maille dans le prochain paragraphe portant sur l'estimation de la masse volumique.

L'étude des paramètres cristallographiques des couches et des multicouches va permettre d'améliorer notre compréhension de certains phénomènes que nous expliciterons dans les paragraphes suivants portant sur les vitesses du son dans la suite de ce chapitre.

Les liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique utilisables pour le modèle de vol d'une caméra embarquée seront réalisées sur un substrat silicium. L'étude que nous avons réalisée en diffraction X permettra d'optimiser la conception et l'intégration des liaisons sur le plan matriciel du futur détecteur X. Cependant, afin de démontrer le procédé et de faire une mesure compatible avec un système à cryostat à dilution, un démonstrateur spécifique est fabriqué avec des substrats W, isotherme et bon conducteur thermique à basse température.

L'étude des différences entre les propriétés cristallographiques entre les dépôts réalisés sur substrat Si monocristallin ou sur substrat W polycristallin seront utiles pour extrapoler la résistance thermique des liaisons supraconductrices déposées entre ces deux types de couches possibles.

1-3 Etude de la microstructure des couches de TiN et de Nb

Pour expliquer l'écart entre les valeurs obtenues avec nos mesures de caractérisation et les valeurs théoriques que l'on pourrait attendre pour des couches minces de matériaux idéalement épitaxiés, nous proposons d'étudier la microstructure de l'assemblage des couches de $Ti_{1-x}N_x$ et celle des couches de Nb.

a) Morphologie :

Une observation au microscope électronique à balayage (MEB) d'une couche de TiN sur la tranche obtenue par clivage, permet de se rendre compte de la microstructure interne de ce type de couche.

L'image (figure 1-22) est réalisée à partir d'un échantillon Sp2b composé de 110 nm de Nb sur un substrat monocristallin de silicium et de 1140 nm de TiN recouvrant la couche de Nb.

Les cristallites croissent selon un assemblage de colonnes. Les dimensions des cristallites parallèlement et perpendiculairement à la surface ($L_{par} \sim > 50 \text{ nm}$; $L_{perp} \sim > 100 \text{ nm}$) obtenues par diffraction de rayons X sont cohérentes avec les dimensions moyennes des cristallites que l'on peut observer sur la figure ci-dessous.

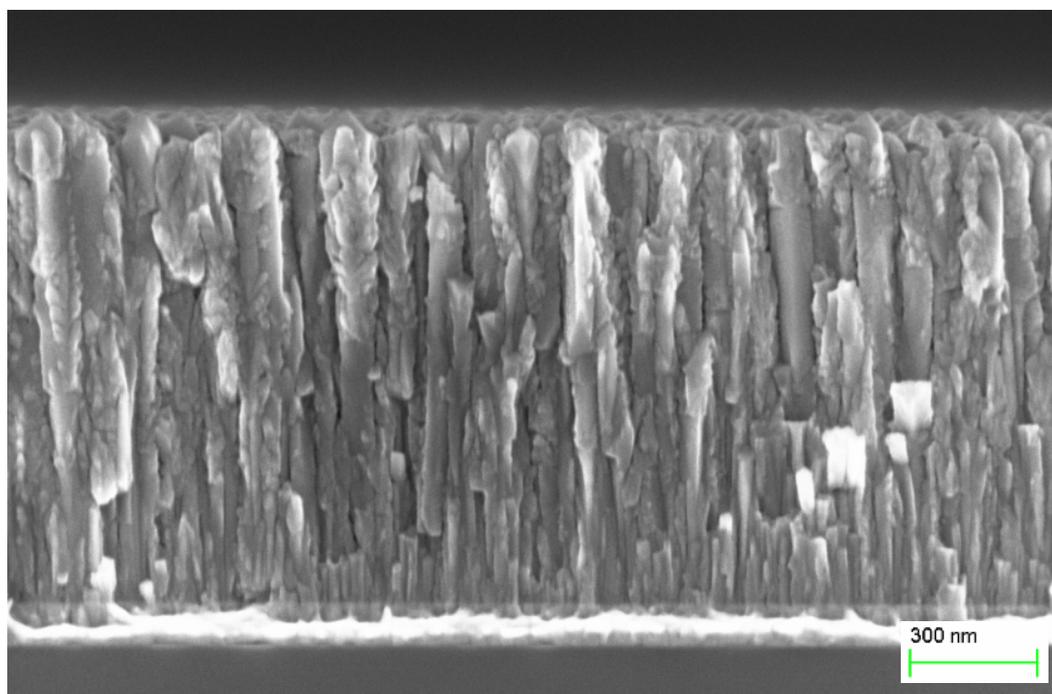


Figure 1-22 Image MEB d'une couche de TiN (Sp2b) clivée, déposée par pulvérisation cathodique DC magnétron sur un substrat Si. La sous couche est en Nb.

Les joints de grains entre ces colonnes ne sont pas parfaits, ils présentent des vides ou de la matière non cristallisée. Ces vides sont l'équivalent de défauts pour la propagation des ondes acoustiques ; ils réduisent également la rigidité du matériau.

Pour s'assurer que la couche présente bien des vides de matière entre les colonnes, nous avons réalisé une autre coupe. Cette coupe n'a pas été obtenue par clivage comme précédemment, mais par un usinage par faisceau d'ion : un polissage ionique.

L'image suivante (figure 1-23) confirme la présence de vides entre les cristallites colonnaires. La couche supérieure est un redépôt de la matière ablatée lors de l'usinage ionique. La couche (gris claire) en dessous du TiN (400 nm) correspond au Nb de 110 nm d'épaisseur de l'échantillon Sp11b.

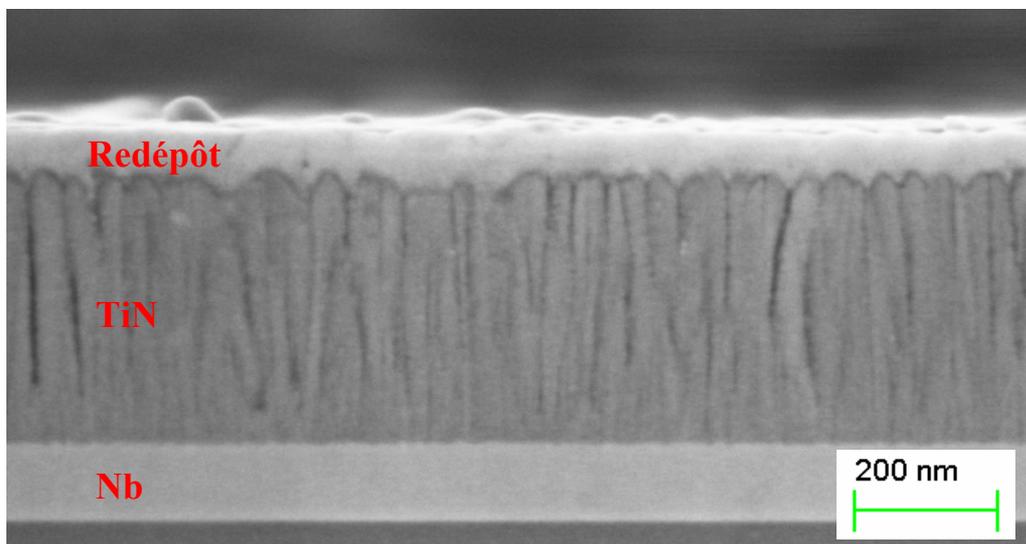


Figure 1-23 Image MEB d'une couche de TiN (Sp11b) sur substrat Si obtenue par usinage ionique

La vitesse du son dans le mode transverse mesurée (en Diffusion Brillouin) est impactée par le fait que les ondes dans le plan parallèle à la surface ne se déplacent pas dans un continuum cristallin mais subissent des réflexions aux joints de grains des cristallites. La vitesse du son dans le mode transverse s'en trouvera diminuée. Nous verrons dans la suite de ce chapitre que les vitesses du son dans le mode transverse mesurées sont effectivement inférieures à celles attendues. Des conclusions similaires ont été établies par [Elena-1993].

Les images MEB obtenues sur l'échantillon de Nb bis déposé sur substrat silicium (890 nm de Nb et 220 nm de TiN de sous couche), montrent que la croissance est colonnaire mais présente un assemblage de type « draperie ».

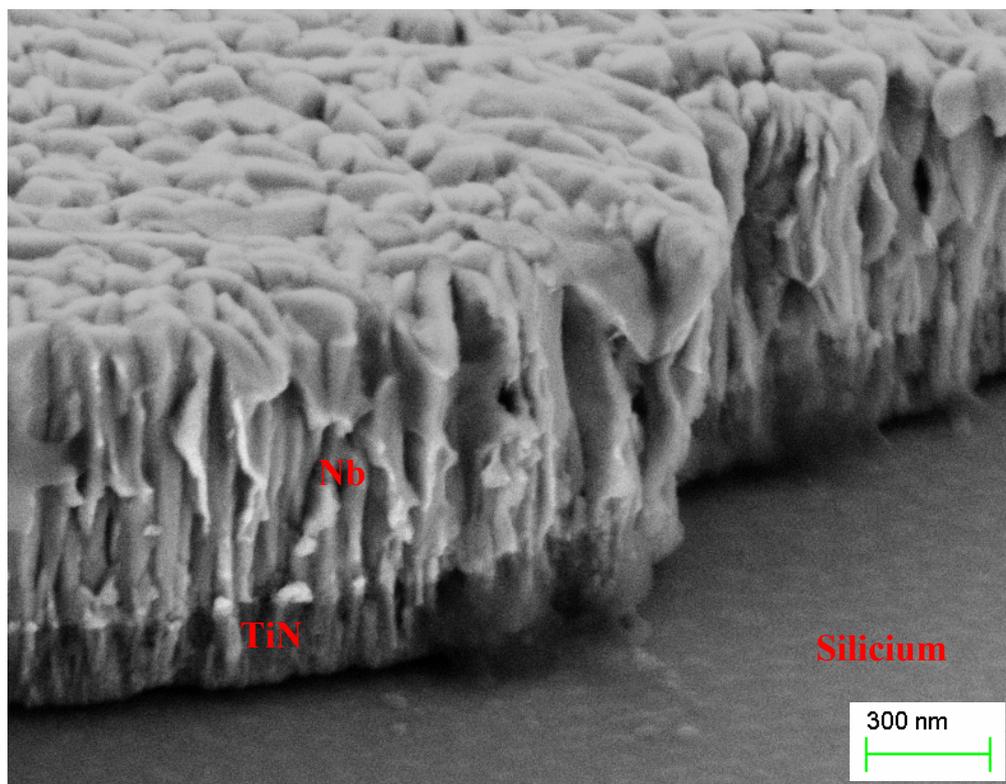


Figure 1-24 Image MEB d'une couche de Nb bis sur substrat Si (détection inclinée)

Ce type de formation cristalline, avec des grains entrelacés les uns aux autres, laisse imaginer que la vitesse du son dans le mode transverse dans cette structure sera moins détériorée que dans une structure purement colonnaire comme dans le $Ti_{1-x}N_x$ vue précédemment.

Nous verrons dans la suite de ce chapitre que ces observations corrélées aux mesures de vitesse du son dans le mode transverse et du module de Young renforcent ces hypothèses.

b) Topologie

Un paramètre pourrait diminuer l'efficacité des interfaces par des effets de diffusion des phonons à ces mêmes interfaces (voir Chapitre II). La rugosité pourrait faire évoluer la résistivité thermique surfacique de la liaison si la dimension des aspérités est grande par rapport à la longueur d'onde des phonons à la température de travail. Le second effet de la rugosité serait d'augmenter artificiellement la surface en contact de l'interface.

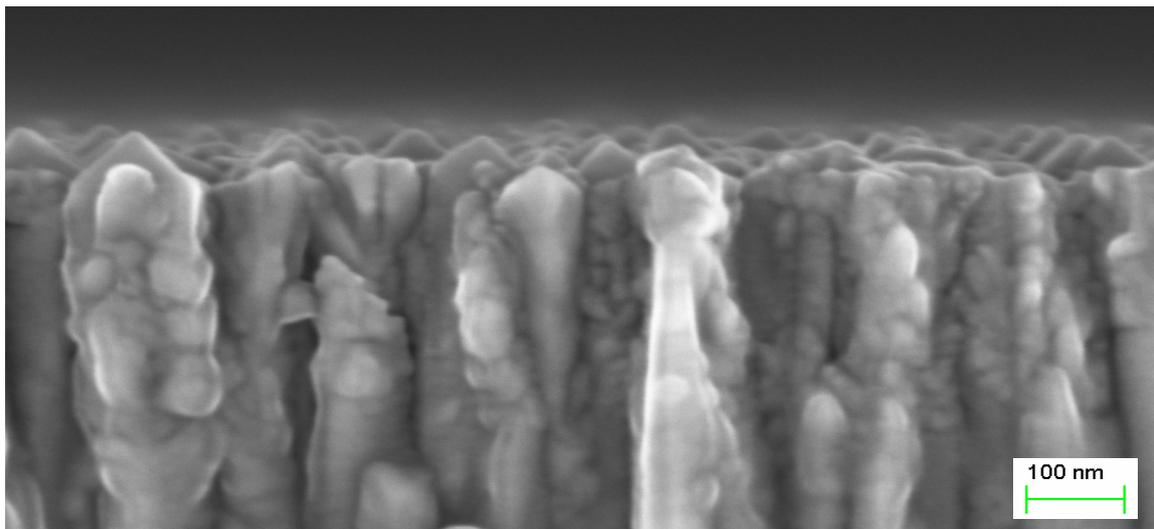


Figure 1-25 Image MEB d'une couche de TiN (Split2) sur substrat Si, zoomée sur sa partie supérieure

Sur la photo ci-dessus, on peut observer la rugosité de la couche. Les colonnes que forment les cristallites forment une rugosité de surface. Afin de mieux déterminer la rugosité des couches, des images topographiques ont été réalisées par AFM (Atomic Force Microscope). Une cartographie en relief à deux dimensions est réalisée par la mesure.

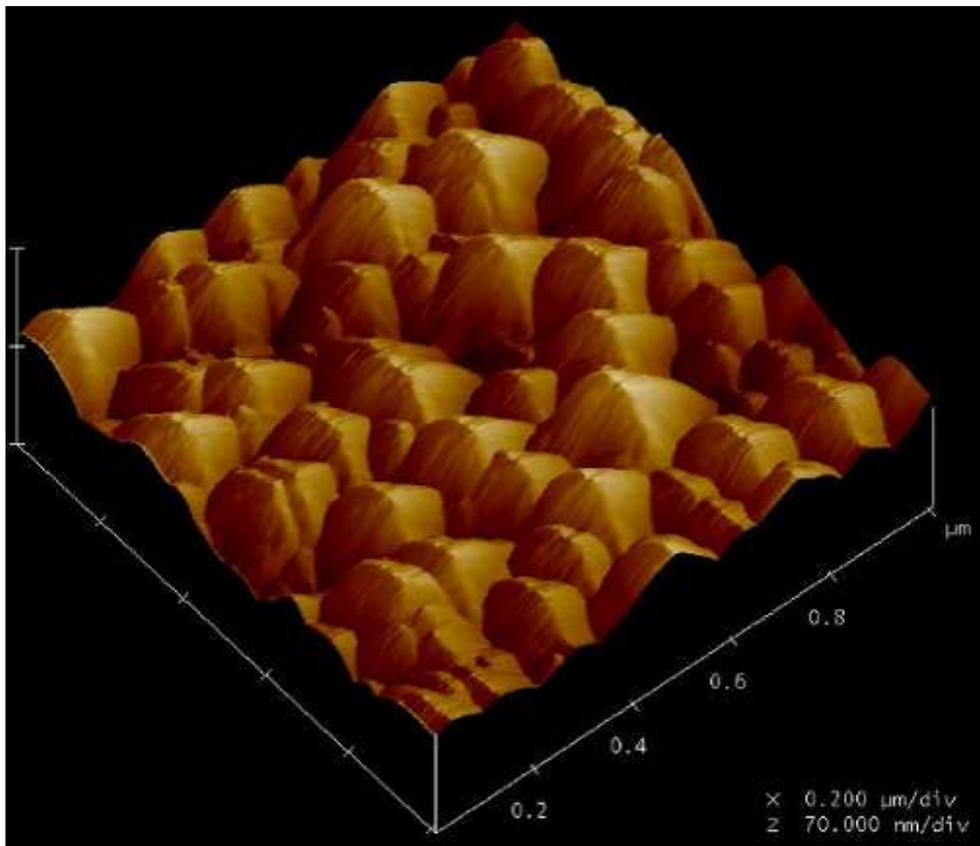


Figure 1-26 Mesure AFM de la surface d'un échantillon de TiN Sp2b sur substrat Si

Lors d'une mesure AFM, nous nous intéressons à deux paramètres : le R_a et le R_q . Le R_a est classiquement utilisé pour représenter la rugosité moyenne, il est l'écart moyen arithmétique par rapport à la hauteur moyenne de la rugosité. Le R_q est la moyenne de l'écart moyen géométrique par rapport à la valeur moyenne de la rugosité. Le R_q est plus sensible aux pics et aux vallées que le R_a .

Le tableau ci-dessous répertorie les mesures AFM réalisées sur différentes couches Nb et $Ti_{1-x}N_x$ déposées sur substrat Si monocristallin ou W polycristallin. On indique également les largeurs moyennes des cristallites que l'on peut estimer à partir des mesures AFM (dont les images sont disponibles en annexe).

Matériaux	Concentration en N (%)	Substrat	R_a (nm)	R_q (nm)	Largeur de grains (nm)
$Ti_{1-x}N_x$ Sp2b	48,8	Si	7,47	9,17	100
$Ti_{1-x}N_x$ Sp4b	35,1	Si	5,46	6,94	80
$Ti_{1-x}N_x$ Sp6b	45,5	Si	10,2	12,8	/
$Ti_{1-x}N_x$ Sp9b	27,8	Si	1,34	1,73	50
$Ti_{1-x}N_x$ Sp11b	53,1	Si	2,04	2,63	40
Nb bis	/	Si	3,34	4,34	50 (ou 100 non carré)
W	/	/	3	4	/
$Ti_{1-x}N_x$	48,8	W	4,8	7,3	80
Nb	/	W	11,5	18	100

Tableau 1-5 Récapitulatif des mesures AFM (sondée sur une surface de 10 μm de coté)

Une grande disparité apparaît dans ces résultats. La rugosité est faible pour les couches déposées sur substrat Si monocristallin. La figure suivante montre l'évolution de la rugosité en fonction de la stœchiométrie du TiN. Néanmoins l'augmentation de la surface effective n'est que faiblement impactée par cette rugosité. La surface réelle est augmentée d'une valeur inférieure à 5%. Reste à déterminer l'impact de la rugosité sur la transmission des phonons aux interfaces.

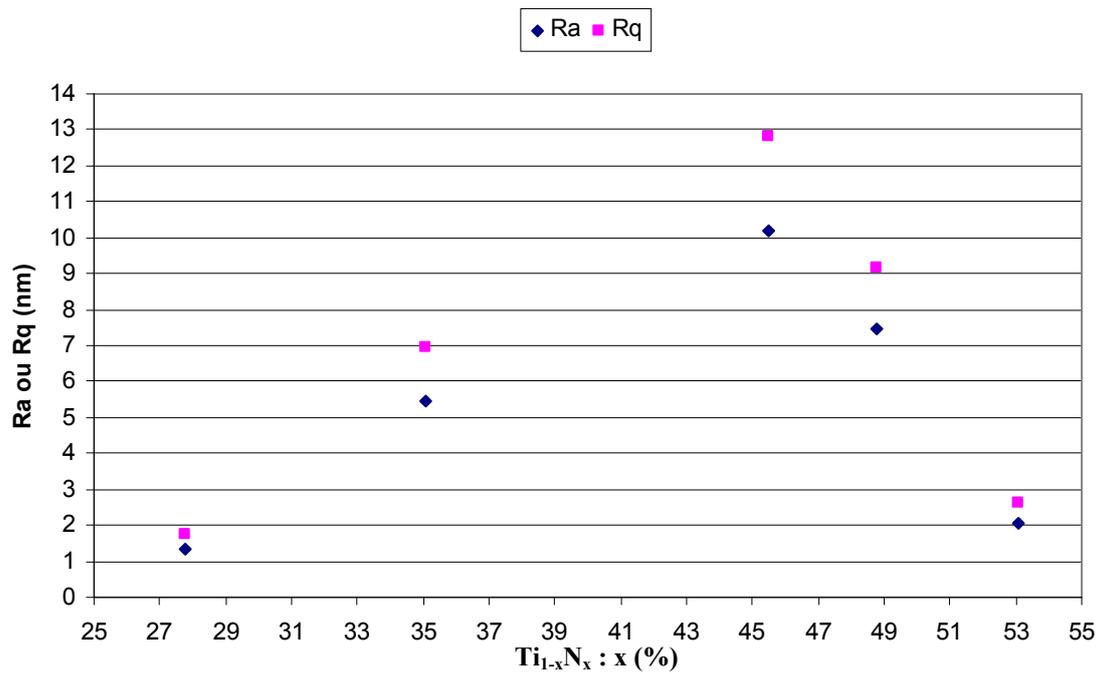


Figure 1-27 Evolution de la rugosité en fonction de la concentration d'azote dans les couches de Ti_{1-x}N_x déposées sur substrat silicium

Les fortes valeurs de rugosité obtenues pour la couche de Nb déposée sur substrat W, s'expliquent par la présence de défauts de croissance. On retrouve ces défauts sur la couche de TiN, mais en nombre beaucoup plus restreint et avec des amplitudes moins prononcées.

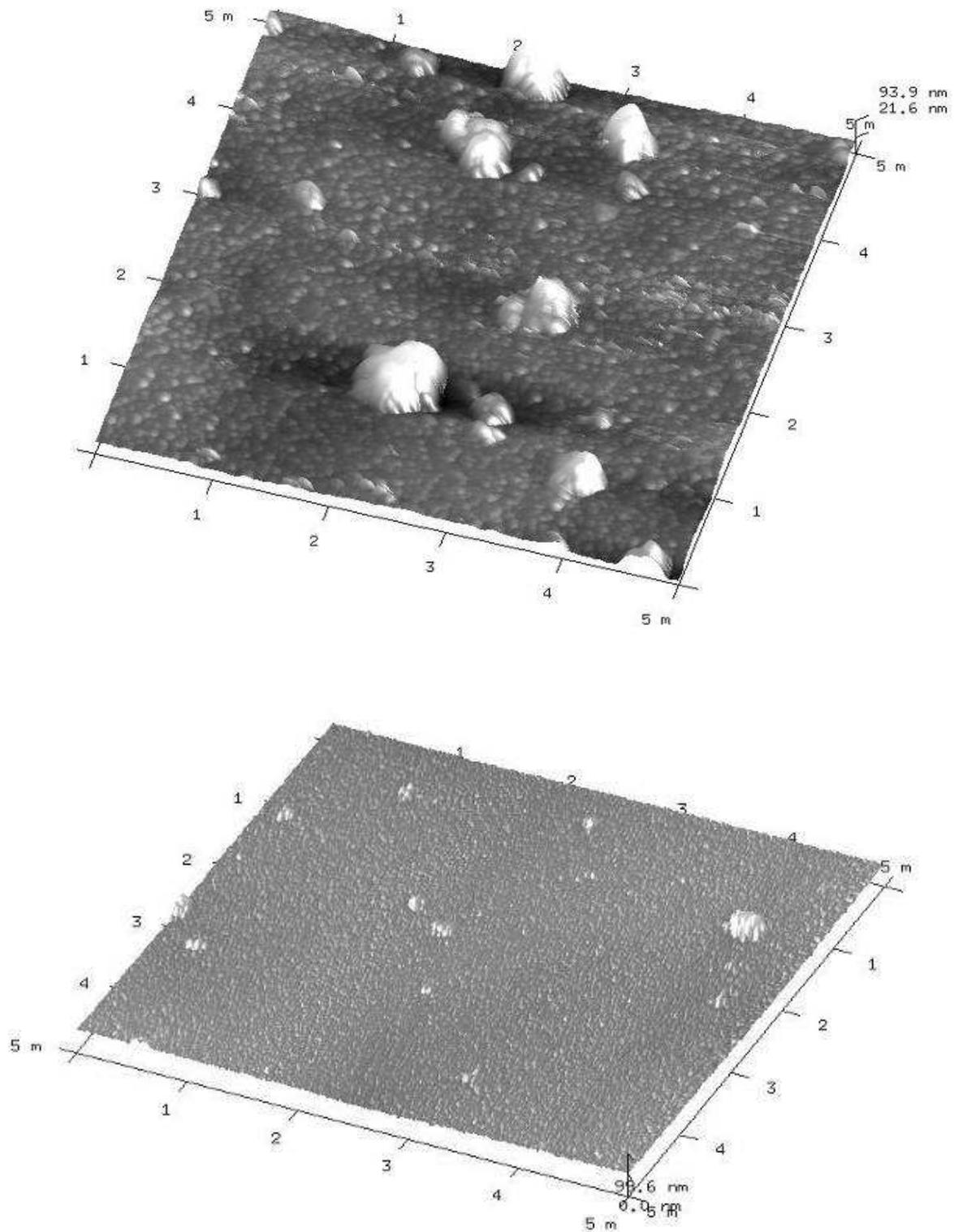


Figure 1-28 Mesure AFM des couches Nb (en haut) et TiN (en bas) sur substrat W ;
l'échelle est en micromètre (5 m = 5 micromètres).

1-4 Estimation de la masse volumique

Dans le chapitre II, la présentation du modèle théorique de la résistance thermique à une interface passe par une formulation analytique qui nécessite trois caractéristiques (masse volumique, vitesse du son dans le mode transverse et vitesse du son dans le mode longitudinale) des couches composant les multicouches. Ce paragraphe est dédié à l'explication des trois méthodes que nous avons utilisées pour estimer la densité ou masse volumique.

a) La densité déduite des mesures RBS

La masse volumique ou densité (ρ) correspond à la masse des atomes (de Ti, de N ou de Nb par exemple) d'un élément contenu dans un volume défini.

Un des moyens de calculer la densité est l'utilisation des mesures de stœchiométrie par RBS / NRA. Les concentrations surfaciques (N_{Ti} et N_N) mesurées sont introduites dans la formule suivante et la densité est donnée en fonction de la masse molaire M_{Ti} du titane et M_N de l'azote et fonction de l'épaisseur E_p .

$$\rho = \frac{N_{Ti} \cdot M_{Ti} + N_N \cdot M_N}{E_p \cdot N_a} \quad (\text{Eq 1.8})$$

E_p est l'épaisseur mesurée de la couche (en cm). La masse molaire atomique des atomes de Ti (47,867 u) et de N (14,007 u), et N_a est le nombre d'Avogadro ($6,022 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$).

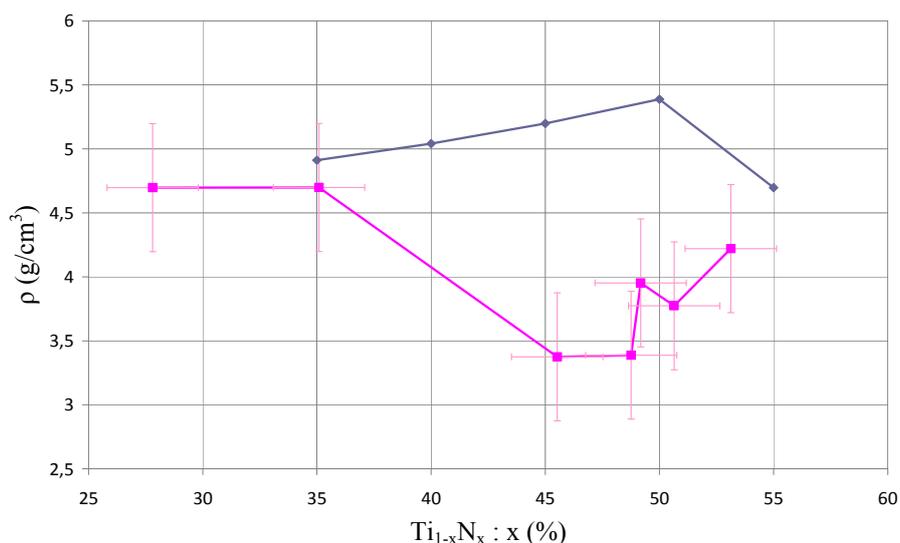


Figure 1-29 Densité calculée à partir des données mesurées en RBS/NRA réalisées sur des couches de $Ti_{1-x}N_x$ déposées sur substrat silicium (100) (courbe rose et carrés). Densité obtenue par calcul à partir d'une moyenne de paramètres de maille répertoriée par [Wriedt-1987] (courbe grise et losanges). Les barres d'erreurs sont calculées par rapport à la moyenne des incertitudes dues aux mesures RBS et d'épaisseur.

L'imprécision sur la mesure de la stœchiométrie est reportée sur les figures suivantes par les erreurs horizontales normalisées à 4%. Cette valeur est un ordre de grandeur que nous avons estimé avec les mesures de la stœchiométrie qui est détaillée précédemment dans ce chapitre.

On peut expliquer l'écart entre les valeurs proposées par la littérature et celles obtenues par le calcul à partir des valeurs mesurées en RBS. Les nano-cavités présentes dans les couches de $Ti_{1-x}N_x$ influencent directement la densité. Précédemment, nous avons vu que la morphologie des couches de $Ti_{1-x}N_x$ pouvait présenter des vides dans la microstructure. [Patsalas-2000] montre que l'évolution du volume occupé par les vides dans les couches impacte la valeur de la masse volumique.

b) Mesure de la densité par réflectivité de rayons X

Quelques mesures de masse volumique ont été effectuées sur les différents échantillons de $Ti_{1-x}N_x$ avec la méthode de réflectivité par rayonnements X. Ces mesures ont été réalisées par le professeur Grégory Abadias de l'université de Poitiers au DPMM de l'institut PPRIME.

L'analyse des échantillons par réflectivité de rayonnement X (XRR) permet d'obtenir une information sur la densité électronique. L'analyse des spectres de réflectivité XRR permet de remonter aux informations telles que l'épaisseur de la couche sondée, sa densité électronique, sa rugosité et son indice de réfraction. L'angle critique en-dessous duquel est observée une réflexion totale à la surface de la couche est directement lié à la masse volumique du matériau étudié [Logothedidis-2003] [Alvisi-1997].

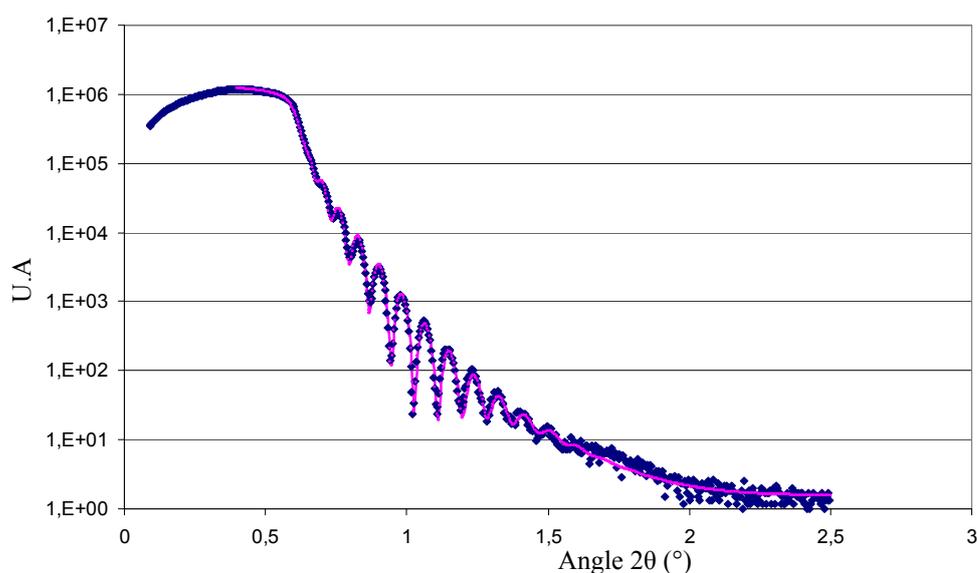


Figure 1-30 Mesure de réflectivité par rayons X pour le Sp_{11} (losange bleu) sur substrat Si . La courbe continue (rose) représente l'ajustement numérique réalisé après la mesure.

La compilation des mesures XRR réalisées sur certains échantillons de $Ti_{1-x}N_x$ permet d'aboutir à une comparaison de la masse volumique en fonction de la proportion d'azote dans la couche.

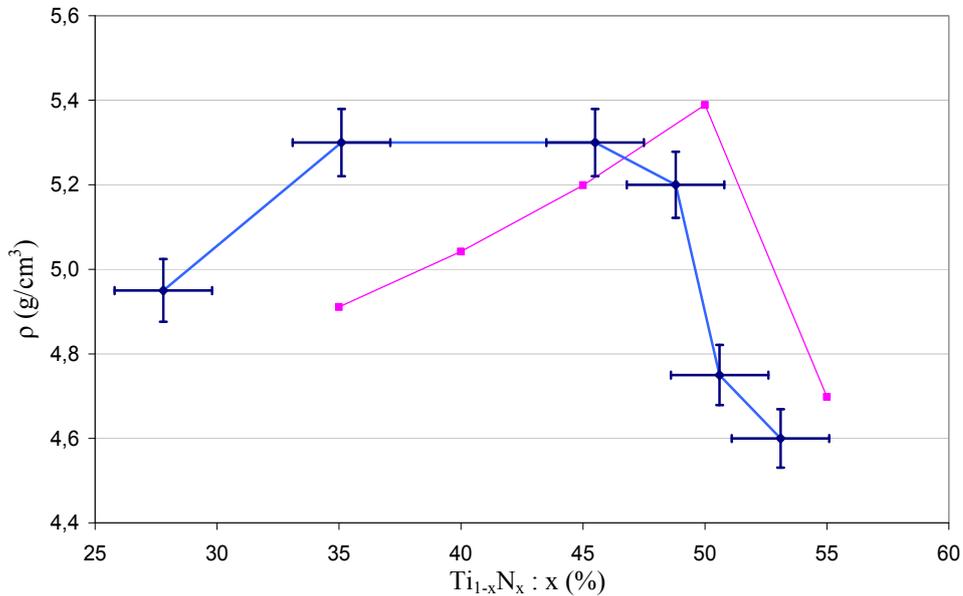


Figure 1-31 Masse volumique mesurée par XRR sur des couches de $Ti_{1-x}N_x$ déposées sur substrat silicium (100) (ligne bleu). La ligne rose continue est obtenue par calcul à partir des données de [Wriedt-1987]

Avec les mesures XRR, la masse volumique est estimée à partir de la densité électronique. Ce type de mesure prend en compte tous les atomes (sans distinction) dans le rendu de la masse volumique. Nous avons vu précédemment qu'une pollution à l'oxygène (de 10 à 15%) est présente sur une partie des échantillons. Les atomes d'oxygène parasites sont intégrés dans l'estimation de la densité par la mesure en réflectivité par rayons X.

c) La densité calculée à partir du paramètre de maille

Une autre méthode pour calculer la densité consiste à se servir du paramètre de maille (a) mesuré en diffraction X. On atteint l'information de densité en estimant le volume d'une maille élémentaire et en sommant le nombre d'atomes présents dans la maille.

$$\rho = \frac{\sum_{i=1}^Q M_i}{a^3 \cdot N_a} \quad (\text{Eq 1.9})$$

Une introduction à la maille élémentaire composant la structure des cristaux observés peut être nécessaire à la compréhension des calculs de masse volumique. N_a est le nombre d'Avogadro.

