



HAL
open science

Nano-fabrication de réseaux membranaires en Si₃N₄ pour des applications aux ondes de matière

Hanane Bricha Tazi

► **To cite this version:**

Hanane Bricha Tazi. Nano-fabrication de réseaux membranaires en Si₃N₄ pour des applications aux ondes de matière. Optique / photonique. Université Paris-Nord - Paris XIII, 2019. Français. NNT : 2019PA131088 . tel-03336035

HAL Id: tel-03336035

<https://theses.hal.science/tel-03336035v1>

Submitted on 6 Sep 2021

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.

UNIVERSITÉ PARIS 13

« École Doctorale Sciences, Technologies, Santé "GALILÉE" »

Laboratoire de Physique des Lasers

THÈSE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN PHYSIQUE DE L'UNIVERSITÉ PARIS 13

Présentée par :

Hanane BRICHA - TAZI

Sujet :

Nano-fabrication de réseaux membranaires en Si_3N_4 pour des applications aux ondes de matière

Soutenue le 16 décembre 2019 devant le jury composé par :

Mme. Valia Voliotis	Présidente
Mme. Sophie Bouchoule	Rapportrice
M. Ali Soltani	Rapporteur
M. Francisco Perales	Directeur de thèse
M. Sébastien Chenais	Examineur
Mme. Nathalie Fabre	Encadrante

Remerciements

J'aimerais remercier par ces quelques lignes toutes les personnes qui, d'une manière ou d'une autre, ont permis à cette thèse d'avoir lieu, tant d'un point de vue humain que d'un point de vue scientifique.

Je tiens tout d'abord à remercier les membres du jury qui ont évalué ce travail de thèse :

- Madame Sophie Bouchoule et Monsieur Ali Soltani qui ont accepté d'être rapporteurs de ce mémoire.
- Madame Valia Voliotis et Monsieur Sébastien Chenais pour avoir fait parti de mon jury en tant qu'examineurs.

Cette thèse a été menée au Laboratoire de Physique des Lasers (LPL) de l'Université Paris 13 à Villetaneuse en collaboration avec le Centrale de Proximité en Nanotechnologies de Paris Nord (CP2N).

Je présente mes sincères remerciements à Francisco Perales, mon directeur de thèse, pour la confiance et le soutien qu'il m'a accordé au cours de cette thèse, et aussi pour ses conseils et ses remarques pertinentes.

Je souhaite également vivement remercier Nathalie Fabre, mon encadrante, pour ses conseils avisés, ses encouragements dans les moments difficiles, de m'avoir guidée tout au long de cette thèse et pour la richesse et la qualité de ses remarques dans le domaine de la nanotechnologie.

J'exprime toute ma gratitude envers Gabriel Dutier, responsable du groupe Optique et Interférométrie Atomique de m'avoir accueillie dans son équipe, d'avoir partagé son expérience,

son expertise dans le domaine des interactions atome-surface avec moi et de m'avoir orientée tout au long de mon parcours avec beaucoup de sympathie.

Un grand merci à Jeanne Solard, ingénieure en salle blanche en CP2N de m'avoir formée aux équipements de la salle blanche, de les avoir installés et entretenus au quotidien, d'avoir été présente pour échanger avec moi et d'avoir partagé son expertise et ses bonnes pratiques.

Je remercie l'ancien directeur du LPL, Olivier Gorceix pour m'avoir accueillie au sein du laboratoire ainsi que les différents membres de l'équipe administrative et des ateliers techniques du LPL.

J'aimerais aussi remercier Franck Correia, ancien doctorant de l'équipe OIA, pour sa sympathie, son aide et le transfert de connaissances surtout sur les expériences de diffraction atomique.

Enfin, je tiens à remercier mon mari pour toute son assistance et sa présence, mes amis et toute ma famille pour le soutien apporté durant cette thèse.

Résumé

L'étude des interactions de Casimir-Polder (C-P) entre un jet lent d'atomes d'argon métastables en vol libre et la surface d'un nanoréseau de fentes a été réalisée dans ce travail. Nous avons utilisé un nanoréseau fabriqué par lithographie interférométrique au MIT dont malheureusement toutes les caractéristiques géométriques ne nous ont pas été fournies. L'image de diffraction produite lorsque les atomes traversent ce nanoréseau contient à la fois un effet géométrique et un effet C-P. L'estimation de l'incertitude sur le coefficient d'interaction théorique par rapport à l'expérience nécessite une connaissance précise de la taille du réseau. Dans le cadre de cette thèse, nous proposons un procédé de fabrication par lithographie électronique d'un réseau membranaire en Si_3N_4 , à l'échelle nanométrique sur une surface étendue. Cette technique présente une plus grande versatilité sur la forme et les dimensions de fentes sur des petites surfaces. Des défis majeurs ont été relevés pour réaliser ces structures : la correction des effets de proximité, le développement d'un programme pour le traitement des images et l'optimisation des étapes de gravure sèche. Ceci nous a permis de réaliser des réseaux en Si_3N_4 de 200 nm de pas, sur une surface de $400 \times 400 \mu m^2$ avec une uniformité de 10 nm sur les fentes (105 - 115 nm) et une faible corrugation de l'ordre du nanomètre. Grâce à l'anisotropie de la gravure employée, nous avons obtenu des structures rectangulaires sur une profondeur de 100 nm.

Nano-fabrication of a Si_3N_4 membrane grating for material waves applications

Abstract

The study of Casimir-Polder (CP) interactions between a slow jet of metastable free-flying argon atoms and the surface of a transmission nanometric grating was achieved in this work. We used a nanometric grating made by interferometric lithography at MIT whose geometrical cha-

racteristics were unfortunately not provided. The diffraction image produced when the atoms pass through this grating contains both geometrical and C-P effect. The uncertainty assessment of the theoretical interaction coefficient compared to the experiment results requires a precise knowledge of the grating size. In this thesis, we propose a fabrication process based on electronic lithography of a Si_3N_4 membrane grating, at the nanometric scale on an extended area. This technique presents a greater versatility on the shape and dimensions of the slits on small areas. Several challenges have been overcome during these works : the correction of proximity effects, the development of a program for images processing and finally the optimization of the dry etching steps. This allowed us to create Si_3N_4 grating with a pitch of 200 nm, on $400 \times 400 \mu m^2$ area with a uniformity of 10 nm on the slits (105 - 115 nm) and a low corrugation of a nanometer range. Due to the anisotropy of the etching used, we obtained rectangular structures with a depth of 100 nm.

Mots-clés : interactions Casimir-Polder, nano-fabrication des réseaux membranaires, gravure chimique par le KOH, lithographie électronique, effet de proximité, gravure par plasma à couplage inductif.

Keywords : Casimir Polder interactions, Nano-fabrication of membranes gratings, chemical etching by KOH, electronic lithography, proximity effect, Inductively Coupled Plasma etching.

Index des sigles utilisés

Sigle	Définition	Page
AFM	Atomic Force Microscope ou microscope à force atomique	51
AIL	Achromatic Interferometric Lithography	18
AOM	Modulateur acousto-optique	97
ARC	Revêtement antireflet	19
C-P	Casimir-Polder	13
CAT	Critical-Angle Transmission	20
CP2N	Centrale de Proximité en Nanotechnologies de Paris Nord	15
Deep RIE	Deep Reactive Ion Etching DRIE	20
DLD	Delay Line Detector ou détecteur à lignes à retard	92
EBL	Electron-beam lithography ou lithographie par faisceau électronique	53
e-beam	Electron beam lithography	55
EDI	Eau électrodéionisée	38
FIB	Focused Ion Beam ou faisceau d'ions focalisé	24
GDSII	Masque virtuel du résea sur un fichier au format GDSII	54
ICP	Inductively Coupled Plasma	72
II	Interference Lithography ou lithographie interférométrique	20
IPA	Isopropanol	56

Sigle	Définition	Page
ITO	L'oxyde d'indium-étain	49
KOH	Hydroxyde de potassium	19
LPCVD	Dépôts chimiques en phase vapeur à basse pression	27
MCP	Micro Channel Plate	92
MEB	Microscope Électronique à Balayage	42
MIT	Institut de Technologie du Massachusetts	18
MIBK	Méthylisobutylcétone	56
MOT	Magneto-Optical- Trap ou Piège Magnéto-Optique	91
OIA	Équipe Optique et Interférométrie Atomique	14
PMMA	Poly(methyl methacrylate) ou Poly-méthacrylate de méthyle	19
PE	Proximity effect ou effets de proximité	56
PEC	Proximity Effect Correction ou correction d'effet de proximité	62
PVD	Dépôt physique en phase vapeur par pulvérisation cathodique	49
RF	Radio Fréquence	80
RIE	Reaction Ion Etching	19
SOI	Silicon-On-Insulator	20
TMAH	Tetramethylammonium Hydroxide	38
UV-NIL	UV-Nano Imprint Lithography ou lithographie de nouvelle génération par nanoimpression assisté par des rayons UV	22
vdW	van der Waals	13
VUV	Vacuum Ultra Violet	22
XUV	Extrêmes ultraviolet	22

Table des matières

Introduction générale	13
I Nanotechnologies des nanoréseaux de diffraction	17
1 Etat de l'art	17
1.1 Lithographie interférométrique	18
1.2 Lithographie de nanoimpression assistée par UV	22
1.3 Structuration avec un faisceau d'ions focalisé (FIB)	24
1.4 Lithographie électronique et utilisation de masque dur en Or.	25
2 Modélisation et dimensionnement des réseaux	27
3 Procédé de fabrication à mettre en œuvre	30
II Conception des nanoréseaux en transmission	35
1 Réalisation de la membrane	36
1.1 Protection de la face avant du wafer	36
1.2 Gravure humide du Si par le KOH	38
1.2.1 Principe général	38
1.2.2 Mise en œuvre du protocole de la gravure de Si par gravure humide	39
a Détermination de la vitesse de gravure	39

	b	Détermination du volume de solution utile pour la libération de la membrane	43
1.3		Discussion	44
2		Réalisation des nanoréseaux en transmission	45
2.1		Dépôt de la couche d'aluminium	46
	2.1.1	Généralité sur la formation et la croissance d'une couche mince	46
	2.1.2	Dépôt par évaporation sous vide (effet Joule)	49
	2.1.3	Dépôt par pulvérisation cathodique (PVD)	49
	2.1.4	Comparatif des deux dépôts	50
2.2		Structuration de la surface par lithographie électronique	53
	2.2.1	Introduction	53
	2.2.2	Modélisation du masque GDSII	54
	2.2.3	Choix de la résine	55
	2.2.4	Interaction électron-matière et effet de proximité	56
	2.2.5	Écriture des motifs et résultats	58
	a	Paramètres d'exposition	58
	b	Lithographie électronique réalisée avec la dose de base	60
	2.2.6	Correction des effets de proximité PEC (Proximity Effect Correction)	62
	a	Introduction	62
	b	Détermination des paramètres de correction	63
	c	Application des paramètres de PEC sur le masque de conception	67
	d	Validation du NanoPECS	68
2.3		Gravure par plasma ICP (Inductively Coupled Plasma) de l'aluminium	72

2.3.1	Principe de la gravure ICP-RIE	72
2.3.2	Réalisation des motifs dans l'aluminium	74
2.3.3	Analyse et optimisation	74
a	Analyse des résultats	74
b	Optimisation de la gravure de la couche d'aluminium	77
2.4	Transfert des motifs dans le Si_3N_4	83
2.4.1	Gaz de gravure	83
2.4.2	Analyse des résultats	84
2.4.3	Coupe transverse du réseau	85
2.4.4	Procédé de gravure optimisé sur membrane	86

III Étude des interactions Casimir-Polder entre un jet d'atomes lent et la surface d'un réseau de fentes **89**

1	Montage expérimental de la diffraction atomique	91
1.1	Description générale	91
1.2	Jet atomique d'argon métastable supersonique	94
1.3	Ralentissement du jet supersonique	96
1.4	Piège magnéto-optique	97
1.5	Caractérisation du faisceau atomique pulsé	98
2	Mesure de la transmission pour la détermination de la géométrie du réseau . . .	101
2.1	Expérience à basse vitesse	102
2.2	Expérience à grande vitesse	103
3	Diffraction d'un jet atomique à travers un nanoréseau	104
3.1	Cohérence transverse d'un jet atomique	104
3.2	Approximation optique du calcul de la figure de diffraction	106
4	Calcul du potentiel d'interaction Casimir-Polder	107

4 . 1	Théorie de Lifshitz	108
4 . 2	Approximation d'additivité par paire	109
4 . 3	Déphasage induit par le potentiel vdW	111
5	Résultats d'expériences de diffraction atomique d'un nanoréseau	112
5 . 1	Expériences utilisant le jet lent	113
5 . 2	Expériences utilisant le jet thermique	114
5 . 3	Trajectoire des atomes dans le potentiel du nanoréseau	116
5 . 4	Corrélation des résultats de mesures avec les modèles théoriques de la figure de diffraction	117
5 . 5	Accord théorie-expérience pour le calcul du coefficient C_3 et discussion	120
	Conclusion générale	125
	A Calcul de la figure de diffraction	129
	Bibliographie	135

Introduction générale

L'observation de la figure d'interférence dans des expériences à double fente ou un réseau avec des particules massives est généralement considérée comme la démonstration ultime de la nature quantique de ces objets. Une telle interférence d'onde de matière a été observée pour les électrons [1], neutrons[2], atomes [3-4] et molécules [3-5]. Dans toutes ces expériences, les interactions attractives entre le réseau et la matière jouent un rôle important. Elles déterminent la population relative des ordres de diffraction et l'influence de la transmission globale à travers le réseau. De plus, elles conduisent à des décalages de phase substantiels. Par conséquent, une compréhension détaillée de ces interactions est d'une importance majeure pour la conception de toute nouvelle expérience.

Depuis quelques années, les études menées sur les interactions atome-surface (diélectrique ou métallique) se sont considérablement accélérées et présentent de nos jours des sujets d'actualité. Ces interactions appelées Casimir-Polder (C-P) dans le régime retardé (100 nm-1 μ m) ou van der Waals dans le régime non retardé (≤ 100 nm) sont produites par les fluctuations atomiques dipolaires et leurs fluctuations images à travers le matériau. En effet, lorsqu'un jet atomique passe à travers un nanoréseau en transmission, une figure de diffraction pourra se produire permettant ainsi la détermination du coefficient d'interaction de van der Waals C_3 lorsque le potentiel d'interaction s'exprime sous la forme de $V_{vdW} = -C_3/Z^3$ (régime non retardé), où Z est la distance atome-surface. L'expression de ce potentiel considère que l'atome perçoit la surface comme étant un plan semi-infini [6-7]. Pour un atome dans un niveau électronique li ,

le coefficient de vdW peut s'écrire :

$$C_3(|i\rangle) = \frac{1}{48\pi\epsilon_0 h} \sum_j |\langle i|D|j\rangle|^2$$

où la somme sur j désigne toutes les transitions des niveaux atomiques virtuelles permises et D est l'opérateur moment dipolaire électrique.

Plusieurs travaux ont été effectués par de nombreux scientifiques pour étudier ces interactions à des vitesses thermiques. Le groupe de D. E. Pritchard [8] par exemple a étudié la diffraction d'un faisceau atomique de Sodium dans des nanostructures périodiques d'or (pas de 200 nm) sur membrane. Tandis que J. Toennies [9] a étudié l'interaction d'un jet moléculaire de gaz rare à travers un nanoréseau de pas de 100 nm en nitrure de silicium. A. Cronin [10] quant à lui, a travaillé sur l'interaction d'atome de sodium avec une structure périodique de 100nm de pas en Si_3N_4 . Les différentes approches théoriques pour le calcul du coefficient C_3 et l'ensemble des expériences citées, ont permis d'avoir une grande différence entre les modèles et les mesures. Celle-ci est de l'ordre de 10%. Ce désaccord théorie-expérience peut être expliqué par de multiples raisons. Le premier argument est l'impossibilité de déterminer d'une manière précise et non destructive la géométrie de l'objet diffractant (particulièrement les barreaux des nanoréseaux). Le deuxième facteur est le temps court d'interaction ~ 0.1 ns quand l'atome traverse le réseau d'épaisseur ~ 50 nm à grande vitesse (vitesse thermique ~ 500 m/s).

Le groupe OIA (Optique et Interférométrie Atomique) de l'université Paris 13 (au sein duquel s'inscrit mon travail de thèse), s'intéresse à améliorer l'accord entre la théorie et l'expérience pour le calcul du coefficient C_3 en travaillant avec des vitesses plus faibles (20-150 m/s). En effet, il est évident que le temps d'interaction augmente quand la vitesse de l'atome diminue. De plus, l'interaction étant fortement attractive, elle devrait se traduire par un déphasage important de "l'onde atomique". Les trajectoires et les vitesses sont beaucoup plus perturbées. On peut espérer aussi avoir plus d'information sur le potentiel de V_{vdW} .

Les expériences réalisées par l'équipe consistent à placer les nanoréseaux de fentes de pas

100 nm et d'ouverture 65 nm [11] fabriqués au Massachusetts Institute of Technology (MIT) sur un faisceau d'argon métastable en vol libre à vitesse lente contrôlée [12]. Les paramètres de longueurs d'onde atomique (vitesse du faisceau) et de taille de fente (pas du réseau) permettent d'étudier avec précision le coefficient de van der Waals (C_3). L'objectif principal de la thèse est la fabrication de nanoréseaux en transmission avec une détermination fine de leurs géométries. Ces structures périodiques, avec un pas de réseau allant de 50 nm à quelques μm , sont réalisées avec la lithographie par faisceau d'électrons et par un transfert par gravure sèche dans un masque en aluminium dans la Centrale de Proximité en Nanotechnologies de Paris Nord (CP2N). Cette technique de fabrication permet d'avoir une grande flexibilité sur la variation du pas de réseau.

Dans cette thèse, je présente mes travaux de fabrication des réseaux en transmission réalisés dans l'équipe OIA. Ils seront exploités dans des expériences avec le jet lent d'atomes d'argon métastables.

L'objet du premier chapitre est d'établir un état de l'art sur les différentes techniques de fabrication des nanoréseaux en transmission rapportées dans la littérature ainsi que leurs domaines d'applications, discuter ensuite de la modélisation de ces structures périodiques face à nos attentes scientifiques et du process réalisable durant la thèse.

Le deuxième chapitre est consacré à la fabrication des nanoréseaux de diffraction par des techniques top-down. Il se décompose en deux parties. La première est dédiée à la libération de la matière pour la création de la membrane tandis que la seconde est destinée à la réalisation de motifs de fentes gravés dans la membrane. Je vais présenter également les résultats obtenus pendant la conception de ces réseaux avec une analyse détaillée.

Le dernier chapitre concerne les expériences menées sur l'étude de l'interaction atome-surface avec un ancien réseau fabriqué par la lithographie interférométrique. D'abord une introduction sur la production du jet lent d'atome d'argon, du dispositif expérimental et du système de détection du signal est réalisée. Ensuite, nous allons présenter les résultats de mesures de la transmission atomique pour déterminer la taille du nanoréseau utilisé. A la fin, nous allons

décrire la méthode de calcul de la figure de diffraction à une et deux fentes et du coefficient C_3 .

Chapitre I

Nanotechnologies des nanoréseaux de diffraction

Avant d'entrer dans le vif du sujet, il est important de décrire les principaux procédés de fabrication de nanoréseaux en transmission existant dans la littérature. Nous détaillons par la suite notre propre procédé développé durant ce travail et nous précisons les dimensions des structures qui nous intéressent.

1 Etat de l'art

Depuis le début des années 2000, les réseaux nanométriques ont de nombreuses applications (existantes) telles que la diffraction et l'interférométrie atomique [11,13], la spectroscopie des rayons X et X mous en astrophysique, la spectroscopie dans l'ultraviolet sous vide (VUV) [14], et les réseaux d'émetteurs de champ pour écrans plats [15]. Ces réseaux ont été conçus par différentes techniques que nous allons décrire dans cette section.

1.1 Lithographie interférométrique

La première méthode de conception des nanoréseaux sur membrane que nous allons évoquer est la lithographie interférométrique achromatique AIL (Achromatic Interferometric Lithography). Cette technique a vu le jour à l'Institut de Technologie du Massachusetts (MIT) à Cambridge dans les années 90 où l'exposition proposée par T.A. Savas est réalisée par interférences en configuration de type Mach-Zehnder [11]. Le montage expérimental nécessite l'usage d'un laser en continu de fluorure d'argon (ArF) de longueur d'onde $\lambda_{ArF} = 193 \text{ nm}$ pour atteindre des traits à l'échelle nanométrique. Ce laser permet la formation d'une onde stationnaire pour laquelle des améliorations ont été faites pour améliorer la cohérence spatiale et temporelle (du faisceau) ainsi que la stabilité de la puissance optique principalement pour des longueurs d'onde inférieures à 250 nm. La figure I.1 [11] montre le montage expérimental d'écriture des motifs de période 100 nm dans la résine.

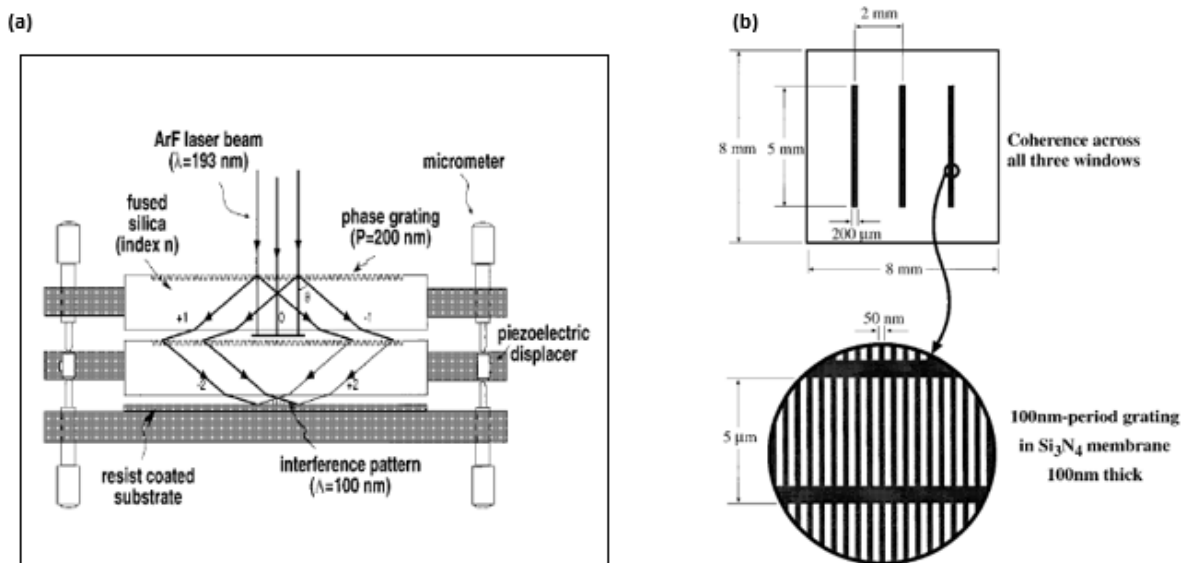


FIGURE I.1 – (a) Schéma de la configuration AIL utilisée pour exposer des réseaux de période 100 nm. (b) Dimension des réseaux à fabriquer [11].

La période spatiale de l'onde stationnaire P définit donc la périodicité du réseau. Celle-ci

vaut :

$$P = \frac{\lambda_{ARF}}{2\sin\theta}$$

où $\theta \simeq \pi/2$ est le demi-angle entre les faisceaux qui interfèrent (incidence rasante).

Comme le montre la figure I.1 (a), les deux réseaux de phase identiques ont une période de 200 nm. Le premier réseau divise la lumière en faisceaux d'ordre 0 et d'ordre 1,-1. Le faisceau d'ordre zéro est bloqué et les deux faisceaux du premier ordre sont autorisés à se propager vers le second réseau. Le deuxième réseau recombine les faisceaux du premier ordre par diffraction du second ordre. Les faisceaux exposent la résine qui était déposée sur le substrat de Si_3N_4 qui se situe au fond du montage. Le motif résultant par AIL a une périodicité correspondant à la moitié de la période des réseaux de phase (100nm). La réalisation de ces structures nanométriques se décompose en plusieurs étapes (cf. figure I.2) :

- Exposition AIL de la résine poly-méthacrylate de méthyle (PMMA) déposée sur un revêtement antireflet (ARC) utilisé pour réduire la réflexion de la lumière à la surface du substrat.
- Lithographie UV profonde pour la création des systèmes de supports des barreaux.
- Développement de la résine PMMA et dépôt d'une fine couche de métal sur les motifs en reliefs.
- Gravure RIE (Reaction Ion Etching) de la couche d'ARC avec de l'oxygène
- Transfert des motifs dans le Si_3N_4 grâce à une deuxième gravure RIE avec le gaz de tétrafluorure de carbone CF_4
- Gravure Humide de substrat du silicium à base de la solution d'hydroxyde de potassium (KOH) pour la création de la membrane.

Ces réseaux fabriqués par AIL ont trouvé leurs applications en physique atomique dans les équipes de J. P. Toennies de l'institut Max-Planck à Göttingen et de D.E. Pritchard du Laboratoire de recherche en électronique au MIT pour étudier les interactions de van der Waals entre

des atomes d'hélium et la surface des barreaux [3-16-17].

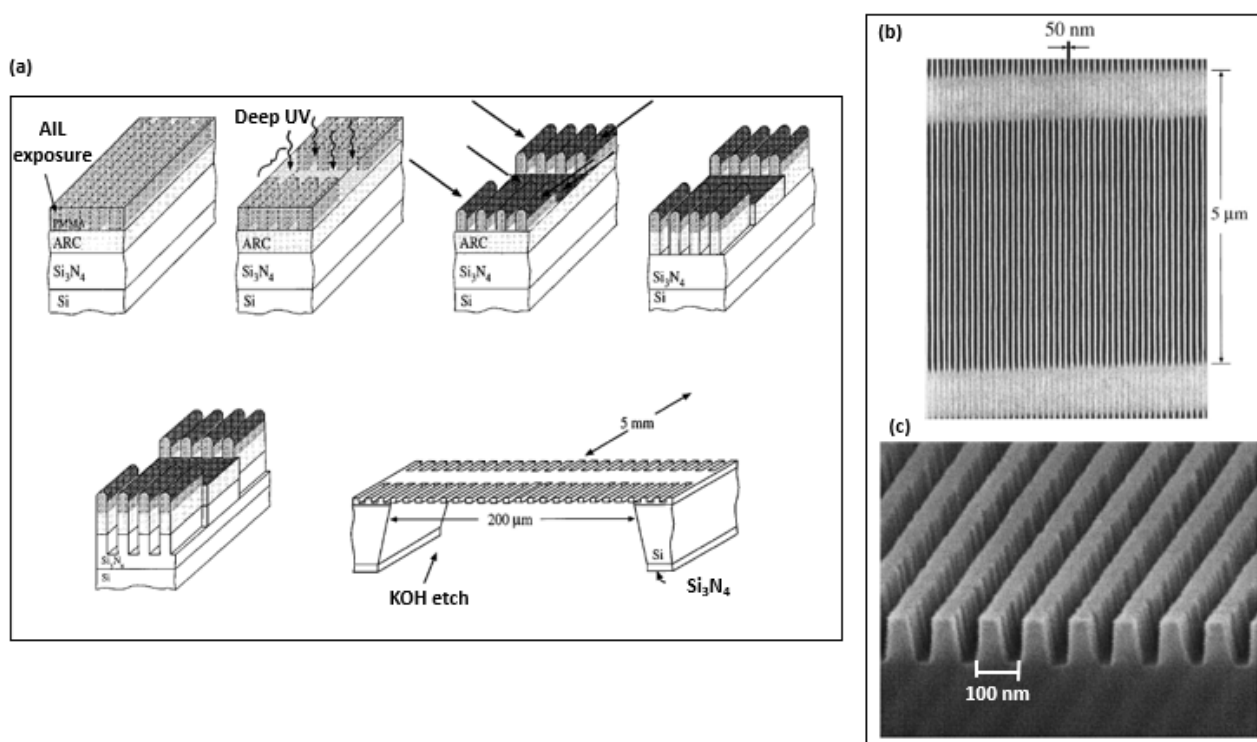


FIGURE I.2 – (a) Schéma des étapes de fabrication des structures périodiques sur membranes avec des systèmes de support. (b) Vue de dessus du réseau. (c) Vue en coupe du profil trapézoïdale des barreaux [11].

En parallèle, le groupe de K. Heilmann dans le même institut (MIT) s'est intéressé à réaliser des réseaux de diffraction appelés CAT (Critical-Angle Transmission) à base de silicium sur isolant (SOI : Silicon-on-Insulator) sur une grande surface de $30 \times 30 \text{ mm}^2$ (voir $60 \times 60 \text{ mm}^2$) qui ressemblent à ceux fabriqués par Savas. Ils ont été fabriqués par la technique de lithographie interférométrique (IL : Interference Lithography) suivie d'une gravure Deep RIE (Deep Reactive Ion Etching DRIE) permettant de transférer les motifs dans le SOI. Ce groupe a également utilisé une gravure humide à base de la solution KOH (dernière étape de fabrication) pour obtenir des flancs avec une rugosité faible. Ces structures (pas de 200 nm, profondeur des barreaux de 4-10 μm) sont décrites comme des réseaux de transmission et de réflexion biaisés permettant

d'avoir une facilité d'alignement et une efficacité de diffraction plus élevée [18-19].

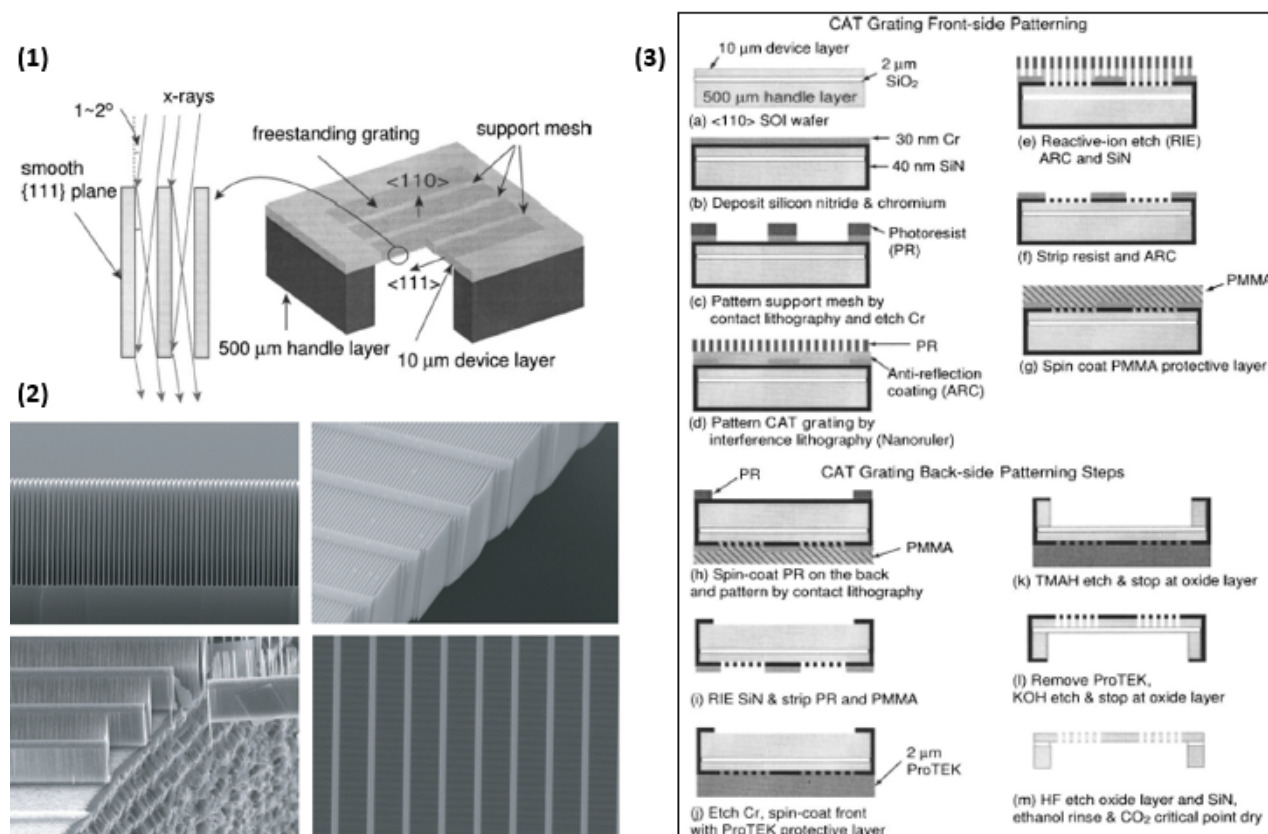


FIGURE I.3 – (1) Principe de la diffraction des rayons X à travers le réseau de transmission à angle critique. Les rayons X entrants en incidence rasante seront fortement diffractés en raison de la réflexion externe totale sur les flancs lisses. (2) Images MEB du réseau CAT à base du silicium monocristallin (110). (3) Étapes de fabrications des réseaux CAT [18-19].

Les réseaux CAT ont été utilisés pour la construction des spectromètres spatiaux à rayons X de haute résolution [20]. Ce type de spectromètre est l'outil idéal pour répondre à un certain nombre de questions scientifiques telles que la connexion entre les trous noirs super-massifs et la structure à grande échelle via le retour d'information cosmique, l'évolution de la structure à grande échelle, le comportement de la matière à haute densité et les conditions proches des trous noirs. ces réseaux promettent des rendements de diffraction élevés et une capacité de flambage élevée, comparables aux conceptions de réseau de réflexion les plus avancées.

1 . 2 Lithographie de nanoimpression assistée par UV

L'équipe de S.J. Goh aux Pays-Bas s'est également intéressée à fabriquer des réseaux de transmission de haute résolution, applicables à la spectroscopie dans la gamme des extrêmes ultraviolets XUV (10 -100 nm) [21]. Les spectromètres XUV basés sur des réseaux de transmission ont deux avantages majeurs. Le premier est la facilité d'alignement à l'incidence normale par rapport aux réseaux en réflexion utilisant l'incidence rasante. Le deuxième concerne la densité spectrale transmise qui est pratiquement indépendante de la longueur d'onde, ce qui facilite l'étalonnage.

La technique appliquée pour la conception de ces réseaux par ce groupe de chercheur est la lithographie de nouvelle génération par nanoimpression assisté par des rayons UV (UV-NIL : UV-Nano Imprint Lithography). Cette méthode a été choisie pour avoir une grande résolution et des structures nanométriques reproductibles. Elle est rapide et simple à mettre en œuvre. Son principe repose sur l'utilisation d'un moule transparent en quartz et une résine photosensible très fluide à température ambiante. En effet, la résine - grâce à sa fluidité - remplit les cavités du moule lorsqu'ils sont mis en contact à une faible force (5 N). Elle est ensuite exposée au rayonnement UV (pendant environ 3 secondes), ce qui entraîne sa photo-polymérisation. A l'aide d'une gravure RIE, la couche de résine résiduelle située au fond des motifs est supprimée après la séparation du moule et du substrat (voir figure I.4).

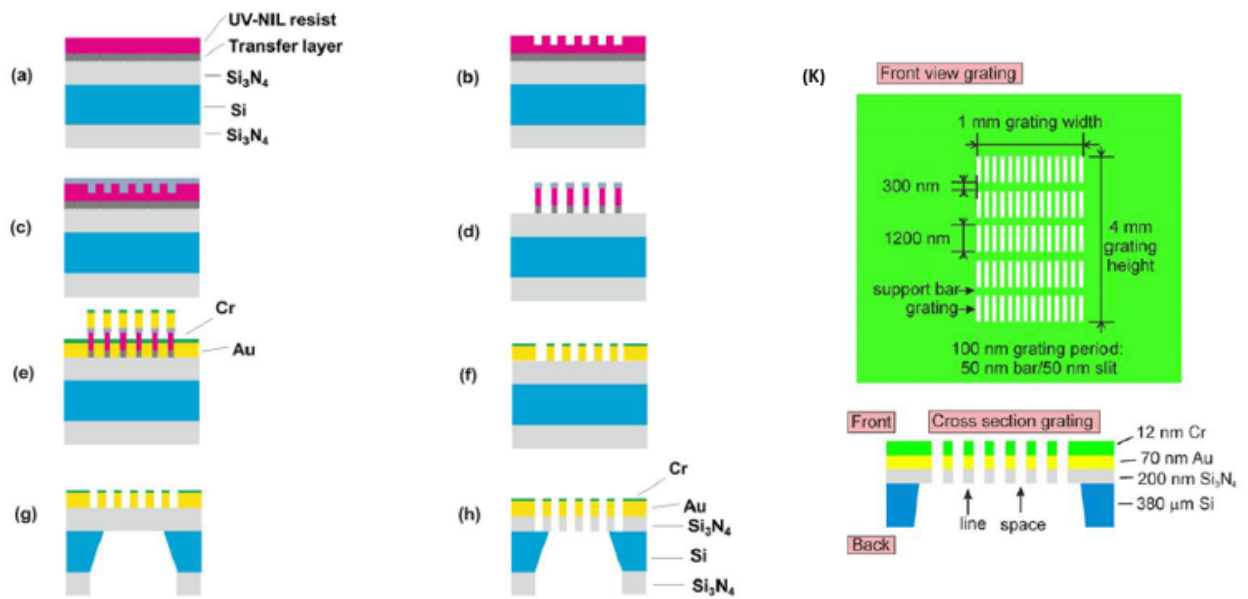


FIGURE I.4 – Processus de fabrication des réseaux en transmission. (a) Dépôt de Si_3N_4 et de la résine à imprimer sur le silicium, (b) lithographie UV-NIL pour la définition de motifs hautes résolutions, (c) planarisation par gravure RIE de la couche supérieure, (d) transfert du motif sur le Si_3N_4 par gravure RIE, (e) dépôt des couches d’Au et de Cr par évaporation, (f) lift-off pour former le masque dur de gravure, (g) lithographie optique et structuration du Si_3N_4 sur la face arrière suivie d’une gravure humide pour la libération de la membrane, (h) définition du réseau dans la couche de nitrure de silicium à l’aide d’une gravure RIE, (k) vue de dessus du nanoréseau de diffraction [21].