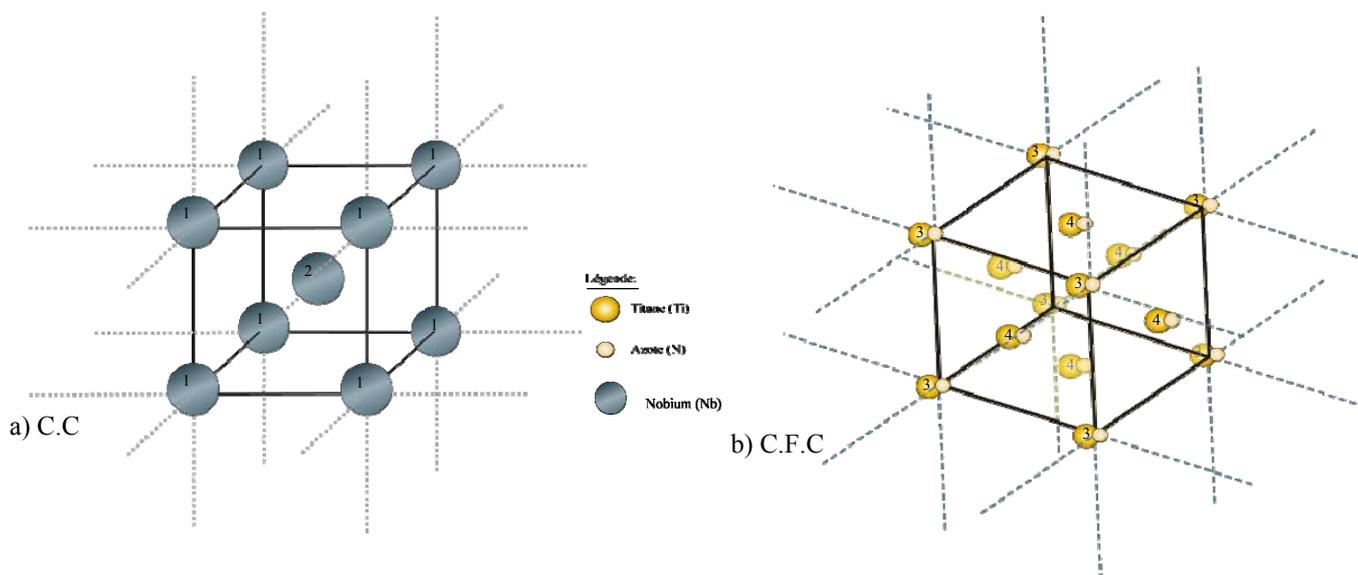


Figure 1-32 Représentation d'une maille élémentaire de structure cubique centrée pour le Nb (a) et cubique à faces centrées pour le TiN (b)

Dans l'équation (Eq 1.8), M correspond à la masse d'un atome de l'élément. Le niobium a une structure cubique centrée ($Im-3m$). Les 8 atomes de coins (notés 1 sur la figure ci-dessus) sont utilisés chacun par 8 mailles et l'atome de centre (noté 2) est propre à la maille. L'indicateur de quantité Q du nombre de motifs est dans le cas des mailles cubiques centrées égale à 2. Pour les structures comme le niobium, le calcul de la densité s'écrit :

$$\rho_{Nb} = \frac{\sum_{i=1}^2 M_{Nb_i}}{a^3 \cdot N_a} \quad (\text{Eq 1.10})$$

La densité calculée avec la mesure du paramètre de maille pour le Nb est $\rho_{Nb} = 8,45 \text{ g/cm}^3$. Cette valeur est proche des masses volumiques répertoriées pour ce matériau [Simmons-1971].

Le nitrure de titane a une structure cubique à face centrée (Fm-3m). Les 8 molécules de coins (notées 3 sur la figure 1-25) sont utilisées chacune par 8 mailles et les 6 molécules des centres (notées 4) de face sont utilisées par 2 mailles chacune. L'indicateur de quantité Q est dans le cas des cubiques à faces centrées égale à 4.

Pour le calcul de la masse volumique du composé binaire TiN, le défaut de stœchiométrie est à intégrer au calcul. Pour une stœchiométrie de 50%, la structure du TiN est cubique à faces centrées comme représentée dans la figure ci-dessus. Lorsque la stœchiométrie évolue, des lacunes d'un des deux éléments (atomes de Ti ou atomes de N) sont à prendre en compte. Par exemple dans le cas de l'échantillon Sp6, 1 atome de titane est présent dans la maille à chaque coin et face, alors qu'en moyenne pour l'azote, il y a 0,836 atomes aux coins et faces. Ces paramètres de proportion (P_{Ti} et P_N) sont intégrés dans la formule ci-dessous. Cette méthode nécessite une connaissance de la stœchiométrie pour les matériaux composés.

$$\rho_{TiN} = \frac{4 \cdot M_{Ti} \cdot P_{Ti} + 4 \cdot M_N \cdot P_N}{a^3 \cdot N_a} \quad (\text{Eq 1.11})$$

Quatre échantillons ont été mesurés en diffraction X. Dans la figure suivante une comparaison est faite entre ces 4 points de densité calculée à partir du paramètre de maille mesuré et la tendance calculée à partir de [Wriedt-1987].

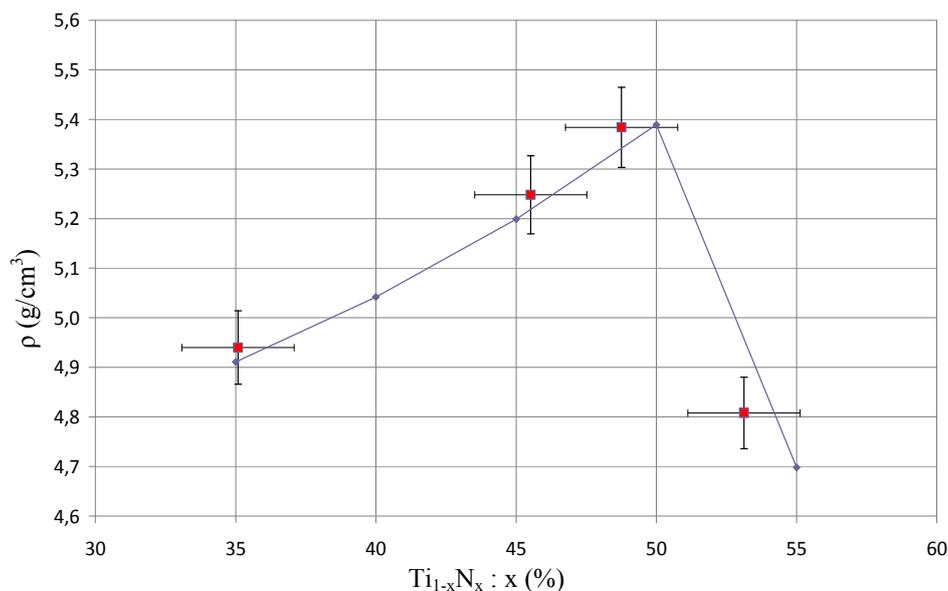


Figure 1-33 Densité calculée à partir du paramètre de maille mesuré par diffraction X sur des couches de $Ti_{1-x}N_x$ déposées sur substrat $Ti_{1-x}N_x$ (carrés rouges). Densité calculée à partir des paramètres de mailles issues de la littérature [Wriedt-1987] (ligne continue bleu).

Les points calculés à partir des mesures concordent avec les valeurs bibliographiques [Nagakura-1975] et [Wriedt-1987]. L'écart en amplitude entre les deux séries de données est faible. L'incertitude de la stœchiométrie implique une erreur inférieure à 3% sur la valeur de la masse volumique.

Cette méthode fournit une estimation de la densité à l'intérieur des cristallites du fait que le calcul soit issu du paramètre de maille déterminé par diffraction X. Cette mesure ne rend pas compte de la densité globale de la couche, mais uniquement des portions cristallines. C'est-à-dire que les trous ou les défauts de cristallisation (ex : joints de grains) ne sont pas pris en compte dans le calcul de la masse volumique par cette méthode.

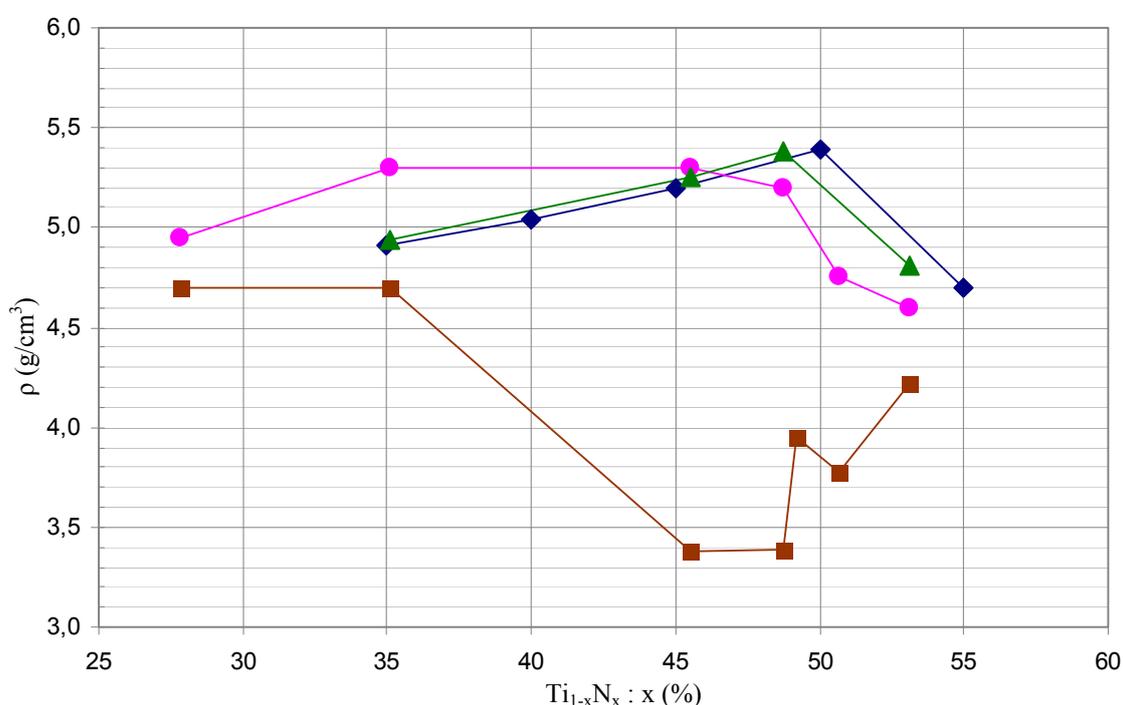


Figure 1-34 Compilation de nos résultats de masse volumique obtenus par différentes méthodes : RBS (carrés), XRR (ronds) et diffraction X (triangles). Ces résultats ont été obtenus par des mesures sur des couche de $\text{Ti}_{1-x}\text{N}_x$ déposées sur substrat Si (100). Ils sont à comparer avec les valeurs obtenues par le calcul à partir de la référence [Wriedt-1987] (losanges).

Malgré l'impact des défauts dans les couches minces sur la valeur de la masse volumique (voir figure 1-29), nous proposons une valeur standard de densité pour chacun des deux matériaux utilisés dans la liaison supraconductrice. Les valeurs de densité obtenues à partir de la diffraction X, au point de stœchiométrie 48,8% ($\rho_{\text{TiN}} = 5,38 \text{ g/cm}^3$) pour le TiN de type Sp2, et celle du Nb ($\rho_{\text{Nb}} = 8,45 \text{ g/cm}^3$) sont utilisées comme paramètres d'entrée dans le modèle théorique pour l'estimation de la résistance thermique d'interface.

Notons toutefois que pour des liaisons déposées sur substrat silicium monocristallin (100), ou nous avons observé des croissances colonnaires, il serait judicieux d'ajuster les valeurs des masses volumiques des matériaux constituant la liaison avec les valeurs mesurées par RBS.

Une autre méthode aurait pu être utilisée pour estimer la masse volumique. En utilisant une microbalance avec une très faible résolution ($\sim 1 \mu\text{g}$) et une mesure d'épaisseur avec une meilleure résolution, nous aurions pu mesurer les valeurs de densité. Toutefois cette technique ne nous aurait pas apporté d'indications sur la présence de vides lacunaires dans le volume de la couche.

A très basse température, l'impact des défauts sur le transport des phonons dans les matériaux va s'estomper avec l'augmentation de la longueur d'onde dominante des phonons (voir chapitre II). Si la longueur d'onde dominante des phonons est supérieure à la taille des défauts dans la structure, ces défauts auront un impact négligeable sur le transport thermique dans les liaisons supraconductrices.

Pour le cas de notre démonstrateur avec des liaisons supraconductrices déposées sur des substrats en tungstène, nous ne pouvons pas affirmer que la masse volumique est dégradée par la présence de défauts dans les couches, car nous n'en avons pas détectés lors des observations microscopiques (au MEB) ; sans doute, parce que les couches déposées étaient minces et que les vides ne semblent apparaître qu'en fin de dépôt sur les couches épaisses. Nous n'avons pas réalisé de mesure RBS sur les couches de TiN ou Nb déposées sur substrat W.

Ce point pourrait être une des pistes de poursuite de ce travail de thèse, à savoir étendre les observations que nous avons initiées à d'autres couches de matériaux déposées sur des substrats différents et répertorier l'évolution des différentes propriétés intéressantes du point de vue des liaisons supraconductrices.

2- Propriétés élastiques et mécaniques

Cette partie relate les différentes caractérisations effectuées sur les couches de TiN et Nb qui serviront à élaborer les multicouches pour le démonstrateur. Nous évoquerons les propriétés de contraintes et de module d'élasticité. Les propriétés acoustiques seront étudiées : mesures des vitesses du son en mode longitudinal et en mode transverse.

2-1 Contrainte résiduelle dans les couches

Lorsqu'une couche mince est déposée sur un substrat, les atomes de la couche s'adaptent pour former une cohérence entre les deux mailles cristallines différentes. Les atomes déposés se retrouvent contraints. La couche sera soit en tension, soit en compression.

La flèche induite par une contrainte (contrainte interne) trop importante n'est pas compatible avec notre approche de réalisation de multicouche. En effet une contrainte interne importante des couches pourrait entraîner des défauts aux interfaces ou des décollements et nous éloignerait de notre but qui est de caractériser une multicouche avec des interfaces parfaites. Une étude préliminaire a été faite afin de minimiser les contraintes dans les couches composant la liaison. Notre but second a été la réduction de l'influence de la contrainte dans les couches (de $Ti_{1-x}N_x$ et de Nb) sur les autres propriétés étudiées.

Nous avons vu précédemment que lors de chaque dépôt avec la machine de pulvérisation cathodique, il est possible de fixer plusieurs paramètres : la puissance, les débits des gaz et la pression. Le paramètre qui influence le plus la contrainte interne de la couche est la pression dans la chambre lors du dépôt.

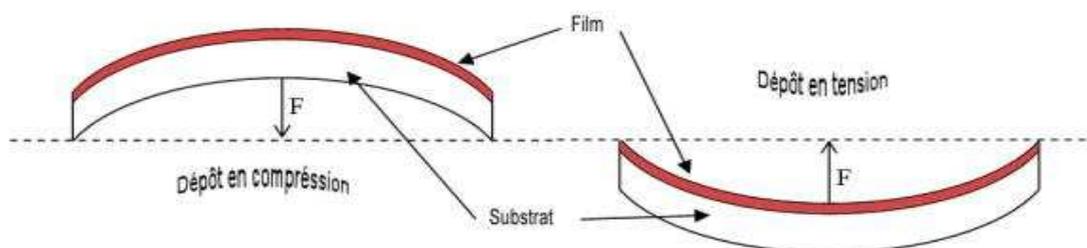


Figure 2-1 Répercussion de la contrainte en couche mince sur le substrat

Pour mesurer la contrainte, nous nous sommes intéressés à la déformation qu'une couche mince contrainte pouvait imposer au substrat sur lequel elle est déposée.

La première approche a été d'utiliser un substrat en silicium sous forme de wafer (2 pouces = 5,08 cm) d'une faible épaisseur de manière à contrôler la déformation ou flèche induite par la contrainte interne due au dépôt de couche mince à sa surface.

Cette méthode est concluante, puisqu'avec un substrat de 50 mm de diamètre (wafer 2 pouces) de silicium aminci à une épaisseur de 50 μm et un dépôt de Nb de 1 μm d'épaisseur, une flèche de plus de 2 mm a été observée. Le défaut de cette méthode est le temps de préparation du substrat. Il nous faut une journée pour amincir un substrat 2 pouces de 270 μm à 50 μm , suivie d'une relaxation par gravure plasma des premières couches atomiques.

Pour pallier ce problème, une méthode avec une séquence de préparation plus courte est utilisée. Des essais ont été réalisés sur des wafers non amincis (270 μm d'épaisseur) avec des dépôts inférieurs au micromètre d'épaisseur. Quelques micromètres de flèche sont observés à l'aide d'un interféromètre. L'interférométrie consiste à éclairer la surface de l'échantillon et de mesurer les déformations ou le déphasage du signal réfléchi. Le déphasage des franges informe sur le relief de l'échantillon mesuré. Nous utilisons l'interféromètre ZYGO du CEA / LETI / LPA pour ces mesures. Avec cette méthode, il est possible d'obtenir une carte en deux dimensions des reliefs à la surface des wafers.

En mesurant la flèche du wafer avant le dépôt et après le dépôt de la couche mince, la formule de Stoney [Stoney-1909] appliquée aux couches minces déposées sur un substrat épais permet d'obtenir l'information de contrainte résiduelle interne de la couche [Clyne-2001] [Withers-2001].

$$\sigma_{rés} = E'_s \frac{H_s^2}{6h_f} \left(\frac{1}{R_{initial}} - \frac{1}{R_{final}} \right) \quad \text{avec} \quad E'_s = \frac{E_s}{1-\nu_s} \quad \text{et} \quad R = \frac{d^2}{8 \cdot F} \quad (\text{Eq 2.1})$$

E_s est le module de Young du substrat (130 GPa pour le Si [100]), ν_s le coefficient de Poisson (0,28 pour le Si [100]) [Wortman-1965]. H_s et h_f sont respectivement les épaisseurs du substrat et de la couche mince; d est le diamètre de l'échantillon et F est la flèche mesurée.

Plusieurs essais ont été réalisés pour des couches de TiN ou de Nb sur substrat 2 pouces de silicium avec des pressions de dépôt (dans la chambre lors du dépôt : Ar + N) variables. Pour le niobium, une forte évolution de la contrainte est observée en fonction de la pression. Pour le TiN, nous avons préféré accentuer l'étude de la stœchiométrie dans un premier temps. L'étude de la contrainte interne a été faite dans un second temps. Nous présentons ci-dessous les mesures effectuées sur les couches de $\text{Ti}_{1-x}\text{N}_x$ qui fournissent une information sur leur contrainte. La figure 2-2 est un exemple d'une mesure de contrainte réalisée sur un échantillon de Nb (avant et après dépôt).

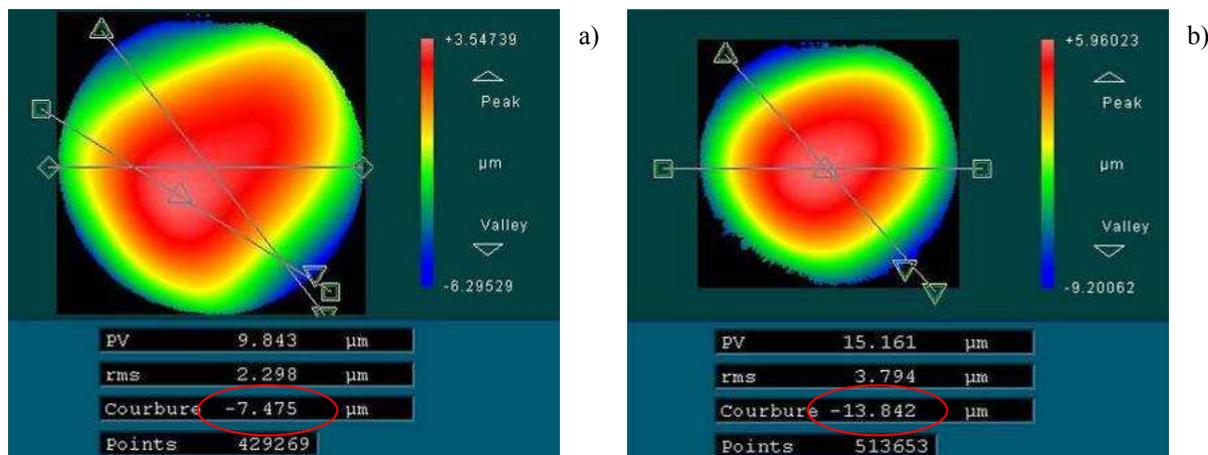


Figure 2-2 Image de courbures sur un substrat nu (a) puis recouvert d'une couche de 260 nm de Nb (b)

La contrainte des couches de niobium présente une forte sensibilité à la pression lors du dépôt. En effet, [Imamura-1989] explique que la contrainte interne des couches de Nb déposées par pulvérisation cathodique dépend de la pression du gaz (ici l'argon) lors du dépôt. La contrainte de la couche évolue, de la compression (contrainte négative) à la traction (contrainte positive), en passant par une contrainte nulle, lors d'une augmentation de la pression de dépôt. Nous avons recherché le point de fonctionnement pour lequel les couches de Nb sont le moins contraintes.

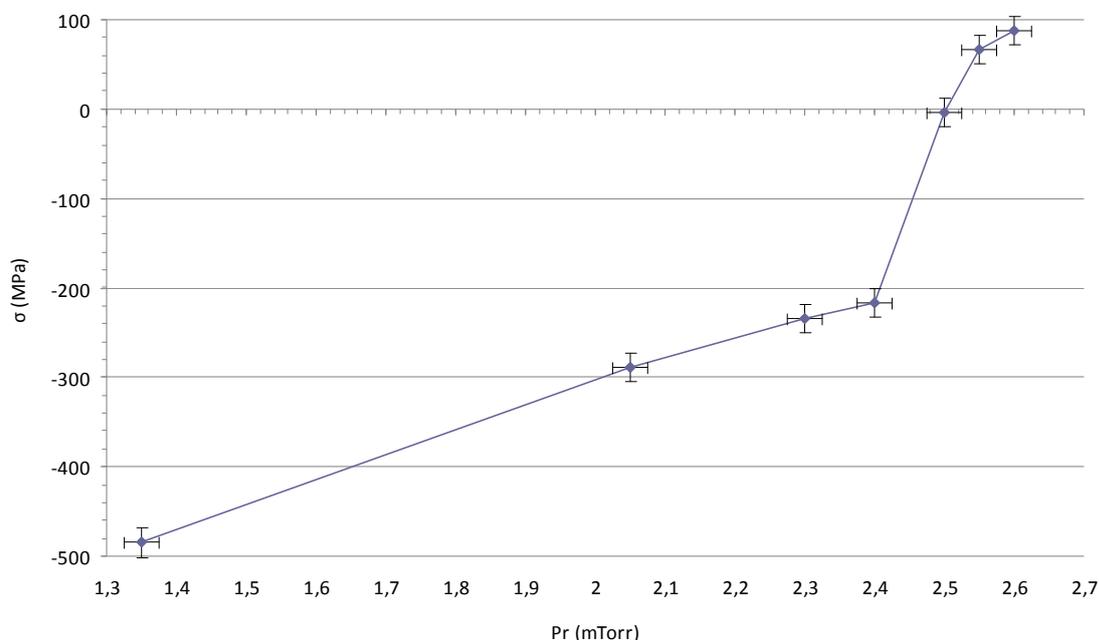


Figure 2-3 Contrainte mesurée dans nos couches minces de Nb (d'épaisseur entre 250 nm et 300 nm) sur substrat Si (270 μm)

Les barres d'erreurs verticales sont calculées en fonction de l'incertitude moyenne sur la mesure des épaisseurs (entre 250 nm et 300 nm) et surtout sur la détermination de la courbure par interférométrie. Les barres d'erreurs horizontales correspondent à l'incertitude liée à la mesure de pression lors du dépôt.

Lors de la phase où nous réalisons les multicouches, c'est-à-dire au cours des six derniers mois de la thèse, nous avons vérifié que la contrainte dans chacune des couches était toujours faible. Au cours de la campagne de fabrication des couches de TiN et de Nb ou celle pour les multicouches composant les liaisons, la machine de pulvérisation cathodique a subi de nombreuses pannes. Nous avons fait périodiquement des vérifications pour s'assurer que les paramètres de dépôt de la machine n'avaient pas évolué.

Les valeurs de contrainte obtenues ont permis de s'assurer que les paramètres étaient toujours optimaux lors de la fabrication des multicouches. Le tableau ci-dessous reprend trois mesures faites sur $Ti_{1-x}N_x$ pour des valeurs de stœchiométrie éloignées et une mesure pour le Nb.

Matériaux	débit N (sccm)	Pr (mTorr)	Ep (nm) (± 10 nm)	σ (MPa)
TiN (Sp4)	4,6	1,85	540 nm	- 367
TiN (Sp2)	5,1	1,9	270 nm	+ 13
TiN (Sp11)	15	2,3	120 nm	+ 208
Nb	0	2,55	305 nm	+ 66

Tableau 2-1 Influence des paramètres de dépôt sur les contraintes des couches de $Ti_{1-x}N_x$ et Nb

Le choix des paramètres de dépôt de l'échantillon Sp2 sur substrat monocristallin silicium présente une contrainte minimisée ; les paramètres de dépôt de l'échantillon Sp2 (pression / débit d'Ar) avaient été optimisés dans ce sens. C'est une des raisons pour lesquelles nous avons choisi les paramètres de dépôt de type Sp2 comme standard pour les couches de TiN composant les liaisons supraconductrices du démonstrateur.

Nous n'avons pas réalisé d'étude sur les contraintes internes des couches minces déposées sur substrat en tungstène. D'après nos observations sur la déviation du paramètre de maille (lors de l'étude en diffraction par rayons X), nous n'avons pas observé de divergence de valeur (des monocouches de TiN ou Nb sur substrat W) avec les données attendues pour un paramètre de maille libre de contrainte. Avec cette conclusion, nous prenons pour hypothèse que les contraintes internes des deux couches standards sont faibles sur substrat W tout comme elles le sont sur substrat Si.

2-2 Vitesse du son en mode longitudinal

Pour la mise en œuvre du modèle théorique des liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique, il est nécessaire de connaître les valeurs des masses volumiques et des vitesses du son pour les matériaux composant la multicouche. Précédemment dans ce chapitre, nous avons développé l'estimation des densités du niobium et du nitrure de titane. Dans ce paragraphe ainsi que dans le suivant, nous étudions les vitesses du son dans le mode longitudinal et dans le mode transverse.

a) Principe d'une mesure d'acoustique picoseconde

La mesure effectuée pour déterminer les valeurs de vitesse du son en mode longitudinal se base sur le principe d'une détection pompe / sonde. En inventant cette technique en 1984, Humphrey J. Maris et ses collaborateurs [Thomsen-1984] [Thomsen-1986] utilisent des impulsions laser d'une durée de l'ordre de la picoseconde donnant naissance à des ondes élastiques dans un matériau en couche mince pour mesurer la vitesse du son, dans le mode longitudinal, perpendiculairement à la surface de l'échantillon.

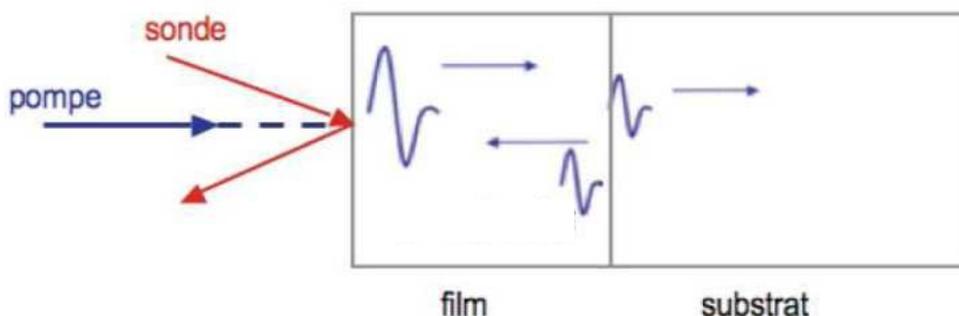


Figure 2-4 Principe de propagation des phonons dans l'échantillon

Or ce principe (engendrer des ultrasons dans un matériau en déposant à sa surface de l'énergie [White-1963]) avait déjà été utilisé en acoustique picoseconde. Avec un signal laser ($\lambda = 750 \text{ nm}$) incident dit « pompe », une énergie (10 nJ/ps) est déposée à la surface de l'échantillon. La surface absorbante transforme l'énergie déposée en excitation thermique du nuage électronique local par effet photo-thermique. La longueur d'absorption est liée au matériau. Les électrons cèdent rapidement ($< 1 \text{ ps}$) leur énergie au réseau cristallin. L'énergie ainsi cédée dans le réseau induit la création d'un déplacement de la matière sous forme d'onde élastique (un phonon). Une onde acoustique de compression dans le sens perpendiculaire à la surface de l'échantillon se propage dans la couche.

La fréquence de répétition des impulsions étant de 82 MHz ($T = 12,2$ ns), une série d'ondes acoustiques est induite consécutivement dans l'échantillon. Elles se propagent dans la couche jusqu'à rencontrer une interface sur laquelle une partie de l'onde est réfléchiée et le reste est transmis à la couche suivante. La réflexion à l'interface est liée au rapport des impédances acoustiques (produit de la vitesse par la densité) des deux matériaux et à la qualité de l'interface. H.J.Maris a utilisé cette caractéristique pour mesurer la résistance d'interface (voir chapitre II) entre une couche d'aluminium et un substrat en diamant [Capsinski-1996].

Une partie des ondes réfléchies retourne à la surface de l'échantillon après le voyage retour dans la couche. En arrivant, ces ondes font vibrer mécaniquement la surface de l'échantillon. Un signal impulsionnel dit « sonde » détecte les vibrations de la surface. Un interféromètre est utilisé pour mesurer les mouvements de la surface à partir du signal sonde. Tout le spectre temporel est enregistré en mesurant la réponse du signal sonde, pour les différents incréments de la ligne à retard.

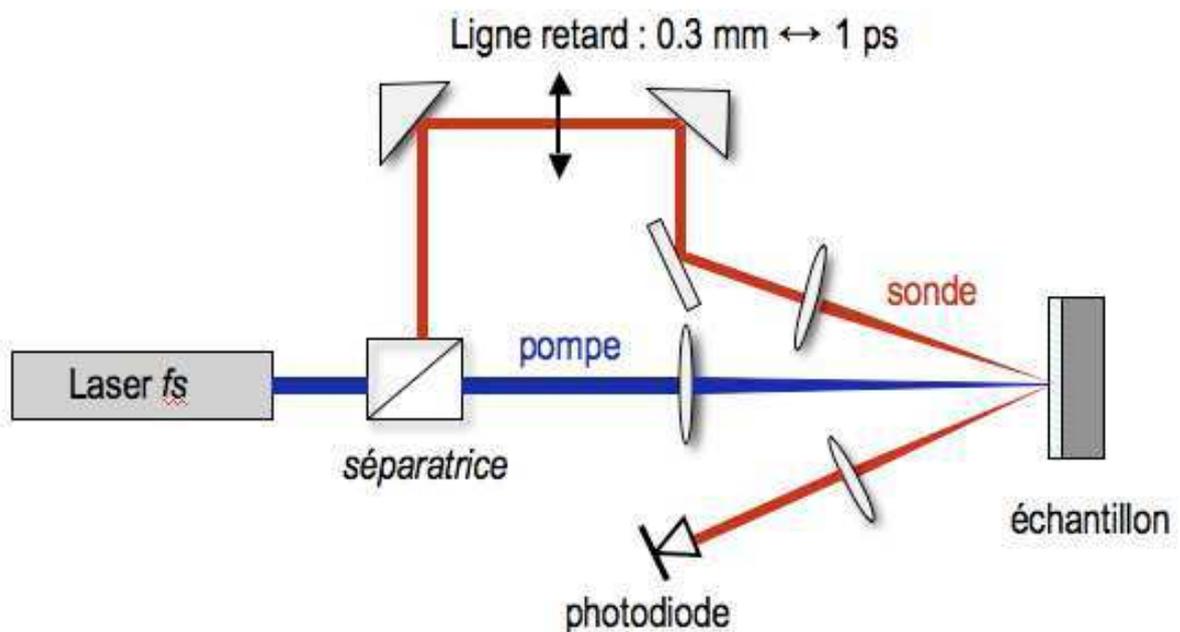


Figure 2-5 Dispositif de mesure de l'acoustique picoseconde

On obtient un spectre temporel avec un ou plusieurs échos. La mesure de la vitesse du son dans le mode longitudinal est faite en mesurant le temps de vol des ondes sur un aller-retour entre la surface et une interface. La vitesse dans le mode longitudinal V_L est égale à deux fois l'épaisseur E_p de la couche divisée par le temps de vol Δt (ou $V_L = 2 \cdot E_p / \Delta t$).