Les travaux publiés dans l’article [21] prédisent que la caractérisation d’une source de lumière XUV qui émet entre 6,8 et 13 nm nécessite l’utilisation de réseaux extrêmement denses en raison de la courte longueur d’onde. D’où l’intérêt de fabriquer des réseaux sur des membranes d’épaisseur 282 nm en Si_3N_4 (200 nm de Si_3N_4 , 70 nm de Au et 12 nm du Cr) sur des grandes surfaces de $1 \times 4 \text{ mm}^2$ (10 000 lignes par mm) avec des périodes de l’ordre de 100 nm (pour obtenir une résolution d’au moins quelques dixièmes de nm) [21].

1.3 Structuration avec un faisceau d'ions focalisé (FIB)

Le groupe de Markus Arndt quant à lui utilise le faisceau ionique focalisé (FIB : Focused Ion Beam) pour réaliser des nanoréseaux de diffraction en nitrure de silicium suspendus sur membrane [22]. Cette technique de lithographie lui a permis d'avoir des structures de résolution supérieure à celle des rayons X ou UV car elle utilise des particules plus lourdes de gallium (à 35 Kv) qui ont plus de quantité de mouvement. De plus, le faisceau ionique a une longueur d'onde très petite ($< \text{p\AA}$) ce qui lui confère pratiquement aucune diffraction. Outre le fait que la diffraction est négligeable, les ions se déplacent dans des trajectoires plus droites à la fois via le vide et via la matière à exposer, de sorte qu'il semble exister un potentiel de résolution très élevé. Les particules secondaires (électrons et atomes) ont une très courte portée, en raison de la faible vitesse des ions.

Cette équipe a réussi à fabriquer des réseaux périodiques de pas 100 nm avec plusieurs ouvertures allant de 44 jusqu'à 84 nm dans une membrane mince de 10 nm de profondeur. Elle s'intéresse à l'étude des interactions de Casimir-Polder entre un faisceau moléculaire de Phtalocyanine Pch₂ et/ou son dérivée F24Pch notamment dans la détermination du coefficient d'interaction C_3 à des vitesses de l'ordre 215 m/s [23-24]. La figure I.5 présente le montage expérimental.

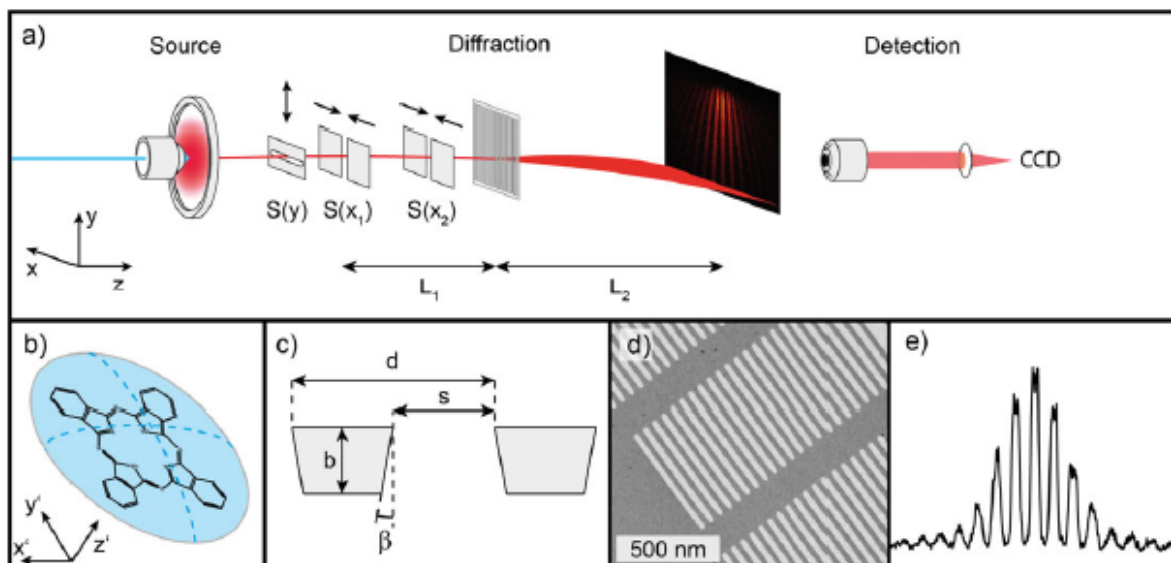


FIGURE I.5 – (a) Évaporation des molécules par une diode laser bleu. Les fentes en amont sont introduites pour l'amélioration de la cohérence spatiale du jet moléculaire. (b) Molécule de Pthalocyanine PCH₂ utilisée dans cette étude. (c) Profil trapézoïdal du réseau nanométrique. (d) Image MEB du réseau de diffraction. (e) Figure d'interférence résultante après la traversée du jet moléculaire dans la structure contenant la diffraction par deux fentes plus les interactions de Casimir-Polder [24].

1.4 Lithographie électronique et utilisation de masque dur en Or.

Un autre procédé de fabrication a été mis au point pour la fabrication des réseaux en transmission en nitrure de silicium et en or par J.Rooks [13] et D.E. Pritchard [8]. Ces structures ont été utilisées pour la construction d'un premier interféromètre atomique, qui emploie trois réseaux comme séparateurs de faisceaux cohérents d'ondes d'atomes. La figure I.6 montre les figures de diffractions obtenues lors de l'interaction des atomes d'He avec les barreaux. Ces réseaux de pas de 200 nm sur une surface de $120 \times 500 \mu\text{m}^2$ ont été réalisés avec la lithographie électronique.

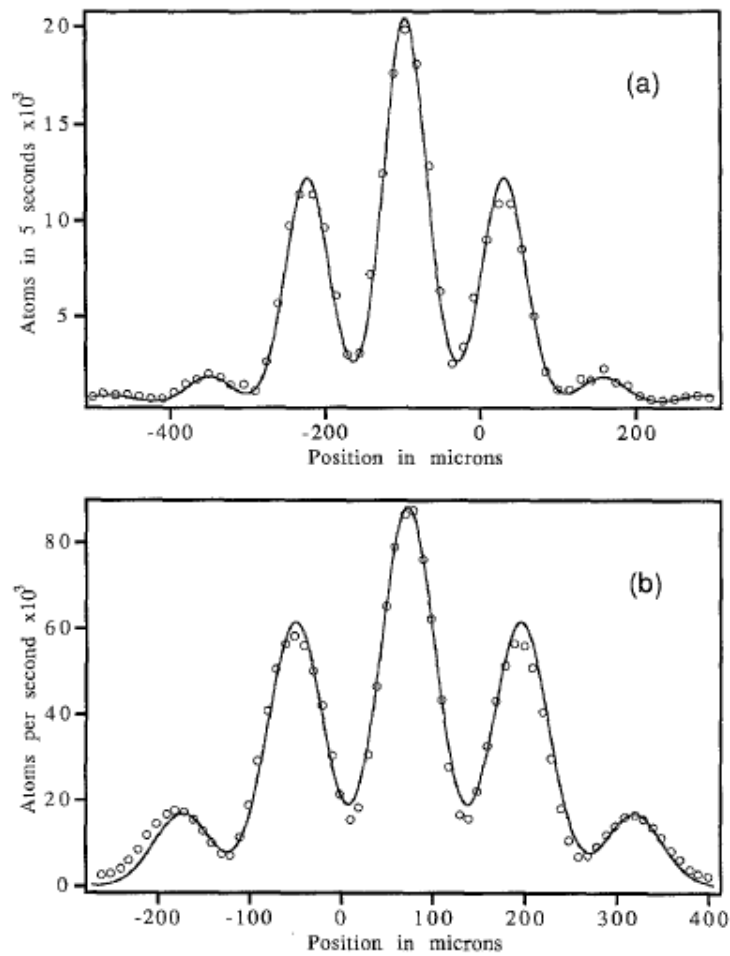


FIGURE I.6 – Diffraction d'un faisceau atomique à partir d'un réseau périodique de 200 nm. (a) en Or, (b) en Si_3N_4 [8].

Le processus de fabrication des réseaux comprend trois étapes (figure I.7). Premièrement, de fines fenêtres de membrane en Si_3N_4 sont construites sur un wafer de silicium. Les membranes sont ensuite recouvertes par la résine électrosensible polyméthacrylate de méthyle (PMMA), qui sera exposée par la suite par un faisceau électronique à une tension de 50 KV. Enfin, le motif structuré est transféré dans la couche de nitrure de silicium par une gravure RIE. Pendant la conception de ces structures périodiques, ils ont rencontré deux principales difficultés qui sont les distorsions dues au chargement de la PMMA pendant l'écriture par faisceau d'électron et la sélectivité de gravure insuffisante du masque de PMMA par rapport au Si_3N_4 .

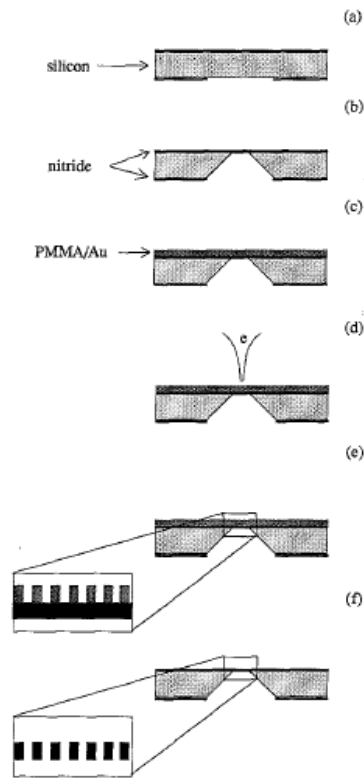


FIGURE I.7 – Étape de construction d’un réseau en transmission en nitrure de silicium.(a) Dépôts des couches de Si_3N_4 sur les deux faces de wafer de silicium par LPCVD (Dépôts chimiques en phase vapeur à basse pression) puis réalisation d’une fenêtre carré grâce à une photolithographie UV suivie d’une gravure RIE. (b) Gravure chimique dans la solution KOH pour la création de la membrane. (c) Dépôt de 170 nm d’une couche de PMMA plus un dépôt d’un film mince d’or (15 nm). (d) Exposition de la résine avec e-beam à 50 KeV. (e) Gravure RIE de la couche en or suivi d’un développement de la résine. Transfert des motifs dans le nitrure par gravure RIE [13].

2 Modélisation et dimensionnement des réseaux

L’étude des interactions de Casimir-Polder autrement dit van der Waals entre un atome et la surface d’un réseau en transmission effectuée par notre équipe utilise un jet atomique métastable d’argon ralenti (cf. chapitre 3). Lorsque les atomes passent à travers les ouvertures du réseau, une figure de diffraction se produit permettant ainsi la détermination avec précision de la loi qui donne le potentiel d’interaction de C_3/Z^3 (régime non retardé) à C_4/Z^4 (régime retardé) avec

des distances contrôlées. Le calcul de la diffraction sera rapporté et détaillé dans le chapitre III. La figure I.8 présente un exemple de calcul des courbes de diffraction obtenues à travers deux réseaux d'ouvertures différentes.

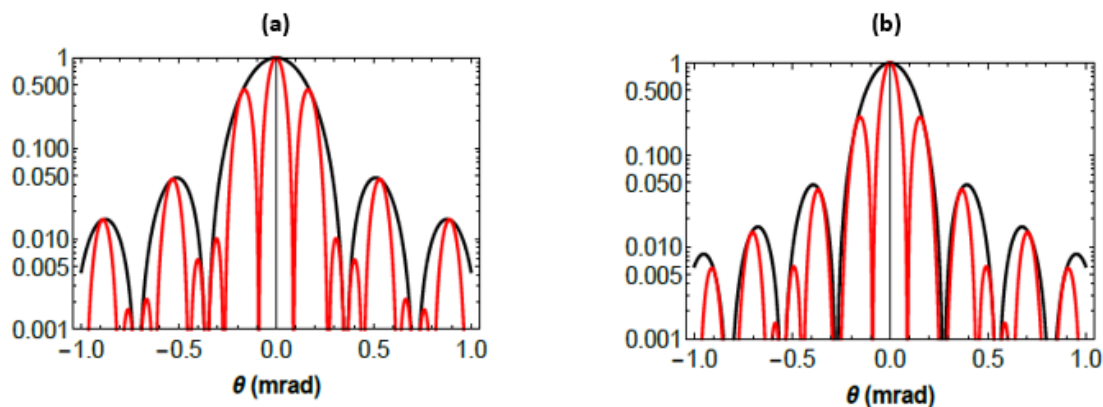


FIGURE I.8 – Figures de diffraction théoriques au travers des réseaux de pas de 100 nm et d'ouverture de : (a) 50 nm, (b) 65 nm en échelle logarithmique sans la contribution de vdW. La courbe noire présente la diffraction à une fente. La courbe rouge montre la diffraction à deux fentes.

Les figures de diffraction présentées ci-dessus ne peuvent être observées que si la longueur d'onde de de Broglie est de l'ordre de 0.1-0.5 nm puisque nous travaillons à basse vitesse (20-100 m/s). Cela veut dire, que le rayon de cohérence - la capacité de l'onde atomique de produire des figures de diffraction avec des interférences - de la source d'atome d'argon est du même ordre de grandeur que le pas de réseau (quelques centaines de nanomètres) (voir tableau I.1). Dans cette approche, nous avons défini les dimensions des réseaux de fentes que nous allons fabriquer pour les études des interactions de vdW.

Le rayon de cohérence théorique est calculé à partir de la relation :

$$R_c \approx 0.257 \frac{\lambda_{dB} D}{r} \quad (I.1)$$

où D est la distance du plan d'observation par rapport la source, r le rayon de la source et λ_{dB} est la longueur d'onde de de Broglie. La cohérence du jet sera détaillée dans le chapitre 3 de ce

Vitesse	λ_{dB}	r	l_c	R_c à D = 50 cm
250 m/s	0.04 nm	210 μm	0.8 nm	24 nm
100 m/s	0.1 nm	150 μm	3 nm	90 nm
20 m/s	0.5 nm	150 μm	17 nm	430 nm

TABLE I.1 – Rayon et longueur de cohérence (R_c et l_c respectivement) du gaz d'Ar* utilisées à différentes vitesses (Le calcul de R_c est reporté dans le chapitre III). Le rayon de la source correspond au rayon du nuage d'atomes piégés dans le piège magnéto-optique pour le jet lent.

manuscrit.

La conception des nanoréseaux de fentes membranaires de $1 \times 1 \text{ mm}^2$ en nitrure de silicium est réalisée avec la technique de lithographie électronique. La surface totale du réseau ne doit pas être importante car la membrane deviendra fragile et le temps d'écriture des motifs long. Elle ne doit pas être trop faible également sinon on perdra en terme de flux atomique au travers le réseau. Nous avons donc choisi une surface de $400 \mu\text{m} \times 960 \mu\text{m}$. De même, la périodicité des réseaux sera comprise entre 100 et 500 nm pour étudier les interactions atome-surface dans les deux régimes (retardé et non retardé). La longueur des barreaux sera définie à $1 \mu\text{m}$ et le nombre de fentes global sur une telle surface est égale à 720 000. Des systèmes de support fin et grossier sont également réalisés pour assurer la rigidité de la membrane. La figure I.9 présente un aperçu général d'un réseau membranaire constitué de fentes parallèles.

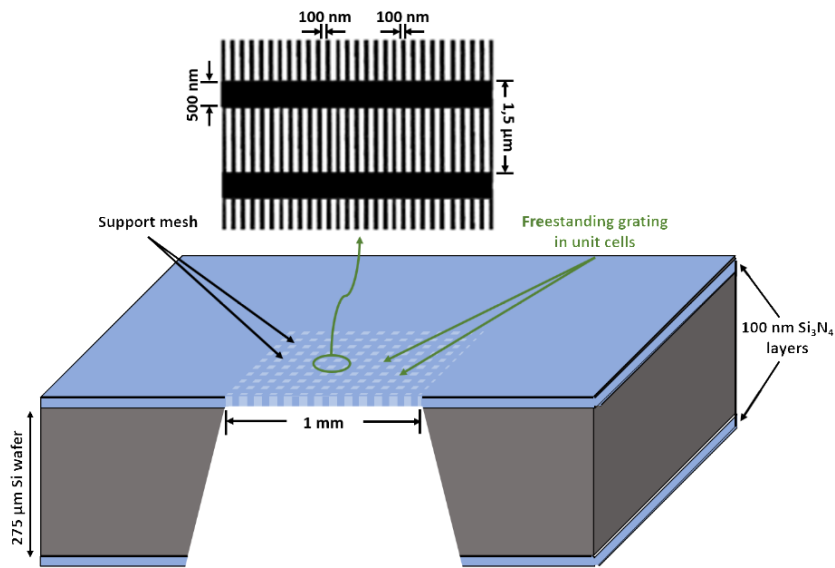


FIGURE I.9 – Schéma d'un réseau de diffraction suspendu sur membrane de pas de 200nm.

3 Procédé de fabrication à mettre en œuvre

Dans le cadre de ce travail, nous avons développé un procédé de fabrication de nanoréseau de fentes sur membrane en nitrure de silicium (Si_3N_4) au sein de la Centrale de Proximité en Nanotechnologies de Paris Nord (CP2N). Nous avons utilisé des wafers de silicium $\langle 100 \rangle$ (d'épaisseur 275 μm) sur lesquels des couches de Si_3N_4 (d'épaisseur 100 nm) ont été déposées sur les deux faces. Les nanoréseaux de fentes sont réalisés sur la face avant du wafer tandis que la création de la membrane se fait sur la face arrière. Ces wafers sont fabriqués par la société Siltronic et la nitruration a été effectuée par un dépôt chimique en phase vapeur (LPCVD : Low Pressure Chemical Vapor Deposition). La réalisation de ces nanoréseaux sur membrane se décompose en deux parties distinctes (voir figure I.10).

Nous avons deux possibilités pour la fabrication des nanoréseaux en transmission. La première méthode consiste à créer d'abord une membrane, ensuite réaliser les réseaux sur l'autre face du wafer. Tandis que la deuxième méthode repose sur la réalisation des réseaux puis la

libération de la matière pour créer la membrane. Nous avons opté pour la première méthode pour obtenir une flexibilité sur la forme et les dimensions de la membrane.

La première partie consiste à créer une membrane sur la face arrière du wafer à l'aide de la gravure humide. Ce procédé comporte six étapes :

- Préparation des substrats : Pour enlever tout élément macroscopique visible ou non tel que des fibres, particules libres ou poussière de la surface d'un substrat, un nettoyage aux ultrasons dans différents bains de solvants (10 minutes acétone + 10 minutes isopropanol) est appliqué ;
- Dépôt de 1.8 μm de la résine photosensible AZ1518 par la technique spin coating. La résine subit ensuite un recuit à 100°C sur plaque chauffante pendant une minute afin d'améliorer l'adhésion de la résine sur le substrat ;
- Insolation de la résine à des rayons Ultraviolets : L'échantillon est ensuite insolé pendant 9 secondes avec une intensité de 19 mW/cm^2 . Le motif que l'on souhaite transposer est une ouverture carrée de 1x1 mm^2 dessinée sur un masque en chrome déposé sur une plaque de quartz ;
- Développement de la résine dans le développeur AZ351 : Le développement dure 30 secondes. Il est suivi d'un rinçage à l'eau désionisée (EDI) et d'un deuxième recuit au four (à 75°C) qui permet d'augmenter la stabilité de l'image et l'adhésion. Le recuit augmente aussi la résistance à la gravure par plasma et à la gravure chimique ;
- Gravure sèche de type ICP-RIE du Si_3N_4 : Pour transférer le motif dans le Si_3N_4 , une gravure plasma est réalisée pendant 35 secondes en utilisant les gaz CHF_3 et O_2 ;
- Gravure chimique du silicium : L'échantillon est mis dans la solution d'hydroxyde de potassium (KOH) pour libérer une membrane (cette partie sera détaillée dans le chapitre II paragraphe 1.2).