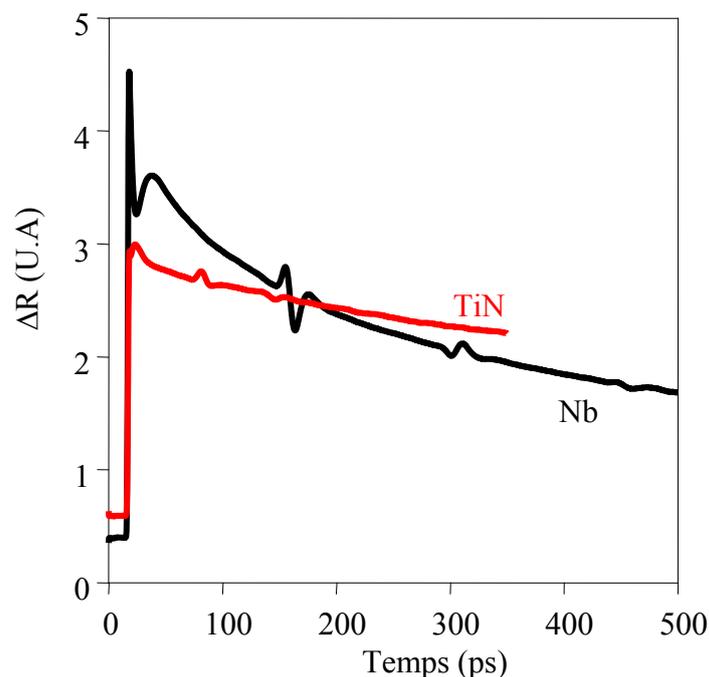


Figure 2-6 Spectre acoustique picoseconde pour une couche de Nb (305 nm) sur substrat W (courbe noire) et une couche de TiN (270 nm) sur substrat W (courbe rouge).

La figure 2-6 présente deux spectres temporels sur lesquels on observe le front abrupt (15 ps) correspondant au réchauffement du nuage d'électrons. Puis la décroissance rapide due à la relaxation dans le réseau de l'énergie des électrons. Les échos sont les indications de temps de propagation des ondes acoustiques dans les couches de Nb ($\Delta t = 148$ ps) et TiN ($\Delta t = 65$ ps). Le fond quasi-continu n'est pas nul de par la relaxation thermique du réseau dépendant du milieu.

Cette mesure a une résolution temporelle inférieure à 1 ps. La principale source d'incertitude sur le calcul de la vitesse du son en mode longitudinal est l'erreur sur la mesure d'épaisseur.

b) Mesure d'acoustique picoseconde sur substrat saphir

Avec Laurent Belliard (maître de conférences) de l'INSP (Paris 6), nous avons mesuré les vitesses du son dans le mode longitudinal pour le Nb et pour différentes stœchiométries de $Ti_{1-x}N_x$. La majeure partie des couches sondées a été déposée sur substrat saphir (Al_2O_3) afin d'améliorer la réflexion des ondes acoustiques à l'interface couche / substrat.

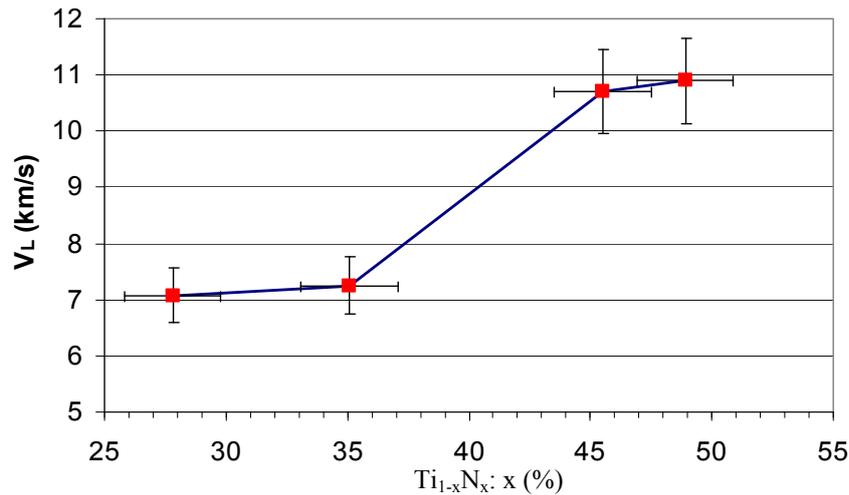


Figure 2-7 Evolution de la vitesse en mode longitudinal en fonction de la stœchiométrie du $Ti_{1-x}N_x$ déposé sur substrat Al_2O_3

Les barres d'erreurs verticales correspondent à l'incertitude moyenne due à la mesure d'épaisseur. L'incertitude horizontale est liée à l'estimation de la stœchiométrie du TiN.

Il est possible de calculer la constante élastique C_{33} à partir de la vitesse du son du mode longitudinal et de la masse volumique:

$$C_{33} = \rho (V_L)^2 \quad (\text{Eq 2.2})$$

La référence [Abadias-2012] propose une valeur calculée de la constante C_{33} à partir de la méthode de Hill [Hill-1952]. Pour un TiN stœchiométrique polycristallin présentant une texture [111], il obtient $C_{33} = 491$ GPa, soit une vitesse du son $V_L = 9,72$ km/s pour une masse volumique prise à $5,2$ g/cm³.

[Abadias-2012] mesure une valeur de $8,67$ km/s pour la vitesse du mode longitudinal d'un TiN stœchiométrique en couche mince (~ 300 nm) déposée par pulvérisation cathodique DC magnétron. Le TiN a été déposé sur un substrat silicium à 300°C avec une pression de dépôt de $0,19$ Pa. Lefeuvre [Lefeuvre-1998] calcule une vitesse du son pour une couche fine de TiN déposée par pulvérisation cathodique DC magnétron. Pour une densité de $5,3$ g/cm³, la mesure de vitesse du son en mode longitudinal est alors $V_L = 9,5$ km/s pour une concentration supposée équivalente en titane et en azote.

La vitesse du son en mode longitudinal mesurée pour le Nb donne $V_L = 4,16 \text{ km/s}$ ($\pm 0,2$) par la méthode d'acoustique picoseconde. D'après les données recueillies par Simmons [Simmons-1971] pour le Nb pour un matériau massif, la valeur de vitesse du son en mode longitudinal est de $V_L = 5,12 \text{ km/s}$ pour une densité de $8,553 \text{ g/cm}^3$.

Malgré les incertitudes dues aux estimations des épaisseurs des couches mesurées, nous obtenons des valeurs de vitesse du son en mode longitudinal proches des valeurs attendues trouvées dans la littérature ($\pm 20\%$).

c) Mesure sur substrat W

Deux mesures d'acoustique picoseconde (Fig 2-6) ont été faites pour une monocouche de TiN (type Sp2) et une monocouche de Nb sur un substrat W. Ces mesures ont pour but de comparer l'influence du substrat sur la vitesse du son en mode longitudinal. On a obtenu pour le TiN : $V_L = 8,31 \text{ km/s}$ et pour le Nb : $V_L = 4,13 \text{ km/s}$. Ces valeurs seront la référence standard pour l'estimation de la résistivité thermique surfacique des liaisons de notre démonstrateur. La valeur de la vitesse du son en mode longitudinal que nous avons mesurée pour le TiN est proche de celle mesurée par [Abadias-2012] ($V_L = 8,67 \text{ km/s}$).

La vitesse du mode longitudinal du TiN sur substrat tungstène est plus faible que celle obtenue pour la couche déposée sur substrat saphir. Nous avons discuté des différences structurales, entre les dépôts de TiN et Nb, sur substrats monocristallins (Al_2O_3 ou Si) et sur substrat polycristallin W dans le paragraphe des mesures en diffraction de rayons X. La taille des cristallites perpendiculairement à la surface est grande dans les couches texturées déposées sur substrat monocristallin (forme colonnaire sur substrat silicium). Les propriétés monocristallines des couches de TiN déposées sur substrat saphir sont peut être à l'origine de cet écart de valeur de vitesse du son en mode longitudinal.

d) Analyse de la qualité des interfaces dans les multicouches

Comme nous l'avons expliqué dans l'introduction de cette méthode, les réflexions aux interfaces sont porteuses d'informations sur leur qualité. Des mesures ont été faites sur des multicouches afin d'explorer d'éventuels défauts et de quantifier la rugosité aux interfaces de la multicouche.

Deux mesures ont été faites : l'une sur une multicouche composée de 16 bicouches de TiN / Nb d'épaisseur 60 nm (30 nm par couche) et l'autre pour une multicouche composée de 48 bicouches. Les deux multicouches ont été recouvertes exceptionnellement d'une couche de Ti de 230 nm et sont déposées sur substrat W.

Les vitesses du son en mode longitudinal des couches de Nb et TiN sur substrat W, déterminées dans le paragraphe précédent, permettent de déduire les C_{33} de ces matériaux (équation 2.2). Ce calcul nécessite la connaissance des valeurs de masse volumique déterminées dans le paragraphe 1-3 de ce chapitre. L'équation 2.3 [Belliard-2009] est utilisée pour calculer la constante effective C_{33}^{eff} . On peut calculer à partir de cette constante la vitesse du son (mode longitudinal) effective de la multicouche, en prenant pour masse volumique effective, la moyenne des densités du TiN et du Nb. La vitesse (mode longitudinal) effective calculée est de $V_{eff} = 5,5$ nm/ps (ou km/s).

$$\frac{d_{eff}}{C_{33}^{eff}} = \sum_i \frac{d_i}{C_{33}^i} \quad (\text{Eq 2.3})$$

d_i et d_{eff} sont respectivement l'épaisseur des couches de TiN ou de Nb et l'épaisseur d'un bicouche, i correspond à l'indice du bicouche considéré.

Des mesures effectuées sur ces deux multicouches (figure 2-8), on déduit la vitesse effective des deux multicouches : $V_{eff}^{(16)} = 5,68$ nm/ps et $V_{eff}^{(48)} = 5,04$ nm/ps.

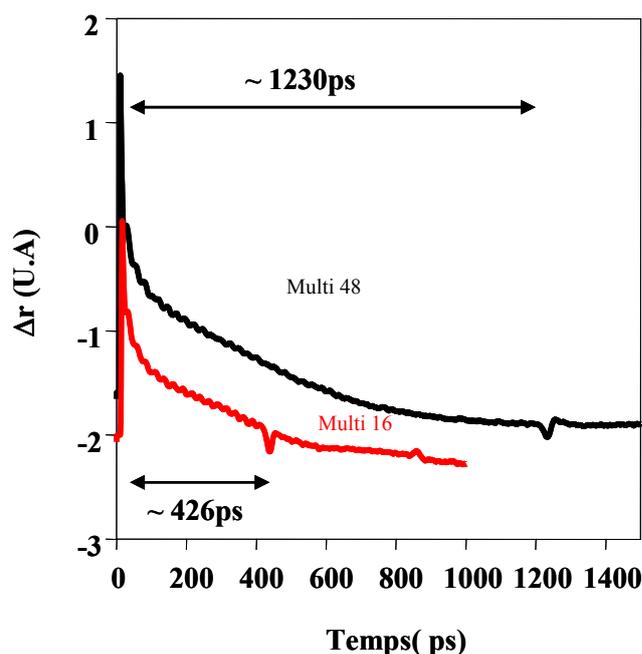


Figure 2-8 Mesures acoustiques picoseconde effectuées sur deux multicouches à 16 et 48 périodes

Ces données obtenues sur les multicouches sont à pondérer par une incertitude portant sur les épaisseurs respectives des couches. A ce stade, il est difficile de conclure. Pour obtenir des résultats plus précis, il faudrait faire une étude spécifique en modifiant la période de la multicouche et en diminuant l'épaisseur des couches déposées. Les autres paramètres devront rester identiques (paramètres de dépôt pour le TiN et le Nb) dans l'étude afin de se focaliser sur l'unique impact des interfaces. L'arrivée tardive de ces résultats préliminaires dans mon travail de thèse n'a pas permis de pousser plus avant cette investigation.

e) Evolutions en température

Le dispositif final dans lequel les liaisons supraconductrices seront utilisées fonctionne à basse température. Nous nous sommes posé la question de savoir si la vitesse du son évoluait à des températures inférieures à la température ambiante. La référence [Simmons-1971] laisse penser que la variation des vitesses avec la température est minime, typiquement : $V_L = 5,15$ km/s à 20 K et $V_L = 5,12$ km/s à 300 K.

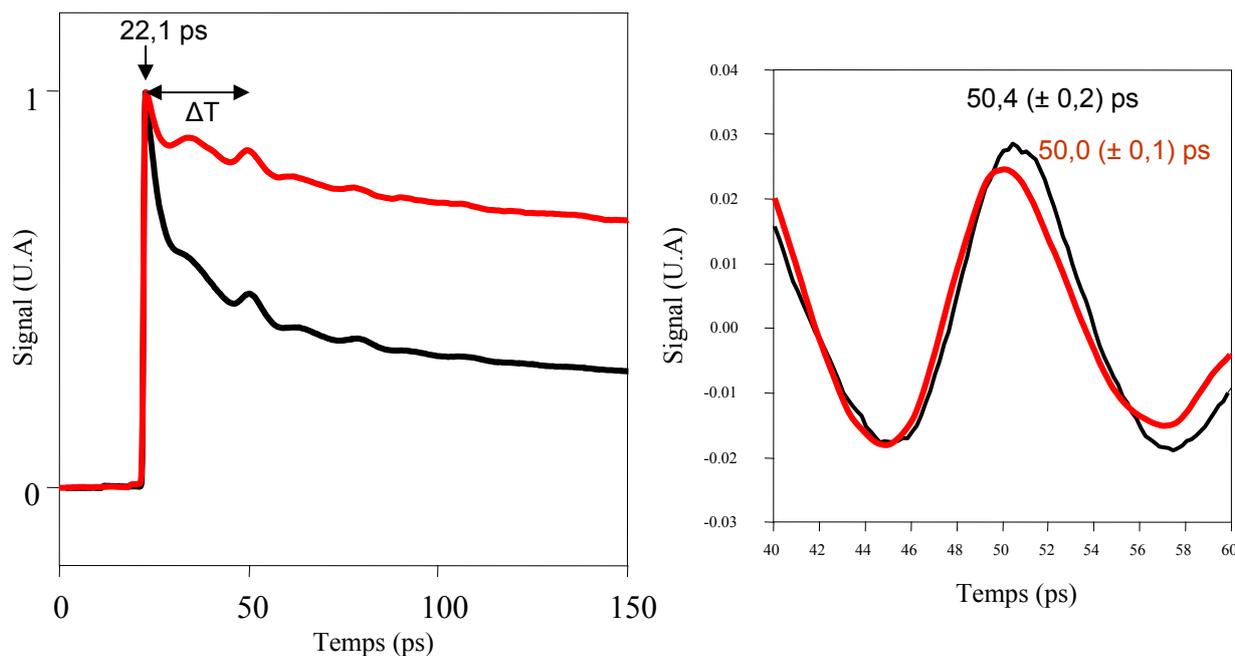


Figure 2-9 Mesure acoustique picoseconde d'un échantillon de TiN (de type Sp2) à 300 K (courbe noire) et 18,8 K (courbe rouge)

Nous avons réalisé une expérience à basse température (~ 20 K) pour valider cette hypothèse. Sur un échantillon composé de TiN avec une stœchiométrie proche du Sp2 déposé sur un substrat en saphir, une mesure en acoustique picoseconde a été réalisée à température ambiante puis à 18,8 K. Les résultats obtenus sur les temps de vol sont très proches $\Delta T_{300K} = 28,3$ ps et $\Delta T_{18,8K} = 27,9$ ps. L'écart observé est inférieur à l'incertitude de la mesure. L'hypothèse selon laquelle les vitesses du son n'évoluent que très faiblement avec la température est confortée.

Nous remarquerons que les charges thermiques s'évacuent moins vite à 20 K qu'à température ambiante, cela est lié à l'augmentation non négligeable de la résistance d'interface entre le TiN et le substrat en saphir.

2-3 Vitesse du son en mode transverse

La seconde vitesse à déterminer pour le calcul de la résistance thermique d'interface est la vitesse du son des ondes transverses. La méthode utilisée pour cette caractérisation est la spectroscopie Brillouin de surface. Elle est particulièrement adaptée pour sonder les propriétés acoustiques à la surface des matériaux opaques en couche mince. Elle est également utilisée pour caractériser des matériaux transparents ou des matériaux massifs.

a) Principe de la diffusion Brillouin de surface

La diffusion Brillouin de surface sonde les propriétés acoustiques d'un film opaque en exploitant la diffusion inélastique de la lumière (photons) incidente (vecteur d'onde \mathbf{k}_i) par les ondes acoustiques (phonons) se propageant parallèlement à la surface (vecteur d'onde $\mathbf{k}_{//}$) et possédant une composante verticale du champ de déplacement non-nulle à la surface libre (mécanisme de rugosité dynamique) [Loudon-1978]. Un photon incident de fréquence ω^i interagit avec un phonon du réseau de fréquence Ω . La rétrodiffusion du photon va entraîner la création ou l'annihilation d'un phonon de surface. La fréquence (ou le vecteur d'onde \mathbf{k}_d) du photon rétrodiffusé ω^d est décalée de la fréquence (du vecteur d'onde $\mathbf{k}_{//}$) du phonon, respectivement, vers le haut $\omega^i + \Omega$ ($\mathbf{k}_d = \mathbf{k}_i + \mathbf{k}_{//}$) ou vers le bas $\omega^i - \Omega$ ($\mathbf{k}_d = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_{//}$).

La configuration géométrique en rétrodiffusion est généralement utilisée pour les mesures de diffusion Brillouin sur les matériaux opaques en couche mince. Le module du vecteur d'onde parallèle à la surface $|\mathbf{k}_{//}|$ dépend de θ , l'angle d'incidence du faisceau laser (variable de 25° à 70°), et de la longueur d'onde du laser monochromatique λ (ici, 532 nm ou 514 nm). La vitesse de l'onde de surface V est simplement $V = \Omega / |\mathbf{k}_{//}|$.

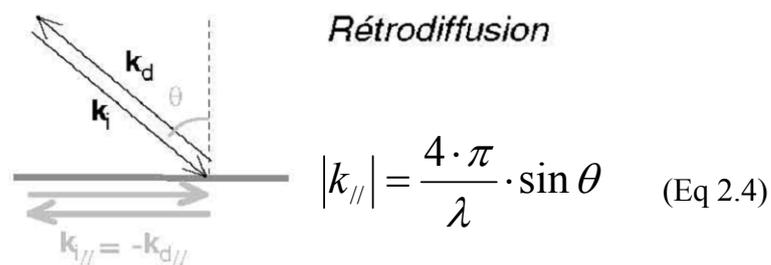


Figure 2-10 Diffusion de la lumière à la surface d'un matériau opaque pour une géométrie en rétrodiffusion

Le signal inélastique rétrodiffusé à mesurer est très faible comparativement à la lumière diffusée sans changement de fréquence, il est donc d'autant plus difficile d'extraire le signal utile. L'extraction de ce signal est rendue possible par l'utilisation d'un instrument à fort contraste et avec une bonne stabilité temporelle : l'interféromètre multi-passages. Deux interféromètres Fabry-Pérot sont montés en tandems afin de permettre 2 x 3 passages pour un contraste supérieur à 10^{10} . La régulation du mouvement des lames des Fabry-Pérot est pilotée par déplacements piézoélectriques.

Le décalage en fréquence de l'onde lumineuse rétrodiffusée (typiquement ~ 3 à 20 GHz) est minime par rapport à la fréquence de la lumière incidente ($\sim 10^3$ THz). Le système à fort contraste et bonne finesse permet une résolution à $0,1$ GHz.

La figure suivante montre le schéma du montage expérimental qui a été mis en place pour les mesures par diffusion Brillouin effectuées par le Professeur Philippe Djemia au LSPM à l'université Paris 13.

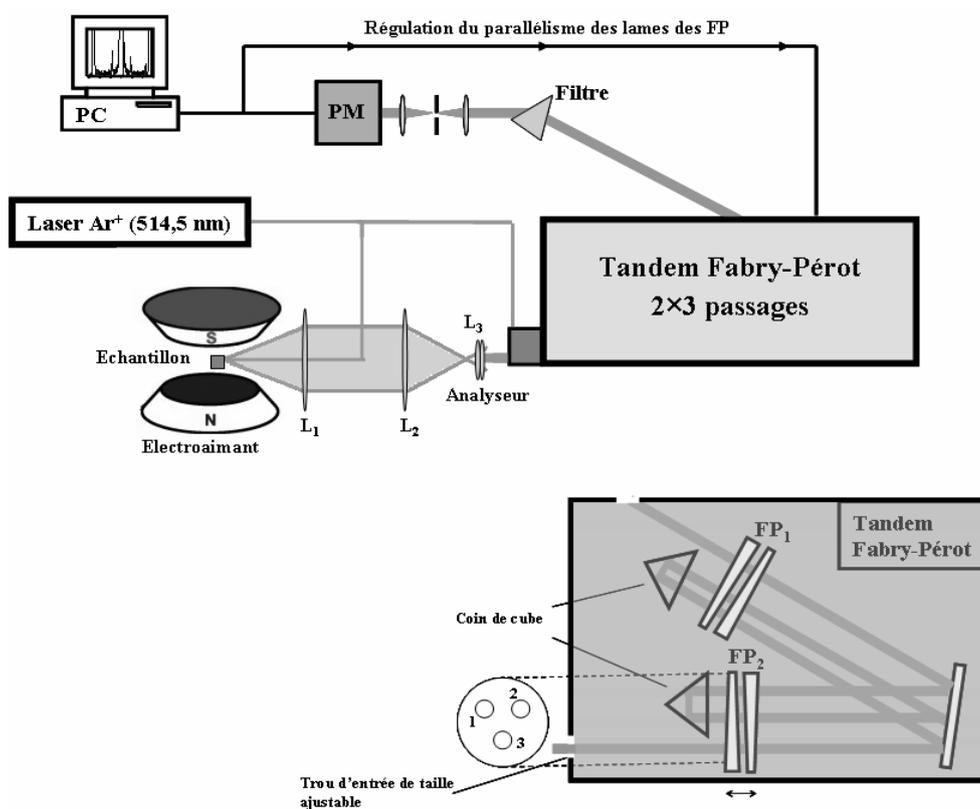


Figure 2-11 Schéma du banc de mesure de spectroscopie Brillouin par rétrodiffusion

Les spectres obtenus sont traités numériquement pour obtenir la fréquence de la raie du mode de Rayleigh de surface, Ω_R . Dans une première approximation, pour une couche d'épaisseur supérieure à la longueur d'onde acoustique, la vitesse de l'onde de Rayleigh est proche de la vitesse en mode transverse dans la couche ($V_R \sim \beta \cdot V_T$) [Kueny-1982-2]. Les valeurs que nous avons mesurées, permettent une estimation du paramètre β pour les différents matériaux ; pour la couche de TiN : $\beta_{\text{TiN}} = 0,96$; pour la couche de Nb : $\beta_{\text{Nb}} = 0,84$; pour le substrat W : $\beta_W = 0,92$.

$$V_R = \frac{\Omega_R}{|K_{//}|} \quad (\text{Eq 2.5})$$

Une modélisation numérique [Djemia-1998] du calcul des spectres de diffusion Brillouin, plus précise, tenant compte de l'observation d'autres modes de surface, permet de remonter à la constante élastique de cisaillement caractéristique C_{44} et ensuite à la vitesse du son en mode transverse V_T (Eq 2.6). Pour cela, il est nécessaire de connaître l'épaisseur et la masse volumique de la couche ρ et de prendre aussi en compte la présence du substrat.

$$V_T = \sqrt{\frac{C_{44}}{\rho}} \quad (\text{Eq 2.6})$$

La diffusion Brillouin offre des possibilités de caractérisation autres, telles que celles des ondes quasi-longitudinales. Ce n'est pas développé dans ce manuscrit, mais une explication détaillée est faite dans la référence [Djemia-2001] et peut permettre de déterminer la constante élastique longitudinale C_{11} , selon la direction de propagation.

b) Les mesures sur substrat tungstène (W)

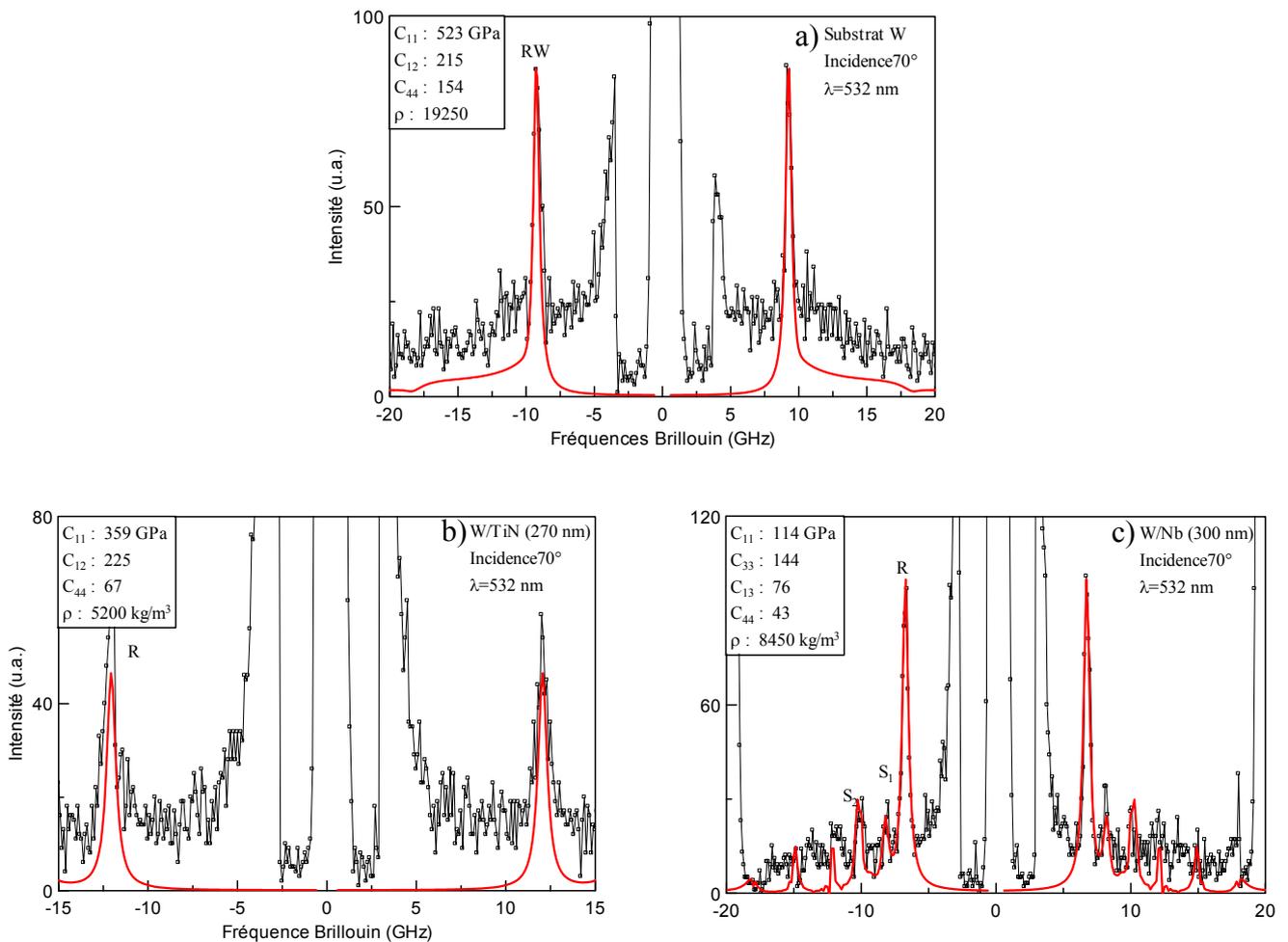


Figure 2-12 Spectre Brillouin d'un substrat W (a), d'une couche de TiN (b) (type Sp2) déposée sur substrat W et d'une couche de Nb (c) déposée sur substrat W, (R) désigne le mode de Rayleigh de surface.

La vitesse du son en mode transverse pour le substrat en W (2 mm d'épaisseur) a été mesurée à $V_T(\mathbf{W}) = 2,83 \text{ km/s}$ et correspond à la valeur attendue pour ce matériau à l'état massif polycristallin (2,9 km/s pour [Simmons-1971]).

Les valeurs de la vitesse en mode transverse, obtenues par le calcul à partir de l'équation (Eq 2.6) en utilisant la valeur de la masse volumique (voir figure 2-12), donnent pour le Nb : $V_T(\mathbf{Nb}) = 2,26 \text{ km/s}$ et pour le TiN (Sp2) : $V_T(\mathbf{TiN}) = 3,59 \text{ km/s}$. Ces données seront prises comme référence pour l'estimation de la résistivité thermique surfacique de la liaison. Notre mesure de vitesse en mode transverse pour la couche de Nb (sur substrat W) est proche de celle mesurée par [Simmons-1971] pour un Nb massif ($\rho = 8,56 \text{ g/cm}^3$) : $V_T = 2,10 \text{ km/s}$. Par contre, notre mesure de vitesse en mode transverse sur la couche de TiN (sur substrat W) est éloignée de ce qu'a mesuré [Abadias-2012] pour une couche polycristalline (avec une texture en (111)) d'épaisseur analogue ($\sim 300 \text{ nm}$) sur substrat silicium.

On notera que pour des mesures par diffusion Brillouin pour une épaisseur comparable ou supérieure à une longueur d'onde acoustique, la précision sur la mesure d'épaisseur n'impacte pas l'incertitude des valeurs obtenues. La longueur d'onde acoustique s'exprime en fonction de la longueur d'onde du faisceau laser λ_{laser} (532 nm) et de son angle d'incidence sur l'échantillon θ (70°). On obtient une longueur d'onde acoustique proche de 280 nm.

$$\Lambda = \frac{\lambda_{\text{laser}}}{2 \sin \theta} \quad (\text{Eq 2.7})$$

Les ondes S_1 et S_2 , mentionnées sur la courbe du spectre du Nb de la figure 2-12, correspondent aux modes stationnaires de Sezawa [Djemia-2001] ; elles n'existent que dans le cas d'une couche mince avec des vitesses du son plus lentes que celles du substrat sur lequel elle est déposée. L'onde de Rayleigh est évanescence, mais pour une couche avec une valeur de vitesse du son plus faible que celle du substrat, on voit apparaître des ondes de Sezawa qui ne sont pas localisées à la surface et qui sont stationnaires dans l'épaisseur de la couche. La fréquence de ces modes stationnaires est dépendante de l'épaisseur de la couche et des constantes élastiques de la couche et du substrat. L'onde de Rayleigh de surface R ne dépend dans une grande partie, que de la constante élastique C_{44} .

c) Les mesures sur substrat Si

Les mesures ont été faites sur plusieurs échantillons de $Ti_{1-x}N_x$ afin d'explorer les variations de la vitesse du son en mode transverse en fonction de la stœchiométrie.

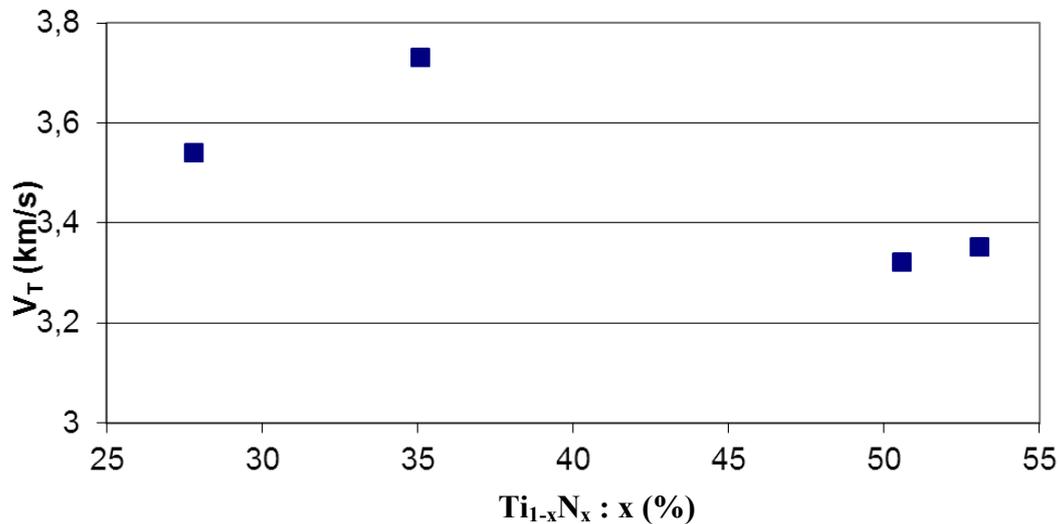


Figure 2-13 Evolution de la vitesse du son en mode transverse dans le $Ti_{1-x}N_x$ avec la concentration en Azote (N)

Les valeurs de la figure (Fig 2-13) montrent que la vitesse du son en mode transverse évolue faiblement avec la variation de concentration d'azote dans la couche.

Notre mesure à partir d'une couche mince (670 nm) de Nb texturé [110] déposée sur substrat Si (monocristallin), nous donne : $V_T = 2,20$ km/s ; cette valeur est issue de la mesure de la vitesse de l'onde de Rayleigh divisée par le paramètre β (0,84 pour le Nb) déterminé par la mesure effectuée du Nb sur substrat W. La référence [Simmons-1971] fournit pour un Nb monocristallin ($\rho = 8,56$ g/cm³), une valeur de $V_T = 2,10$ km/s. La référence [Kueny-1982] donne pour un Nb polycristallin une valeur de $C_{44} = 28,7$ GPa pour une masse volumique de $8,57$ g/cm³, on en déduit une vitesse du son en mode transverse de $V_T = 1,83$ km/s.