La deuxième partie a pour but de réaliser la structuration des nanoréseaux de fentes sur membrane. Cette partie du process est aussi composée de sept étapes :

- Dépôt d'une couche d'aluminium (Al) de 60 nm sur la face avant de l'échantillon ;
- Dépôt de résine électrosensible PMMA (poly méthacrylate de méthyle) sur l'Al par spin coating. La tournette est programmée à une vitesse de 3000 tours/minute pour déposer une couche qui varie entre 160 et 190 nm de PMMA. Ensuite, on procède à un recuit sur une plaque chauffante à 180°C pendant 1 min 30s ;
- Lithographie électronique pour écrire les structures souhaitées dans la résine PMMA ;
- Développement de la résine dans le MIBK/IPA pendant 1 min 30s suivi d'une immersion dans l'isopropanol pendant 1 minute pour arrêter le développement ;
- 1^{ère} gravure plasma pour le transfert des motifs dans la couche d'aluminium ;
- 2^{ème} gravure plasma pour la structuration du réseau de fentes dans la couche de nitrure de silicium ;
- Suppression de la couche d'Al par gravure humide à base d'une solution composée de trois acides (voir chapitre II.2.4.2).

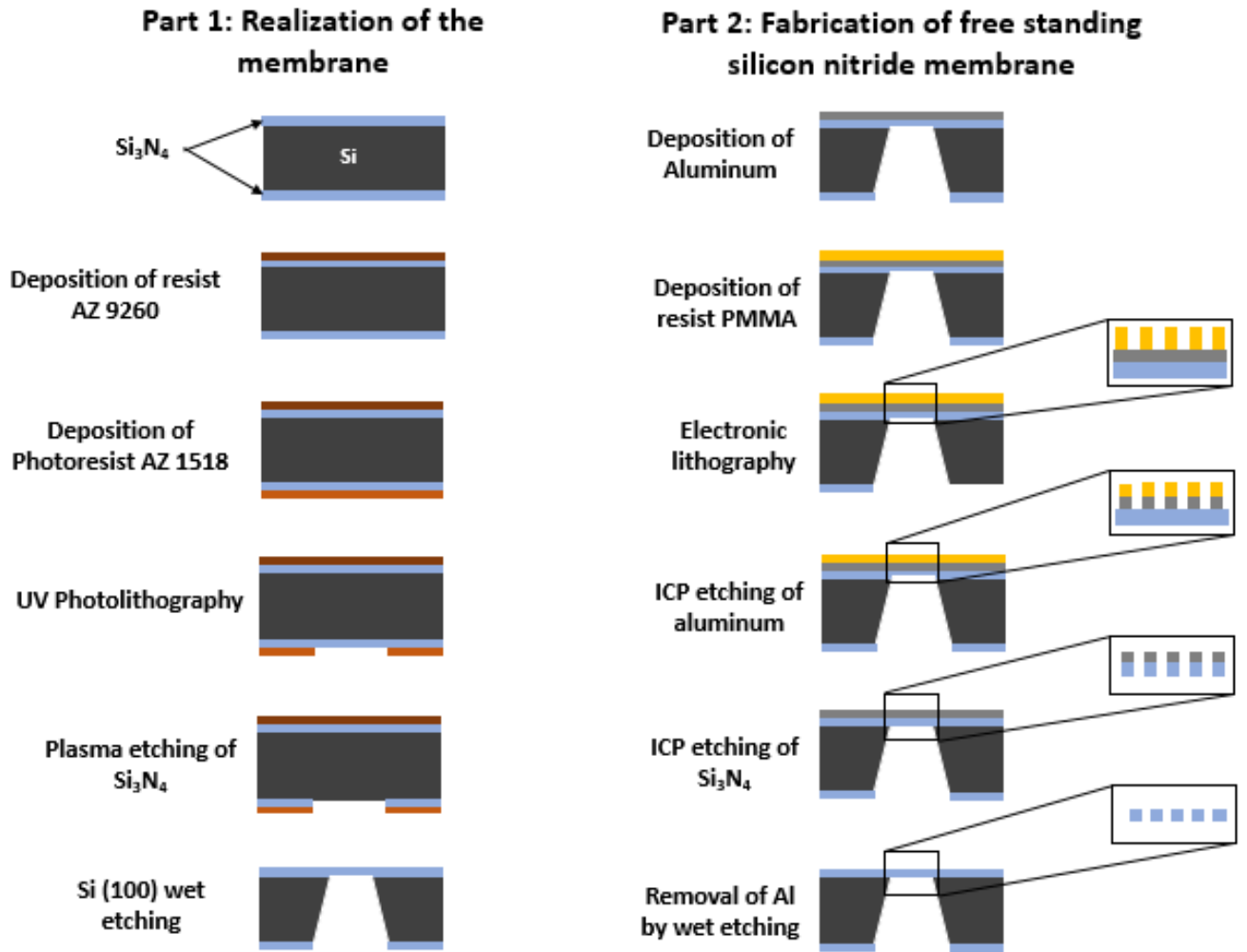


FIGURE I.10 – Différentes étapes de la fabrication du nanoréseau de fentes sur membrane en nitrure de silicium.

Le principal défi de cette thèse est de réussir à réaliser des réseaux de diffraction à l'échelle nanométrique en se basant sur le procédé discuté dans cette section. Pour cela, dans notre démarche, nous avons mené des séries d'expériences pour essayer de résoudre les problèmes rencontrés et proposer des optimisations sur l'uniformité des dimensions et la corrugation en bord de fentes.

Chapitre II

Conception des nanoréseaux en transmission

Nous avons vu précédemment les différentes techniques employées pour la réalisation des nanoréseaux en transmission, notamment un aperçu sur le procédé de fabrication que nous avons adopté dans la section 3 du premier chapitre. Dans le présent chapitre, nous décrirons d'abord l'étape de la libération de la membrane en utilisant une gravure humide. Ensuite, nous détaillerons le procédé de la lithographie électronique pour obtenir des réseaux de motifs de fentes parallèles dans la résine avec des diamètres de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres. Nous évoquerons également l'étape de transfert de ces motifs dans le nitrure de silicium, par gravure sèche ICP-RIE. Enfin, nous analyserons l'ensemble des solutions suivies afin d'optimiser toutes les étapes de réalisations de ces nanostructures.

1 Réalisation de la membrane

1.1 Protection de la face avant du wafer

Pour réaliser des structures de fentes à l'échelle nanométrique sur la face avant de l'échantillon, il faut protéger cette face contre tout type de dégradation qu'elle peut subir pendant la gravure humide. Pour cela, les résines de protection doivent avoir une grande viscosité pour obtenir des couches plus épaisses (d'environ 10 – 16 μm). Dans ce travail, la résine AZ9260 a été choisie comme couche protectrice de la face avant de l'échantillon. Cette couche d'épaisseur 10 μm a été déposée sur la couche de nitrure du silicium (face avant) à une vitesse de tournette égale à 2400 tours/minute. Le dépôt est réalisé pendant 1 minute et 20 secondes. Afin d'atteindre la vitesse souhaitée, le dépôt a subi une phase d'accélération de 19 secondes. Le substrat a été ensuite chauffé à 110°C pendant 2 min 45s (sur une plaque chauffante) afin d'évaporer les solvants. La figure II.1 montre les différentes épaisseurs déposées obtenues pour l'AZ9260 à différentes vitesses de tournette.

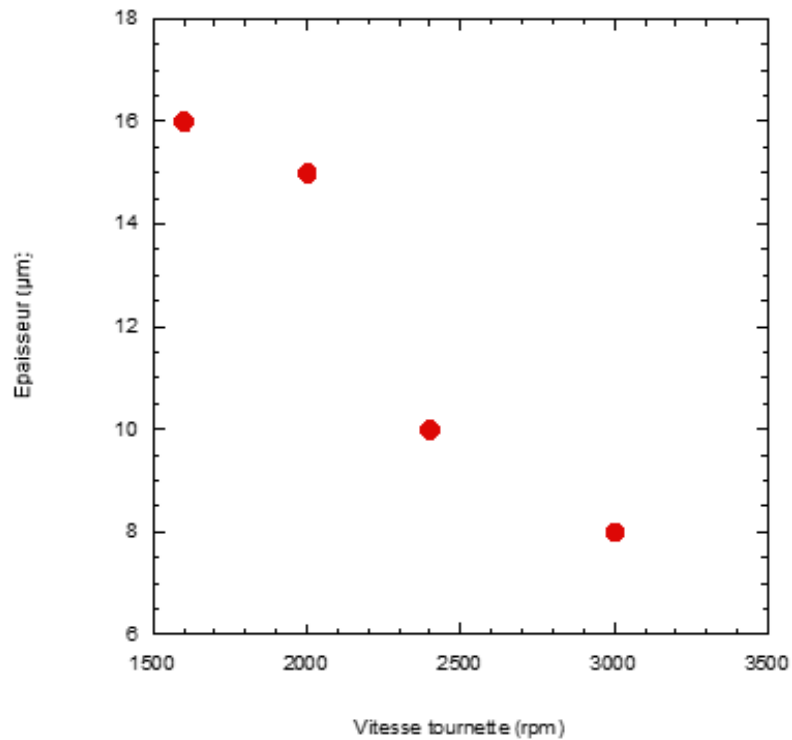


FIGURE II.1 – Courbe d'épaisseur de la résine AZ9260 en fonction de différentes vitesses de dépôt.

Une autre couche de résine AZ1518 a été déposée cette fois sur la face arrière de l'échantillon. Puis, une photolithographie UV a été réalisée sur cette résine afin d'ouvrir une fenêtre carrée dans la couche de masquage. Enfin, l'échantillon a été mis dans le four à 75°C pendant 20 heures. Cette cuisson au four, permet de durcir les deux résines (en volume) et les rendre plus résistantes aux attaques de la solution de gravure.

1.2 Gravure humide du Si par le KOH

1.2.1 Principe général

La gravure humide anisotrope du silicium, dont la vitesse varie selon les directions cristallographiques, est utilisée dans la technologie de fabrication des dispositifs micrométriques depuis les années 1950. Nous l'avons utilisée dans ce travail pour réaliser des membranes carrées. Les solutions de gravure sont nombreuses telles que la potasse (KOH), le TMAH et l'EDP [25]. Nous avons choisi de travailler avec le KOH de concentration 30% car il permet d'avoir une gravure avec une anisotropie satisfaisante et une vitesse de gravure du Si plus élevée par rapport aux autres solutions de gravure (voir le tableau II.1).

Solution de gravure	Vitesses de gravure		Anisotropie
	Si(100)	Si_3N_4	
KOH 30% (80°C)	630 nm/min	<1 Å/min	Faible
TMAH 25% (80°C)	600 nm/min	<1 Å/min	Faible
EDP (115°C)	1 nm/min	1 Å/min	Faible

TABLE II.1 – Taux de gravure théorique du silicium et la couche de masquage en Si_3N_4 dans différentes solutions de gravure [25].

Les membranes carrées sont obtenues à partir d'un substrat de Si orienté (100) recouvert par une couche de masquage en Si_3N_4 (100 nm d'épaisseur, face arrière de l'échantillon). La vitesse de gravure du nitrure de silicium est beaucoup plus faible que celle du silicium (tableau II.1). C'est pour cette raison que le Si_3N_4 déposé sur la face arrière du wafer de Si a été choisi comme couche protectrice. La sélectivité de gravure est donc élevée, nous l'avons estimée à plus de 60 grâce à la relation qui la définit :

$$S = \frac{\text{vitesse de gravure de silicium}}{\text{vitesse de gravure de } Si_3N_4} \quad (\text{II.1})$$

La vitesse de gravure des plans (111) étant négligeable par rapport à celle des plans (100)

[26,27]. La gravure par la solution KOH conduit à un profil représenté dans le schéma de la figure II.2. Cette gravure anisotrope et sélective révèle des plans cristallins bien définis permettant d'obtenir un angle de gravure de 55° , spécifique au silicium orienté (100).

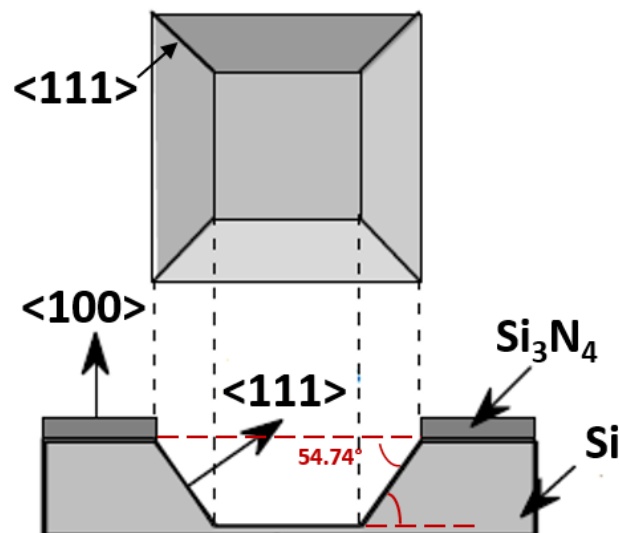


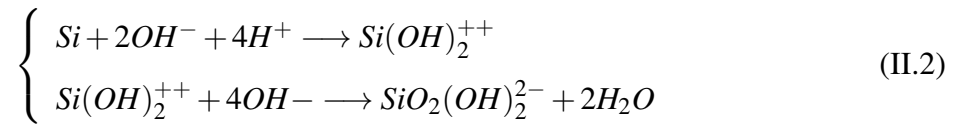
FIGURE II.2 – Schéma du profil de gravure par attaque humide grâce à la solution KOH.

1.2.2 Mise en œuvre du protocole de la gravure de Si par gravure humide

a Détermination de la vitesse de gravure

Après l'étape de recuit dans le four pendant 20h, l'échantillon a été mis dans un bécher en téflon rempli de 100 ml de solution KOH. Ce dernier a été placé dans un cristalliseur rempli d'eau (EDI). L'utilisation de l'EDI permet d'accélérer le chauffage de la solution KOH et uniformiser la température car le téflon est un isolant thermique. Le tout a été ensuite déposé sur une plaque chauffante pour chauffer la potasse à 80°C (voir figure II.3). Le chauffage de la solution rend les espèces chimiques plus actives pour interagir avec les atomes de silicium. La réaction qui se déroule entre le KOH (généralement tous les hydroxydes) et le silicium s'écrit

sous la forme [28] :



En effet, la surface de silicium s'oxyde par la présence de l'hydroxyde (KOH dans notre cas) pour former un silicate. Celui-ci sera transformé par la suite en un complexe soluble dans l'eau.

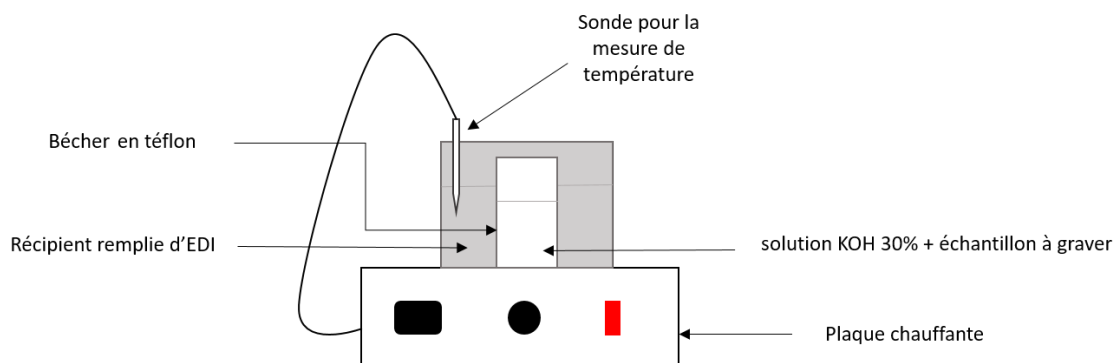


FIGURE II.3 – Schéma du dispositif de gravure humide du silicium.

Pour créer une membrane à partir d'un substrat d'épaisseur connue, une série de tests a été réalisée sur plusieurs échantillons pour déterminer d'abord la vitesse d'attaque de la solution KOH. L'information sur la vitesse de gravure nous permettra par la suite de calculer le temps nécessaire pour graver la totalité de la couche de silicium.

Dans le premier test, la taille de la fenêtre dans la couche de Si_3N_4 est de $5 \times 5 \text{ mm}^2$. L'ouverture calculée théoriquement après gravure est de l'ordre de $4.22 \times 4.22 \text{ mm}^2$. Après une première gravure pendant 2h dans la solution KOH (à 80°), une mesure de la profondeur gravée (en moyenne) a été effectuée grâce au profilomètre mécanique. Celui-ci a donné une valeur égale à $130 \text{ }\mu\text{m}$ soit une vitesse de gravure de silicium de $65 \text{ }\mu\text{m/h}$. Deux autres mesures de profondeur ont été menées après 3h30 et 5h30 de temps de gravure. La figure II.4 résume les résultats des mesures effectuées des vitesses de gravure de silicium et de Si_3N_4 ainsi que le temps nécessaire

pour libérer une membrane.

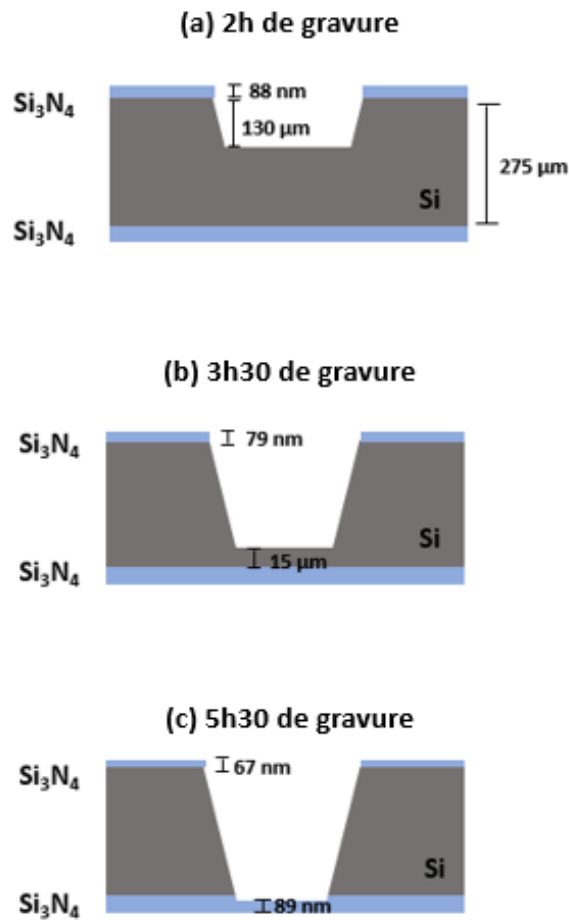


FIGURE II.4 – Schéma des profils de gravure après différents temps de gravure. (a) après 2h , (b) après 3h30 , (c) après 5h30.