Dans le cas du $Ti_{1-x}N_x$, plusieurs calculs et mesures des vitesses du son ou de la constante élastique C_{44} sont indiqués dans le tableau ci-dessous. On intègre à ce tableau les données recueillies sur les vitesses du son en mode longitudinal et les constantes C_{33} .

C_{33} (GPa)	C_{44} (GPa)	V_L (km/s)	V_T (km/s)	ρ (g/cm ³)	Structure	Références
359	67	8,31	3,59	5,2 *	polycristallin	Notre mesure : W (type Sp2)
429	/	10,9	/	3,95	texturé [111]	Notre mesure : Al₂O₃ (Sp2)
491	194	9,72	6,11	5,2 *	texturé [111]	Calculée [Hill-1952]
387	130	8,67	5,02	5,15	texturé [111]	Mesurée [Abadias-2012]
554	169	10,3	5,70	5,2 *	texturé [111]	Calculée [Abadias-2012]
203	110	6,57	4,84	4,70	polycristallin	Mesurée [Djemia-2012]
583	155	10,6	5,46	5,2 *	monocristallin	Calculée [Ivashchenko-2006]
585	165	10,6	5,63	5,2 *	monocristallin	Calculée [Nagao-2006]
626	156	10,8	5,37	5,4	mono (001)	Mesure couche [Lee-2005]

*Les valeurs de densité sont arbitrairement choisies pour le calcul des vitesses du son.

Tableau 2-2 Différentes valeurs de V_L , V_T , C_{33} et C_{44} pour le TiN proche de la stœchiométrie

Les nombreuses données sur le $Ti_{1-x}N_x$ montrent que les valeurs de vitesse du son en mode transverse que nous avons déterminées par diffusion Brillouin sont nettement en dessous de ce qui est présenté dans la littérature. Nous avons démontré dans l'étude structurale, pour les couches de $Ti_{1-x}N_x$, que les défauts lors de la croissance ou la forme colonnaire et les vides associés peuvent être à l'origine de l'écart entre nos mesures de vitesse en mode transverse et celles calculées dans la littérature. [Elena-1993] parvient à une conclusion similaire pour expliquer les écarts aux vitesses du son en mode transverse dans des couches déposées par pulvérisation cathodique DC magnétron.

La vitesse du son en mode transverse pour le Nb n'est pas éloignée de celle qui était attendue. Nos mesures de vitesses en mode transverse de TiN ou de Nb sur substrat Si ou W donnent des résultats proches. Le changement de substrat et donc la morphologie de la couche déposée n'affecte pas significativement le paramètre de vitesse en mode transverse sur nos mesures.

Dans le cas du Nb déposé sur substrat silicium, la forme en « draperie » de l'imbrication des cristallites explique certainement la cohérence avec les valeurs de vitesse du son en mode transverse attendues. Pour le TiN, la formation de colonnettes séparées par des vides explique la diminution de la vitesse du son en mode transverse par rapport à celle attendue.

Si on regarde en détail les mesures réalisées par [Abadias-2012] et [Djemia-2012], des variations de valeurs de vitesse du son apparaissent. Ces écarts sont essentiellement dus aux paramètres de dépôts des couches de TiN. Outre le fait que pour les deux références la température de dépôt est identique (300°C), la pression lors du dépôt n'est pas la même (0,19 Pa pour Abadias et 0,31 Pa pour Djemia). Nous avons vu dans le chapitre III (figure 1-3), que la température et la pression lors du dépôt sont des paramètres importants pour la formation de la microstructure de la couche. Notre dépôt de TiN stœchiométrique (Sp2) est réalisé à une température < 100°C pour une pression de 0,25 Pa. Ces paramètres de dépôt différents influent de manière importante sur la formation des cristallites dans la couche et donc sur les vitesses du son (mode longitudinale et mode transverses).

En conclusion de cette étude sur les propriétés acoustiques des modes transverses, nous pouvons mettre en avant que les valeurs déterminées expérimentalement nous apportent une meilleure connaissance des vitesses du son en mode transverse à utiliser dans notre modèle théorique, défini dans le chapitre II, et ainsi tendre vers une valeur de résistivité thermique à l'interface plus proche de la réalité. Toutefois, lorsque la longueur d'onde dominante des phonons est grande devant la dimension des défauts (à basse température), ceux-ci n'impactent (presque) plus le transport thermique. A très basse température, la vitesse du son en mode transverse pour les couches de TiN pourrait remonter vers des valeurs proches d'une couche sans défauts (autours de 5,6 km/s, cf tableau 2-2).

2-4 Nano-indentation

Une des méthodes possibles pour rechercher le module de Young dans un matériau en couche mince est la nano-indentation. Cette méthode a été utilisée pour compléter les mesures d'élasticité. L'approche choisie pour l'estimation du module de Young est quantitative dans le but de comparer le résultat obtenu avec les mesures acoustiques.

Au cours d'un essai d'indentation, une pointe en diamant est enfoncée dans la couche étudiée. La force F et la pénétration h de la pointe sont enregistrées pendant l'enfoncement. Une séquence d'indentation est constituée d'une phase de charge (enfoncement) puis d'une phase de décharge qui correspond à une diminution de la force appliquée (figure 2-21).

Lors de la charge, la surface se déforme sous la pointe soit de manière élastique, soit de manière plastique ; la pointe s'enfonce dans la couche. Durant la phase de décharge, la force diminuant entraîne la remontée de la pointe par effet de retour élastique. Cette phase de décharge purement élastique porte l'information du module de Young. Si la couche a subi une déformation plastique, la mesure de pénétration h aura une valeur différente au début de l'enfoncement et à la fin du retrait (h_p), une marque apparaîtra à la surface de la couche sous la pointe.

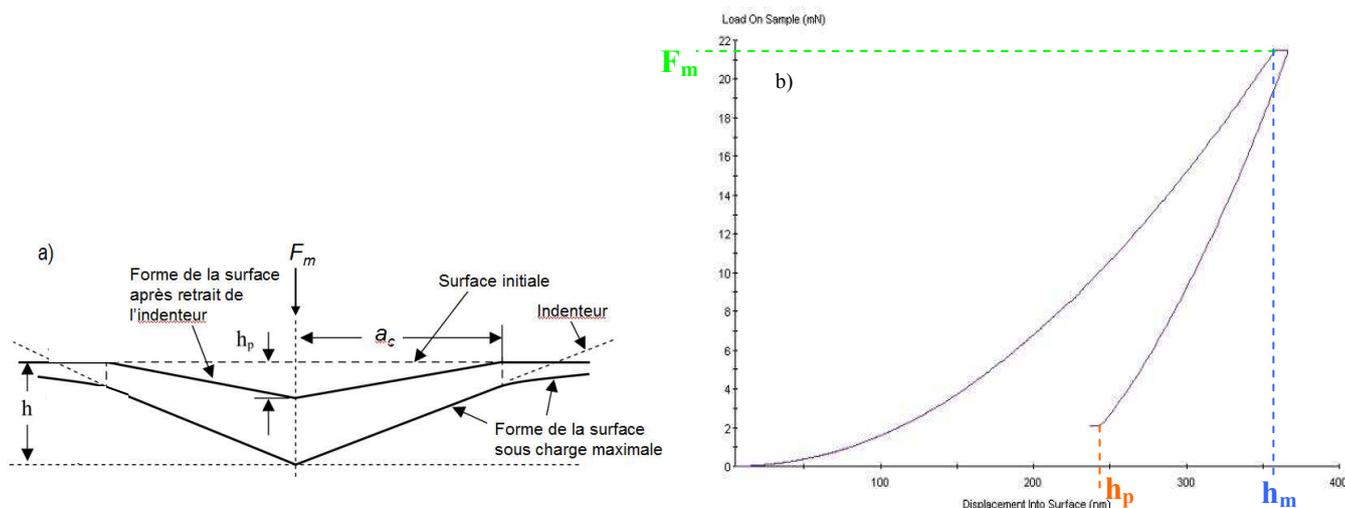


Figure 2-21 Schéma de la surface lors d'une mesure d'indentation (a), mesure de la pénétration en fonction de la force appliquée dans une couche de TiN (type Sp6) d'épaisseur 300 nm (b)

La pente de la décharge permet la détermination du module élastique apparent E^* relié au module de Young par l'équation ci-dessous [Pharr-1992]. E est le module de Young, ν est le coefficient de poisson, E_i et ν_i sont respectivement le module de Young et le coefficient de poisson de la pointe de l'indenteur.

$$\frac{1}{E^*} = \frac{(1-\nu^2)}{E} + \frac{(1-\nu_i^2)}{E_i} \quad (\text{Eq 2.8})$$

La formulation permettant l'extraction du module apparent lors de la mesure de charge déplacement est la suivante, où a_c est le rayon de l'aire de contact de la pointe sur la couche mesurée.

$$F = 2a_c E^* h \quad (\text{Eq 2.9})$$

Le tableau suivant répertorie les mesures que nous avons effectuées avec Baptiste Goubault (doctorant au CEA/LETI) sur différentes couches que nous avons réalisées.

Matériaux	Pourcentage d'azote (at %)	Substrat	Epaisseur (nm)	E (GPa)
TiN Sp2b	48,8	Si	1140	122
TiN Sp9b	27,8	Si	680	121
TiN Sp10b	50,6	Si	535	113
TiN Sp11b	53,1	Si	400	84
Nb bis	/	Si	670	81
TiN (Sp2)	48,8	W	270	128
Nb	/	W	305	86

Tableau 2-4 Récapitulatif des mesures de nano-indentation

Le changement de substrat ne permet pas d'observer une variation de module de Young, aussi bien pour la couche de TiN, que pour la couche de Nb, que nous avons mesurée. La figure suivante représente l'évolution du module de Young en fonction de la composition en azote des couches de $Ti_{1-x}N_x$ déposées sur substrat Si.

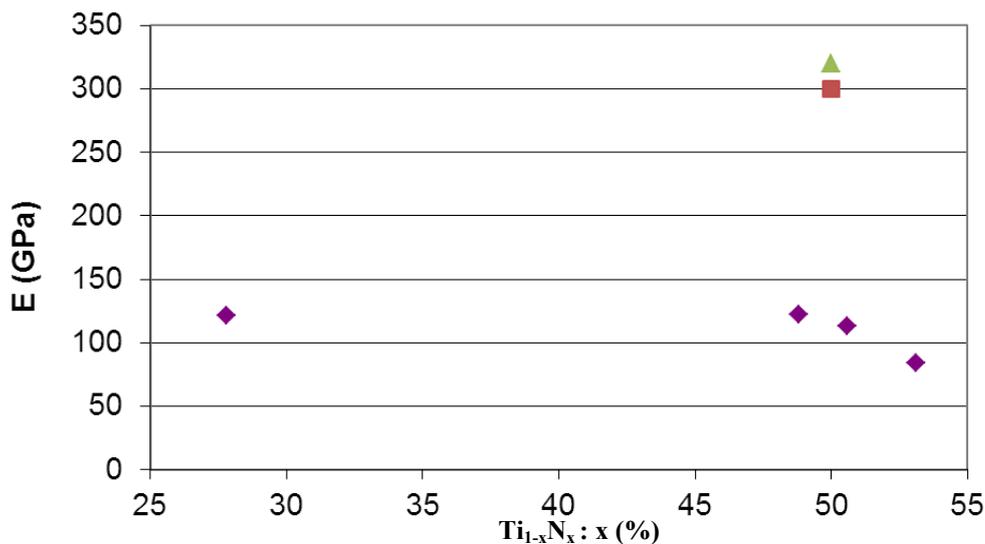


Figure 2-22 Mesures en nano-indentation sur les couches de $Ti_{1-x}N_x$ sur substrat Si monocristallin (losanges). Le carré correspond à la mesure de [Abadias-2012]. Le triangle correspond à celle de [Djemia-2012].

Les valeurs de module de Young obtenues pour le $Ti_{1-x}N_x$ sont éloignées des valeurs qui sont calculées [Nagao-2006] ou des valeurs mesurées par [Abadias-2012] ou [Djemia-2012]. Le module de Young obtenu pour le Nb est proche de la valeur donnée par [Armstrong-1966] : $E_{Nb} = 92$ GPa pour une couche de Nb orientée en [110].

La microstructure est encore une fois mise en cause pour expliquer l'écart conséquent entre nos mesures de modules de Young et celles des couches de TiN avec des paramètres de dépôt différents.

3- Caractéristiques électriques

Ce chapitre de caractérisation nous a permis d'observer les caractéristiques telles que la microstructure des matériaux, les propriétés acoustiques et mécaniques des couches utilisées pour cette étude. Pour clore ce chapitre, nous allons nous intéresser succinctement aux propriétés électriques des couches de TiN et Nb que nous avons étudiées dans ce chapitre.

3-1 Mesure de la résistivité électrique à température ambiante

Nous avons réalisé une étude de la conductivité électrique à température ambiante. Les couches de matériaux mesurées sont déposées sur un substrat de silicium standard. Toutes les couches présentent une épaisseur supérieure à 300 nm. La résistivité du Si est forte devant celle des matériaux que nous étudions ($Ti_{1-x}N_x$ et Nb), $\rho_{Si} \sim 10 \Omega \cdot cm$. Un système de mesure en quatre points est utilisé pour s'affranchir des résistances d'accès. La résistance mesurée est à multiplier par un facteur géométrique (4,52 dans notre cas) pour obtenir une résistance par carré : R_{\square} (résistivité divisée par l'épaisseur de la couche). Cette résistance par carré est ensuite multipliée par l'épaisseur de la couche pour obtenir la résistivité à température ambiante.

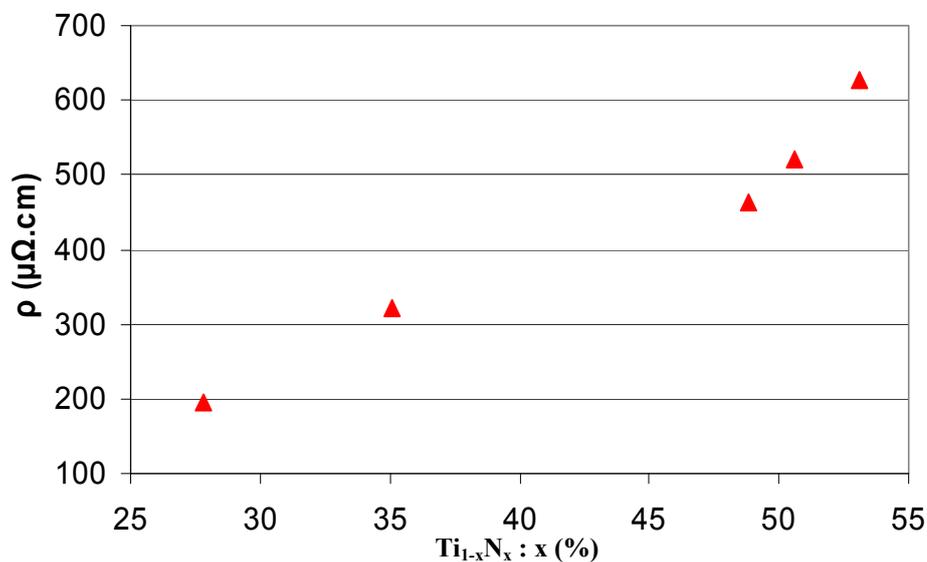


Figure 3-1 Mesure de conductivité à température ambiante des couches de $Ti_{1-x}N_x$ déposées sur substrat monocristallin silicium

La figure 3-1 révèle une augmentation monotone de la résistivité lorsque la concentration en azote augmente dans le réseau cristallin du $Ti_{1-x}N_x$. Ces mesures ont été faites à température ambiante. Cette forme et les valeurs reportées sur la figure 3-1 sont cohérentes avec celles mesurées par [Hadacek-2002].

La résistivité du Nb à température ambiante a été mesurée sur une couche (Nb standard) de 305 nm d'épaisseur déposée sur un substrat Si à $\rho_{\text{Nb}} = 18,2 \mu\Omega\cdot\text{cm}$. [Pinski-1981] calcule une valeur de $16,5 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ pour ce matériau. Cette valeur est 25 fois inférieure à la valeur de résistivité d'un nitrure de titane proche de la stœchiométrie. Cet écart dans la conduction électrique s'explique par une meilleure conduction dans le Nb que dans une céramique comme le TiN proche de la stœchiométrie.

Cette approche de mesure de la conductivité à température ambiante est une autre méthode possible pour caractériser la composition d'une couche à partir d'une série étalon dont on connaît la résistivité (avec des caractéristiques de dépôts similaires). Cette méthode rapide et peu onéreuse reste une option à ne pas négliger dans une optique de caractérisation en série.

3-2 Température de transition supraconductrice pour le $\text{Ti}_{1-x}\text{N}_x$ et le Nb

Le second type de mesure est directement lié à l'élaboration des liaisons supraconductrices. Nous avons vu dans le chapitre II que la non-conduction de la chaleur par les électrons dans l'état supraconducteur de la liaison prend pour hypothèse que l'ensemble de ces électrons sont associés en paires de Cooper. Le système doit alors fonctionner à une température de travail très inférieure à la température de transition supraconductrice des matériaux utilisés. Nous proposons une mesure de la température de transition supraconductrice.

Nous avons réalisé une série d'échantillons pour cette mesure de température de transition supraconductrice. Chaque échantillon est câblé en 4 points sur un porte substrat. L'ensemble est plongé dans un cryostat (PPMS) qui permet des excursions en température entre 300 K et 0,4 K d'une durée de quelques heures. On mesure l'évolution de la résistivité lors de la descente en température et on enregistre la température pour laquelle la résistance devient extrêmement faible. Le dispositif expérimental ne nous permettait pas d'explorer des températures inférieures à 400 mK.

La température de transition supraconductrice du Nb en couche mince que nous utilisons dans les liaisons supraconductrices a été mesurée à $T_c = 9,06 \text{ K}$. La température de référence du niobium massif est un peu supérieure à 9,2 K [Kittel-1983].

La figure suivante présente les différentes mesures que nous avons effectuées à basse température pour déterminer la température de transition supraconductrice des couches de $\text{Ti}_{1-x}\text{N}_x$ en fonction du débit d'azote injecté dans le plasma pendant le dépôt. Les autres paramètres de dépôt (puissance, pression, ect...) sont identiques aux dépôts de type Sp2. La zone hachurée correspond à la limitation basse de la mesure. On montre ainsi que deux points ont une T_c inférieure à notre détection, mais nous ne pouvons pas déterminer précisément leur valeur sans réaliser une mesure à plus basse température.

[Tsai-1993] mesure la T_c en fonction de l'épaisseur de la couche de TiN. Pour une épaisseur de 60 nm (équivalente à celle des couches dans nos liaisons), il mesure une T_c de 4,8 K, soit quasiment la valeur maximum pour une couche de TiN.

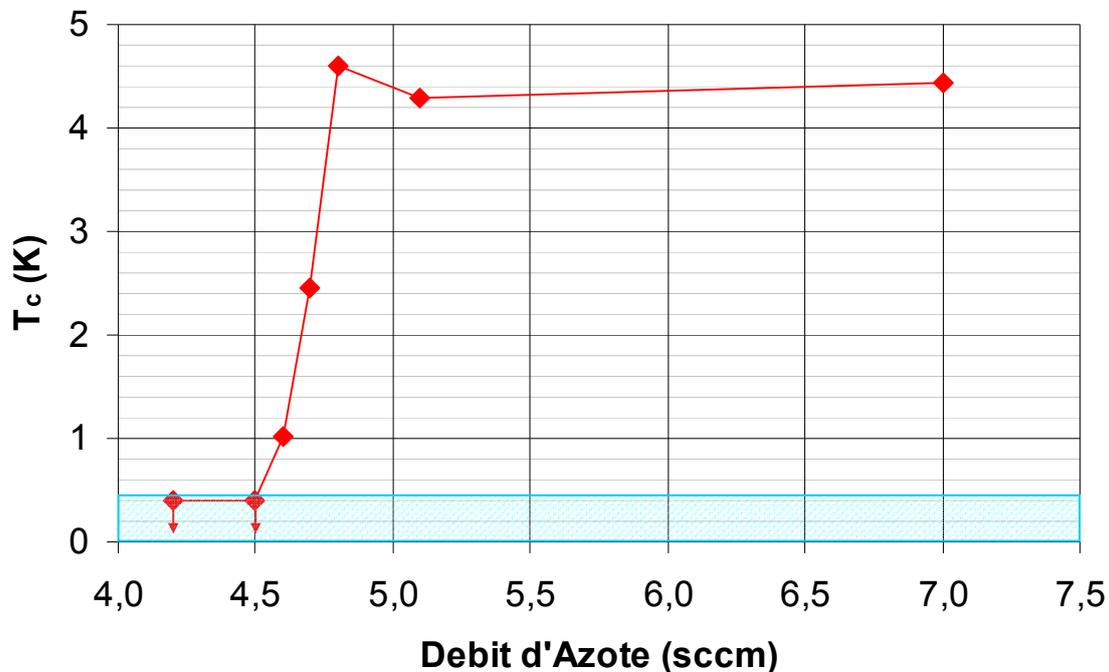


Figure 3-2 Transition supraconductrice T_c en fonction de la pression d'azote lors du dépôt de $Ti_{1-x}N_x$

Le résultat de la figure 3-2 est proche de la référence [Leduc-2010]. Tout comme cette référence, nous montrons qu'il est en principe possible de sélectionner la température de transition supraconductrice en ajustant le débit d'azote lors du dépôt. Il est évident que dans ce but un nombre plus important de points doivent être mesurés pour s'assurer de la reproductibilité de ces mesures.

Ce procédé annexe que nous avons développé a permis d'apporter un point de fonctionnement à Alessandro Monfardini (chercheur à l'institut Néel du CNRS de Grenoble) qui était à la recherche d'un moyen pour réaliser des couches de TiN avec une T_c proche de 1 K pour la fabrication de «Microwave Kinetic Inductance Detectors» (ou MKIDs), [Monfardini-2011].

Du point de vue de notre étude, nous recherchons une couche de $Ti_{1-x}N_x$ avec une T_c la plus forte possible. Nous savons avec cette étude que nous devons utiliser des paramètres de dépôt qui permettront de se placer sur le plateau avec une T_c proche de 4,5 K.

Conclusion :

Dans ce chapitre, nous avons passé en revue les différentes caractérisations que nous avons réalisées sur les deux matériaux composant la multicouche, à savoir le TiN et le Nb. Tout au long de ce chapitre, nous avons cherché à extraire les différences entre les couches minces déposées sur substrat W et les couches minces déposées sur substrat Si.

Les résultats des caractérisations des couches déposées sur substrat W, nous serviront directement pour estimer la résistance thermique théorique des démonstrateurs dont nous présentons les mesures dans le chapitre suivant.

Les données issues des caractérisations des couches minces, déposées sur substrat Si, seront utilisées pour quantifier la résistance thermique des multicouche déposés sur substrat silicium sur les matrices du plan matriciel (entre la plaque à 50 mK et celle à 250 mK) de l'instrument XMS.

Bibliographie du Chapitre IV

[Abadias-2012]: G. Abadias, V. I. Ivashchenko, L. Belliard, P. Djemia, « Structure, phase stability and elastic properties in the $Ti_{1-x}Zr_xN$ thin-film system: Experimental and computational studies », Soumi à : Acta Materiala, (2012)

[Alvisi-1997]: M. Alvisi, A. Rizzo, L. Tapfer, L. Vasanelli, « X-ray reflectivity analysis of thin TiN and TiO_xN_y films deposited by dual-ion-beam sputtering on (100) Si substrates », Thin Solid Films, Vol. 298, p 130-134, (1997)

[Armstrong-1966]: P. E. Armstrong, J. M. Dickinson, H. L. Brown, « Temperature Dependence of the Elastic Stiffness Coefficients of Niobium (Columbium) », Trans. Metal. Soc. Aime, Vol. 236, p 1404-1408, (1966)

[Belliard-2009]: L. Belliard, A. Huynh, B. Perrin, A. Michel, G. Abadias, C. Jaouen, « Elastic properties and phonon generation in Mo/Si superlattices », Phys. Rev. B, Vol. 80, N. 155424, (2009)

[Benhamida-2006]: M. Benhamida, A. Meddour, S. Zerkout, S. Achour, « Calculation of the optical and electronic properties of TiN_x thin films on domain IR-VIS-UV », Journal of Molecular Structure, Theochem, Vol. 777, p 41-44, (2006)

[Capsinski-1996]: W. S. Capsinski, H. J. Maris, « Improved apparatus for picosecond pump and probe optical measurements », Rev. Sci. Instrum., Vol. 67, N. 8, p 2720-2726, (1996)

[Chu-1978]: W. K. Chu, J. W. Mayer, M. A. Nicolet, « Backscattering Spectroscopy », Academic Press, New York, (1978)

[Clyne-2001]: T. W. Clyne, « Residual stresses in thick and thin surface coating », Encyclopaedia of Materials : Science and Technology, Elsevier, (2001)

[Dai-2006]: X. D. Dai, Y. Kong, J. H. Li, B. X. Liu, « Extended Finnis-Sinclair potential for bcc and fcc metals and alloys », J. Phys. Condens. Matter, Vol. 18, p 4527-4542, (2006).

[Djemia-1998]: P. Djemia, Thèse de doctorat : « Diffusion Brillouin dans des Couches et Multicouches Ultraminces », Université de Paris Nord, LPMTM, (1998)

[Djemia-2001]: P. Djemia, F. Ganot, P. Moch, V. Branger, P. Goudeau, « Brillouin scattering investigation of elastic properties of Cu-Mo solid solution thin films », J. Appl. Phys., Vol. 90, N. 2, p 756-762, (2001)

[Djemia-2012]: P. Djemia, M. Benhamida, Kh. Bouamama, L. Belliard, D. Faurie, G. Abadias, « Structural and elastic properties of ternary metal nitrides $Ti_xTa_{1-x}N$ alloys: first-principles calculations versus experiments », Soumi à : Surface and Coating Technology, (2012)

[Elena-1993]: M. Elena, M. Bonelli, C. E. Bottani, G. Ghislotti, A. Miotello, P. Mutti, P. M. Ossi, « Elastic behaviour of TiN thin films », Thin Solid Films, Vol. 236, p 209-213, (1993)

[Greenaway-1951]: H. T. Greenaway, « The Constitutional Diagram of the Chromium-Tungsten system », J. Inst. Met., Vol. 80, N. 37, p 589-592, (1951)

[Grunier-1956]: A. Guinier, « Théorie et technique de la radiocristallographie », Dunod, (1956)

[Hadacek-2002] : N. Hadacek, Thèse de doctorat : « Etude de films minces et de jonctions Josephson en nitrures supraconducteurs (TiN et NbN); application à la logique RSFQ », Université de Grenoble, (2002)

[Hill-1952]: R. Hill, « The Elastic behaviour of a crystalline Aggregate », Proc. Phys. Soc. A, Vol. 65, p 349-354, (1952)

[Humlicek-1998]: J. Humlicek, A. Nebojsa, J. Hora, M. Strasky, J. Spousta, T. Sikola, « Ellipsometry and transport studies of thin-film metal nitrides », Thin Solid Films, Vol. 332, p 25-29, (1998)

[Huneau-2000]: B. Huneau, J. J. Ding, P. Rogl, J. Bauer, X. Y. Ding, M. Bohn, « Experimental investigation in the quaternary systems Ti-Ni-Al-N and Ti-Ni-Al-O », J. Solid State Chem., Vol. 155, p 71-77, (2000)

[Imamura-1989]: T. Imamura, S. Hasuo, « Effects of intrinsic stress on submicrometer Nb/AlO_x/Nb Josephson Junctions », IEEE Transactions on Magnetics, Vol. 25, N. 2, p 1119-1122, (1989)

[Ivashchenko-2006]: V. I. Ivashchenko, P. E. A. Turchi, A. Gonis, L. A. Ivashchenko, P. L. Skrynskii, « Electronic Origin of Elastic Properties of Titanium Carbonitride », Metal. Mater. Trans. A, Vol. 37, p 3391-3396, (2006)

[Karimi-1997]: A. Karimi, O. R. Shojaei, T. Kruml, J. L. Martin, « Characterisation of TiN thin film using the bulge test and nanoindentation action technique », Thin Solid Films, Vol. 308-309, p 334-339, (1997)

[Kittel-1983]: C. Kittel, « Physique de l'état solide », Dunod, 5eme édition, (1983)

[Kress-1978] : W. Kress, P. Reodhammer, H. Bilz, W. D. Teuchert, A. N. Christensen, « Phonon anomalies in transition-metal nitrides : TiN », Phys. Rev. B, Vol. 17, N. 1, p 111-113, (1978)

[Kueny-1982]: A. Kueny, M. Grimsditch, « Surface waves in a layered material », Phys. Rev. B, Vol. 26, N. 8, p 4699-4702, (1982)

[Kueny-1982-2]: A. Kueny, M. Grimsditch, K. Miyano, I. Banerjee, C. M. Falco, I. K. Schuller, « Anomalous Behaviour of Surface Acoustic Waves in Cu/Nb Superlattices », Phys. Rev. Lett., Vol. 48, N. 3, p 166-170, (1982)

[Leduc-2010]: H. G. Leduc, B. Bumble, P. K. Day, B. H. Eom, J. Gao et al., « Titanium nitride films for ultrasensitive microresonator detectors », Appl. Phys. Lett., Vol. 97, N. 102509, (2010)

[Lee-2005]: T. Lee, K. Ohmori, C. S. Shin, D. G. Cahill, I. Petrov, J. E. Greene, « Elastic constants of single-crystal TiN_x (001) determined as a function of x by picosecond ultrasonic measurements », Phys. Rev. B, Vol. 71, N. 144106, (2005)

[Lefeuvre-1998]: O. Lefeuvre, P. Zinin, G. A. D. Briggs, « Leaky surface waves propagating on a fast on slow system and the implications for material characterization », Ultrasonics, Vol. 36, p 229-332, (1998)

[Logothetidis-1998]: S. Logothetidis, G. Stergioudis, P. Patsalas, « Oxidation and Structural changes in fcc TiN_x thin films studied with X-ray reflectivity », Surface and Coatings Technology, Vol. 100-101, p 295-299, (1998)

[Logothetidis-2003]: S. Logothetidis, Y. Panayiotatos, C. Gravalidis, P. Patsalas, A. Zoy, « X-Ray diffuse scattering investigation of thin films », Materials Science and Engineering B, Vol. 102, p 25-29, (2003)

[Loudon-78]: R. Loudon, « Theory of surface-Ripple Brillouin Scattering by Solids », Phys. Rev. Lett., Vol. 40, N. 9, p 581-583, (1978)

[Mayrhofer-2006]: P. H. Mayrhofer, D. Music, J. M. Schneider, « Influence of the Al distribution on the structure, elastic properties, and phase stability of supersaturated $Ti_{1-x}Al_xN$ », J. Appl. Phys., Vol. 100, N. 094906, (2006).

[Monfardini-2011]: A. Monfardini, A. Benoit, A. Bideaud, L. Swenson, A. Cruciani, P. Camus et al., « A dual band millimetre-wave kinetic inductance camera for the IRAM 30 m telescope », The Astrophysical Journal Supplement Series, Vol. 194, N. 24, (2011)

[Nagakura-1975]: S. Nagakura, T. Kusunoky, F. Kakimoto, Y. Hirotsu, « Lattice parameter of the non-stoichiometric compound TiN_x », J. Appl. Cryst., Vol. 8, p 65-66, (1975)

[Nagao-2006]: S. Nagao, K. Nordlund, R. Nowak, « Anisotropic Elasticity of IVB Transition-metal mononitrides determined by *ab initio* calculations », Phys. Rev. B, Vol. 73, N. 144113, (2006)

[Parrish-1960]: W. Parrish, « Results of the I.U.Cr. precision lattice-parameter project », Acta Cryst., Vol. 13, p 838, (1960)

[Patsalas-2000]: P. Patsalas, C. Charitidis, S. Logothetidis, « The effect of substrate temperature and biasing on the mechanical properties and structure of sputtered titanium nitride thin films », *Surf. Coat. Tech.*, Vol. 125, p 335-340, (2000)

[Pharr-1992]: G. M Pharr, W. C. Oliver, « Measurement of thin film mechanical properties using nanoindentation », *The British Library, MRS Bulletin*, p 28-33, (1992)

[Pinski-1981]: F. J. Pinski, P. B. Allen, W. H. Butler « Calculated electrical and thermal resistivities of Nb and Pd », *Phys. Rev. B*, Vol. 23, N. 10, p 5080-5096, (1981)

[Simmons-1971]: G. Simmons, H. Wang, « Single Crystal Elastic Constants and Calculated Aggregate Properties », *The M.I.T Press*, Second edition, (1971)

[Stoney-1909]: G. G. Stoney, « The tension of metallic film deposited by electrolysis », *Proc. Roy. Soc. London A*, Vol. 82, p 172-175, (1909)

[Swanson-1953]: H. E. Swanson, R. K. Fuyat, « Standard X-ray diffraction patterns, sodium chloride, NaCl (cubic) », *National Bureau of Standards*, Vol. 539, p 41-43, (1953)

[Thomsen-1984]: C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, H. J. Maris, J. Tauc, « Coherent Phonon Generation and detection by picosecond light pulses », *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 53, N. 10, p 989-992, (1984)

[Thomsen-1986]: C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, J. Tauc, « Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses », *Phys. Rev. B*, Vol. 34, N. 6, p 4129-4138, (1986)

[Tsai-1993]: W. Tsai, M. Delfino, J. A. Fair, D. Hodul, « Temperature dependence of the electrical resistivity of reactively sputtered TiN films », *J. Appl. Phys.*, Vol. 73, N. 9, p 4462-4467, (1993)

[White-1963]: R. M. White, « Generation of Elastic Waves by Transient Surface Heating », *J. Appl. Phys.*, Vol. 34, N. 12, p 3559-3567, (1963)

[Withers-2001]: P. J. Withers, H. K. D. H. Bhadeshia, « Residual stresses Part 1: measurement techniques », *Materials Science and Technology*, Vol. 17, p 355-365, (2001)

[Wortman-1965]: J. J. Wortman, R. A. Evans, « Young's Modulus, Shear Modulus, and Poisson's Ratio in Silicon and Germanium », *J. Appl. Phys.*, Vol. 36, N. 1, p 153-156, (1965)

[Wriedt-1987]: H. A. Wriedt, J. L. Murray, « The N-Ti (Nitrogen-Titanium) System », *Bulletin of Alloy Phase Diagrams*, Vol. 8, N. 4, p 378-388, (1987)

Chapitre V: Mesures des liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique

Dans les chapitres précédents, nous avons détaillé les caractéristiques des liaisons supraconductrices : les différentes propriétés physiques et théoriques définissant leur fonctionnement, leur mode de fabrication et les caractéristiques des couches composant les multicouches.