Après 5h30min de gravure dans le bain de la solution KOH chauffée (la solution a été changée 3 fois pendant ce process), nous avons constaté que le nitrure de silicium a été légèrement gravé (89 nm d'épaisseur au lieu de 100 nm). La membrane est trop fragile et les contraintes mécaniques sont importantes, ce qui a entraîné une déchirure de cette dernière. Cela peut être expliquée par le rapport d'aspect donné par :

$$\text{Rapport d'aspect} = \frac{\text{Largeur de la membrane}}{\text{Épaisseur de la membrane}} = 5.10^4 \quad (\text{II.3})$$

De part leur nature, les membranes sont fragiles et sensibles aux chocs. Le rapport d'aspect de 10^5 est très élevé ce qui rend la fragilité mécanique d'autant plus importante. La figure II.5 montre des photos MEB de la membrane déchirée.

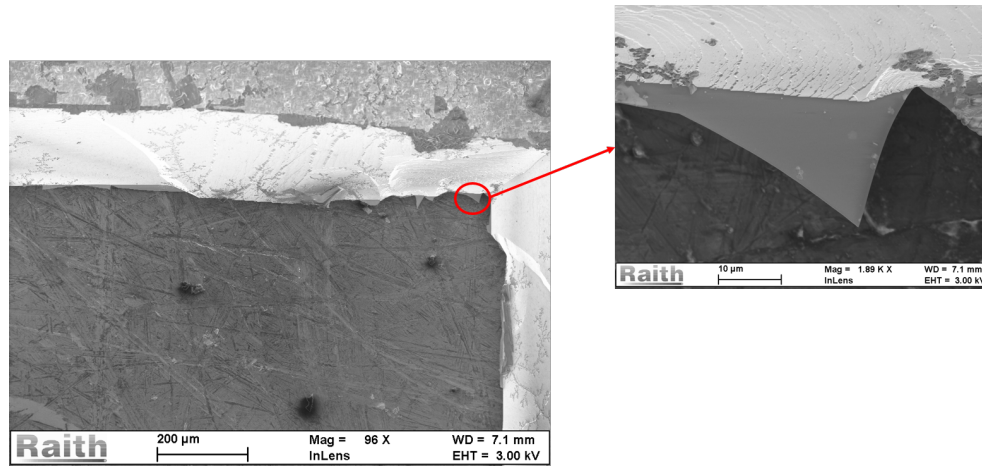


FIGURE II.5 – Photos MEB des morceaux de la membrane déchirée qui restent collés sur les bords des parois.

En théorie, les résines photosensibles AZ9260 (pour la protection de la surface avant du substrat) et AZ1518 (pour la création de l'ouverture) sont inertes chimiquement à la solution KOH. Cependant, nous avons observé en pratique un décollement progressif de ces résines jusqu'à leurs disparitions (dès la première heure de gravure) que l'on peut attribuer à l'attaque prolongée dans la base d'hydroxyde de potassium. Par conséquent, la face avant de l'échantillon où l'on souhaite réaliser des nanoréseaux de fentes par la suite a été attaquée (comme le montre la figure ci-dessous) à une vitesse de gravure de Si_3N_4 estimée à 37 pm/min (car l'estimation de l'épaisseur a été faite par calcul et non par le profilomètre)

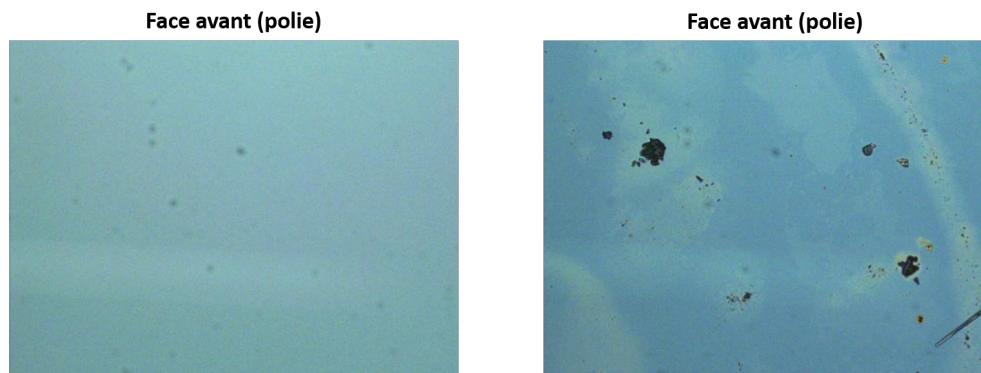


FIGURE II.6 – Image au microscope optique de la face avant (protégée par la résine AZ9260) de l'échantillon. A gauche, avant la dégradation. A droite, après la dégradation par la solution KOH.

Ce premier test de gravure a permis de déterminer le temps nécessaire pour libérer une membrane. Nous l'avons estimé à 4h, temps pour graver le silicium d'épaisseur 275 μm .

Un deuxième test nous a permis de confirmer la valeur de la vitesse de gravure à 65 $\mu\text{m/h}$. Dans la bibliographie, cette vitesse est égale à 62 $\mu\text{m/h}$ [25], elle est presque identique à celle que nous avons obtenu expérimentalement avec une différence de 4%.

b Détermination du volume de solution utile pour la libération de la membrane

Suite aux résultats précédents, nous avons décidé de réduire la fenêtre du masque à 1×1 mm^2 sur un troisième échantillon ainsi que de déposer une résine AZ9260 plus épaisse ($\sim 15 \mu\text{m}$). Nous avons suivi le même process pour la réalisation de la membrane. Plusieurs tests ont été effectués en diminuant le temps de gravure dans un même volume de solution 100 mL (4h sans changement de la solution). L'épaisseur du silicium qui a été gravé est de 130 μm (c'est la même épaisseur gravée pendant 2h trouvée dans le paragraphe 1.2.2 a). Cela signifie que le Si n'a pas été complètement attaqué car la solution KOH a été saturée, il ne restait plus d'espèces réactives dans la solution. Un autre test de gravure humide du silicium a été réalisé sur un autre échantillon (même procédure). Après 2h30min, l'épaisseur du silicium a été mesurée, elle est presque égale à 130 nm. D'après ce dernier résultat, nous avons déduit que le volume de la

solution permettant de libérer la membrane est de 100 ml à changer toutes les 2h. L'échantillon a été mis, par la suite, dans un nouveau bain de potasse pendant deux heures pour continuer le process de gravure et créer la membrane de taille $0.62 \times 0.62 \text{ mm}^2$.

L'observation de la membrane à différentes positions du substrat a permis de voir des impuretés sous forme des fils en silicium (aiguilles) qui se positionnaient sur les parois et le centre de celle-ci. En effet, pendant le process de gravure humide anisotrope, des réactions chimiques secondaires peuvent se produire à cause d'une pollution du bain de gravure. Ces réactions secondaires conduisent à l'apparition d'un résidu qui vient se déposer en fond de cavité. A ce titre la figure II.7 présente une série d'images MEB de la membrane micro-usinée prises avec un grossissement de plus en plus important et avec un angle d'inclinaison de 45° .

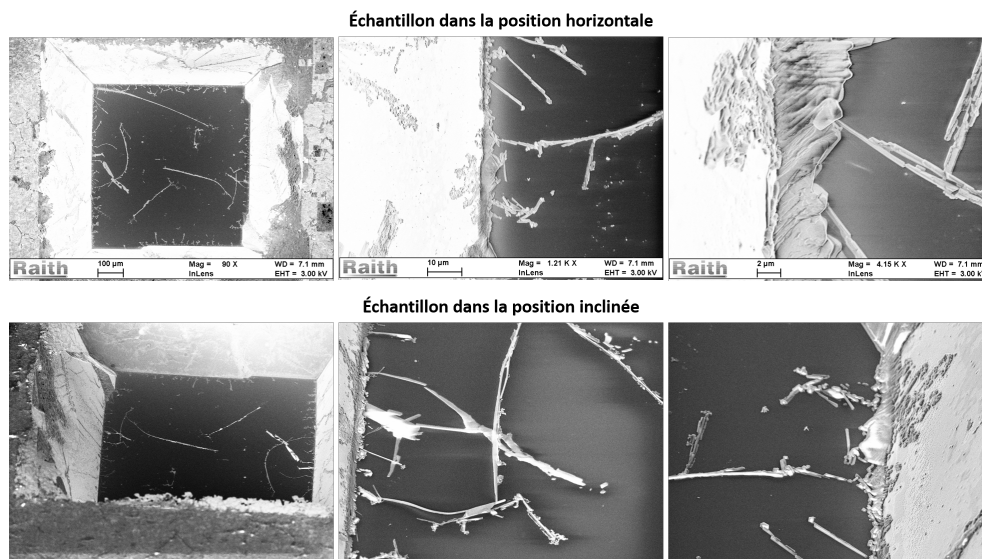


FIGURE II.7 – Photo MEB de la membrane $0.62 \times 0.62 \text{ mm}^2$ en position horizontale et inclinée montrant l'apparition des impuretés déposées en fond et aux bords de la cavité lors d'une gravure anisotrope au KOH.

1.3 Discussion

Dans ce travail, nous avons réussi à fabriquer une membrane en nitrure de silicium de petite dimension ($0.62 \times 0.62 \text{ mm}^2$). L'amélioration du procédé de fabrication en particulier la pro-

tection de la face avant de l'échantillon est indispensable pour nos expériences avec des jets atomiques. Deux pistes sont envisagées pour résoudre ce problème. Elles consistent à remplacer la résine AZ9260 par une couche fine de quelques dizaine de nanomètre d'or ou de chrome pour éviter l'attaque chimique de la face avant de l'échantillon qui peut se produire pendant la gravure du silicium.

Afin de poursuivre la suite du process à savoir la structuration du réseau, nous avons décidé d'acheter des membranes commercialisées en nitrure de silicium chez la société DELTA MICROSCOPIES SAS (figure II.8). Le dépôt de la couche de Si_3N_4 se réalise avec la technique LPCVD. La surface de ces membranes fait $1 \times 1 \text{ mm}^2$ avec une épaisseur de 100 nm. Quant au substrat de silicium, il a une épaisseur de $320 \mu\text{m}$.

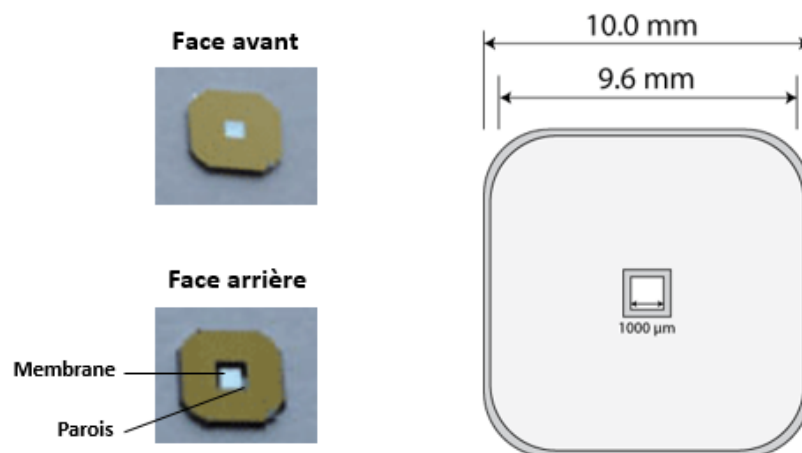


FIGURE II.8 – A gauche : photos montrant les deux faces d'une membrane Siltronic. A droite, schéma présentant quelques caractéristiques (épaisseur 100 nm, surface $1 \times 1 \text{ mm}^2$) de cette même membrane.

2 Réalisation des nanoréseaux en transmission

La conception des nanoréseaux en transmission a été réalisée sur la face arrière de la membrane. Dans cette section, nous détaillerons les étapes de fabrication de ces réseaux à partir du

dépôt du masque dur d'aluminium jusqu'au transfert des motifs dans le Si_3N_4 .

2.1 Dépôt de la couche d'aluminium

L'aluminium (Al) a été choisi comme masque dur déposé sur le nitrure de silicium pour la réalisation des nanoréseaux de fentes. Contrairement à la résine PMMA, l'aluminium résiste à la gravure sèche de Si_3N_4 . La sélectivité de gravure a été estimée à 9 par un calcul du rapport des vitesses de gravure de d'aluminium (500 nm/min) [29] et de Si_3N_4 (56 nm/min). On cherche généralement une forte sélectivité entre le masque et le matériau à graver ($S \geq 10$).

Dans ce travail, le dépôt d'aluminium a été réalisé avec deux méthodes différentes : dépôt par évaporation sous vide et dépôt en phase vapeur par pulvérisation cathodique (PVD : Physical Vapor deposition). L'utilisation de ces deux méthodes de dépôt nous permettra de connaître la meilleure technique pour avoir des réseaux avec une faible corrugation sur les bords des fentes (moins de 3 nm) grâce à une analyse de l'état de la surface d'aluminium. Car, si la corrugation est forte, la distance entre atome-surface ne sera pas la même quand les atomes traversent le réseau. Par conséquent, le calcul des forces d'interaction Casimir-Polder entre atome-surface du réseau sera affecté par ce phénomène. L'épaisseur de la couche d'Al déposée a été estimée quant à elle à 60 nm (dans les deux dépôts) grâce à des tests de gravures réalisés pour tester la résistivité de l'aluminium lors du transfert des motifs dans le Si_3N_4 .

Avant de présenter les différentes techniques de dépôt, une brève introduction a été réalisée sur la formation d'une couche mince dans le but de comprendre les mécanismes de croissance sur une surface.

2.1.1 Généralité sur la formation et la croissance d'une couche mince

Lorsque des atomes frappent une surface, ils perdent leur énergie au profit de cette surface et se condensent pour former des îlots de nucléation stables. Pendant la condensation, les ada-

tomes ont un degré de mobilité sur la surface qui dépend de leur énergie cinétique et du type d'interaction entre l'adatome et la surface [30].

Une forte interaction surface-atome donnera une densité d'îlots élevée, par contre une interaction faible aura pour conséquence une grande dispersion des îlots.

Il faut savoir que les facteurs qui vont influencer les propriétés mécaniques d'une couche mince déposée sont : (i) sa microstructure, (ii) les inclusions d'impuretés et (iii) les contraintes internes. Ces trois facteurs dépendent des conditions dans lesquelles le dépôt est effectué.

Lorsque le libre parcours moyen dans le vide des atomes déposés qui sont en collision entre eux est important, et que leur mobilité de surface est faible, la croissance de la couche sera contrôlée surtout par la géométrie de la surface. Les dépôts sur les pics et l'ombrage des creux vont conduire à une microstructure colonnaire, dont les colonnes sont composées de grains de très petites dimensions du matériau [30].

Selon le modèle de Movchan et Demchishin, il est possible de définir trois zones permettant de donner quelques prévisions sur la microstructure des couches déposées en fonction du rapport T/T_m où T est la température du substrat et T_m la température de fusion du matériau déposé en degrés absolus comme le montre la figure ci-dessous. Chacune de ces 3 zones a sa structure caractéristique et ses propriétés physiques.

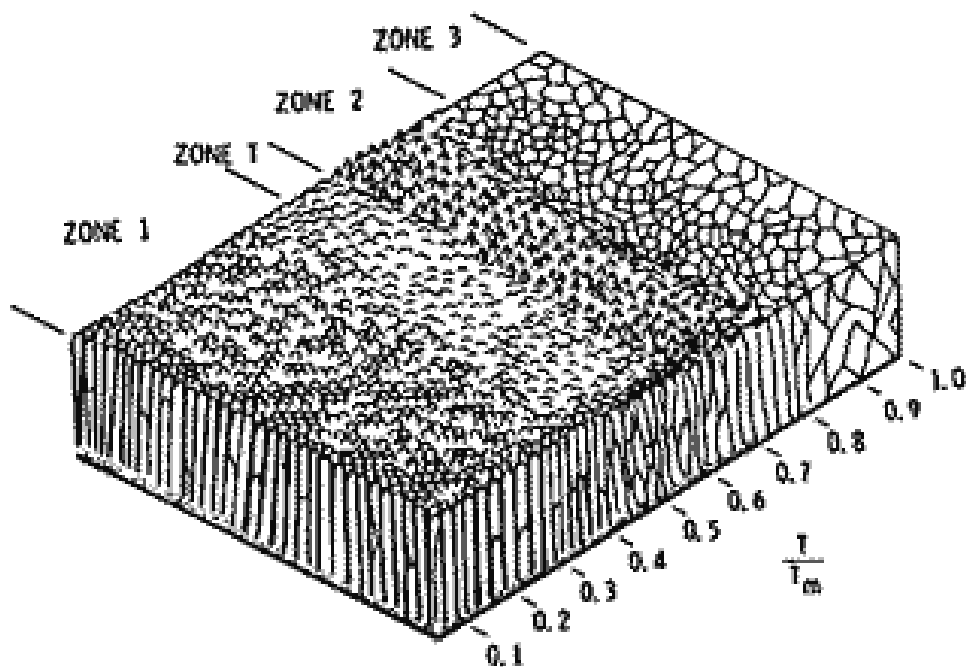


FIGURE II.9 – Diagramme M-D des zones structurales de matériaux condensés sous vide partiel en fonction de la température du substrat (T) et la température de fusion du matériau à déposer (T_m) [30].

Les microstructures de la zone 1 (basse température - $T/T_m < 0.3$) sont de type colonnaire séparées par des joints présentant de nombreuses lacunes. Elles se produisent lorsque la croissance est contrôlée par une faible mobilité à la surface et les effets d'ombrage. la zone T dite de transition entre les zones 1 et 2 est constituée de plusieurs séries de grains fibreux mal définis. Les structures de la zone 2 (intermédiaire - $0.6 < T/T_m < 0.7$) sont également à grain colonnaire et augmentent en diamètre avec T/T_m . Les liaisons entre colonnes commencent à ressembler à des joints de grains grâce à la mobilité plus élevée. La zone 3 (hautes températures $T/T_m > 0.7$) est caractérisée par une recristallisation et une croissance des grains équiaxes qui augmente en dimension avec T/T_m .

2.1.2 Dépôt par évaporation sous vide (effet Joule)

Dans le processus d'évaporation, la vapeur du matériau à déposer est produite par le chauffage de ce matériau à une température telle que sa pression de vapeur soit largement supérieure à la pression résiduelle dans l'enceinte à vide où s'opère le procédé. Les dépôts par évaporation sont presque toujours réalisés à des vides secondaires de l'ordre de 10^{-6} Torr. Le chauffage des matériaux à déposer peut se faire par plusieurs méthodes : chauffage par effet Joule, par induction, par bombardement électronique, par laser... .

Le dépôt d'aluminium par évaporation sous vide est réalisé dans un bâti dédié à ce type d'application. Sa constitution autorise le dépôt in situ de deux matériaux métalliques et deux matériaux organiques par effet Joule. Pour éviter la pollution, chaque matériau dispose d'un creuset qui lui est exclusivement attribué. Le système est équipé d'une unité de pompage constitué d'une pompe à palette primaire et d'une pompe secondaire turbo-moléculaire permettant d'atteindre un vide de l'ordre de 10^{-6} Torr. Plus la pression est basse, plus les trajectoires des particules vaporisées seront rectilignes. Le chauffage des sources à effet Joule est assuré par des alimentations continues afin de contrôler précisément la vitesse de dépôt. Dans le cadre de ce travail, l'aluminium est placé dans un creuset qui est chauffé à 1200°C radialement par un filament électrique de tungstène (W) en appliquant un courant de 13A. Ce bâti possède aussi une balance à quartz qui permet de mesurer les vitesses et les épaisseurs déposées. Nous déposons des couches de 60 nm avec une vitesse de 6 \AA/s .

2.1.3 Dépôt par pulvérisation cathodique (PVD)

La deuxième méthode utilisée pour le dépôt d'aluminium dans cette thèse est le dépôt physique en phase vapeur par pulvérisation cathodique (PVD). Nous disposons d'un pulvérisateur cathodique RF d'Alliance Concept qui contient plusieurs cibles montées sur un axe de rotation pour déposer l'aluminium, le SiO_2 et l'ITO. Le principe de cette technique est le suivant : les

atomes de la cible (dans notre cas d'aluminium) sont éjectés dans un gaz ionisé (gaz d'argon). Sous une pression de 8.10^{-3} mbar dans l'enceinte, le champ électrique créé par une haute tension (puissance RF ~ 100 watt) entre les deux électrodes conduit à l'ionisation du gaz d'Ar formant ainsi un plasma. Les ions présents dans le plasma sont attirés par la cathode et, par transfert de quantité de mouvement, éjectent des atomes de la cible. Les particules pulvérisées sont en général électriquement neutres. Elles sont diffusées dans toute l'enceinte. Un certain nombre d'entre elles est recueilli sur le substrat, sur lequel il forme une couche mince d'aluminium. Comme précédemment avec une vitesse de dépôt légèrement plus rapide (6.5 \AA/s), l'épaisseur de la couche d'aluminium que nous déposons est égale à 60 nm.

2.1.4 Comparatif des deux dépôts

Nous allons comparer les couches d'Al de 60 nm d'épaisseur sur des échantillons de nitrure de silicium déposées par les deux techniques : évaporation et PVD. La figure II.10 montre des images MEB de l'état de surface de l'aluminium déposé.

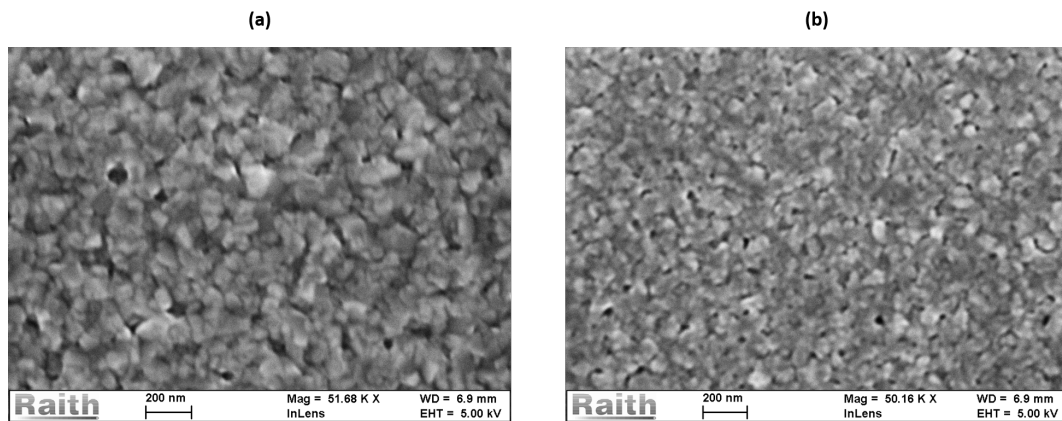


FIGURE II.10 – Images MEB de la surface d'aluminium déposée par : (a) PVD, (b) évaporation avec la même résolution.

La figure ci-dessus montre que la surface d'Al n'est pas parfaitement lisse dans le cas des deux dépôts respectifs. Elle présente de nombreuses irrégularités micro-géométriques qui peuvent causer des nucléations préférentielles et des croissances incontrôlées sous forme d'îlots.

D'après ce que nous avons vu dans le paragraphe 2.1.1.a, la microstructure du dépôt dépend pour une bonne part de la température de dépôt. Or, les dispositifs expérimentaux de dépôt que nous possédons ne disposent pas d'un système pour contrôler la température, ni même la mesurer. Par ailleurs, le dépôt par PVD bénéficie d'un système de refroidissement du porte substrat. La température du substrat initialement est faible, le rapport T/T_m lui aussi est faible. La structure des couches d'aluminium déposées sera donc colonnaire, précisément elle est typique de la zone 1 représentée dans le diagramme de Movchan-Demchshin. Ce qui explique la formation d'une surface plus ou moins rugueuse.

Nous pouvons constater également d'après la figure II.10 que la surface d'aluminium déposée par PVD est plus rugueuse que celle déposée par évaporation. La rugosité est un paramètre important pour la réalisation des réseaux de diffraction car si elle est trop importante, elle pourrait induire une augmentation de la corrugation sur les bords des fentes. Nous avons donc effectué des mesures de rugosité de surface (figure II.11) avec le microscope à force atomique (AFM) de chaque dépôt d'Al.

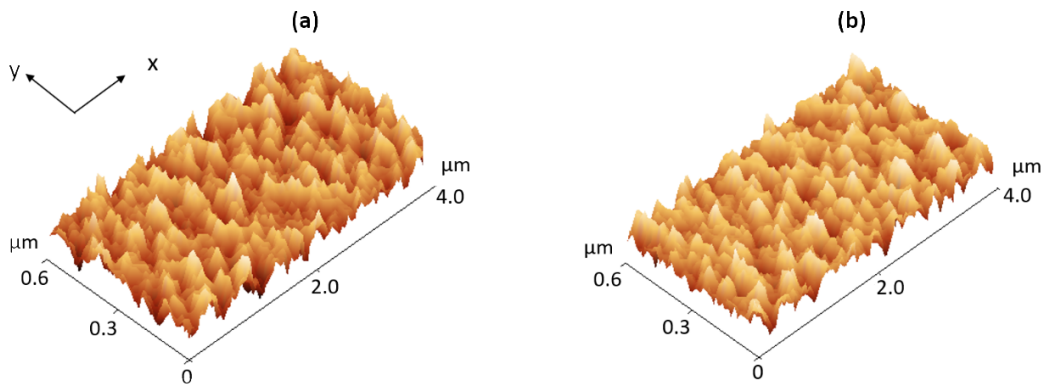


FIGURE II.11 – Images AFM 3D de la surface de l'Al déposé respectivement par : (a) PVD, (b) évaporation. L'échelle verticale a été supprimé pour des raisons de lisibilité mais il est du même ordre de grandeur pour les deux images.

L'analyse AFM montre que la rugosité augmente de 3.2 nm à 4.2 nm soit une différence de 24% lorsqu'on passe d'un dépôt par évaporation à un dépôt par pulvérisation cathodique.

L'évaporation présente donc un bon compromis pour le dépôt d'aluminium. A partir de ce résultat, nous avons essayé d'améliorer la rugosité pour le dépôt d'Al par PVD.

Il est à noter que les mesures réalisées par AFM supposent que la taille de la sonde atomique (pointe AFM) est de l'ordre de 1 nm.

La technique de dépôt par PVD dépend non seulement de la température mais aussi d'autres paramètres qui sont : (i) le bombardement ionique, (ii) la puissance radio-fréquence, (iii) la pression du gaz et (iv) l'angle d'incidence des atomes déposés.

Les tests d'optimisation de la rugosité pour le dépôt PVD ont été réalisés en changeant la puissance RF du réacteur. La figure II.12 présente des images 3D des surfaces des couches d'Al qui ont une épaisseur de 60 nm.

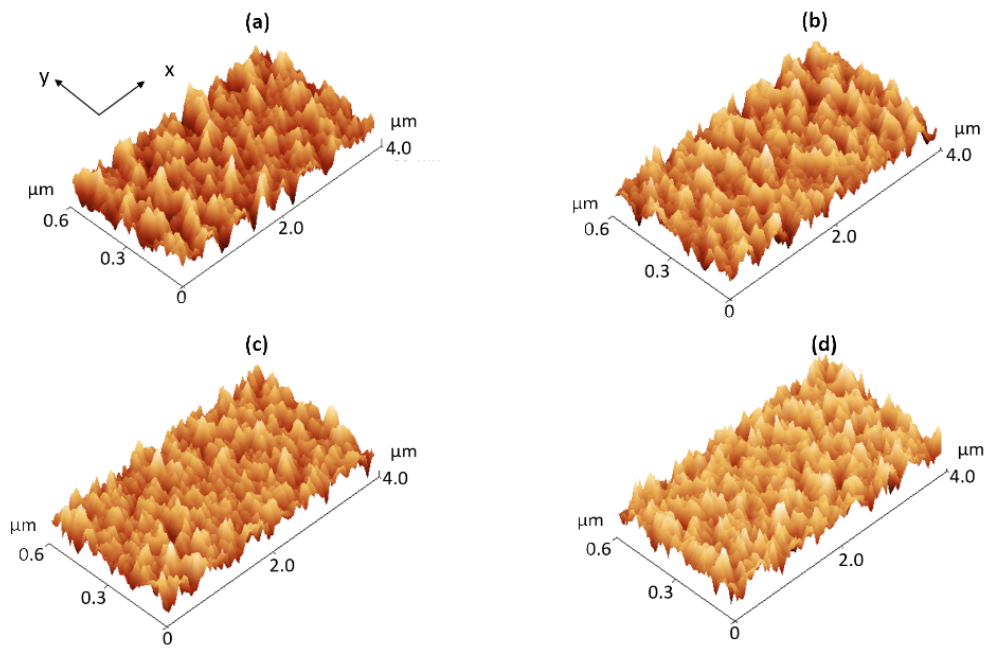


FIGURE II.12 – Images AFM 3D de la surface de l'Al déposée par PVD sur quatre échantillons en variant la puissance RF : (a) 75W, (b) 100W, (c) 105W, (d) 115W. L'échelle verticale a été supprimée pour des raisons de lisibilité.

Le tableau II.2 regroupe les résultats de mesures de rugosité obtenus.

Les résultats obtenus à partir du tableau ci-dessus montre que plus on diminue la puissance

Puissance RF (W)	vitesse de Dépôt (Å/s)	Rugosité (nm)
75	5.4	10.82
100	6.5	4.23
105	7.0	5.20
115	7.2	5.27

TABLE II.2 – Rugosité de surface de la couche d'Al déposée par PVD pour 4 échantillons de surface de $0.6 \times 4 \mu m^2$.

RF plus la rugosité augmente. De même, lorsque la puissance RF devient grande, la rugosité de surface augmente. Il y a alors une valeur intermédiaire de puissance autour de 100 W qui permet d'avoir une plus faible rugosité (4.23 nm).

La variation de la puissance RF n'a pas permis d'obtenir une rugosité du dépôt satisfaisante comparée à la technique d'évaporation. Cette dernière reste donc la meilleure méthode pour déposer l'aluminium. L'inconvénient de cette technique est qu'elle est très longue à mettre en œuvre par rapport à un dépôt par PVD. L'établissement d'un vide secondaire peut dépasser 6 heures.

2.2 Structuration de la surface par lithographie électronique

2.2.1 Introduction

La réalisation des nanoréseaux de fentes a été faite par lithographie électronique EBL (Electron-beam lithography) sur membranes. Cette technique sert à écrire des motifs sur une surface de résine électrosensible à l'aide d'un faisceau d'électrons en appliquant une haute tension. Contrairement à la lithographie interférométrique - qui ne permet pas d'avoir une grande flexibilité sur la variation du pas de réseau - la lithographie électronique présente une meilleure versatilité sur la forme et les dimensions des fentes sur de petites surfaces grâce à son masque virtuel.

L'intérêt de cette technologie réside dans l'utilisation d'un faisceau d'électrons de petite

longueur d'onde, ce qui nous place loin des phénomènes de diffraction observés en optique photonique pour la fabrication d'objets de taille comprise entre 10 nm et 1 μm . Grâce à l'hypothèse de de Broglie, on peut associer la longueur d'onde des électrons à leur énergie par la relation $\lambda = \frac{1.23}{\sqrt{EHT}}$ (avec EHT la tension d'accélération en volts), ce qui donne par exemple pour une tension de 30 KV, $\lambda = 7.10^{-3}$ nm.

La station de lithographie utilisée dans ce travail est un système Raith *e_Line*. Elle est composée d'une colonne électronique équipée d'une cathode chaude à effet de champ qui permet de travailler jusqu'à une tension d'accélération de 30 kV, d'une platine interférométrique pour le déplacement du substrat ainsi que d'un logiciel (Pionner) permettant de générer des fichiers au format GDSII et de piloter le faisceau électronique.

2.2.2 Modélisation du masque GDSII

Pour écrire les motifs souhaités sur la résine, il faut définir un masque virtuel avec les dimensions du nanoréseau sur un fichier au format GDSII. Nous voulons fabriquer un réseau de pas 200 nm avec une largeur de fentes de 100 nm et une longueur de 1 μm (la largeur des barreaux est également égale à 100 nm) sur une surface de 400 $\mu\text{m} \times 960 \mu\text{m}$. Pour assurer la rigidité de la membrane, un système de méchage fin de largeur 500 nm a été testé.

Dans un fichier GDSII, une cellule de 30 \times 30 μm^2 a été créé. Pour le réseau de pas de 200 nm (largeur des fentes de 100 nm), la cellule contient 150 barres sur une ligne, soit 3000 fentes par cellule. Cette dernière sera dupliquée par la suite selon les deux directions de l'espace U et V jusqu'à ce qu'on atteigne la surface choisie du réseau (400 \times 960 μm^2). Pendant cette application, un autre système de méchage grossier de 10 μm (selon les directions U et V respectivement) sera créé pour rendre la membrane plus solide (voir figure II.13). Nous avons donc besoin de réaliser 240 cellules sur la surface de la membrane. Le nombre total de fentes est donc de 720 000. Le temps d'écriture nécessaire pour réaliser ce type de réseau a été estimé à 2 heures. C'est un véritable enjeu technologique car les caractéristiques en courant de fais-

seau et en terme de taille du spot peuvent varier au cours de l'écriture sur une surface de taille importante.

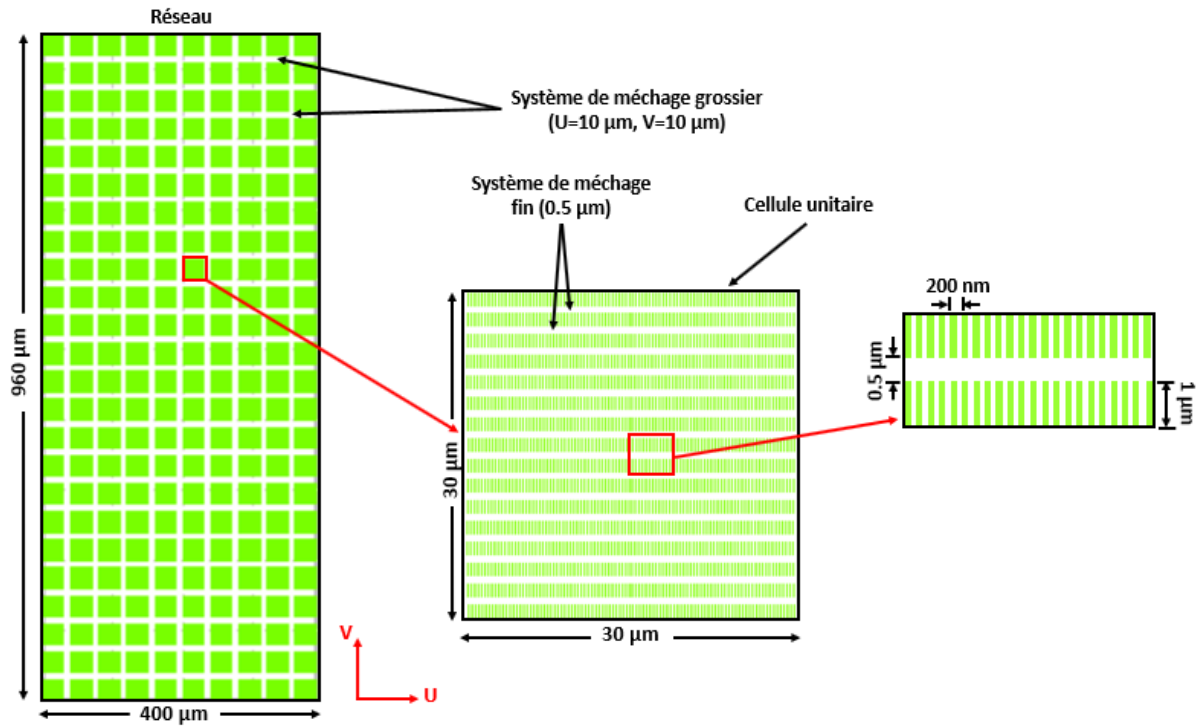


FIGURE II.13 – A gauche, réseau de fentes parallèles constitué de plusieurs cellules unitaires réalisé dans le fichier GDSII. Au milieu, zoom sur une cellule unitaire contenant les motifs. A droite, fentes parallèles à l'intérieur d'une cellule. Les schémas ne sont pas à l'échelle.

2.2.3 Choix de la résine

La réalisation de ces réseaux de transmission nécessite d'abord un choix de résine : adaptée à la lithographie e-beam et inerte lors de la gravure du matériau sous-jacent (ici l'Al). Notre choix s'est orienté vers la résine poly-méthacrylate de méthyle (résine positive) appelée aussi PMMA. En effet, la PMMA reste aujourd'hui encore la résine la plus utilisée car elle permet de travailler à haute résolution (jusqu'à 10 nm [31-32]) avec un contraste élevé. La dégradation sous bombardement électronique des chaînes polymères constituant cette résine, conduit à leur dissolution lors de l'étape du développement. Le développeur associé est le MIBK (Méthyli-

sobutylcétone), il est considéré trop puissant si il est utilisé seul. C'est pourquoi, il est souvent dilué dans isopropanol-alcool (IPA). Un ratio entre le MIBK et l'IPA de 1 volume pour 3 volumes permet d'obtenir un contraste élevé et un profil de résine anisotrope. Le dépôt de la résine PMMA a été réalisé sur l'aluminium par la technique du spin coating afin d'obtenir une couche d'épaisseur entre 160-190 nm.