Dans ce chapitre, nous apporterons la démonstration du fonctionnement des liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique. Nous rappellerons la spécificité de la mesure et nous proposerons une introduction sommaire au fonctionnement d'un cryostat fonctionnant à des températures très en dessous du kelvin. Nous présenterons les mesures de conduction électrique d'un démonstrateur. Puis nous continuerons avec la mesure de la résistivité thermique que nous avons effectuée avec les deux démonstrateurs et nous comparerons les valeurs obtenues avec celles proposées précédemment par le modèle théorique défini dans le chapitre II.

1-Moyens de mesure des démonstrateurs à basse température.....	220
1-1 Principe de la mesure	220
1-2 Moyens de mesure en dessous du kelvin	223
2- Mesure électrique du démonstrateur	226
2-1 Résistivité du substrat W	226
2-2 Transitions supraconductrices dans le démonstrateur.....	227
3- Mesure de résistance thermique	229
3-1 Estimation théorique de la R_{th} des démonstrateurs	229
a) <i>Démonstrateur de première génération</i>	231
b) <i>Cas d'une interface In/W</i>	233
c) <i>Le démonstrateur de troisième génération</i>	234
3-2 Première mesure de R_{th} avec le démonstrateur de 1 ^{ère} génération	235
3-3 Résistance thermique à basse température d'un démonstrateur de 3 ^{ème} génération	236
Bibliographie du Chapitre V	240

1-Moyens de mesure des démonstrateurs à basse température

Nous cherchons à porter à la connaissance du lecteur, la complexité accrue des mesures à basse température. Encore aujourd'hui, les mesures en dessous de quelques centaines de milli-kelvins sont complexes à mettre en œuvre. Ces mesures sont réalisées essentiellement par des spécialistes maîtrisant le fonctionnement de leur cryostat. Les temps de descente en froid et de remontée à température ambiante sont longs, de l'ordre de quelques jours pour certains appareils et jusqu'à plus d'une semaine pour les plus volumineux.

Une partie de la structure du démonstrateur a été choisie pour satisfaire les besoins de la mesure à basse température. Particulièrement, le substrat et son traitement (dorure en face arrière) ont été choisis spécifiquement pour favoriser la mesure à basse température.

1-1 Principe de la mesure

La fabrication des démonstrateurs est détaillée plus avant dans le chapitre III. Les démonstrateurs ont une forme de « L » pour permettre un positionnement des différents éléments nécessaires à la mesure.

La mesure en résistivité électrique (figure 1-1) est faite à partir de quatre points de contact (deux pour l'arrivée de courant et deux pour la mesure de tension), cela évite la prise en compte des résistances de contact des fils lors de la mesure de la résistance électrique. Un contact de courant et un de tension sont positionnés sur le dessus de l'échantillon et les deux autres points sont brasés sur la seconde partie (inférieure) du démonstrateur. En appliquant un courant électrique entre le haut et le bas du démonstrateur, une différence de potentiel se forme entre les deux parties. La résistance mesurée est fonction de la résistance des deux liaisons et des substrats en tungstène (W).

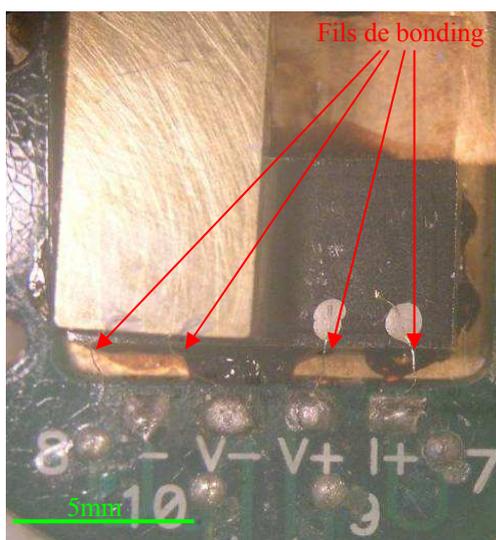


Figure 1-1 Image d'un démonstrateur monté pour la mesure électrique (de type 4 points). 2 fils de reprise de contact sont connectés à la partie supérieure du démonstrateur et deux autres à la partie inférieure.

Le gradient de température généré par le chauffage est délibérément choisi pour être faible. Comme la résistance thermique apportée par les liaisons supraconductrices est grande à basse température, tout état thermiquement dynamique met un temps conséquent pour se stabiliser. Les mesures sont réalisées avec des gradients de quelques pourcents (2 – 10%) pour minimiser les erreurs lors de la linéarisation. Une large gamme de températures est sondée avec des pas de mesures resserrés.

Les appareils de mesure sont reliés aux sondes de température (1 et 2 sur la figure 1-2), connectées au démonstrateur, par des fils supraconducteurs en NbTi. Ces fils, d'une longueur supérieure à 22 cm, avec un diamètre inférieur ou égale à 200 μm , ont pour propriété d'être de très mauvais conducteurs thermiques ; ce qui est avantageux pour ne pas réchauffer le démonstrateur par de la puissance dissipée dans les fils de mesure. Ils sont thermalisés sur l'étage du doigt froid du cryostat.

La face arrière du démonstrateur est fixée (par collage avec du vernis « General Electric ») sur le doigt froid du cryostat (en cuivre). Ce collage est réalisé de manière à minimiser la résistance thermique entre le doigt froid du cryostat et la face arrière du démonstrateur ; cette faible résistance thermique permet d'atteindre des températures de mesure très basses (< 100 mK). Plus cette résistance thermique de contact sera petite, plus la température du bas du démonstrateur (T_2 sur la figure 1-2) sera proche de la température du cryostat (T_{cryo}).

Le flux thermique n'a pas d'autre choix que de traverser les deux liaisons supraconductrices d'une surface de 16 mm^2 . Ce flux est contrôlé par l'injection d'un courant dans la résistance électrique de 10 $\text{k}\Omega$ (notée 3 sur la figure 1-2). Cette résistance NiCr a été choisie car sa valeur ne présente qu'une variation minimale (négligeable) avec la température. L'amenée de courant se fait également par deux fils supraconducteurs comme pour les deux sondes de température.

Si $T_1 \sim T_2 \rightarrow R_{th} = \frac{T_1 - T_2}{\dot{Q}}$ (Eq 1.1)

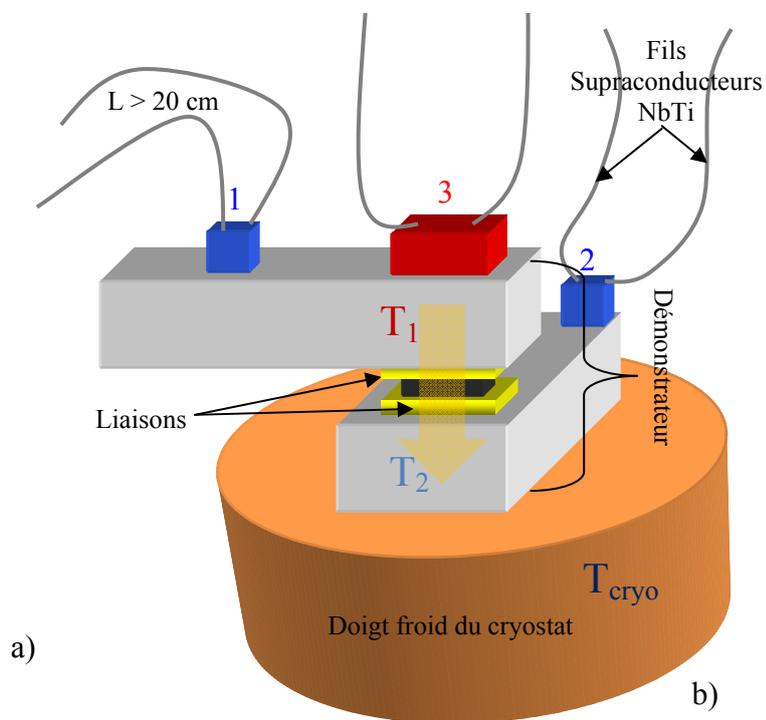
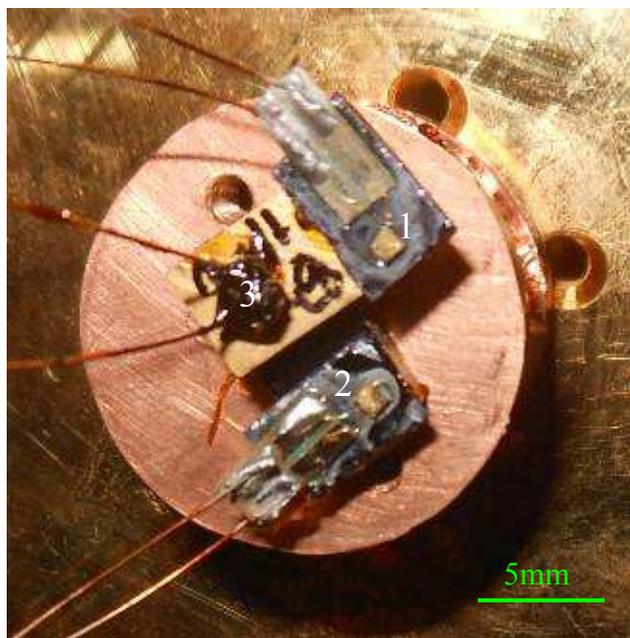


Figure 1-2 Image d'un démonstrateur (3^{ème} génération) avec les éléments pour la mesure (a) et le schéma en 3D du démonstrateur avec ces mêmes éléments (b). La sonde de température supérieure (1) est réalisée avec un thermomètre (de type NTD Ge), tout comme le thermomètre inférieur (2). La résistance de chauffage (3) est réalisée à partir d'une résistance NiCr (invariante en fonction de la température) d'une valeur de 10 kΩ.

1-2 Moyens de mesure en dessous du kelvin

Le domaine de la cryogénie regroupe les applications qui fonctionnent à des températures inférieures à 120 K. Classiquement, les machines frigorifiques utilisent de l'azote liquide (77 K) comme source de refroidissement. Cette cryogénie « chaude » est depuis longtemps utilisée dans les laboratoires et les industries. La cryogénie « froide » qui propose des températures de travail autour de celle de la liquéfaction de l'hélium (4,2 K) s'est vulgarisée au cours des dernières décennies. Aujourd'hui, malgré l'existence de moyens pour atteindre des températures en dessous du kelvin, les machines qui permettent d'atteindre ces températures, ainsi que leur fonctionnement, restent faiblement utilisées en dehors des laboratoires de recherche.

Pour atteindre des températures de fonctionnement de 300 mK, plusieurs techniques sont disponibles telles que la désaimantation adiabatique ou les systèmes de pompage d'hélium 3 (^3He). Mais, si on veut atteindre des températures de fonctionnement inférieures à 100 mK, l'évaporation ^3He n'est plus utilisable. Le système à dilution d'hélium 3 dans l'hélium 4 ($^3\text{He} - ^4\text{He}$) est une de ces techniques ; c'est celle que nous avons utilisée pour nos mesures à basse température. Nous allons la détailler dans cette partie. Elle permet d'atteindre des températures en dessous de 10 mK, et très difficilement en dessous du milli-kelvin.

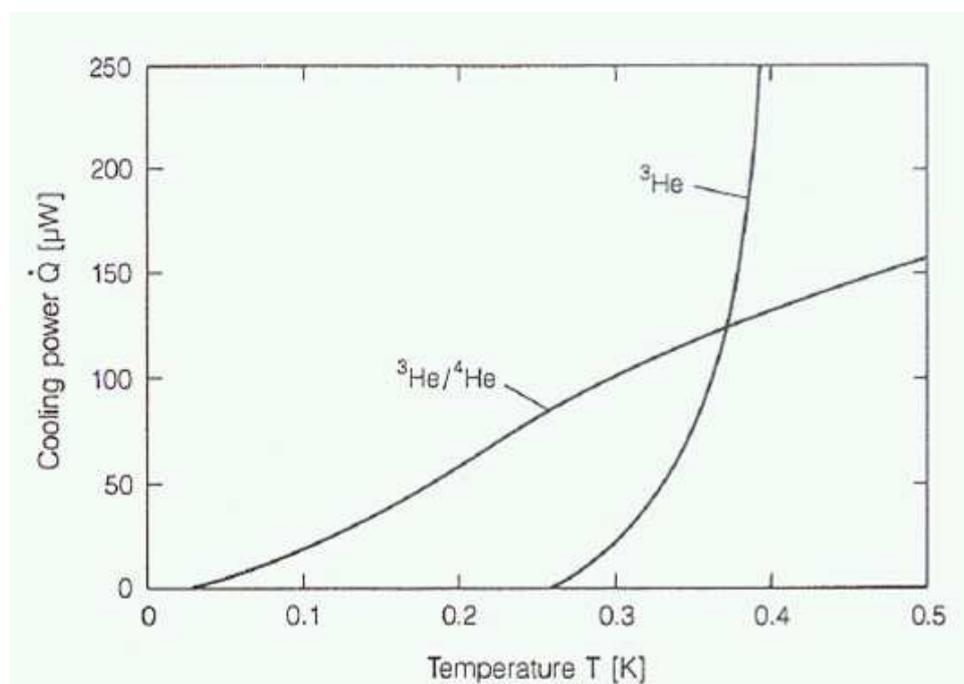


Figure 1-3 Schématisation de la puissance de réfrigération pour deux systèmes frigorifiques : le système à évaporation d' ^3He et le système à dilution d' ^3He dans l' ^4He [Pobell-1996]

D'autres techniques permettent d'atteindre des températures inférieures à quelques centaines de μK , mais ces techniques ne permettent pas un fonctionnement stable à ces températures : ce sont des excursions aux températures extrêmes. Ces techniques sont généralement utilisées pour des études de physique fondamentale aux très basses températures.

Systeme à dilution d'hélium biphasée

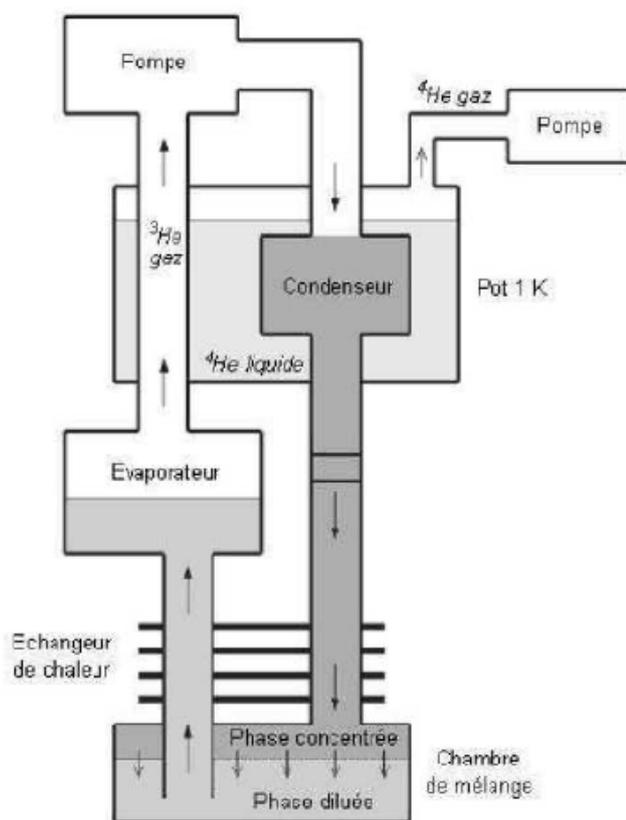


Figure 1-4 Schéma fonctionnel d'un système à dilution ^3He - ^4He [Desrat-2002]

Le système à dilution ^3He - ^4He consiste à refroidir la chambre de mélange (voir figure ci-dessus) en forçant l' ^3He de la phase concentrée à se diluer dans le mélange ^3He - ^4He (phase diluée superfluide). L' ^3He n'est que faiblement miscible dans l' ^4He ($\sim 6,4\%$ à température nulle). En pompant sur la phase diluée (en ^3He) dans l'évaporateur, on extrait préférentiellement l' ^3He (grâce à sa pression de vapeur saturante supérieure). Pour rééquilibrer la phase dans la chambre de mélange, de l' ^3He se dilue de la phase concentrée dans la phase diluée. Durant cette dilution (que l'on peut comprendre, en première approximation, comme une détente de ^3He pur dans la phase diluée) les atomes d' ^3He absorbent de l'énergie du système, produisant le refroidissement.

Le système à dilution $^3\text{He} - ^4\text{He}$ est particulièrement intéressant puisque la pression de pompage n'est pas limitante pour la température de fonctionnement du système, par contre elle conditionne la puissance disponible aux très faibles températures. Néanmoins, même si le système n'est pas limité par la pression de pompage (à l'inverse des systèmes à évaporation d' ^3He), la puissance frigorifique est proportionnelle à l'enthalpie du changement d'état, et c'est (en partie) son évolution en T^2 qui limite la puissance frigorifique aux très basses températures (voir figure 1-3).

L' ^3He pompé dans l'évaporateur (voir figure ci-dessus) est recondensé par un système de refroidissement annexe. Les deux cryostats, dont nous nous sommes servis pour réaliser nos mesures de résistance thermique, utilisent deux systèmes différents de liquéfaction de l' ^3He (liquide à 3,2 K à pression ambiante). Le cryostat à dilution du SPSMS du CEA à Grenoble utilise un système de pompage sur un bain annexe d' ^4He ; On atteint une température proche de 1 K avec ce système. Le cryostat du SAP au CEA à Saclay est doté d'un tube à gaz pulsé pour liquéfier l' ^3He ; ce tube permet un refroidissement à 3,5 K.

Avant son retour dans la phase concentrée, à l'intérieur de la chambre de mélange, l' ^3He est refroidi par des échangeurs thermiques à contre flux. C'est l'un des points limitant la puissance frigorifique. Comme nous l'avons vu au chapitre II, à basse température (< 1 K), les résistances thermiques de contact (ou d'interfaces) prédominent. Dans le cas des échangeurs thermiques, la résistance de Kapitza est limitante pour le système.

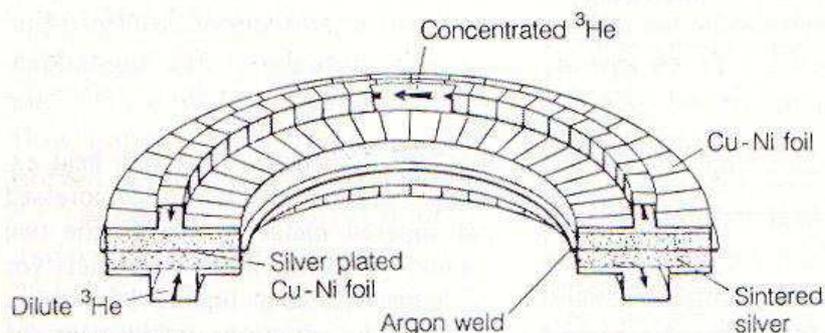


Figure 1-5 Principe d'un échangeur thermique utilisé dans les systèmes à dilution $^3\text{He} - ^4\text{He}$. De l'argent poreux est utilisé pour diminuer la résistance thermique [Frossati-1978].

Le refroidissement de l' ^3He liquide, se dirigeant vers la chambre de mélange, par échange de calories avec le mélange d' $^3\text{He} - ^4\text{He}$ (à réchauffer) remontant vers l'évaporateur, est réalisé par des échangeurs thermiques adaptés pour contrecarrer l'effet de la résistance de Kapitza. L'hélium circule dans des conduits en contact direct avec un matériau (le plus souvent de l'argent) très poreux (voir figure ci-dessus). L'augmentation drastique de la surface de contact entre l'hélium et le matériau poreux est la solution utilisée pour diminuer la résistance thermique importante due à l'effet Kapitza.

Dans le cas des échangeurs thermiques, on diminue la résistance d'interface, alors que dans le cas des liaisons supraconductrices, on augmente l'isolation thermique pour les interconnexions.

2- Mesure électrique du démonstrateur

La mesure de résistance électrique est importante, puisqu'elle permet la vérification de la fonctionnalité du démonstrateur. Par cette mesure, nous avons écarté certains démonstrateurs avec des défauts de fabrication (oxyde de titane isolant dans la multicouche) dus à une malfaçon dans le procédé technologique.

Il y a trois sources principales d'apport de résistance électrique dans un démonstrateur (valide). Le substrat en tungstène (W) apporte une part importante dans la résistance électrique. Les deux autres sources sont la résistance des plots d'indium et la résistance due aux multicouches. A basse température, ces deux dernières sources de résistance électrique vont s'annuler lorsque les matériaux transiteront à l'état supraconducteur.

2-1 Résistivité du substrat W

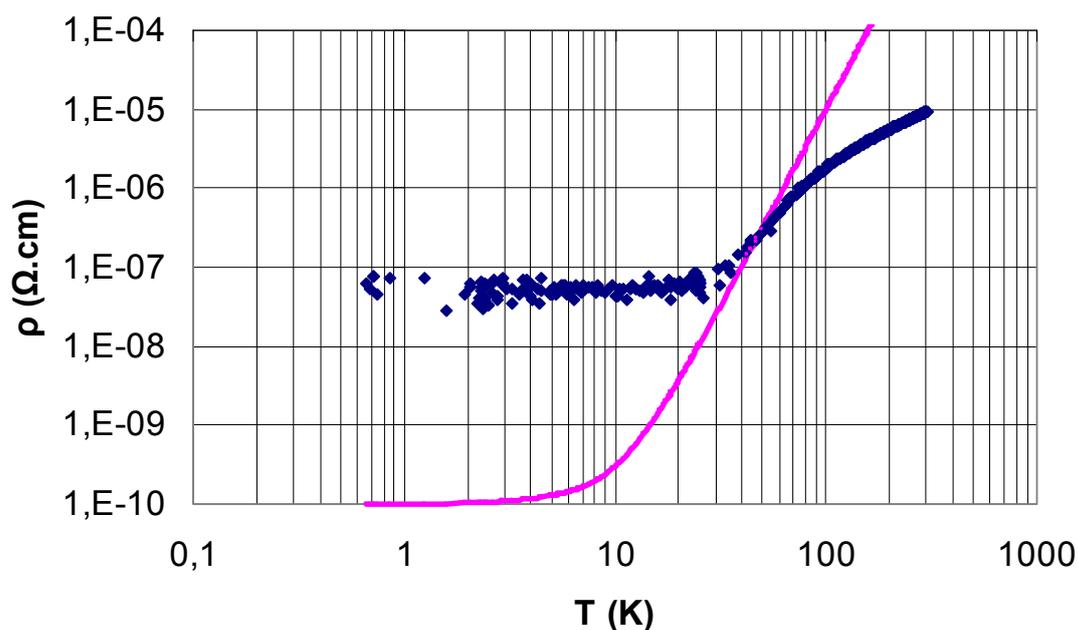


Figure 2-1 Mesure de résistivité électrique d'une fine poutre de W ($l / S = 240 \text{ cm}^{-1}$). La ligne (rose) continue représente la valeur estimée à partir de [Wagner-1971].

Avec Mathieu Taupin (Doctorant au CEA/INAC/SPSMS), nous avons réalisé une mesure électrique d'une poutre de W découpée à partir du même substrat que celui du démonstrateur. Le facteur géométrique de la poutre (longueur / section) était de 240 cm^{-1} (voir figure 2-1).

On remarque que de 30 à 300 K, les valeurs suivent une pente en T^n avec $2 < n < 3$. En dessous de 30 K, la résistance mesurée était inférieure à la résolution des instruments de mesure ($< 20 \mu\Omega$).

[Wagner-1971] a réalisé des mesures de résistivité électrique sur du tungstène. Il introduit également l'importance des différents termes dans la relation théorique de la résistivité électrique. Cette relation (Eq 2.1) semble convenir pour décrire le comportement de la résistivité électrique à basse température (ici < à 50 K).

$$\rho(T) = \rho_0 + AT^2 + BT^5 \quad (\text{Eq 2.1})$$

Dans la figure 2-1, nous avons tracé la courbe continue à partir de l'équation 2.1 et des paramètres proches de ceux déterminés par [Wagner-1971] pour le W : $\rho_0 = 10^{-10} \Omega \cdot \text{cm}$; $A = 10^{-12} \Omega \cdot \text{cm}/\text{K}^2$; et $B = 10^{-15} \Omega \cdot \text{cm}/\text{K}^5$.

Les trois termes de l'équation (ci-dessus) prennent toute leur importance en fonction de la plage de température. En dessous de 1 K, la résistivité électrique n'est (presque) plus dépendante de la température, mais uniquement proportionnelle au terme résiduel de la résistivité thermique ρ_0 . Le domaine de validité de notre mesure électrique du W est de 30 à 50 K. On ne peut pas obtenir la valeur expérimentale de ρ_0 par les résultats de cette mesure.

2-2 Transitions supraconductrices dans le démonstrateur

Nous avons réalisé une mesure de la résistance électrique du démonstrateur. Les mesures en cryostat ont été laborieuses dans ce travail de thèse. Ces actions demandent des temps de préparation et de descente en froid importants. Pour cette mesure, il nous fallait améliorer la résolution de la mesure, puisque les 20 $\mu\Omega$ de résolution des appareils de mesure ne permettaient pas de mesurer les transitions supraconductrices dans les liaisons. Pour cette nouvelle mesure, nous avons pu améliorer la résolution jusqu'à 0,2 $\mu\Omega$, par l'utilisation d'un système à détection par verrouillage de phase (« lock-in »).

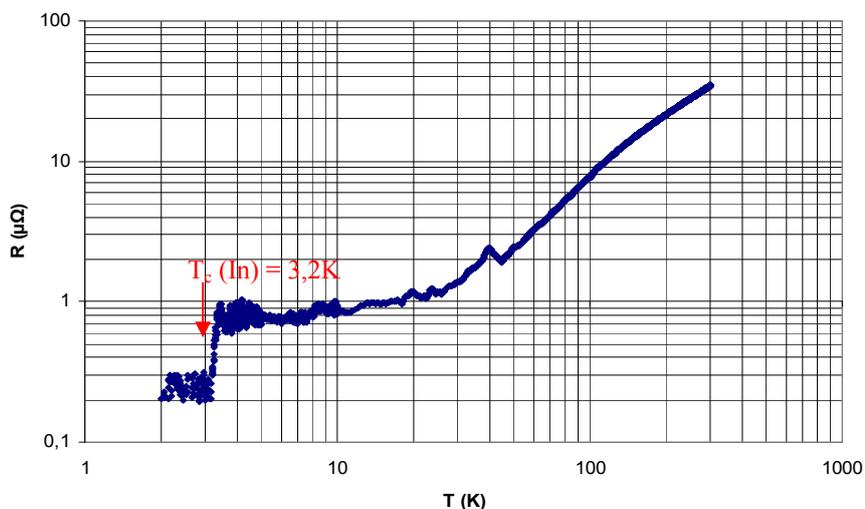


Figure 2-2 Mesure de la résistance électrique d'un démonstrateur (1^{ère} génération) avec des court-circuits thermiques d'In. On remarque la transition supraconductrice de l'In qui survient à 3,2 K.

Sur la figure 2-2, nous remarquons la transition de l'In à 3,2 K. Cette valeur de T_c est proche de la valeur classiquement attendue (3,4 K) pour l'In [Lindenfeld-1965]. Nous précisons ici que le démonstrateur de première génération présentait des court-circuits d'In entre les deux substrats de W ; c'est pour cette raison, que nous n'observons pas clairement les transitions supraconductrices, ni pour le TiN (attendue autour de 4,5 K), ni pour le Nb (attendue à 9,1 K).

Nous pouvons estimer la valeur de la résistance due à l'In avant la transition supraconductrice. [Lindenfeld-1965] propose également une valeur de la résiduelle de résistivité $\rho_0 \sim 1 \mu\Omega\cdot\text{cm}$. Nous verrons dans la suite de ce chapitre que la section d'indium (ponts thermiques) en contact est de $2,33 \text{ mm}^2$. La résistance attendue est $0,13 \mu\Omega$ (pour une épaisseur estimée, par la mesure MEB, à $\sim 30 \mu\text{m}$). Nous mesurons une valeur proche de $0,7 \mu\Omega$ (figure 2-2). L'écart entre ces deux valeurs peut s'expliquer par la différence de pureté et de qualité cristalline de ce matériau. En effet, dans notre cas, l'In a pu être mélangé avec des résidus de flux, il est donc d'une pureté médiocre.

La valeur résiduelle de la résistance pour des températures en dessous de 3 K est limitée par la résolution de la mesure. Nous ne pouvons pas en déduire la valeur de la résistance électrique due au tungstène. Nous savons qu'elle est en dessous de $200 \text{ n}\Omega$ (figure 2-2).

Nous avons réalisé une mesure électrique avec le démonstrateur de troisième génération (valide), mais malheureusement, cette mesure n'a pas donné de résultats exploitables. A ce jour, nous n'avons pas eu l'occasion de réitérer la mesure électrique sur ce démonstrateur.

3- Mesure de résistance thermique

Nous avons fait deux mesures de résistance thermique, à des températures en dessous de un kelvin. Le premier démonstrateur mesuré comportait deux liaisons composées chacune de 48 couches de TiN et autant de couches de Nb. Le second démonstrateur était composé de 2 liaisons de 16 bicouches chacune.

La mesure du premier démonstrateur a été réalisée avec Mathieu Taupin. Plusieurs avaries sont survenues sur le montage dans le cryostat tout au long de cette mesure. Ce fut un travail de longue haleine et de persévérance pour obtenir des valeurs exploitables. Ce démonstrateur faisait partie de la première génération que j'ai fabriquée. La première génération de démonstrateurs présentait sur la plupart des réalisations de nombreux court-circuits thermiques (entre les deux substrats de W) d'indium ; de la matière (In) est apparente en bordure de démonstrateur (voir chapitre III). La seconde génération comportait une couche de titane, qui s'était oxydée, dans l'empilement de la liaison. La dernière génération (3^{ème}) a apporté, par le biais des optimisations de procédé d'hybridation et de fabrication des liaisons (voir chapitre III), des démonstrateurs valides et fonctionnels.

Le démonstrateur de première génération ne semblait pas présenter de ponts thermiques d'indium entre les deux substrats, à l'inverse des autres démonstrateurs de la même génération. Par la suite (après la mesure), lorsqu'il fut dissocié, il s'est avéré qu'il comportait tout de même des ponts d'In localisés en bordure de la liaison.

Nos moyens de sondage pour vérifier la localisation de l'In n'étant pas performant, nous sommes passés à côté de cette malfaçon. Ce démonstrateur (en court-circuit thermique) a été mesuré en ignorance de cause. Aux vues du nombre restreint des mesures que nous avons pu réaliser, nous présentons tout de même ce résultat.

Le démonstrateur que nous avons mesuré avec Jean-Luc Sauvageot au service d'astrophysique au CEA à Saclay, était issu de la troisième génération. Cette mesure a demandé autant d'efforts et nous avons dû résoudre d'autres difficultés liées à la différence des méthodes employées entre la première et la seconde mesure.

3-1 Estimation théorique de la Rth des démonstrateurs

Dans cette partie, nous allons introduire les estimations numériques des résistances thermiques qui nous seront nécessaires pour discuter des résultats obtenus par les mesures des deux démonstrateurs. Nous allons essentiellement nous appuyer sur le formalisme déterminé dans le chapitre II (AMM et DMM) et les valeurs de vitesse du son et de densités mesurées dans le chapitre IV pour calculer une estimation théorique à comparer aux valeurs que nous avons obtenues avec les mesures de conductivité thermique pour les deux démonstrateurs (1^{ère} et 3^{ème} générations).

La première des hypothèses que nous faisons, dans l'estimation de la résistance thermique, est que la valeur est uniquement due à l'apport des interfaces et que la résistance thermique dans les matériaux est négligeable. Fixons un ordre de grandeur. En repartant de la mesure de la résistance électrique réalisée sur le démonstrateur, $R_{elec} < 200 \text{ n}\Omega$ à 2 K, et en prenant l'hypothèse (crédible) que la valeur de la résistance électrique, en dessous de 2 K, soit uniquement liée à la valeur de celle du substrat de W, il est possible de donner une première approximation de la résistance thermique du substrat à 2 K en utilisant la loi de Wiedemann-Franz (voir chapitre II). La longueur de parcours du flux thermique ne sera pas identique à la longueur de parcours lors de la mesure électrique, nous nous affranchissons de ce paramètre à faible impact, car nous cherchons une estimation qualitative.

$$R_{th} \approx \frac{R_{elec}}{L \cdot T} \quad (\text{Eq 3.1})$$

L est le nombre de Lorentz défini au chapitre II, ($L = 2,45 \cdot 10^{-8} \text{ W}\cdot\Omega/\text{K}^2$). Dans notre cas, la résistance thermique due aux substrats W est estimée à $R_{th} < 4 \text{ K/W}$ (à 2 K). Cette valeur devrait évoluer en T^{-1} en dessous de quelques kelvins, alors que la résistance thermique due aux interfaces devrait évoluer en T^{-3} . Pour 1 K, la valeur de la résistance thermique due aux substrats de W est inférieure à la valeur de la résistance thermique pour une seule interface dans la liaison. Le rapport entre ces deux sources de résistance thermique divergera rapidement lorsque la température va décroître en dessous de 1 K. Les autres matériaux susceptibles d'apporter une conduction thermique par le transport des électrons seront tous à l'état supraconducteur en dessous de 1 K. De plus, leur épaisseur est négligeable dans notre application ($< 2 \text{ }\mu\text{m}$ pour le Nb et le TiN et $< 20 \text{ }\mu\text{m}$ pour l'In) devant la longueur que parcourt le flux thermique dans les substrats en tungstène.