2.2.4 Interaction électron-matière et effet de proximité

Quand les électrons pénètrent la résine, deux phénomènes vont modifier leur trajectoire, ce sont la diffusion qui correspond à la dispersion des électrons (primaires) à travers la couche de résine et la rétrodiffusion (électrons secondaires) qui est caractérisée par le renvoi des électrons vers la surface de la cible (matériau à insoler). Ils sont responsables de l'apparition des effets de proximité PE (Proximity effect). Ces effets se traduisent par : un élargissement du profil d'exposition dans la résine et une augmentation de la dose réellement reçue dans la zone à insoler à cause d'autres zones voisines qui ont été également exposées au faisceau électronique. Les effets de proximité sont décrits quantitativement par une fonction $f(r)$ comprenant la somme de deux gaussiennes qui représentent la distribution des électrons primaires et rétrodiffusés dans un échantillon après une exposition réelle ou simulée. Cette fonction est donnée par l'équation ci-dessous [33-34-35] :

$$f(r) = \frac{1}{\pi(1+\eta)} \left[\frac{1}{\alpha^2} \exp\left(\frac{-r^2}{\alpha^2}\right) + \frac{\eta}{\beta^2} \exp\left(\frac{-r^2}{\beta^2}\right) \right] \quad (\text{II.4})$$

En notant r la distance radiale au point d'impact. Les paramètres α et β décrivent respectivement les écarts type de la distribution gaussienne relative aux électrons diffusés et rétrodiffusés. α et β sont généralement donnés en μm ($\beta \gg \alpha$). η est le rapport sans unité de l'énergie dissipée par les électrons diffusés sur les électrons rétrodiffusés pouvant être supérieur ou inférieur à 1. Ces trois paramètres dépendent de la tension d'accélération, du type et de l'épaisseur de la

résine, et de la nature du matériau constituant le substrat.

La Figure II.14 montre trois simulations représentant la diffusion des électrons dans l'empilement de couches PMMA (170 nm)/Al (60 nm)/ Si_3N_4 (100 nm) sur une membrane modélisées par l'équation (II.4) pour trois tensions d'accélération.

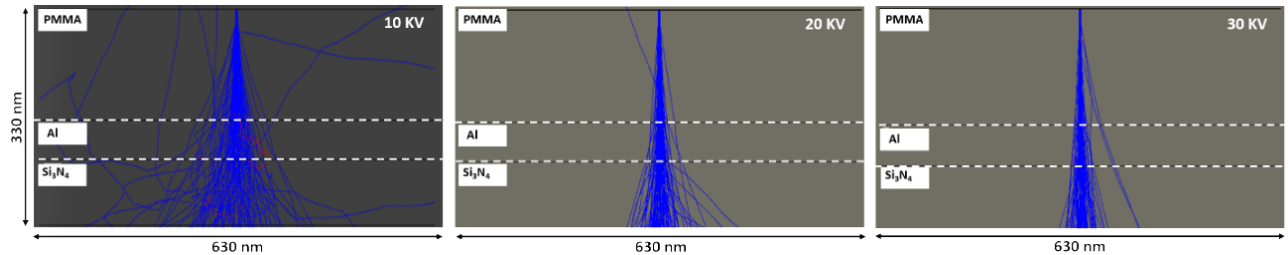


FIGURE II.14 – Simulation de la trajectoire de 10^6 électrons diffusés dans l'empilement PMMA/Al/ Si_3N_4 réalisée grâce au logiciel NanoPECS pour trois valeurs d'énergie du faisceau incident.

De manière plus précise, la diffusion des électrons est responsable d'un élargissement du profil de la zone insolée dans la partie basse de la résine (dépôt d'énergie élevée), comparé à la partie haute (dépôt d'énergie faible), ce qui entraîne une variation des dimensions entre le haut et le bas du motif si l'épaisseur initiale du film de résine est trop importante.

D'après les résultats observés dans la figure II.14 et ceux publiés dans l'article [36], La diffusion liée au diamètre du faisceau électronique (la sonde) est minimisée en utilisant une résine d'épaisseur aussi fine que possible et/ou une tension d'accélération élevée permettant ainsi de diminuer le diamètre de la sonde donné par définition :

$$d_f = 0.9 \left(\frac{E_r}{EHT} \right)^{1.5} \quad (\text{II.5})$$

avec d_f le diamètre de faisceau efficace en nm, E_r l'épaisseur de résine en nm et EHT la tension d'accélération des électrons en kV.

Lors de l'écriture des motifs, le faisceau d'électrons traverse la résine en étant plus ou moins

diffusé. Les électrons peuvent alors subir à nouveau des collisions inélastiques ou élastiques dans le substrat. Dans le cas d'une diffusion élastique (conservation de l'énergie), la trajectoire de l'électron incident est déviée de sa direction avec un grand angle (de 0 à π) pouvant le conduire de nouveau à l'intérieur de la résine à une distance non négligeable du point d'impact initial. Cet électron rétrodiffusé contribue donc à l'exposition de la résine dans des régions qui ne devraient pas être insolées générant ainsi des effets de proximité. Plus le faisceau d'électrons est énergétique, plus la quantité d'électrons du faisceau atteignant le substrat est importante et plus elle pénètre loin dans le substrat. Cet effet peut être alors minimisé en diminuant l'énergie des électrons et en utilisant des substrats avec un numéro atomique faible (cf. tableau II.3). La majeure partie de l'énergie des électrons diffusés ou rétrodiffusés est dissipée sous forme d'électrons secondaires dont l'énergie est de quelques dizaines d'eV. Ces derniers sont principalement responsables de l'insolation de la résine.

Nom du matériau	Numéro atomique	Masse atomique (u)	Densité (g/cm^3)	Potentiel d'ionisation (KV)
PMMA	3.6	6.6742	1.19	0.081
Al	13	26.982	2.7	0.163
Si_3N_4	10	28.08	3.17	0.135
Si	14	28.085	2.33	0.172

TABLE II.3 – Tableau récapitulatif des paramètres nécessaires pour le calcul de la trajectoire des électrons et la distribution d'énergie dans l'empilement de couche PMMA/Al/ Si_3N_4 .

2.2.5 Écriture des motifs et résultats

a Paramètres d'exposition

Différentes simulations ont été menées pour étudier la distribution en énergie soumise à la multicouche PMMA/Al/ Si_3N_4 pour trois énergies du faisceau incident (figure II.15).

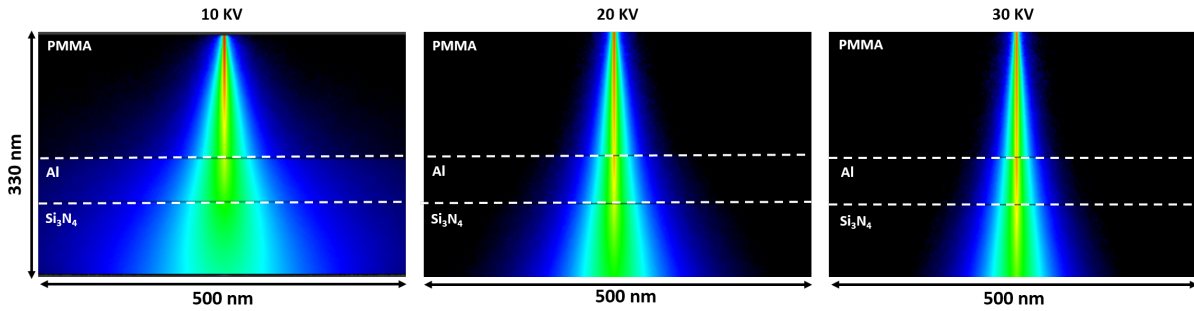


FIGURE II.15 – Distribution en énergie dans l’empilement PMMA/Al/Si₃N₄ pour trois énergies de faisceau incident : 10 kV , 20 kV et 30 kV.

Nous pouvons constater d’après la figure II.15 que pour une énergie de 10 KeV, la diffusion des électrons est assez importante. Plus on augmente la tension d’accélération plus on minimise la diffusion et on obtient un faisceau de largeur plus fine permettant ainsi d’avoir une meilleur résolution pour notre application. C’est pour cette raison que nous avons choisi de travailler avec la tension 30KV qui correspond à la limite de notre système e-beam.

Pendant l’insolation de la PMMA, une certaine quantité d’électrons doit arriver à sa surface pour permettre de casser la chaîne polymère en fragments, qui seront dissouts lors de l’étape de développement. Cette quantité d’électrons est appelée dose, elle est définie comme suit :

$$D = dose = \frac{I_{faisceau} \cdot t}{S^2} \quad (II.6)$$

avec $I_{faisceau}$, le courant du faisceau d’électrons, t , le temps d’application du faisceau en un point élémentaire et S (stepsize), le pas minimal entre deux impacts électroniques successifs.

Pour déterminer la dose d’énergie optimale permettant d’avoir des structures avec la géométrie souhaitée, un test de variation de dose a été réalisé (figure II.16).

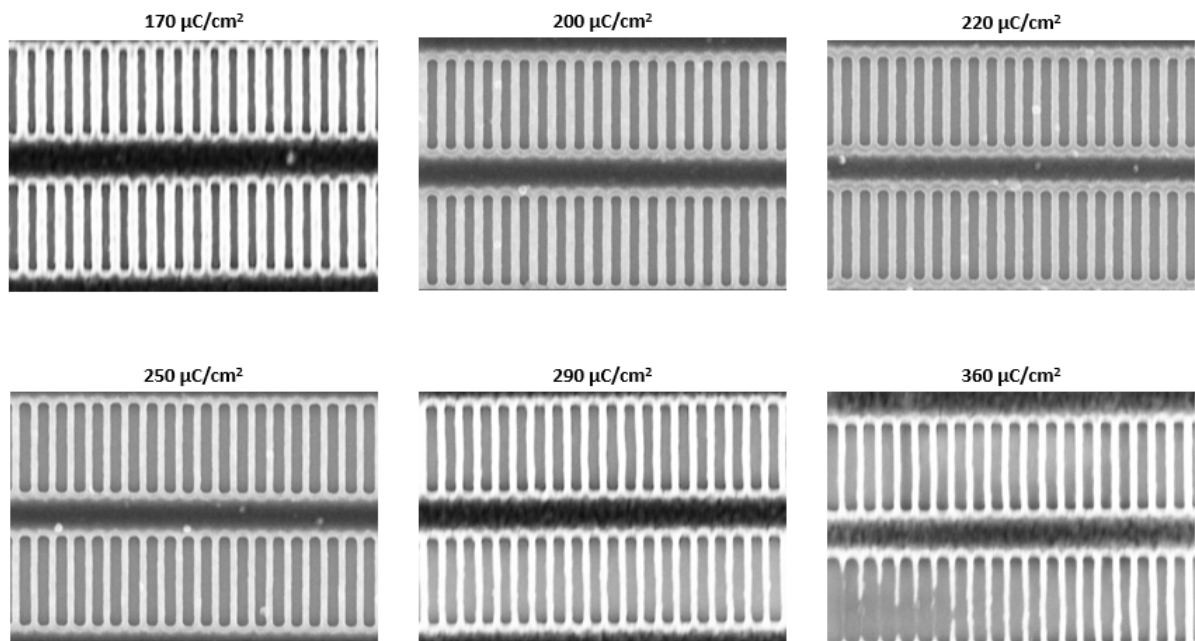


FIGURE II.16 – Images MEB des structures de fentes exposées avec différentes doses en énergies.

Dans cette expérience, nous avons utilisé 30KV comme tension d'accélération des électrons. La taille du faisceau d'électrons est de 3 nm et le courant est de 63 pA. La variation de dose va de 120 jusqu'à 360 $\mu C/cm^2$ avec un pas en dose de 10 $\mu C/cm^2$. Le développement de la résine PMMA dans le MIBK/IPA a duré pendant 1 min et 30 secondes. Aux faibles doses (inférieures à 160 $\mu C/cm^2$), les fentes ne sont pas complètement ouvertes et les dimensions du réseaux ne sont pas respectées car elles n'ont pas reçu suffisamment d'énergie. Aux fortes doses, les structures ont été surexposées. La valeur optimale retenue aussi appelée dose de base ou sensibilité correspond à $D = 220 \mu C/cm^2$.

b Lithographie électronique réalisée avec la dose de base

Nous avons procédé à la fabrication d'un réseau sur une surface de $400 \times 960 \mu m^2$. La figure II.17 présente des images de motifs de fentes présent par le MEB sur différentes zones de la membrane après l'étape du développement.

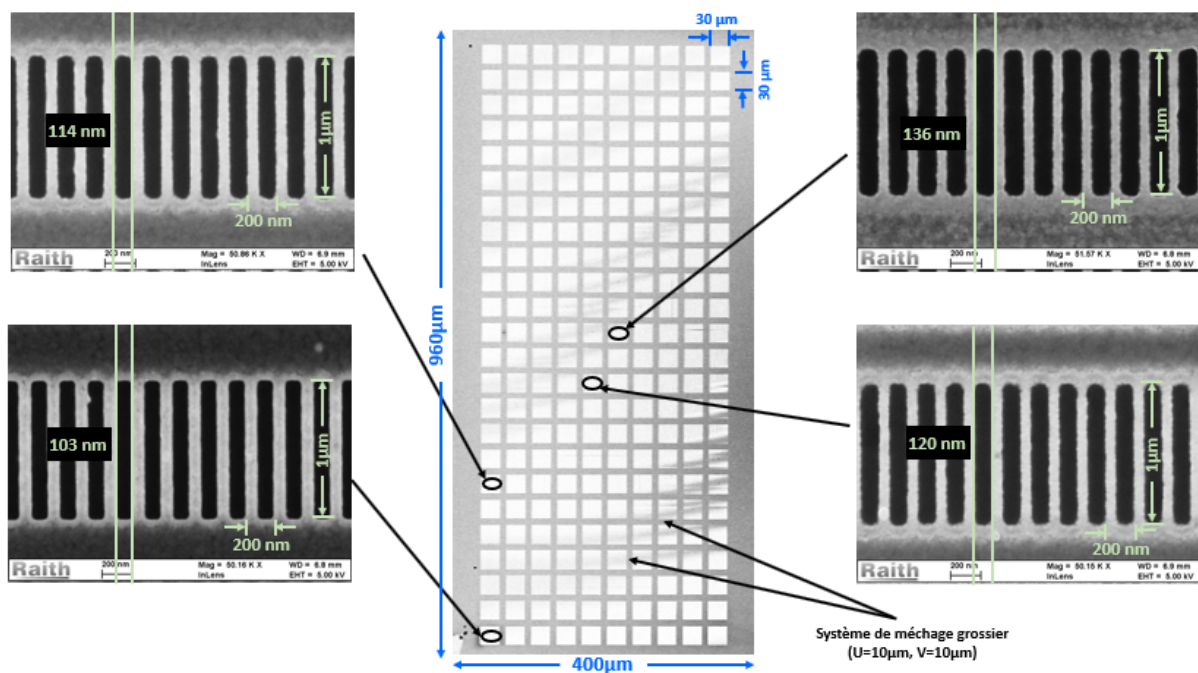


FIGURE II.17 – Images MEB de motifs de fentes sur différentes zones du nanoréseau après le développement de la résine.

L'observation de ce réseau au microscope à balayage électronique nous a permis de constater une inhomogénéité non négligeable de la largeur des fentes sur la totalité de la surface du réseau. Nous avons évalué cette différence en mesurant quantitativement la taille des fentes pour chaque cellule unitaire tout au long d'une ligne verticale au centre du réseau grâce à un programme que nous avons conçu avec Mathematica. Cela nous permet de traiter les images (figure II.17) avec une grande précision. Son principe repose d'abord sur le calcul de la largeur moyenne des fentes (ou barreaux) pour chaque ligne horizontale de l'image (des motifs de fentes). Les fentes et les barreaux du réseau sont identifiés grâce à l'analyse du contraste de l'image : les pixels sombres correspondent aux fentes et les pixels clairs aux barreaux. Ensuite, le programme calcule une nouvelle moyenne sur toutes les largeurs des fentes obtenues par ligne.

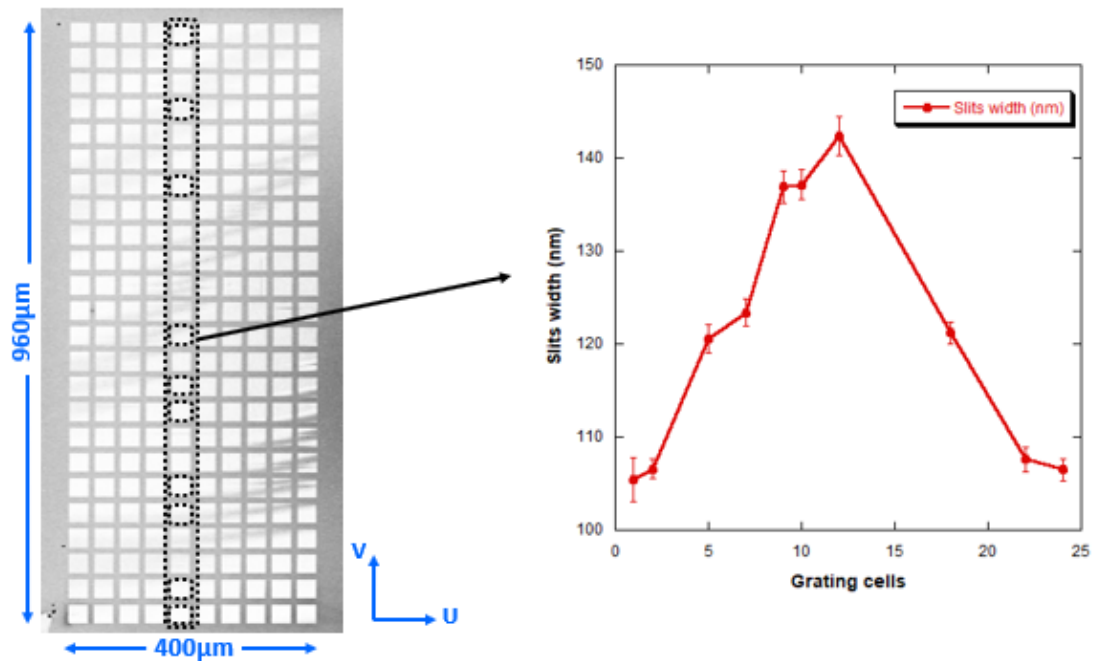


FIGURE II.18 – Courbe de la distribution de la largeur des fentes d’une ligne verticale située au centre d’un réseau de $400 \times 960 \mu m^2$. L’axe des abscisses présente la numérotation des cellules unitaires selon la direction V.

La courbe de la figure II.18 montrent une diminution de la largeur des fentes depuis le centre jusqu’au bord du réseau (sur une ligne verticale) à moins de 37 nm. En effet, la densité de motifs est plus importante au centre qu’au bord du réseau. Par conséquent, les motifs de la zone centrale reçoivent plus d’énergie entraînant un élargissement de fentes dans cette zone. Le réseau construit n’est pas homogène au niveau des dimensions d’où la nécessité de procéder à une correction des effets de proximité.

2.2.6 Correction des effets de proximité PEC (Proximity Effect Correction)

a Introduction

De nombreuses approches ont été développées pour la limitation des effets de proximité [37-38-39]. Parmi elles, l’emploi de structures à deux niveaux de résine, dont la première (de fine épaisseur) est sensible aux électrons et qui sert de masque de gravure pour le deuxième

niveau (plus épais), permettant ainsi de limiter la diffusion. L'utilisation de tensions d'accélération plus faibles, permet également de limiter grandement les effets de proximité car elle diminue la portée des électrons rétrodiffusés. De même, la simulation et la correction des effets de proximité (PEC) a été le sujet de nombreux travaux de recherche. C'est une technique assez lourde à mettre en place. Elle est pertinente pour des dispositifs comprenant à la fois, dans leur schéma de conception, de larges zones à insoler avec des structures assez proches. Elle est aussi gourmande en temps d'exposition sur une station de type Gaussien car elle multiplie les temps d'établissement du faisceau pour chaque champ d'écriture.