La surface en contact entre les deux multicouches et leur substrat est $\sim 16 \text{ mm}^2$. Les deux liaisons sont connectées par 16 plots d'In de surface $0,09 \text{ mm}^2$ ($300 \text{ }\mu\text{m} \times 300 \text{ }\mu\text{m}$), soit une surface d'In totale de $\sim 1,44 \text{ mm}^2$, déposée sur la couche de finition ($300 \text{ }\mu\text{m}$) d'or.

[Powell-1954] propose une série de valeurs de la conductivité thermique du Nb (ex : $1,2 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ à 2 K). A basse température en dessous de la température de transition, elle évolue en T^n avec $n \sim 1,5$. A partir de cette référence, il est possible de déduire la résistance thermique d'un bout à l'autre de la couche (4 mm de côté pour un carré de surface de 16 mm^2) de Nb de 60 nm d'épaisseur ; par exemple à 1 K, la résistance thermique dans la longueur de la couche de Nb (sur une surface de 16 mm^2) est $R_{couche} \sim 4 \cdot 10^7 \text{ K/W}$ à 1 K et $R_{couche} \sim 1,2 \cdot 10^9 \text{ K/W}$ à 100 mK (en extrapolant les valeur de la référence), ces valeurs sont très largement supérieures à celles des interfaces ($\sim 40 \text{ K/W}$ pour une couche à 1 K ; et $\sim 4 \cdot 10^4 \text{ K/W}$ pour une couche à 100 mK). Dans ces conditions, les couches minces de la multicouche ne seront pas obligatoirement isothermes.

Par contre la couche d'or épaisse entre les plots d'In et la dernière couche (Nb) de la multicouche va permettre un étalement du flux thermique sur toute la surface de la multicouche à basse température. [Touloukian-1970] propose une valeur de conductivité thermique (15 W/mK à 0,1 K) pour l'or (Au) qui évolue en T^1 ; on peut l'extrapoler entre 100 mK et 1 K.

A 100mK, la valeur de la résistance thermique dans la couche d'or (d'épaisseur 300 nm) est du même ordre ($R_{th} \sim 2 \cdot 10^5$ K/W) que la résistance thermique d'une interface (soit moins d'un ordre de grandeur). Comme le démonstrateur est composé d'un grand nombre d'interfaces par multicouche, le flux de chaleur se répartira rapidement sur toute la surface de la liaison. Nous prenons l'hypothèse que la surface effective (pour le transfert thermique) sera la surface de la multicouche (16 mm²) à très basse température (< 300 mK); pour des températures supérieures, notre dispositif risque de converger vers une surface effective équivalente à celle des plots d'In (1,44 mm²).

Par contre, le flux thermique traversant l'épaisseur de la couche mince de Nb (60nm) rencontre une résistance de la couche négligeable devant la résistance d'interface ($R_{\text{épaisseur}} \sim 0,27$ K/W à 100mK)¹.

a) Démonstrateur de première génération

Pour estimer la résistance thermique du démonstrateur, nous prenons l'approximation d'une succession d'interfaces de couches avec **une surface effective de 16 mm²**. Nous négligeons les interfaces entre le substrat et la première couche (Nb) et entre la dernière couche de la liaison (Nb) et la couche d'or et les plots en indium. Ce démonstrateur de première génération était constitué de deux liaisons comportant chacune 48 couples de TiN et Nb, soit **190 interfaces**.

Dans le chapitre II, nous avons calculé une valeur de résistivité thermique pour le couple TiN et Nb, à partir des modèles AMM et DMM et des valeurs mesurées des caractéristiques des matériaux déposés sur substrat tungstène. Le modèle AMM prédit une résistivité thermique $R_{Bd \text{ AMM}} = 6,5 \text{ K}^4 \text{ cm}^2 / \text{W}$; alors que la valeur obtenue avec le modèle DMM est $R_{Bd \text{ DMM}} = 8 \text{ K}^4 \text{ cm}^2 / \text{W}$.

Les valeurs attendues pour la mesure de la résistance thermique de ce démonstrateur pour des températures inférieures au kelvin sont :

- $R_{th} = 7,7 \cdot 10^3 \cdot T^{-3}$ (K/W) avec la résistivité thermique surfacique de l'AMM
- $R_{th} = 9,5 \cdot 10^3 \cdot T^{-3}$ (K/W) avec la résistivité thermique surfacique du DMM

¹ On ne traite pas ici le cas de la couche de TiN car le résultat serait proche de celui du Nb.

La mesure que nous avons effectuée avec ce démonstrateur était loin d'atteindre de telles valeurs. Comme nous l'avons expliqué précédemment, nous nous sommes aperçus de la présence de ponts d'In court-circuitant le parcours thermique dans les liaisons en reliant directement les deux substrats en W par 4 blocs d'Indium.

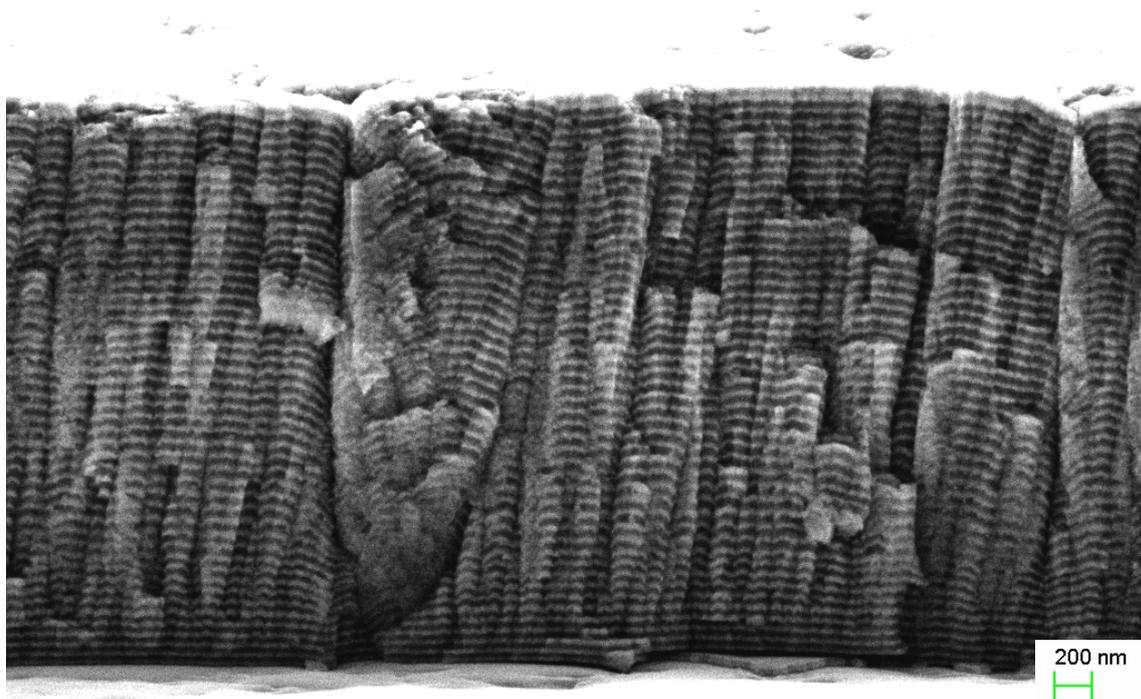


Figure 3-1 Image MEB d'une des liaisons du démonstrateur de première génération (48 bicouches sur substrat W – épaisseur de couche : ~ 30 nm). Les couches claires sont en TiN et les couches sombres sont en Nb

b) Cas d'une interface In/W

Nous venons de le voir, le premier démonstrateur ne permet pas l'observation de la conduction thermique dans les liaisons supraconductrices.

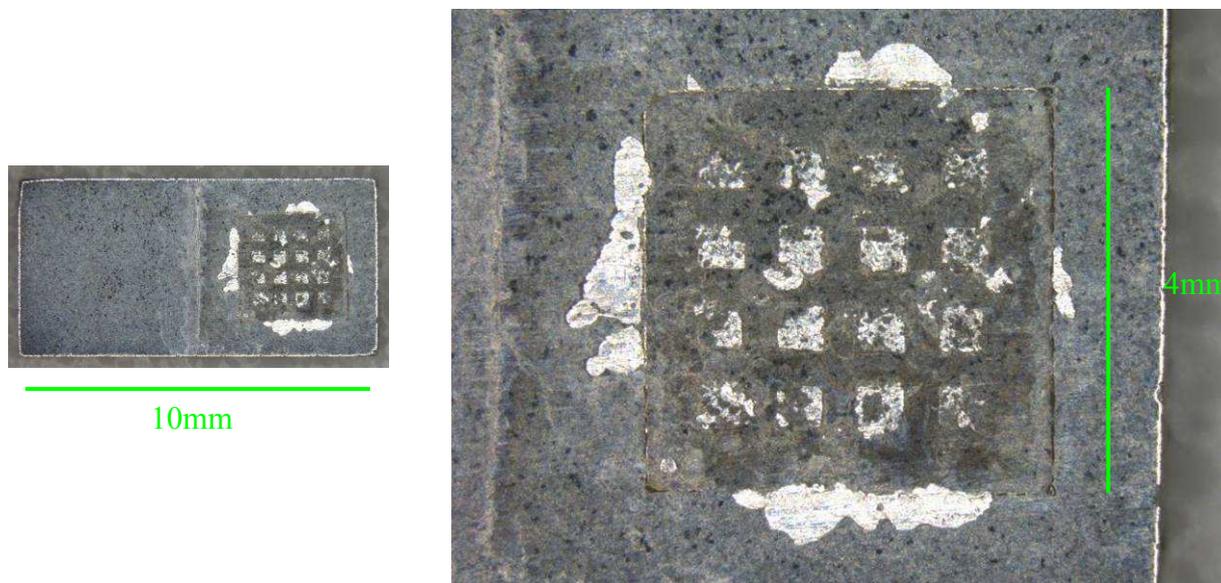


Figure 3-2 Photographie d'un des substrats du démonstrateur de première génération mesuré et présentant 4 ponts d'In (un sur chaque côté) en bordure de la multicouche

Nous proposons de fournir une estimation de la résistance thermique de ces ponts d'In que nous comparerons à la mesure effectuée et présentée plus loin dans ce chapitre. Nous prenons des hypothèses identiques à celles définies précédemment et nous ajouterons que la multicouche est parfaitement inopérante dans ce cas de figure.

Nous avons calculé (avec un logiciel adapté) la surface en contact d'indium, $S_{In} = 2,33 \text{ mm}^2$. Nous pouvons estimer la résistance thermique pour les deux interfaces (In / W et W / In) à partir des deux modèles théoriques. ($R_{Bd AMM} = 6,5 \text{ K}^4\text{cm}^2/\text{W}$; $R_{Bd DMM} = 4 \text{ K}^4\text{cm}^2/\text{W}$)

- $R_{th} = 558 \cdot T^{-3} \text{ (K/W)}$ avec l'AMM pour deux interfaces In / W
- $R_{th} = 343 \cdot T^{-3} \text{ (K/W)}$ avec le DMM pour deux interfaces In / W

Ces valeurs sont bien plus faibles que ce que l'on pourrait attendre dans le cas d'un démonstrateur avec des liaisons (valides) composées de 95 interfaces chacune. Nous verrons que ce résultat est très proche de la mesure que nous avons faite avec le démonstrateur de première génération.

c) Le démonstrateur de troisième génération

Pour l'estimation de la résistance thermique du démonstrateur de troisième génération qui est valide, le cas est très similaire à ce qui est évoqué en a) à la différence du nombre d'interfaces (62 interfaces).

- $R_{th} = 2,5 \cdot 10^3 \cdot T^{-3}$ (K/W) avec l'AMM pour 62 interfaces Nb / TiN
- $R_{th} = 3,1 \cdot 10^3 \cdot T^{-3}$ (K/W) avec le DMM pour 62 interfaces Nb / TiN

Néanmoins lors de la fabrication de ces multicouches sur substrat W, un léger disfonctionnement est apparu aux observations MEB de la multicouche (voir figure 3-3). La différence d'épaisseur des couches de TiN peut être due, soit à un problème de comptage (de temps) de la machine - ce que j'ai déjà observé auparavant -, soit à une évolution des paramètres lors de l'enchaînement du dépôt des couches de TiN. Nous avons vu dans le chapitre III que la vitesse de dépôt évoluait avec la concentration en azote dans la chambre. Dans le premier cas, cela n'aura pas d'impact sur la mesure de R_{th} , alors que dans le second cas, si la stœchiométrie était différente entre les différentes couches de TiN, il se pourrait que l'estimation de la R_{th} soit modifiée.

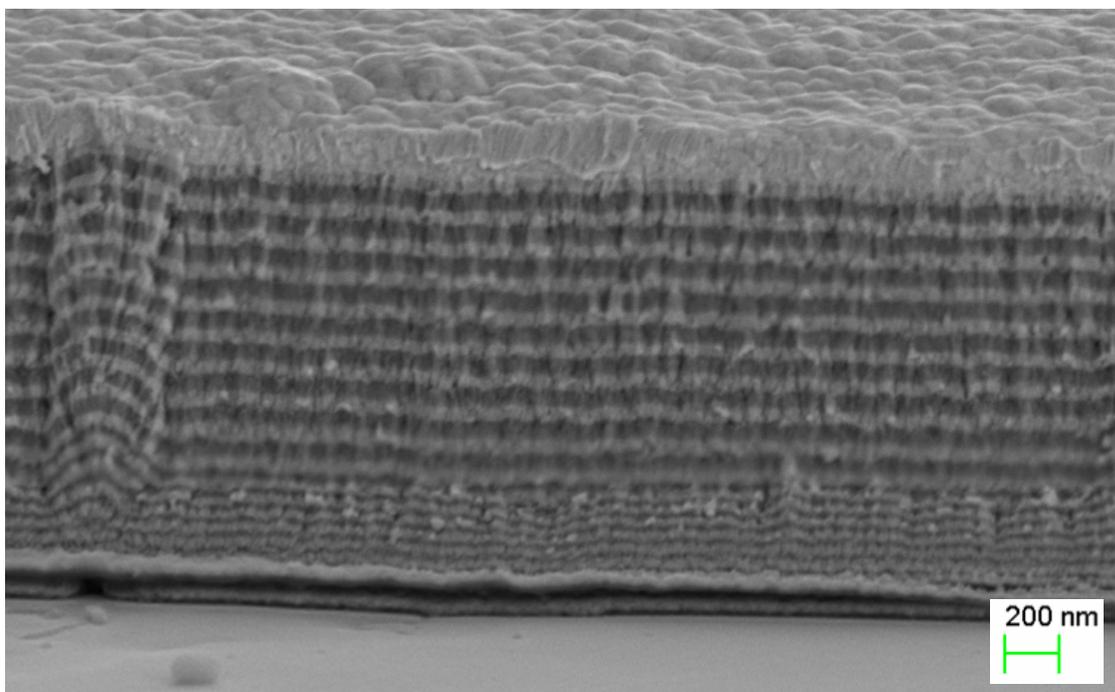


Figure 3-3 Image MEB d'une des liaisons du démonstrateur de troisième génération (16 bicouches sur substrat W – épaisseur de chaque couche : ~ 60 nm, sauf les 7 premières de TiN ~ 20 nm)

3-2 Première mesure de R_{th} avec le démonstrateur de 1^{ère} génération

Nous présentons le résultat de la mesure réalisée sur le démonstrateur de première génération présentant des court-circuits thermiques. La mesure a été réalisée avec Mathieu Taupin dans un cryostat à dilution $^3\text{He} - ^4\text{He}$. La mesure a été faite sur une gamme de température allant de 12 mK jusqu'à 2,5 K.

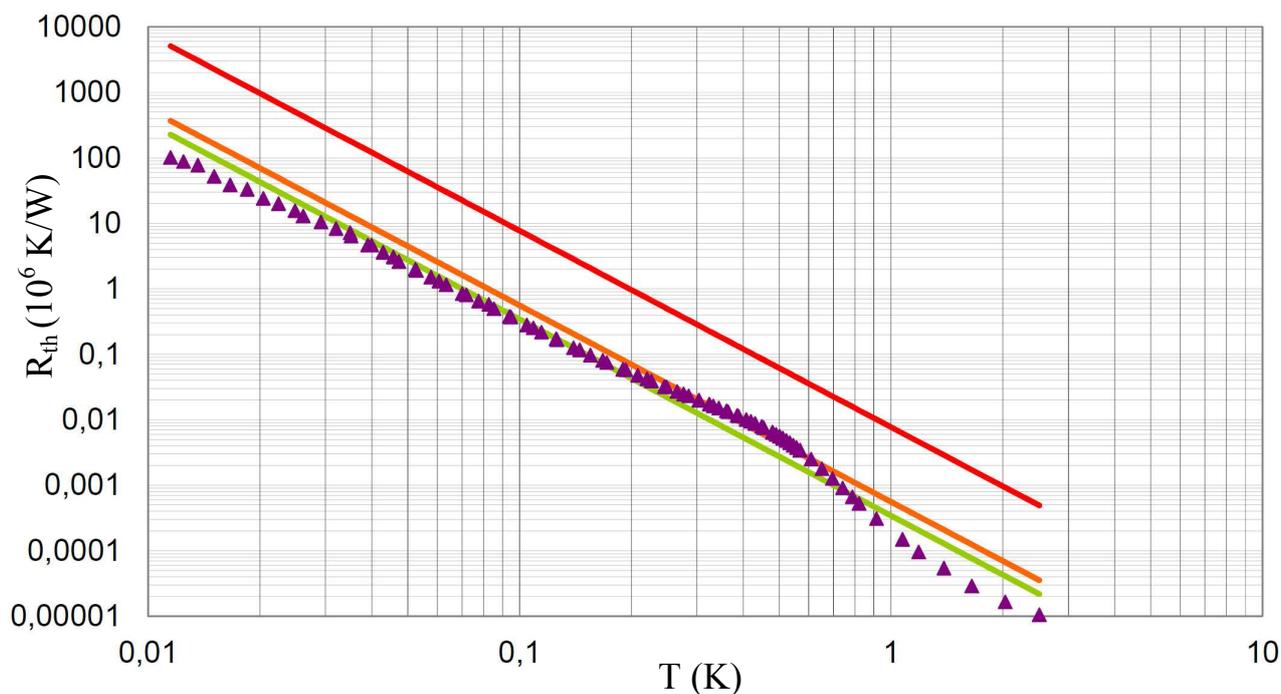


Figure 3-4 Mesure de résistance thermique du démonstrateur de première génération (triangles violets).

Nous avons représenté l'estimation que fournissent les modèles théoriques AMM (ligne orange) et DMM (ligne verte) développés dans le chapitre II pour deux interfaces In / W avec une surface de 2,33 mm². Nous avons également reporté la valeur de l'estimation AMM (ligne rouge) de ce qu'un démonstrateur valide (sans court-circuits thermiques) aurait pu donner pour une surface effective de 16 mm².

La mesure représentée en figure 3-4 montre que les modèles théoriques AMM et DMM fonctionnent pour estimer la résistance thermique des systèmes avec un faible nombre d'interfaces. Les valeurs obtenues sont cohérentes avec l'estimation que nous avons faite de la résistance thermique de deux interfaces In/W avec une surface de 2,33 mm². C'est en soi une excellente démonstration.

Avec la mesure sur le démonstrateur de troisième génération, nous allons étendre l'observation des effets des interfaces à des multicouches composées d'un nombre important d'interfaces.

3-3 R_{th} à basse température d'un démonstrateur de 3^{ème} génération

Différents dysfonctionnements du montage du démonstrateur en cryostat à dilution $^3\text{He} - ^4\text{He}$, représenté dans la figure 3-5, ont été résolus et la mesure a pu être réalisée avec Jean-Luc Sauvageot du Service d'Astrophysique (IRFU) au CEA à Saclay.

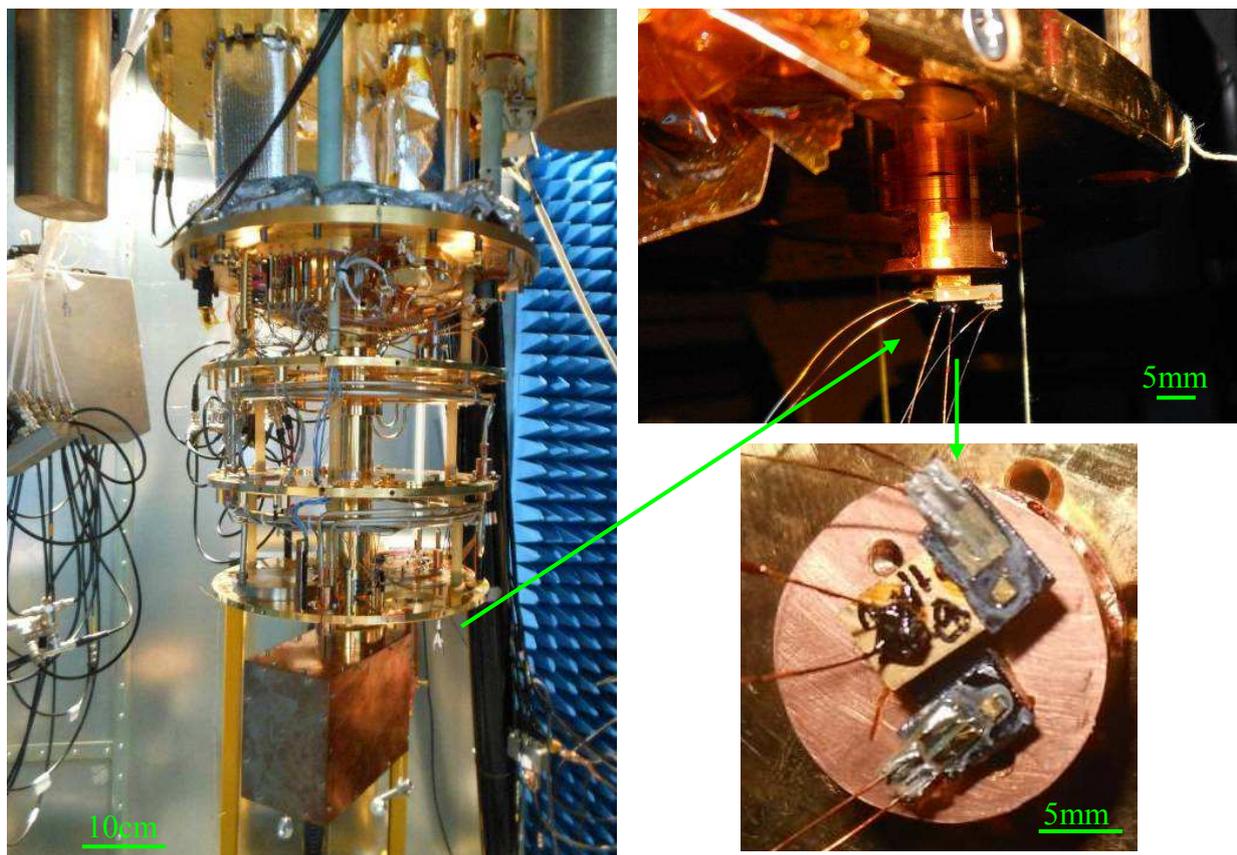


Figure 3-5 Image du cryostat (ouvert) de Saclay (image de gauche) avec les différents étages thermiques. Image du démonstrateur de 3^{ème} génération (image de droite) monté (la tête en bas) sur le dernier étage thermique du cryostat.

Une partie importante de la préparation de la mesure est la calibration des thermomètres. Cette mesure a été réalisée avec deux senseurs (Germanium NTD « Neutron – Transmutation - Doped » à base de germanium). Ces thermomètres ont une résistance électrique qui suit la loi d'Efros et Shklovskii (voir chapitre I).

Pour le moment, le démonstrateur a été mesuré sur une gamme de températures allant de 150 mK à 300 mK, avec des puissances d'excitation de quelques nW à 300 nW. La résistance thermique du démonstrateur est calculée à partir du gradient de température obtenu par la mesure des températures de part et d'autre de l'interconnexion (1 thermomètre sur chaque substrat de W). La valeur de ce gradient est divisée par la puissance injectée à travers le démonstrateur.

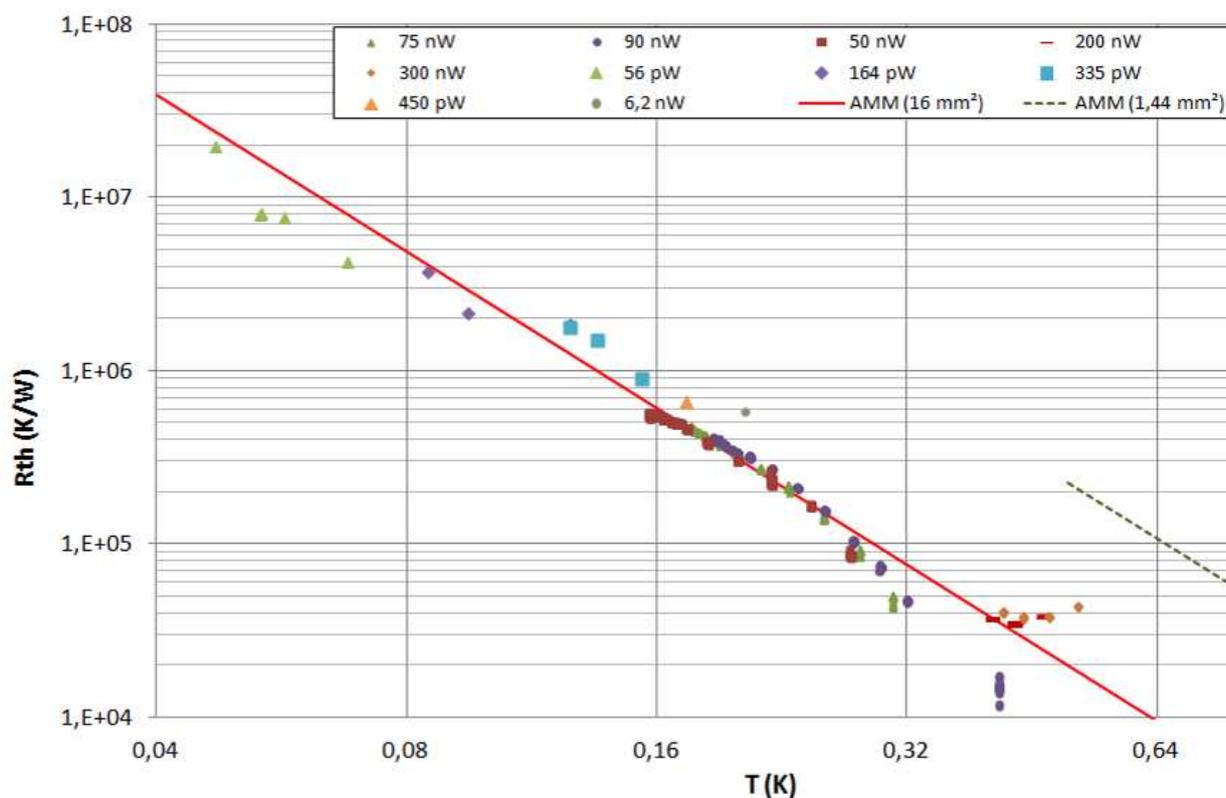


Figure 3-6 Mesure de la résistance thermique du démonstrateur de 3^{ème} génération composé de deux multicouches déposées sur substrats W. Les différentes mesures sont représentées en fonction des puissances d'excitation. La ligne rouge représente l'estimation du modèle AMM avec une surface de contact de 16 mm² pour 62 interfaces. La ligne pointillée (verte) à partir de 500 mK est l'estimation AMM pour une surface de 1,44 mm² pour un même nombre d'interfaces.

Les thermomètres que nous avons utilisés pour ces mesures ont une résistance qui varie fortement à basse température : $\sim 500 \Omega$ à 400 mK, jusqu'à $\sim 1,2 \text{ M}\Omega$ à 100 mK. Ils sont très sensibles dans la gamme de températures 100 mK – 300 mK. Au-dessus de 300 mK, la sensibilité des thermomètres est largement atténuée. De plus, les problèmes d'étalonnage commencent à être prédominants : pour une même puissance, le gradient thermique se réduit avec l'augmentation de la température car la résistance thermique diminue. Rappelons également que lorsque la température dépasse 500 mK, la résistance thermique dans la couche d'or devient beaucoup plus grande que la résistance thermique de l'interface ; cela aura pour conséquence, lorsque la température augmente, de rapprocher la surface effective de la multicouche de celle des 16 plots d'indium (soit 1,44 mm²) ; alors qu'en dessous de 500 mK, la surface effective de la multicouche sera celle en contact avec le substrat W (soit 16 mm²). Un effet éventuellement observable et qui pourrait influencer sur l'augmentation de la résistance thermique lors de la remontée en température et l'impact des défauts dans les multicouches. Normalement, on devrait s'attendre à observer cet effet pour des températures supérieures à quelques kelvins.

Tout ou une partie de ces phénomènes sont certainement à l'œuvre ici ; l'éloignement des points mesurés avec le modèle au-dessus de 300 mK en est l'illustration.

Un nouveau montage assurant une meilleure conduction entre l'échantillon et le porte-échantillon avec des thermomètres permettant de réaliser des mesures à plus basse température a permis d'explorer la gamme 50 mK – 150 mK.

Conclusion :

Nous concluons que les mesures révèlent un fonctionnement conforme à ce que nous attendions.

Dans cette gamme de températures, nos mesures réalisées avec deux cryostats différents ont été cohérentes avec le modèle AMM détaillé dans le chapitre II. L'hypothèse cruciale que nous avons posée, selon laquelle, l'empilement des interfaces était directement analogue à une sommation des résistances thermiques de toutes les interfaces, semble être acceptable. D'autres essais, avec un nombre d'interfaces différent seraient à réaliser pour confirmer de manière définitive cette hypothèse. Mais, autant pour deux interfaces que pour une soixantaine, le modèle AMM propose des valeurs proches de celles que nous mesurons en dessous du kelvin.

Même si ces résultats sont préliminaires, ils démontrent en l'état le fonctionnement global des liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique. C'est pour nous une réussite qui est source de motivation pour pousser plus avant les investigations.

Bibliographie du Chapitre V

[Desrat-2002]: W. Desrat, thèse de doctorat : « Résonance magnétique nucléaire détectée résistivement sur des hétérostructures GaAs/GaAlAs en régime Hall quantique », Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, (2002)

[Frossati-1978]: G. Frossati, « Obtaining Ultralow Temperatures by Dilution of ^3He into ^4He », Journal de Physique, Colloque C6, Tome 39, p 1578-1589, (1978)

[Goupy-2012]: J. Goupy, C. Pigot, J. C. Villégier, J. L. Sauvageot, Brevet : « Dispositif de connexion électrique multicouche de matériaux supraconducteurs entre deux circuits », N° 12 53890, (2012)

[Lindenfeld-1965]: P. Lindenfeld, H. Rohrer, « Ratio of the Lattice Thermal Conductivities of Normal and Superconducting Indium », Phys. Rev. A, Vol. 139, N. 1, p 206-211, (1965)

[Pobell-1996]: F. Pobell, « Matter and Methods at Low Temperatures », Second Edition, Springer, (1996)

[Powell-1954]: R. L. Powell, W. A. Blanpied, « Thermal Conductivity of Metals and Alloys at Low Temperatures, A Review of the Literature », National Bureau of Standards, Circular 556, (1954)

[Touloukian-1970]: Y. S. Touloukian, R. W. Powell, C. Y. Ho, P. G. Klemens, « Thermal Conductivity – Metallic Elements and Alloys », Thermophysical Properties of Matter, Vol. 1, (1970)

[Wagner-1971]: D. K. Wagner, J. C. Garland, R. Bowers, « Low-Temperature Electrical and Thermal Resistivities of Tungsten », Phys. Rev. B, Vol. 3, N. 10, p 3141-3149, (1971)

Synthèse de ce travail de thèse

Ce travail relate les différentes actions mises en œuvre et les résultats obtenus dans la recherche et le développement des points clés d'une technologie innovante qui devrait permettre une avancée importante pour les systèmes de détection refroidis à très basse température. Aujourd'hui, l'astronomie requiert des détecteurs avec un nombre croissant de pixels, avec la contrainte d'utiliser des réfrigérateurs de puissance frigorifique limitée. Aussi l'isolation thermique entre le plan matriciel du détecteur et son électronique de lecture, dont la dissipation est accrue, est en voie de devenir un verrou dans les plans de gestion thermique des détecteurs fonctionnant à très basse température ($T < 0,1$ K). La recherche a tout particulièrement porté sur l'étude et la réalisation d'une fonction d'interconnexion compacte qui allie une excellente isolation thermique et une conduction électrique quasi-parfaite dans la bande de fréquences requises ; elle s'appuie sur les résistances thermiques d'interfaces qui se comportent comme des « miroirs à phonons ». Ces miroirs à phonons sont réalisés par l'empilement successif de deux matériaux supraconducteurs avec des propriétés acoustiques différentes.

Cette brique technologique formée d'une multicouche que l'on introduit dans les interconnexions sera exploitable en astronomie du rayonnement X, dans les futurs détecteurs des télescopes embarqués. Cette innovation pourra également être intégrée sur d'autres applications. L'utilisation de matériaux dans l'état supraconducteur (à $T_c / 10$) limite aujourd'hui la température de fonctionnement de la liaison du côté du point chaud de l'interconnexion. Les nouveaux matériaux supraconducteurs à hautes températures de transition étendront probablement le champ d'application des liaisons.

A basse température, dans les métaux (ici non supraconducteurs), la loi de Wiedemann-Franz représente correctement la conduction thermique en montrant qu'elle est proportionnelle à la conduction électrique. L'utilisation de métaux, pour l'isolation thermique entre deux sources présentant un gradient de température, n'est donc pas envisageable car le transport de l'énergie par les électrons est très efficace à basse température. Les matériaux diélectriques échangent de la chaleur essentiellement par les vibrations de la matière (ou phonons) ; mais ces matériaux sont des isolants électriques, ils ne présentent pas d'intérêt pour l'application. La solution étudiée porte sur l'utilisation de matériaux à l'état supraconducteur ; à température suffisamment basse, leur résistance électrique est nulle et le transport thermique s'effectue uniquement par les phonons.

Pour encore diminuer le transport de la chaleur dans les liaisons supraconductrices on empile un grand nombre de miroirs à phonons dans l'interconnexion. Ces miroirs à phonons sont inspirés des résistances de Kapitza. Dans notre cas, on parle de résistance thermique d'interface puisque c'est la résistance thermique entre deux solides. Lorsqu'une onde thermique dans un milieu se propage jusqu'à une interface avec un second milieu, une partie de son énergie est réfractée et l'autre partie de son énergie est réfléchiée dans le milieu incident.

La quantité d'énergie transmise à travers l'interface est dépendante des propriétés acoustiques de chacun des deux matériaux, de la qualité de l'interface et de la température de travail. Deux modèles permettent d'estimer la résistivité thermique d'une interface en fonction des caractéristiques des matériaux. Le modèle AMM prend en compte les réflexions ou réfractations acoustiques à l'interface. Le second modèle DMM prend pour hypothèse que tous les phonons sont diffusés à l'interface. Pour une interface entre deux solides, l'écart de l'estimation calculé par chacun des deux modèles est généralement faible.

Le nombre d'interfaces et la section de la liaison supraconductrice permettent d'ajuster l'isolation thermique. Les deux matériaux sélectionnés pour la fabrication du démonstrateur étudié sont le nitrure de titane (TiN) et le niobium (Nb). La résistivité thermique d'une interface TiN/Nb calculée à partir du modèle AMM est donnée à $R_{Bd\ AMM} = 6,5 \cdot T^{-3}$ ($K \cdot cm^2/W$) et pour le modèle DMM à $R_{Bd\ AMM} = 8,0 \cdot T^{-3}$ ($K \cdot cm^2/W$).

Les matériaux ont été déposés par pulvérisation cathodique sous un courant continu et avec un effet magnétron. La pression de dépôt, adaptée à la géométrie du réacteur plasma, était comprise entre 0,2 Pa et 0,3 Pa et la température du substrat lors du dépôt était inférieure à 100°C. Les couches utilisées pour la caractérisation des matériaux ont été déposées sur plusieurs substrats différents. Nous avons fabriqué trois séries d'échantillons de démonstration pour réaliser la mesure à basse température, des liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique. L'élaboration des démonstrateurs, et plus particulièrement des liaisons supraconductrices, a mis en œuvre des procédés de la microélectronique que nous avons adaptés à nos besoins.

Une étude approfondie a été menée pour observer les caractéristiques des couches composant la multicouche. La microstructure, la masse volumique, le paramètre de maille, la texture, les propriétés électriques ou encore les vitesses du son ont été observés et mesurés pour plusieurs couches minces différentes de TiN et de Nb. Par exemple, nous nous sommes aperçu de l'importance de la conformation des cristallites dans les couches de TiN ; la croissance de type colonnaire des couches de TiN, déposées sur substrat Si monocristallin, tient une part prédominante dans les propriétés de la vitesse du son en mode transverse, que nous avons mesurée par diffusion Brillouin (pour le TiN à $V_T = 3,3$ km/s et attendu à $\sim 5,5$ km/s). La microstructure du Nb ressemble plutôt à une formation de type draperie ; cette microstructure n'affecte pas la vitesse du son en mode transverse (mesurée pour le Nb à $V_T = 2,2$ km/s et attendue à ~ 2 km/s).

Nous avons également remarqué que la nature du substrat influe sur la croissance des couches et sur leurs contraintes internes résiduelles. Les mesures en diffraction X ont révélé que quel que soit le substrat que nous avons utilisé, les couches de Nb et de TiN croissaient selon des orientations préférentielles : (110) pour le Nb et (111) pour le TiN. Sur substrat polycristallin en W, les couches ne présentent qu'une faible orientation préférentielle, elles sont majoritairement polycristallines ; sur substrat Si monocristallin, les couches sont texturées, mais ne présentent pas d'orientation préférentielle dans le plan de la couche ; les couches déposées sur substrat saphir monocristallin de TiN et de Nb semblent être monocristallines maclées selon nos dernières observations.

La vitesse du son en mode longitudinal mesurée (par acoustique picoseconde) pour une couche de TiN déposée sur un substrat en saphir ($V_L = 10,8$ km/s) est de façon significative plus élevée que celle mesurée sur une couche déposée sur W ($V_L = 8,31$ km/s). Pour la couche de Nb, le changement de substrat n'implique pas d'écart dans les valeurs mesurées ($V_L = 4,16$ km/s sur Al_2O_3 , et $V_L = 4,13$ km/s sur W).

Nos mesures ont montré que la masse volumique, la vitesse du son en mode longitudinal ou encore la température de transition supraconductrice varient largement avec la concentration en azote dans les couches de nitrure de titane. Dans le cadre d'une collaboration, nous avons recherché les paramètres de dépôt qui permettent d'ajuster la température de transition supraconductrice d'une couche de $Ti_{1-x}N_x$ à une valeur proche de 1 K. Nous avons également mesuré les températures de transition supraconductrice du Nb ($T_c = 9,06$ K) et du TiN ($T_c = 4,5$ K) déposés en couches minces.

Les mesures effectuées à basse température sur les échantillons de démonstration ont été retardées par de nombreuses difficultés. L'obtention tardive, à la suite de différentes tentatives, d'échantillons propres à la mesure et la complexité des mesures physiques à très basse température en cryostat (qui nécessitent d'être programmées à l'avance et demandent une préparation longue) font que les résultats et l'exploitation des mesures sur les démonstrateurs sont partiels. Nous avons mesuré avec succès la résistance électrique d'un premier démonstrateur, assemblé par 'Flip-chip' (au moyen de billes d'indium) des deux liaisons déposés sur substrats en tungstène, malheureusement il présentait des court-circuits thermiques (ponts d'indium entre les substrats en tungstène). Toutefois la mesure en conductivité thermique entre 12 mK et 2,5 K a montré une bonne adéquation avec les modèles théoriques pour deux interfaces In / W ; la résistance thermique estimée (à partir du modèle AMM) pour ces deux interfaces, avec une surface des ponts thermiques mesurée de $2,33$ mm², était de $558 T^{-3}$ (K/W) ; la mesure de la résistance thermique a fourni des valeurs proches de l'estimation (ex: $5,2 \cdot 10^4$ K/W à 200 mK).

Nous avons réussi à réaliser une mesure d'un démonstrateur valide composé d'une soixantaine d'interfaces. Pour le moment, nous avons réalisé efficacement cette mesure entre 150 mK et 300 mK ; une amélioration de la mesure est actuellement (début juin) mise en œuvre dans le but d'élargir la plage en température. Dans cette gamme de températures, nous avons mesuré une résistance thermique de $R_{th} \sim 3,3 \cdot 10^5$ K/W à 200 mK pour une surface de liaison de 16 mm²; l'estimation de l'AMM pour les mêmes conditions est de $R_{th} \sim 3,1 \cdot 10^5$ K/W.

Comparons les valeurs mesurées avec (par exemple) la résistance thermique d'un fil supraconducteur de Nb, d'un diamètre de 30 μm ; estimons sa longueur pour atteindre une isolation thermique équivalente à celle d'une multicouche d'une soixantaine d'interfaces sur une surface de 900 μm². La résistance thermique calculée à partir des données mesurées pour cette multicouche sera de $R_{th} = 5,4 \cdot 10^9$ K/W à 200 mK. Pour que le fil de Nb soit un aussi bon isolant thermique que la multicouche, la longueur du fil devrait être supérieure à 15 cm. Notons que les propriétés thermiques de cette multicouche sont suffisamment isolantes pour satisfaire le fonctionnement du futur détecteur XMS. L'isolation thermique pourra être améliorée par l'augmentation du nombre d'interfaces, jusqu'à la limite où le transport thermique par les radiations sera dominant.

D'autre part, la connexion contenant la liaison supraconductrice, en assurant la continuité électrique, pourra, sans présenter de résistance électrique, transporter des polarisations jusqu'à quelques dizaines de mA et des signaux électriques sans distorsion ni perte, jusqu'à des dizaines de MHz de bande passante.

Ainsi, dans la mesure où leur introduction dans les interconnexions entre plans matriciels et circuits de lecture, relaxe les contraintes de géométrie et de distance, elle permet aisément la diminution d'un ordre de grandeur de la puissance nécessaire au refroidissement du plan matriciel. Nous pensons que les liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique seront couramment utilisées dans les futures applications spatiales fonctionnant à très basse température. Nous avons protégé l'invention de cette brique technologique par le dépôt d'un brevet (n° 12 53890) en mai 2012 ; j'en suis le premier auteur.

Au commencement en décembre 2008, le sujet de la thèse consistait en la réalisation des microcalorimètres à intégrer dans le détecteur XMS de la future mission d'astronomie du rayonnement X, ATHENA. En fin 2009, le début des réalisations technologiques n'avait pas commencé et le délai conséquent pour la fabrication de la matrice de démonstration ne coïncidait plus avec la durée de la thèse ; un changement de sujet de thèse était devenu nécessaire. En mars 2010, deux sujets de remplacement ont été proposés et validés par le collège comprenant la direction de la thèse (Claude Pigot), l'école doctorale (Pierre Gentil) et le directeur de laboratoire (Hervé Ribot). Ces deux sujets ont été menés de front pendant les deux années restantes de la thèse.

Le premier sujet est celui qui fait l'objet de ce manuscrit : le développement de liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique. C'est le sujet qui a présenté le plus d'intérêt scientifique et qui a fourni les résultats les plus démonstratifs. En comptant l'exercice de la rédaction de ce manuscrit, j'ai travaillé sur ce sujet les trois quarts du temps de mon activité de chercheur. A cause de la nouvelle importance dévolue aux recherches sur les liaisons supraconductrices, Jean-Claude Villégier du CEA/INAC est devenu tuteur de la thèse à la place de Patrick Agnès du CEA/LETI, plus impliqué sur la photonique.

Le second sujet, correspondant à un champ disciplinaire différent, n'a, par souci de cohérence, pas été développé dans ce manuscrit, car présentant un intérêt moindre. Il représente cependant une partie non négligeable de mon travail. Il consistait à observer la diaphonie (« cross-talk ») entre les pistes électroniques cheminant entre les pixels des microcalorimètres à une température de fonctionnement de 50 mK. C'est un autre point d'optimisation pour le plan matriciel du futur détecteur XMS. C'est avec ce sujet que j'ai débuté dans l'utilisation de procédés technologiques complexes proches de la microélectronique. J'ai ainsi réalisé des échantillons pour les mesures de diaphonie et de capacité linéique. Un procédé technologique permettant le dépôt de pistes en aluminium au pas de 4 μm (et d'une épaisseur de 300 à 400 nm) avec une longueur conséquente (> 2 cm) a été développé, dans le cadre de ce sujet. L'un des buts était d'obtenir un rendement de réalisation de pistes valides (non dégradées) le plus haut possible. Avec notre procédé utilisant deux couches de résine lors des étapes de lithographie, nous avons obtenu un rendement supérieur à 85%. C'est un bon résultat au vue des équipements mis à notre disposition et à l'environnement de la salle blanche de la PTA. De l'énergie est encore à investir pour parvenir à augmenter le rendement, mais mon travail sur le sujet est certainement une base solide pour la continuité de cette étude. A la fin de la thèse, toute notre attention a été portée sur le sujet des liaisons supraconductrices ; nous étions en bonne voie pour obtenir une mesure de diaphonie fiable à des températures en dessous du kelvin, avec le démonstrateur pour la diaphonie que j'ai réalisé. Ces mesures seront certainement remises sur le devant de la scène dans un futur proche.

Les travaux développés dans ce manuscrit feront l'objet d'un (ou deux) article en cours de rédaction à soumettre à publication.

Malgré un début chaotique, cette expérience professionnelle est d'un point de vue personnel une réussite. Au cours de ces deux dernières années, j'ai appris à mener deux projets de front et je me suis confronté à des problèmes techniques et scientifiques complexes. Cette thèse m'a permis d'échanger et de travailler avec un grand nombre de spécialistes dans des domaines différents, au CEA et au CNRS. Ce sont ces échanges ouverts que j'ai le plus appréciés au cours de mon activité de doctorant.

Annexes

Annexe 1 : Modèle de Casimir

Les fils de NbTi ont généralement un faible diamètre ($\sim 25 \mu\text{m}$) pour une longueur conséquente (quelques centimètres). Lorsqu'ils sont utilisés à des températures très basses, le libre parcours moyen des phonons n'est plus limitant dans le fil. Les seuls obstacles que rencontrent les phonons sont les parois du fil. Pour ce cas de figure, Casimir [Casimir-1938]* a proposé un modèle estimant la conductivité thermique des phonons.

$$\kappa_{ph}(T) = 3,2 \cdot 10^3 \cdot \left(\frac{2 \cdot \pi^2 \cdot k_B^4}{5 \cdot \hbar^3 \cdot V_s^3} \right)^{\left(\frac{2}{3}\right)} \cdot \frac{S \cdot l_{Cas} \cdot T^3}{L} \quad (\text{Eq A.1})$$

L'équation A.1 est issue de [Berman-1955]*, V_s est la vitesse du son dans le matériau, S et L sont la section et la longueur du canal de conduction. Le libre parcours moyen l_{Cas} correspond dans l'hypothèse de Casimir au diamètre du fil du canal de conduction.

Casimir prend pour hypothèse que les surfaces du canal de conduction sont rugueuses et diffusives. Lorsque la température diminue, la longueur d'onde dominante des phonons augmente. Les phonons à très basse température ne sont plus diffusés, mais subissent des réflexions spéculaires. Le libre parcours moyen des phonons (l_{Cas}) est remplacé par une fonction qui reflète cette augmentation des réflexions spéculaires avec l'abaissement de la température. Le libre parcours moyen augmente avec la diminution de la température. La conductivité thermique définie par Casimir sera donc dépendante de la longueur d'onde dominante des phonons pour les très basses températures [Bourgeois-2008]*.

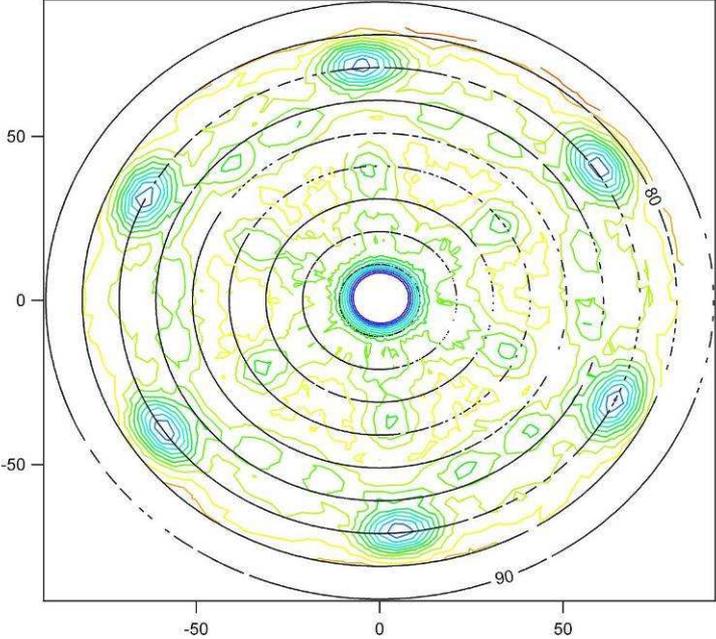
Dans le cas d'un canal de conduction avec un diamètre extrêmement faible (de type nano-fil), la conductivité thermique est indépendante du matériau. Ceci n'est vrai que pour les très basses températures. Ainsi à ces températures les deux dimensions du nano-fil seront très inférieures à λ_0 , la longueur d'onde dominante des phonons. Le canal de conduction est comparable à un système à une seule dimension (1D). Pour un nano-fil de faible diamètre et à très basse température, la conductivité thermique des phonons est définie par [Héron-2009] :

$$\kappa_{ph} = \frac{2 \cdot \pi \cdot k_B^2 \cdot T}{3 \cdot \hbar} \quad (\text{Eq 2.12})$$

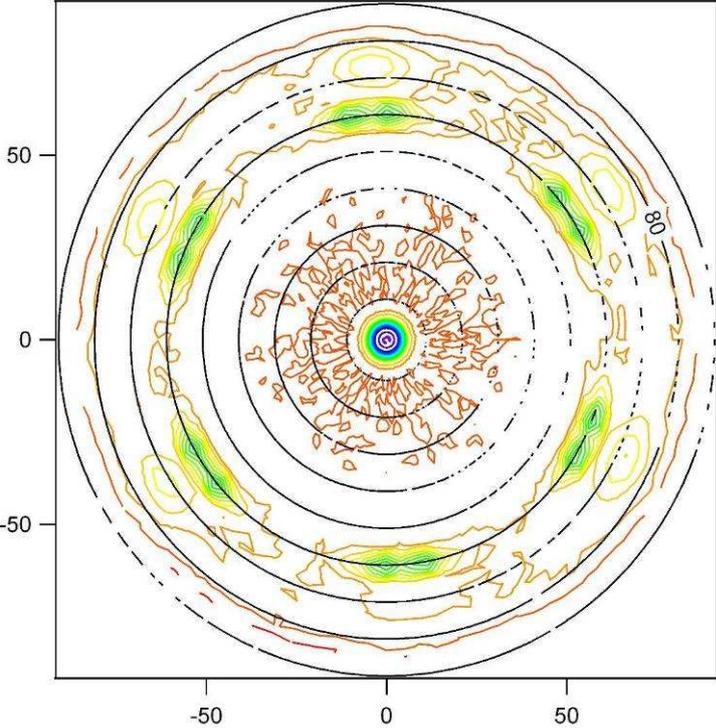
(* : Voir bibliographie chapitre II)

Annexe 2 : Figures de pôles TiN (Sp2) et Nb sur substrat Al₂O₃

TiN (Sp2) / Al₂O₃



Nb / Al₂O₃



Annexe 3 : Images AFM du $Ti_{1-x}N_x$ et du Nb

- Image AFM du Nb bis sur Si:

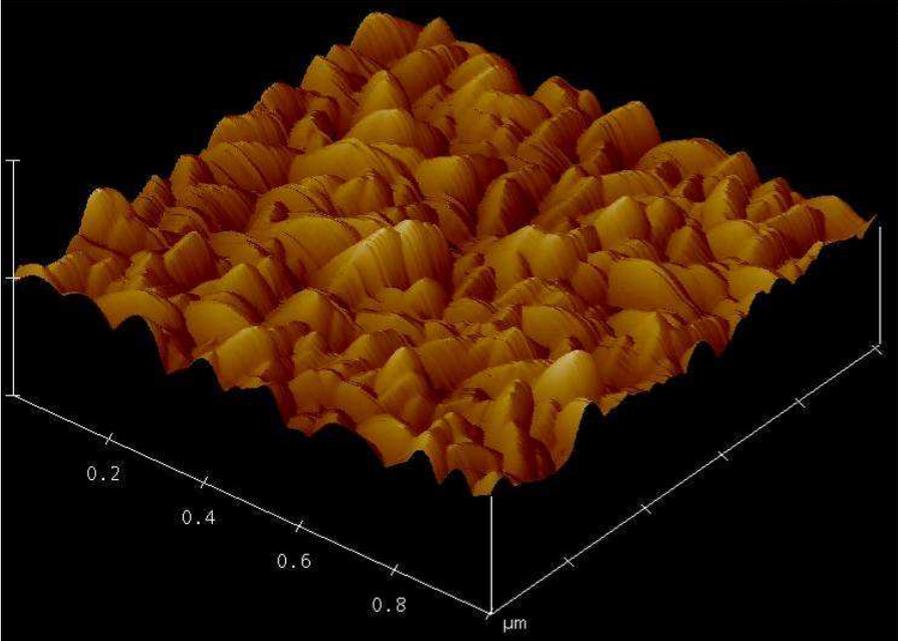
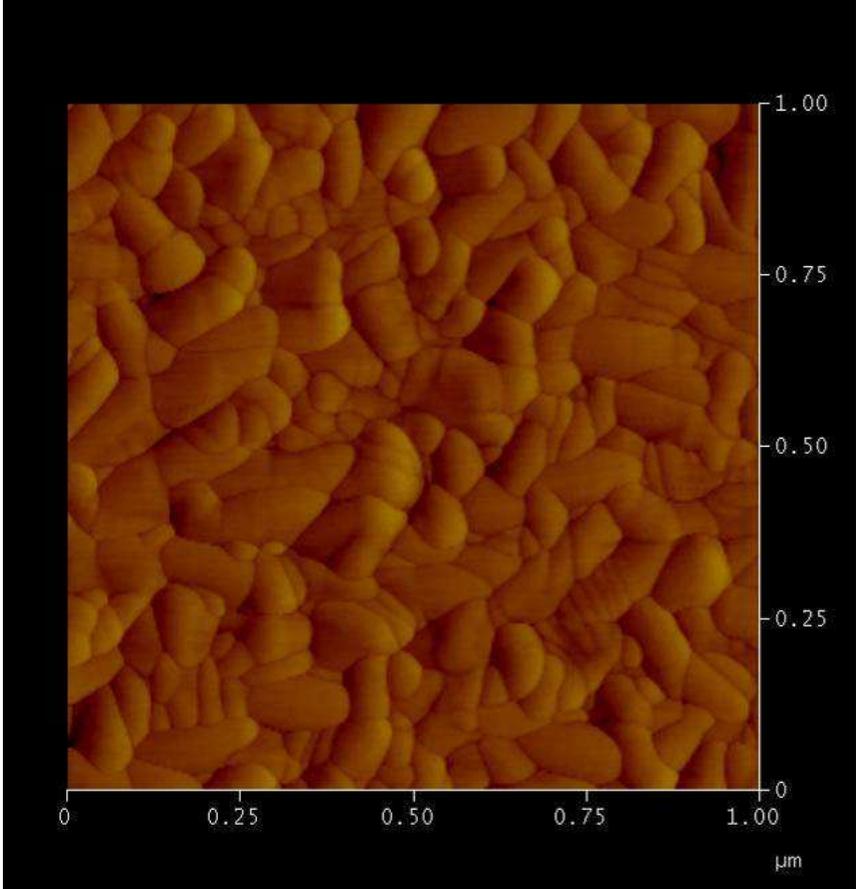


Image AFM du TiN Sp2b sur Si:

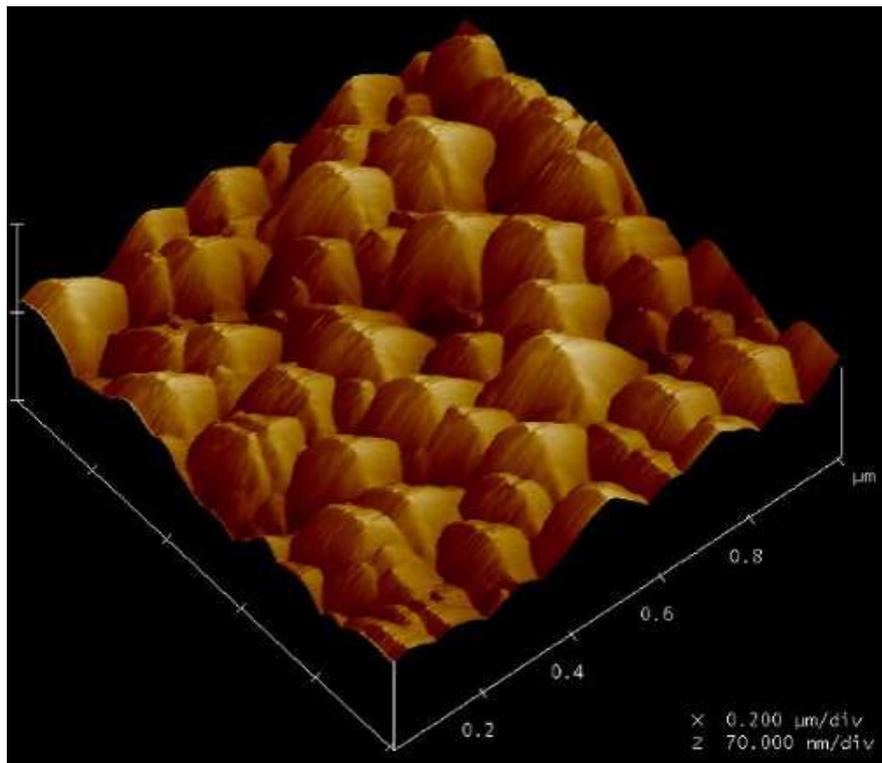


Image AFM du TiN Sp9b sur Si:

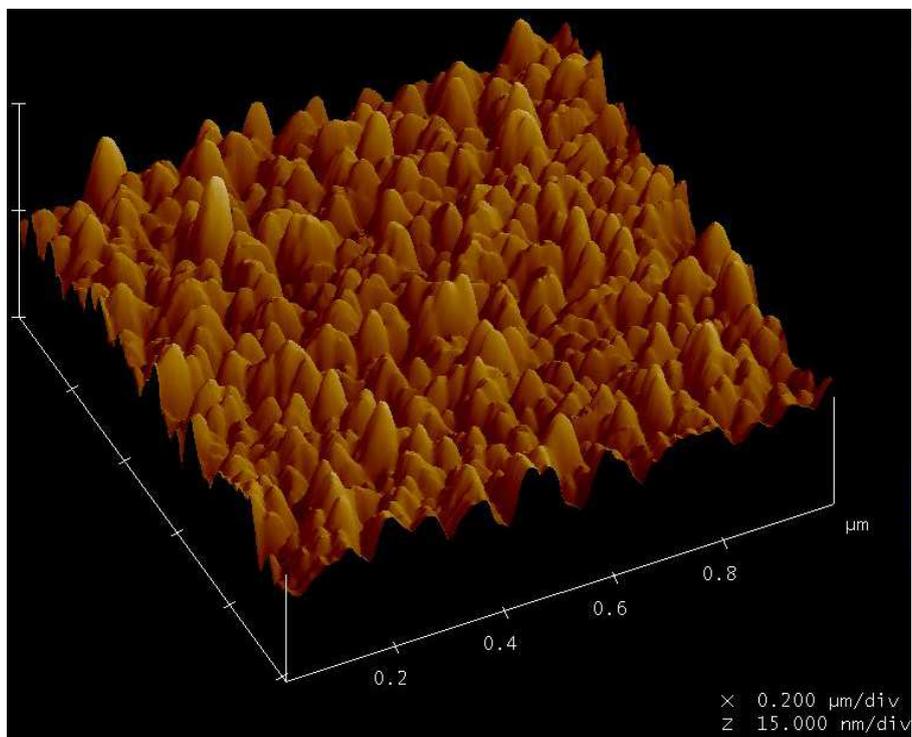


Image AFM du TiN Sp11b sur Si

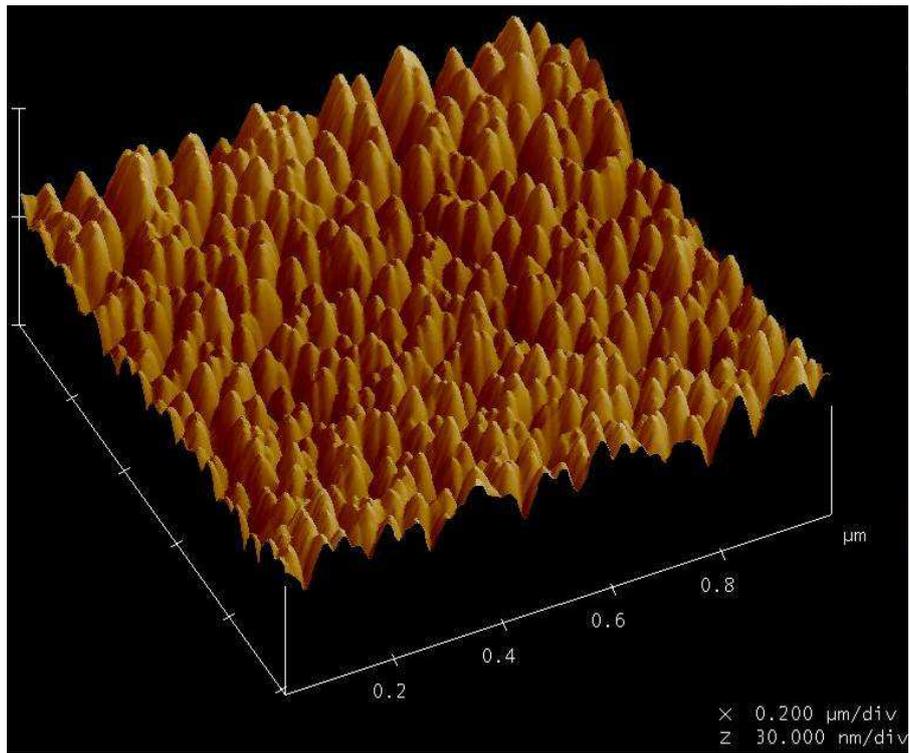
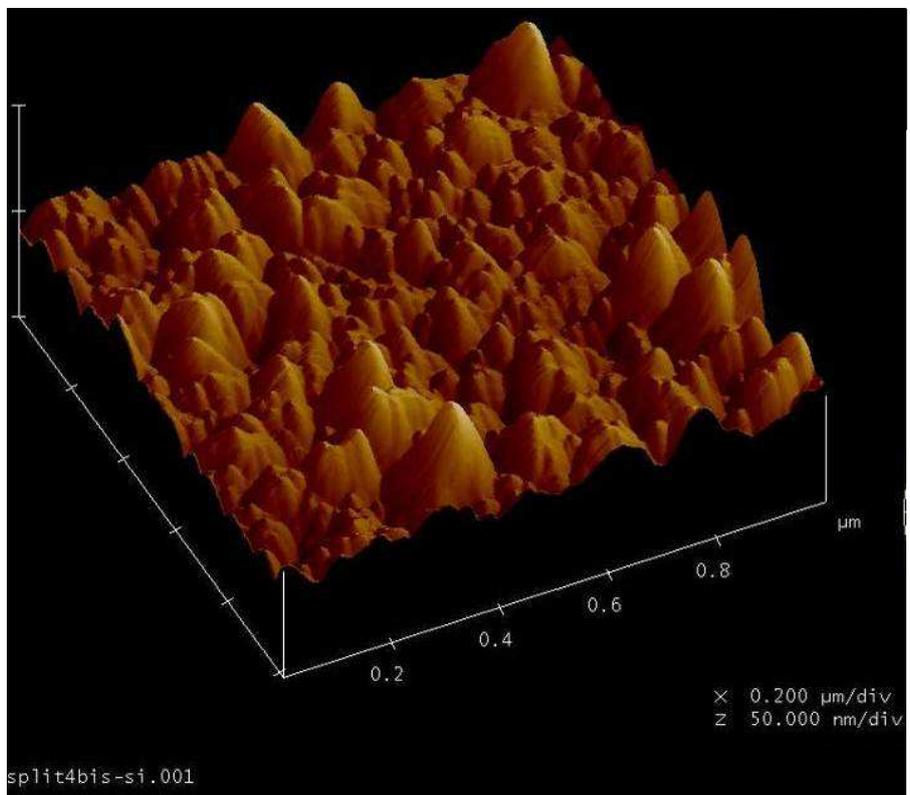


Image AFM du TiN Sp4b sur Si



Annexe 3 : Fabrication des échantillons pour la mesure de la diaphonie

Dans cette annexe, nous détaillons les différentes étapes pour la réalisation des motifs utilisés pour mesurer la diaphonie inter ligne. Nous ne traitons pas ici des aspects théoriques, ni des mesures de diaphonie ou de capacité de ligne réalisées avec les démonstrateurs. Nous détaillons uniquement le procédé de fabrication des pistes longues sur substrat SOI avec différentes étapes réalisées à la PTA. Cela fournira une base pour continuer cette étude à partir du travail important que j'ai réalisé au cours de mon travail de thèse. C'est cette réalisation qui m'a permis de m'initier aux techniques de la micro fabrication de type microélectronique.

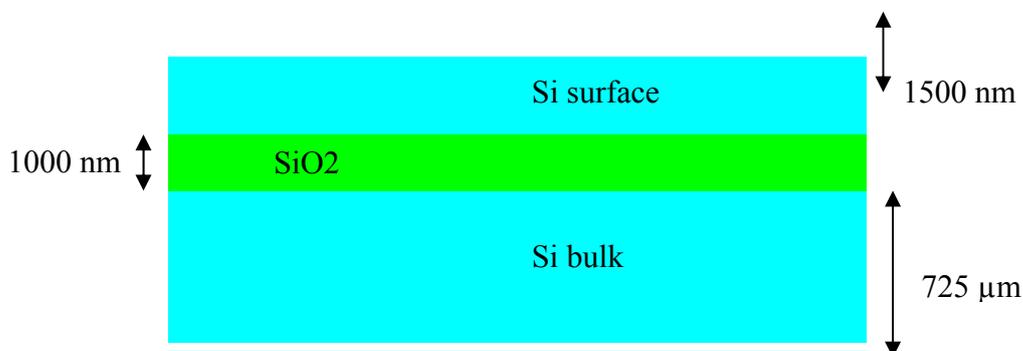
Les deux points marquants de cette annexe sont le résumé des étapes technologiques et le descriptif de l'utilisation de la solution avancée pour le système de « lift off ».

A la fin du chapitre I, nous avons introduit le phénomène de diaphonie. Cet effet est bien connu. Il est particulièrement important dans le cas des plans matriciels pour le détecteur XMS puisque une densité importante de pistes est présente et que le niveau de bruit critique est extrêmement bas. Le but de cette étude était de mesurer la diaphonie entre pistes avec des géométries proches de celles présentes sur les plans matriciels, d'observer la variation de la diaphonie avec l'évolution en température (et notamment à très basse température : 50 mK) et dans un second temps de chercher des solutions pour diminuer la diaphonie.

Introduction au procédé technologique ERT

Le substrat et ses caractéristiques

Le substrat utilisé pour fabriquer le démonstrateur est identique à celui utilisé pour les plans matriciels. Les substrats que nous avons utilisés se trouvent sous la forme d'un wafer de diamètre 100 mm. Le substrat est composé d'un empilement de plusieurs matériaux, c'est un SOI.



Représentation de la composition d'un substrat SOI utilisé dans les plans matriciels.

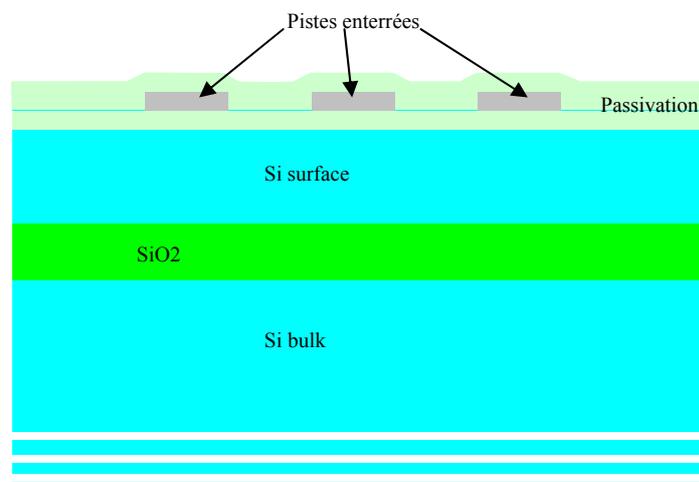
Les différentes couches ont, toutes, leur importance dans l'étude de la diaphonie. Les données fournies sur la résistivité et la permittivité diélectrique par le constructeur SOITEC sont répertoriées dans le tableau ci-dessous.

Matériaux	R ($\Omega.cm$)	ϵ_r
SiO2	10^{14}	3,9
Si surface	19	11,7
Si bulk	1	11,7

Tableau de caractéristiques des substrats SOI. La résistivité électrique et la permittivité diélectrique sont répertoriées

Encapsulation des pistes conductrices

Les pistes qui transporteront le signal des pixels jusqu'au champ de reprise de contact seront encapsulées dans une passivation.



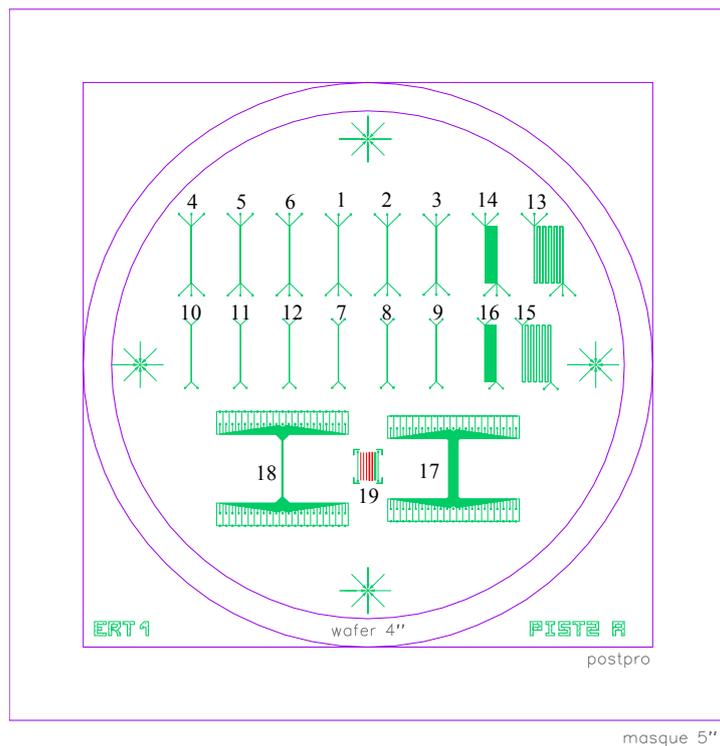
Encapsulation des pistes

Lors de la réalisation, deux types de passivation ont été testés : SiO2 et SiOC. Ces deux passivations ont respectivement une permittivité diélectrique contrôlée de 4,2 et 3,0. Ce choix a été fait afin d'observer les éventuelles variations de la diaphonie en fonction de la permittivité à basse température.

Cette encapsulation est réalisée en plusieurs temps. Un dépôt de passivation est réalisé sur le substrat nu et propre. Ensuite la piste est déposée et enfin on recouvre l'ensemble d'un dépôt d'une couche de passivation identique à celle utilisée initialement.

Présentation des masques

Les masques utilisés pendant les étapes de photolithographie ont permis la fabrication de motifs avec des pas et des géométries différentes. Une partie des motifs de ce masque sont dessinés pour mesurer la capacité de ligne (motifs 1 à 16) et une autre partie pour la mesure de la diaphonie (motifs 17 et 18). Un motif de test est dessiné pour nous aider à faire des vérifications entre certaines étapes du développement (motif 19).



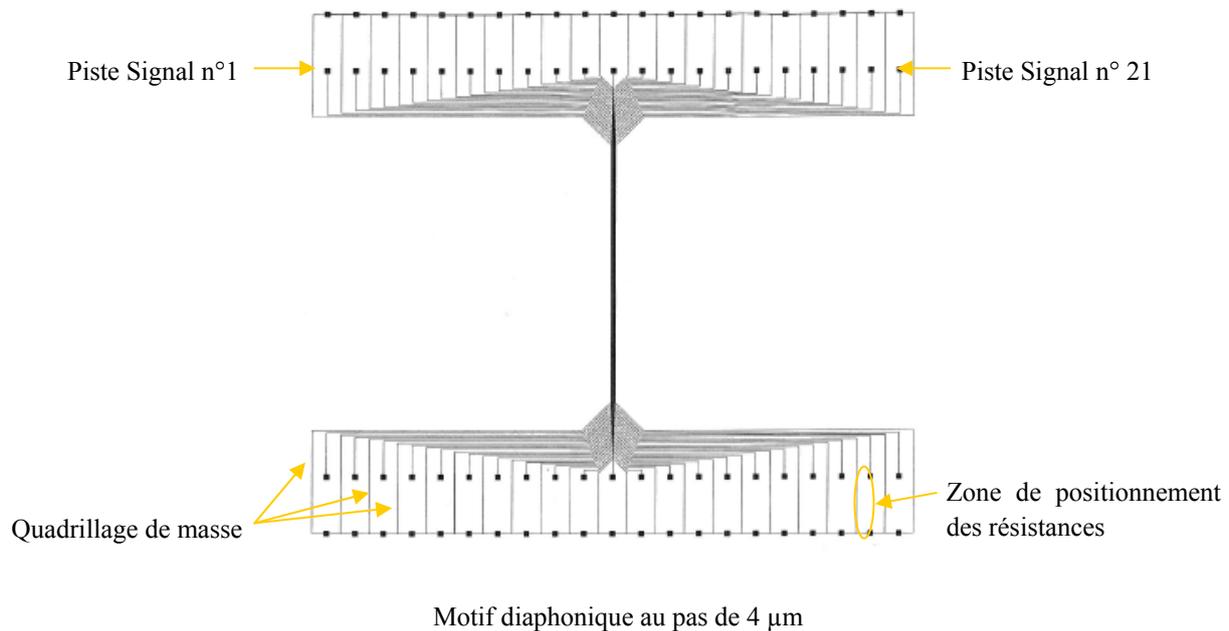
Second masque avec une longueur de piste de 10 mm

Les chiffres sur le schéma ci-dessus ne sont pas représentés sur le masque, mais permettent une identification. La notion de pas est définie avec une largeur de piste (Y) et un écartement entre pistes (X). Les motifs en serpentins (14 à 16) sont composés des 11 longueurs de 10 mm et cela pour augmenter la capacité à mesurer en cas de limitation par la résolution de la mesure.

X (µm)	Y (µm)		Motif	Commentaires
30	10		1	3 conducteurs
50	10		2	3 conducteurs
100	10		3	3 conducteurs
3	1		4	3 conducteurs
5	1		5	3 conducteurs
10	1		6	3 conducteurs
30	10		7	2 conducteurs
50	10		8	2 conducteurs
100	10		9	2 conducteurs
3	1		10	2 conducteurs
5	1		11	2 conducteurs
10	1		12	2 conducteurs
30	10		13	Serpent. 3 cond.
3	1		14	Serpent. 3 cond.
30	10		15	Serpent. 2 cond.
3	1		16	Serpent. 2 cond.
30	10		17	Motif diaphonique
3	1		18	Motif diaphonique
/	/		19	Motif de test

Tableau récapitulatif des motifs de démonstration

Zoom sur le motif 18 :



Sur ce motif, nous allons expliquer les points importants. La partie centrale de la structure est composée de 43 pistes au pas de 4 μm (1 μm de piste et 3 μm d'espacement). De chaque extrémité de ce faisceau part un éclateur, avec un pas plus espacé, qui permet de sortir chaque piste vers un plot de reprise contact. Chaque piste de signal est bordée par des pistes de masse. Les pistes de masse forment un quadrillage sur tout le motif.

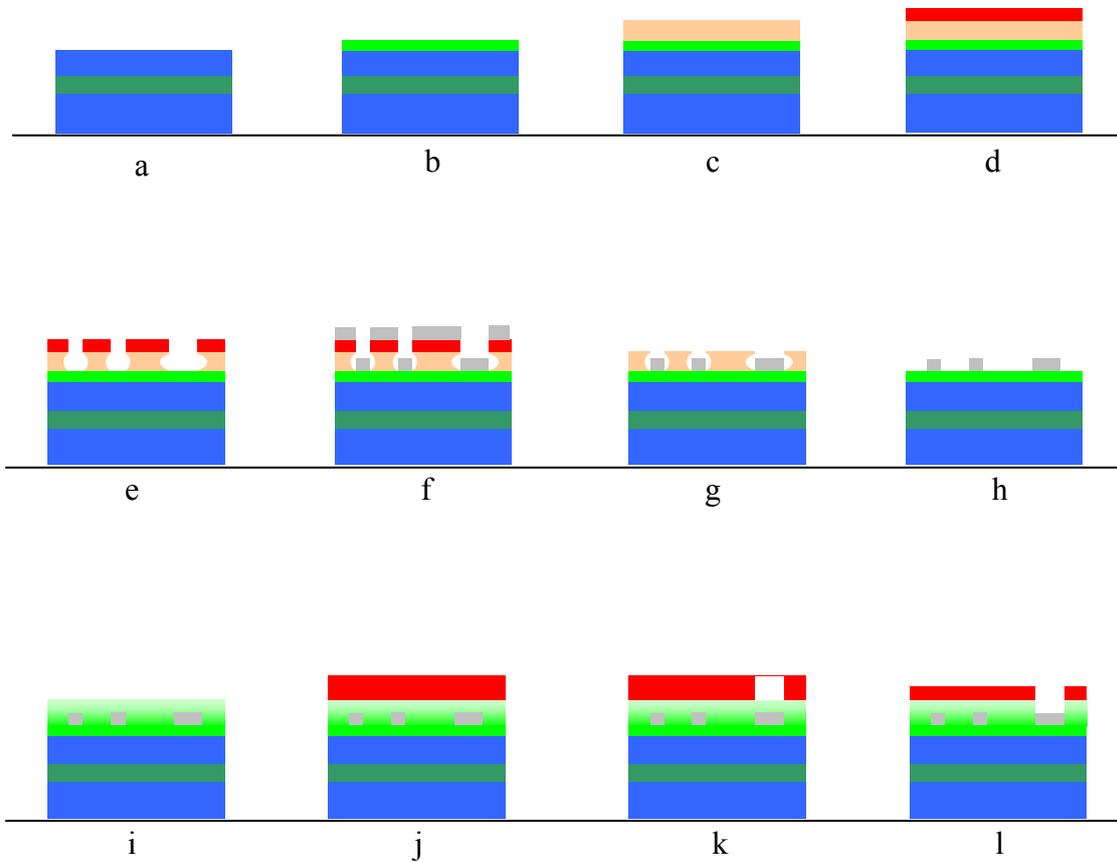
Les plots sont carrés et mesurent 200 μm de côté. Ils sont espacés horizontalement de 1 mm et verticalement de 2 mm. Ces dimensions ont été retenues afin de permettre le collage et la connexion par microsoudure de résistance avec un boîtier CMS de type 0603 (1,6 mm x 0,8 mm).

Les différentes opérations technologiques

Dans cette partie nous allons passer en revue les différentes étapes qui constituent le procédé complet de fabrication des échantillons. Les solutions valides seront mises en lumière et certains problèmes rencontrés seront détaillés.

Pour aboutir à un résultat fonctionnel, quatre lots ont été nécessaires. Chaque lot est composé de deux plaques SOI sauf le lot ERT3 qui en compte trois. Nous ne détaillons pas ici tous les problèmes rencontrés et les solutions qui ont été mise en œuvre pour y pallier. La grande majorité des étapes technologiques se sont déroulées à la PTA.

*Vue schématique du Procédé ERT (non à l'échelle)



a) préparation du substrat

b) dépôt de passivation

c) étalement de la sous-couche

d) étalement de résine

e) photolithographie

f) dépôt des pistes

g) retrait de la résine (lift off)

h) nettoyage de la sous couche (plasma O₂)

i) dépôt de passivation

j) étalement de résine

k) photolithographie (avec alignement)

l) gravure plasma (ouverture des plots)

*Détails des différentes opérations

Nous utilisons des plaques **SOI** de diamètre 100mm (*figure a*) que nous passivons (épaisseur 500 nm) au LETI (SiO₂) (*figure b*) avec Vincent Jousaume.

Note : le dernier chiffre dans le nom des résines indique souvent l'épaisseur de cette dernière après dispense, en centaine de nanomètres avec une vitesse d'étalement standard.

- Préparation

Avant de réaliser les étapes à partir de la *figure c*, nous préconisons quelques étapes de préparation réalisées à la PTA. Sur la paillasse solvant, on fait un nettoyage **acétone** (10 minutes aux ultrasons) puis **isopropanol** (3 minutes ultrasons). On sèche soigneusement.

Juste avant l'étalement de la sous couche, nous faisons un recuit (180°C de 5 minutes) pour sécher la surface du wafer. Et nous **nettoyons le masque** qui sera utilisé pour l'insolation (remove 15 minutes aux ultrasons).

Il est important de penser à sortir du frigo, **30** minutes avant utilisation, les produits qui seront utilisés pour la lithographie : LOR10A (si elle est au frigo) et UV5.

- Masquage des pistes

Après la mise en place du wafer dans la tournette 100mm, nous versons la sous couche **LOR10A** sur $\frac{3}{4}$ de la surface du wafer. La dispense de la résine se fait à 4000 tr/min pendant 60 secondes. Puis nous réalisons un recuit à **150°C** pendant **600** secondes. (*figure c*).

Par le même procédé, nous dispensons de la résine photosensible **UV5** (60 secondes à 4000 tr/min). Recuit de **90** secondes à **130°C**. (*figure d*)

Pour réaliser l'étape d'insolation, nous utilisons la machine **MJB4 deepUV**. Ici pas besoin de réaliser un alignement. (Insolation : de **1,3** seconde en **soft** contact).

La plaque entière est ensuite recuite à **130°C** pendant **60** secondes. On va ensuite enlever la résine insolée avec l'étape de développement en immergeant pendant **30** secondes la plaque dans l'**AZ326MIF**. Puis on rince directement à l'eau dé-ionisée (DI). (*figure e*)

On pensera à nettoyer le masque après chaque insolation (remove 15 minutes aux ultrasons).

Important : A ce stade, il ne faut pas faire de plasma O₂, pour ne pas durcir la résine. S'il y a des résidus de résine en fond de cavité, on peut faire un développement de 5 secondes supplémentaires. Il est possible de faire une mesure d'épaisseur pour vérifier que le fond de cavité est relativement bien libéré. Cette mesure de marche peut être réalisée avec le profilomètre DEKTAK.

- Dépôt Métal

Pour réaliser le dépôt des pistes d'aluminium on utilise la machine Evap PLASSYS. On commence par protéger le substrat du porte-substrat avec des feuilles d'aluminium pour éviter une éventuelle contamination (surtout si la passivation supérieure à effectuer en fin de procédé doit être réalisée au LETI). De même un dépôt d'Al à blanc est préférable pour recouvrir l'intérieur de la chambre avant le dépôt des pistes.

Lorsque le substrat est dans la machine de dépôt, on commence par réaliser un **Etch** de 120 secondes à 250 V. Puis on réalise le dépôt d'Aluminium (**1 nm/sec**) en trois fois : 100 nm puis 200 nm et 200 nm (soit 500 nm d'épaisseur totale). (*figure f*)

Ensuite on retire la résine (et le métal qui est dessus) en réalisant un « Lift off ». Nous préconisons ici la réalisation d'un **lift off « doux »**, c'est-à-dire un Lift off **sans ultrason** avec 2 heures d'action (minimum) chimique en immergeant la plaque dans l'acétone. Le wafer a la face avant orientée vers le bas du becher. Entre le fond du becher et la partie sensible du wafer, un verre de montre peut être utilisé comme coupelle pour limiter le contact mécanique. A la sortie du wafer, on le rince à l'eau DI (à très faible pression). (*figure g*)

A ce stade, la couche de LOR10A est toujours présente. On réalise une mesure d'épaisseur par rapport à la hauteur de la piste d'Al qui elle est connue (500 nm), on en déduit l'épaisseur de LOR à retirer.

Pour enlever cette sous couche, on applique un **plasma O₂** avec la machine TEGAL 915. Il est préférable de faire chauffer la machine par un cycle à 420 W sans wafer dans la machine. Pour enlever la totalité de l'épaisseur de la couche de LOR, on fait plusieurs cycles à **420 W** de 20 minutes, puis on mesure l'épaisseur résiduelle de LOR10A par rapport à une piste. Normalement on commence avec un creux de hauteur 320-350 nm (LOR10A avec nos paramètres de spin : 820-850 nm et 500 nm d'Al). On continue les cycles jusqu'à atteindre une marche **de 500 nm**. (*figure h*)

C'est le moment pour réaliser une mesure préliminaire de la conductivité électrique des pistes pour déceler les discontinuités.

- Recouvrement d'une couche de passivation

Nous réalisons de nouveau un dépôt de passivation SiO₂ (500 nm) au LETI avant de revenir à la PTA pour l'ouverture des contacts. (*figure i*). Nous avons réalisé les dépôts de passivation au LETI de manière à obtenir une couche uniforme avec une permittivité diélectrique maîtrisée, soit pour des raisons de reproductibilité liées à cette phase de pré-étude.

- Ouverture passivation pour les contacts

On commence par nettoyer **le masque** qui est utilisé pour l'ouverture des plots de reprise de contact (remover 15 minutes aux ultrasons).

Puis, on dispense la résine photosensible **AZ1512HS** (60 secondes à 4000 tr/min). On réalise un recuit de **90** secondes à **100°C**. (*figure j*)

La machine **MJB4 UV** est utilisée pour l'insolation. Cette étape nécessite un alignement. L'insolation est réalisée pendant **25** secondes en **vacuum** contact.

Le développement de **30** secondes est fait dans l'**AZdevelopper (1 : 1 avec eau DI)** puis on rince directement à l'eau DI. (*figure k*)

On pensera à nettoyer le masque après chaque insolation (remover 15minutes aux ultrasons).

A ce stade, on peut observer au microscope les plots de reprise de contact pour s'assurer qu'il ne reste plus de résine en fond de cavité. En cas de doute, il est possible de faire un Plasma O₂ (420 W – 60 secondes).

La gravure de la passivation est effectuée avec la machine RIE STS. On commence par faire un **clean O₂** (3 minutes). Puis on grave la passivation (nom de la recette : **@sio2an**) jusqu'aux plots de reprise de contact en aluminium. Avec 500 nm d'oxyde, 12 minutes suffisent à la gravure (vitesse de gravure donnée à **55 nm / min**). (*figure l*)

Lorsque cette étape est réalisée, on retire la résine à l'acétone (action chimique rapide) puis on rince à l'eau DI. Cette étape est **toujours réalisée sans ultrasons**. On peut faire un nettoyage final avec un plasma O₂ (420 W – 120 secondes).

Pour s'assurer de la gravure complète de la passivation, on peut soit faire une mesure d'épaisseur au DEKTAK, soit réaliser une mesure de conductivité électrique des pistes du motif de test.

*Quelques remarques

La passivation SiOC se craquèle à la surface après un plasma O₂ de nettoyage. Ce point est gênant dans notre cas, puisque nous avons observé des portions de pistes se désolidarisant par arrachement des zones libres par les craquelures. Le procédé avec les meilleurs résultats en termes de pistes valides sont avec une passivation SiO₂.

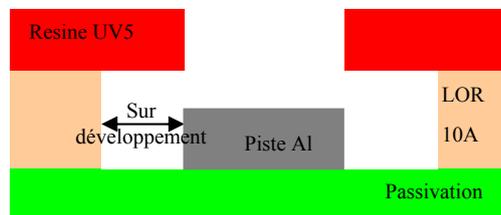
Un des points cruciaux est la propreté des masques. Si des traces de résine ou des particules obstruent le passage de la lumière lors de l'insolation, des défauts apparaîtront. Un nettoyage du masque est recommandé après et avant chaque utilisation.

La sous couche de LOR

Le point problématique de cette réalisation est de parvenir à fabriquer des pistes d'une section de $0,5 \mu\text{m}^2$ sur une longueur supérieure à 10mm et continues sur toute leur longueur. Avec le procédé détaillé réalisé à la PTA, ci-dessus, nous sommes parvenus, sur la dernière série de plaques que nous avons réalisées, à atteindre un rendement de pistes valides entre 80% et 90%. C'est un résultat qui est largement amélioré par rapport aux premiers lots réalisés. Ce résultat reste, encore, à améliorer.

Nous avons introduit une sous-couche LOR10A dans notre procédé pour résoudre deux problèmes majeurs. Son épaisseur (1000 nm) couplée à celle de la résine la recouvrant constitue une barrière à la formation de pont entre les pistes espacées de seulement $3 \mu\text{m}$. Le second point est qu'avec la sous-couche, la piste déposée en aluminium n'est plus en contact qu'avec le substrat ; elle n'est plus en contact avec la résine ni avec la sous couche. Ce point est majeur, puisque nous avons observé que dans la majorité des cas de discontinuité des pistes, un arrachage de la piste était survenu lors du lift off de la résine en contact avec la piste mince et longue.

Une des caractéristiques de cette couche est qu'elle présente un surdéveloppement qui est fonction du temps de pré-recuit, effectué avant l'étalement de la résine photosensible, et du temps de développement de la résine.



Schématisme du surdéveloppement de la sous-couche

Avec notre procédé, le surdéveloppement sera de $\sim 1000 \text{ nm}$, ce qui exclut tous contacts sur les côtés de la piste en aluminium.

Pour éviter l'ajout de défauts supplémentaires, on va effectuer une approche de la surface du wafer vers le masque sans réaliser de contact (soft contact). Ainsi la résine sera suffisamment approchée pour recevoir une insolation guidée par le masque sans toutefois rentrer en contact et causer des défauts à la surface de la résine. L'ambiance, le transport et le stockage sont également importants pour limiter le dépôt de particules à la surface du wafer ; ces particules ont une probabilité certaine de provoquer des défauts le long des pistes d'Al.

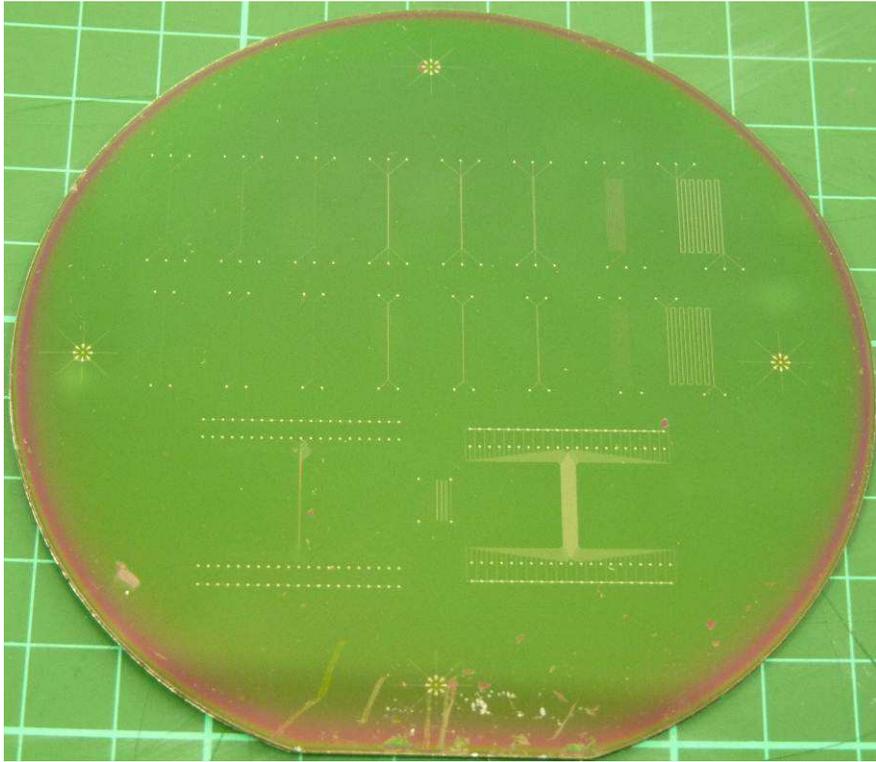


Image de la plaque P7 du lot ERT4. Cette plaque a donné les meilleurs résultats en termes de rendement de fabrication de pistes valides.

Validation et préparation à la mesure des échantillons

Une vérification de la continuité des pistes sur les différents échantillons est effectuée avant la préparation des échantillons pour les mesures. Les mesures de résistivité électrique sont réalisées avec un appareil de mesure sous pointe. On mesure l'impédance d'un bout à l'autre de la piste. On mesure également l'absence de pont en aluminium de la piste vers chacune de ses proches voisines.

Avec le motif 18 de la plaque P7 (ERT4), on mesure des résistances de l'ordre de 1550 Ω pour la piste 11 à 3770 Ω pour la piste 21. La résistance des masses entre le haut et le bas du motif est de 250 Ω .

Préparation des échantillons pour les mesures

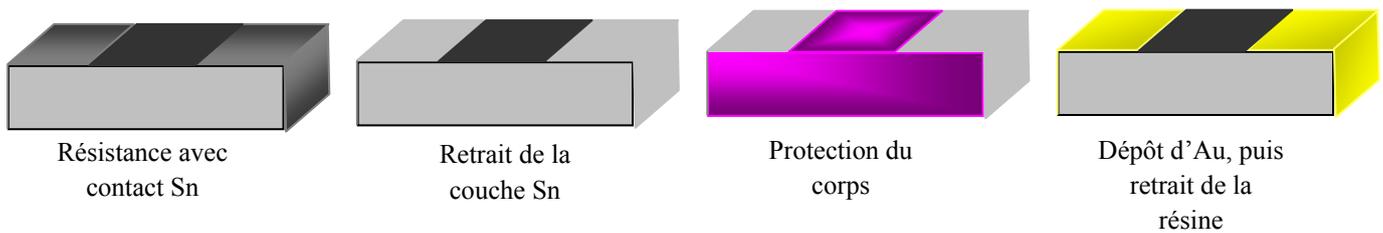
Les étapes technologiques sont réalisées sur un wafer 100 mm. Ce format ne convient pas aux mesures en cryostat. Une découpe à la scie mécanique a été réalisée pour séparer les différents motifs à mesurer. Pour cette découpe, la face avant du wafer est reportée sur un film de protection.

Une partie des échantillons servira à une mesure de capacité linéique, et une autre à la diaphonie entre pistes. Pour les mesures de diaphonie, une résistance est ajoutée à un bout du motif pour chaque piste de signal à mesurer. Cette résistance, connectée entre la piste signal et la piste de masse, permet de simuler la résistance du senseur d'un microcalorimètre.

Nous avons approvisionné des résistances en Nickel-Chrome, qui évoluent peu avec la température, avec un boîtier acceptable pour notre application. Nous avons sélectionné des Résistance NiCr de 68 k Ω pour compléter les mesures.

Chaque résistance est connectée au motif par deux fils d'or (25 μm de diamètre), soudés par une extrémité sur le plot de contact en Al de la puce et par l'autre extrémité sur l'une des deux empreintes de soudure de la résistance. Ces soudures sont réalisées avec une micro-soudeuse à ultrasons.

Les microsoudures (ou bonding) rencontrent un problème d'accroche sur l'empilement de matériaux présents sur les résistances achetées dans le commerce. En effet ces zones d'accroche en étain (Sn) sont trop ductiles pour une soudure aux ultrasons. Nous avons amélioré ces contacts. Après un retrait des couches ductiles avec une lame de scalpel, nous avons protégé le corps de la résistance avec une résine épaisse. Un dépôt d'Au (300 nm) a été réalisé sur l'ensemble de chaque résistance. Après le retrait de la résine, on obtient une résistance avec un corps intact et des contacts en Au.



Procédé d'amélioration des zones de soudure pour les résistances CMS

Synthèse de la fabrication des lots ERT et perspectives de mesures

Cette étude technologique, menée sur 10 mois, démontre qu'il est possible d'améliorer un procédé. Avec le dernier lot, nous pouvons affirmer qu'il est possible de faire des pistes de plus de 10 mm de longueur au pas de 4 μm avec un taux de réussite allant de 80% à 90% sur une plateforme comme la PTA.

Nos besoins, pour les mesures de diaphonie et de capacité linéique, nécessitent un grand nombre de pistes, mais le taux de 80% de la plaque numéro 7 (P7) reste convenable dans notre cadre de mesure.

Pour le procédé qui sera utilisé pour le modèle de vol, il est évident qu'une nouvelle phase d'optimisation des étapes technologiques est nécessaire pour tendre vers un taux de réussite le plus proche possible de 100%. L'expérience acquise par itérations et échanges avec les opérateurs ou les experts des différentes étapes technologiques est certainement la meilleure voie pour imaginer les solutions nécessaires à l'optimisation des pistes déposées à faible pas, pour les futurs plans matriciels.

Des mesures ont été initiées sur le démonstrateur pour la diaphonie. Les mesures sont compliquées puisqu'elles nécessitent d'observer la diaphonie sur une portion de substrat dont la capacité linéique est inférieure à 1 pF ; alors que les câbles d'accès standard apportent plus de 100 pF par mètre. A la fin de ma thèse (avant le début de ma rédaction), nous avons démarré une campagne de recherche de solutions pour parvenir à réaliser correctement cette mesure.

Néanmoins, nous avons décidé de stopper temporairement cette activité pour nous concentrer sur la fin de l'étude des jonctions supraconductrices. D'un point de vue personnel, j'espère que ces mesures reprendront et permettront d'obtenir des réponses sur l'évolution de la diaphonie avec l'éloignement des pistes et d'observer l'évolution de cette diaphonie en fonction de la température.

L'avenir des nouvelles caméras embarquées pour l'astrophysique spatiale semble passer par un accroissement du nombre de pixels et un fonctionnement à très basse température (en dessous de 0,1 K). Avec cette évolution, le nombre important de fils en sortie du détecteur refroidi représente souvent la charge thermique prédominante sur la source froide (cryostat).

Dans ce contexte, l'isolation thermique entre les différents circuits de détection est un point crucial pour ces caméras. Une brique technologique innovante a été développée pour apporter une solution présentant une excellente conduction électrique couplée à une grande isolation thermique. Cette innovation, protégée par un brevet, permet de résoudre cet apparent paradoxe. La solution proposée consiste en l'empilement d'un grand nombre de couches minces de matériaux supraconducteurs dans les interconnexions.

La résistance thermique à chaque interface est dépendante des propriétés élastiques des matériaux, de la qualité des interfaces et de la température à laquelle le système fonctionne. A très basse température, le modèle AMM, couplé aux mesures des caractéristiques des matériaux composants la multicouche, permettent une estimation théorique de la résistance thermique pour une interface. Les mesures effectuées avec les liaisons supraconductrices à forte résistivité thermique concordent avec les estimations théoriques. Nous avons ainsi pu mesurer des résistances thermiques de l'ordre de $3,3 \cdot 10^5$ K/W à 200 mK pour une multicouche composée d'une succession (62 interfaces) de couches minces de nitrure de titane et de niobium sur une surface de 16 mm^2 . Dans les conditions d'utilisation prévues pour une caméra rayons X de 4000 pixels microcalorimétriques, l'utilisation de cette brique technologique devrait assurer une charge thermique sur la source froide (à 50 mK) très inférieure au μW pour plus de 8000 points de contact.

Ce dispositif pourra être utilisé à l'avenir dans nombre de projets cryogéniques, lorsqu'une excellente isolation thermique associée à une excellente conduction électrique sera recherchée.

Future of the next camera onboard space observatories implies a major enhancement in number of pixels and a very low operative temperature (below 0.1 K). In this evolution, the large number of output wires from the cool detector is often responsible of the most important thermal load onto the cold bath (cryostat).

In this context, the thermal insulation between the different detection circuits is the bottleneck for these cameras. An innovative technological component, protected by a patent, has been developed to tackle this problem. This device has both an excellent electrical resistivity and a very high thermal resistivity. The proposed solution is a stack of thin superconducting layers at electrical interconnections.

The thermal resistance at each interface relies on the elastic properties of the materials used, the quality of the interfaces and temperature. The AMM model used in conjunction with the measured material characteristics allows a theoretical estimation of the thermal resistance per interface. The measurements undertaken with superconducting connections with very high thermal resistivity are very well described by this AMM model. We have measured thermal resistances as high as $3.3 \cdot 10^5$ K/W @ 200 mK for a multilayer of 62 interfaces built with titanium nitride and niobium alternatively on a 16 mm^2 array. In the conditions foreseen for a 4000 micro-calorimeters camera operating at 50 mK in X-rays, this multilayer technique should allow a thermal load onto the cold bath that is much lower than 1 mW for more than 8000 contacts.

This device can be used in the future, any time an excellent thermal insulation, associated with an excellent electrical conduction is necessary.