Dans cette thèse, nous avons suivi la démarche PEC pour obtenir des réseaux plus homogènes géométriquement. PEC est basée sur la modulation de la dose à appliquer localement sur les diverses parties du design. Pour cela, différents types de logiciels ont été développés [40-41]. Nous utilisons le logiciel NanoPECS fourni par défaut sur le système Raith pour réaliser la correction des effets de proximité. Dans ce logiciel, le design est divisé en parties élémentaires, et pour lesquelles l'effet de la dose déposée sur une zone de résine est simulé en fonction de la dose apportée sur les zones motifs adjacents (voisins).

b Détermination des paramètres de correction

Pour effectuer la correction des effets de proximité, il faut déterminer les paramètres de correction (α , β et η ...) expérimentalement. Nous avons donc appliqué la méthode décrite par Rishton et Kern [42] qui mesure la distribution de l'énergie dans la résine PMMA (déposée sur Al/Si_3N_4) pour un réseau de surface $380 \times 320 \mu m^2$ constitué de points (*dotarray*) dont le diamètre varie en fonction de la dose appliquée en chaque point. La figure II.19 montre des exemples d'images de ces motifs de points après exposition.

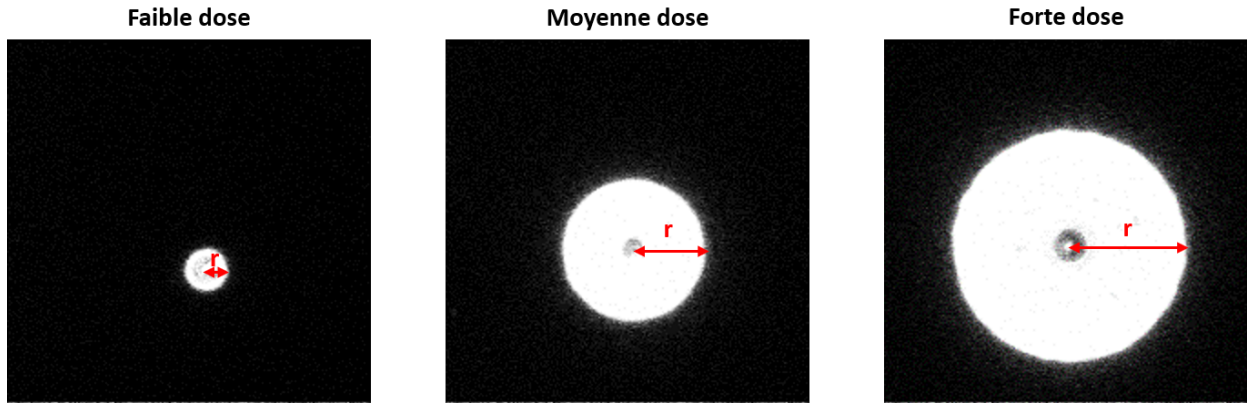


FIGURE II.19 – Images MEB de motifs de points observés après exposition de la résine PMMA à 30 KeV. A gauche : $r = 0.11 \mu m$ et $D_{dot} = 92 pC$, au centre : $r = 0.48 \mu m$ et $D_{dot} = 164 pC$ et à droite $r = 0.77 \mu m$ et $D_{dot} = 686 pC$.

Le traitement d'images des points a été réalisé avec le logiciel ImageJ. Ce dernier permet de redimensionner à l'échelle de l'image, de soustraire le bruit de fond et d'analyser les motifs. Nous avons aussi mesuré automatiquement le rayon de 340 points écrits sur une surface de $380 \times 320 \mu m^2$. La distribution des points exposés est donnée par la fonction (II.7) :

$$f(r) = \frac{D_0}{D(r)_{dot} \cdot 100} \quad (II.7)$$

avec D_0 "clearing dose", est la dose minimale à partir de laquelle le motif d'un carré de dimension connue apparaît sans être sur ou sous exposé. Cette dernière a été déterminée expérimentalement à $105 \mu C/cm^2$. Tandis que D_{dot} et r , sont la dose et le rayon de chaque point exposé donnée en pC et en μm respectivement. Il est à noter, que le facteur 100 dans l'expression II.7 est utilisé pour des raisons de conversion d'unité.

Nous avons tracé la distribution de l'énergie mesurée en utilisant l'équation (II.7) pour chaque point et la fonction de proximité donnée par l'équation (II.4) en fonction du rayon qui lui correspond en échelle logarithmique (voir figure II.20).

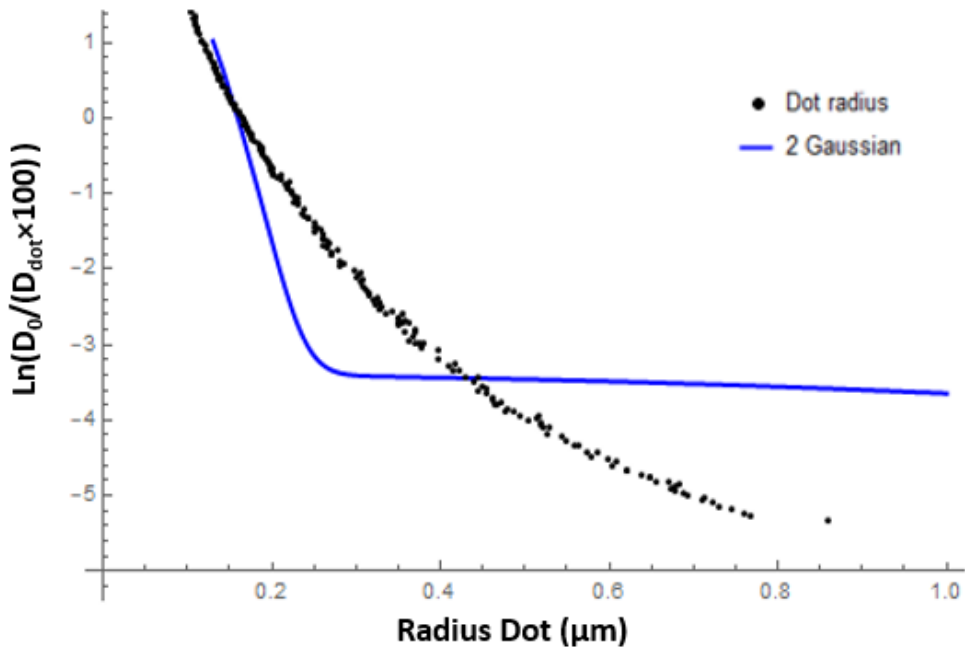


FIGURE II.20 – Distribution de l'énergie dans la PMMA. Point noir : mesures expérimentales. Courbe bleu : fit avec une double gaussienne calculé par l'équation II.4

Les résultats présentés dans la figure II.20 montrent bien que le fit avec une fonction double gaussienne ne reproduit pas la distribution de l'énergie mesurée dans la résine. Pour améliorer ce fit, nous avons utilisé d'autres fonctions telles que la somme de deux gaussiennes plus un terme exponentiel (équation II.8), la somme de trois termes gaussiens (équation II.9) ou de trois gaussiennes plus un exponentiel (équation II.10)[43].

$$f(r) = \ln\left(\frac{1}{\pi[1 + \eta + \nu]} \left(\frac{1}{\alpha^2}\right) \exp\left(\frac{-r^2}{\alpha^2}\right) + \frac{\eta}{\beta^2} \exp\left(\frac{-r^2}{\beta^2}\right) + \frac{\nu}{2\gamma^2} \exp\left(\frac{-r}{\gamma}\right)\right) \quad (\text{II.8})$$

$$f(r) = \ln\left(\frac{1}{\pi[1 + \eta + \nu_2]} \left(\frac{1}{\alpha^2}\right) \exp\left(\frac{-r^2}{\alpha^2}\right) + \frac{\eta}{\beta^2} \exp\left(\frac{-r^2}{\beta^2}\right) + \frac{\nu_2}{\gamma_2^2} \exp\left(\frac{-r^2}{\gamma_2^2}\right)\right) \quad (\text{II.9})$$

$$f(r) = \ln\left(\frac{1}{\pi[1 + \eta + v_2]} \left(\frac{1}{\alpha^2}\right) \exp\left(\frac{-r^2}{\alpha^2}\right) + \frac{\eta}{\beta^2} \exp\left(\frac{-r^2}{\beta^2}\right) + \frac{v_2}{\gamma_2^2} \exp\left(\frac{-r^2}{\gamma_2^2}\right) + \frac{v}{2\gamma^2} \exp\left(\frac{-r}{\gamma}\right)\right) \quad (\text{II.10})$$

Ces fonctions reproduisent avec fidélité le dépôt d'énergie dans la résine généralement sous-estimé par la fonction standard donnée par l'équation (II.4). La figure II.21 présente les fits réalisés avec les 4 équations.

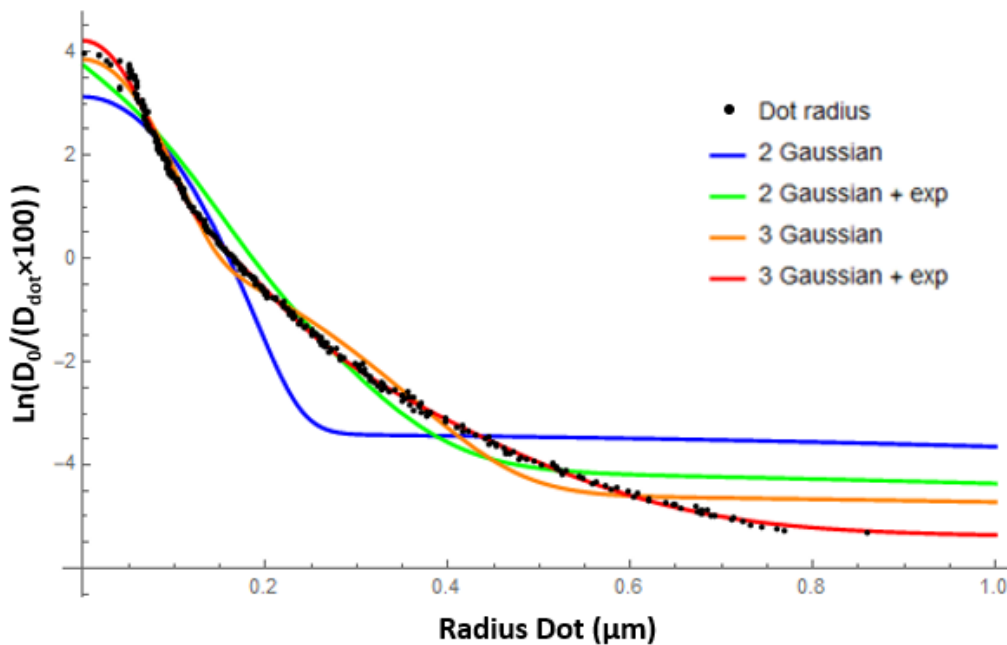


FIGURE II.21 – Distribution d'énergie mesurée dans la PMMA et les fonctions de fit données par les équations (II.8),(II.9) et (II.10).

Si on compare les courbes de fit à la courbe expérimentale en figure II.21 (points en noir), on remarque que l'accord avec la courbe calculée par l'équation II.10 est quasi parfait pour les dots de rayon supérieur à $0.1 \mu\text{m}$. On en déduit les paramètres de correction suivants :

- $\alpha = 0.0542095 \pm 0.00081 \mu\text{m}$
- $\beta = 4.06102 \pm 0.22 \mu\text{m}$

- $\eta=0.444384 \pm 0.009$
- $v= 0.225781 \pm 0.01$
- $v_2= 0.306542 \pm 0.02$
- $\gamma= 0.1011244 \pm 0.0045 \mu\text{m}$
- $\gamma_2= 0.12272 \pm 0.032 \mu\text{m}$

Où γ et γ_2 représentent la décroissance de la fonction supplémentaire. v et v_2 n'ont pas d'interprétation physique.

c Application des paramètres de PEC sur le masque de conception

NanoPECS est constituée de quatre étapes :

- Partitionnement du masque. Cette étape consiste à diviser le masque en zones non interactives.
- Découpage des éléments de la partition en subdivisions de faibles dimensions sur les bords, et vers le centre où la dose présente une distribution plus régulière [44].
- Mise en place d'une matrice d'effet de proximité (PEM) pour chaque partition [44].
- Mise en place d'un système linéaire d'équations, qui prend en compte les interactions entre éléments voisins, la zone à écrire, le facteur de dose initiale de chaque élément, ainsi que la distance entre ceux-ci. Il en résulte une matrice d'effets de proximité inversée afin de produire les facteurs de dose corrigés [44].
- Calcul des facteurs de dose corrigés pour les éléments du design.

La correction se fait sur une cellule unitaire. La cellule corrigée sera par la suite dupliquée pour avoir la surface désirée du réseau. La distance séparant les cellules unitaires entre elles dans les deux directions de l'espace est de $10 \mu\text{m}$, à savoir $2.5 \times \beta$ avec β la distance relative aux électrons rétrodiffusés. Or $3 \times \beta \approx 12 \mu\text{m}$ est la distance minimale à partir de laquelle les cellules unitaires du réseau n'interagissent pas entre elles. La figure II.22 montre un exemple d'une cellule unitaire d'un réseau de $400 \times 960 \mu\text{m}^2$ avant et après la correction.

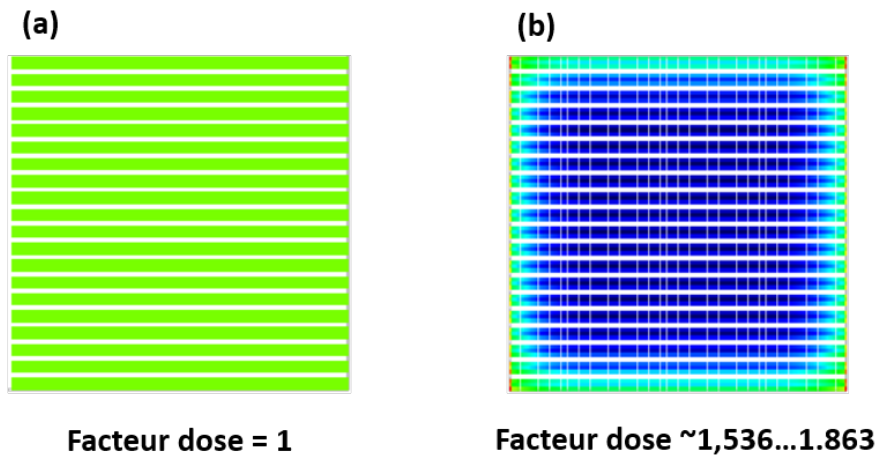


FIGURE II.22 – Design d’une cellule contenant les réseaux de fentes sur une surface de $30 \times 30 \mu m^2$. (a) avant la correction, (b) après la correction.

D’après la figure ci-dessus, les doses attribuées au milieu de la cellule sont plus faible que celles aux bords permettant ainsi la correction du fichier de conception du réseau. Les facteurs de dose estimés dans une cellule après l’application du PEC donnent des valeurs comprises entre $[1.536 - 1.863]$, la dose attribuée sera donc comprise dans l’intervalle $[161.28 - 195.615] \mu C/cm^2$.

d Validation du NanoPECS

Nous avons réalisé un premier réseau de fentes sur une surface de $400 \times 960 \mu m^2$ (figure II.22) en utilisant le masque GDSII corrigé et la *clearing dose* déterminée dans la section II.2.2.6.b.

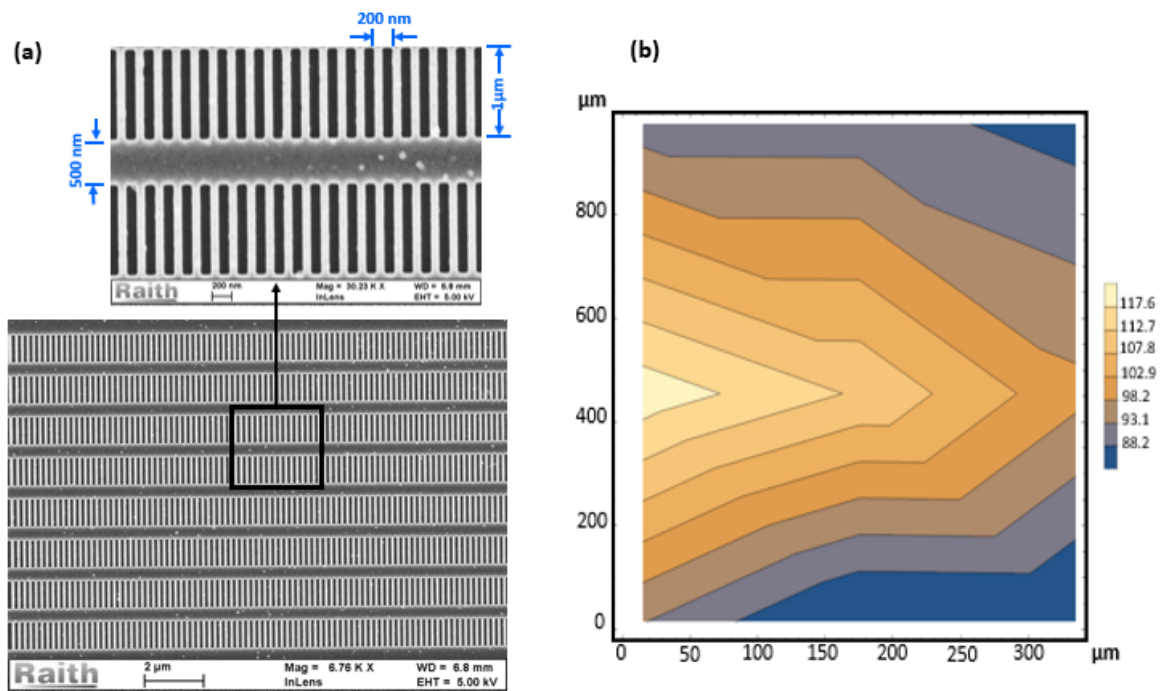


FIGURE II.23 – (a) Zoom sur une région du réseau constitué de fentes parallèles. (b) Cartographie représentant la largeur des fentes dans différentes zones du réseau.

Les résultats de mesure de la largeur des fentes le long des trois lignes verticales situées aux bords (gauche et droit) et au centre du réseau sont présentés sous forme d'une cartographie dans la figure II.23 (b). D'après ces résultats, nous avons amélioré l'homogénéité du réseau de 22% (la différence de largeur maximale et minimale mesurée entre les fentes est de 29 nm) par rapport à un réseau réalisé sans PEC. Cette amélioration est encourageante mais reste insatisfaisante pour les études des interactions atome-surface du réseau.

Nous avons constaté également la présence d'une asymétrie de taille sur toute la surface du réseau qui peut être expliquée par la défocalisation du faisceau électronique qui se produit si la surface est supérieure à $200 \mu m$ et par la persistance des effets de proximité. En effet, la distance de séparation entre les cellules unitaires n'est probablement pas suffisante dans cette correction, car pour s'affranchir des interactions entre cellules, il faut que la distance soit supérieure à 3β .

Pour pallier un éventuel problème de défocalisation, la conception d'une deuxième structure

avec une correction sur une plus grande surface a été effectuée en réalisant l'écriture successive de deux réseaux ($400 \times 400 \mu m^2$). La distance entre cellules unitaires du réseau a été augmentée à $20 \mu m$ correspondant à 5β pour éliminer le risque d'interaction entre ces derniers. La figure II.24 présente les résultats obtenus avec cette correction.

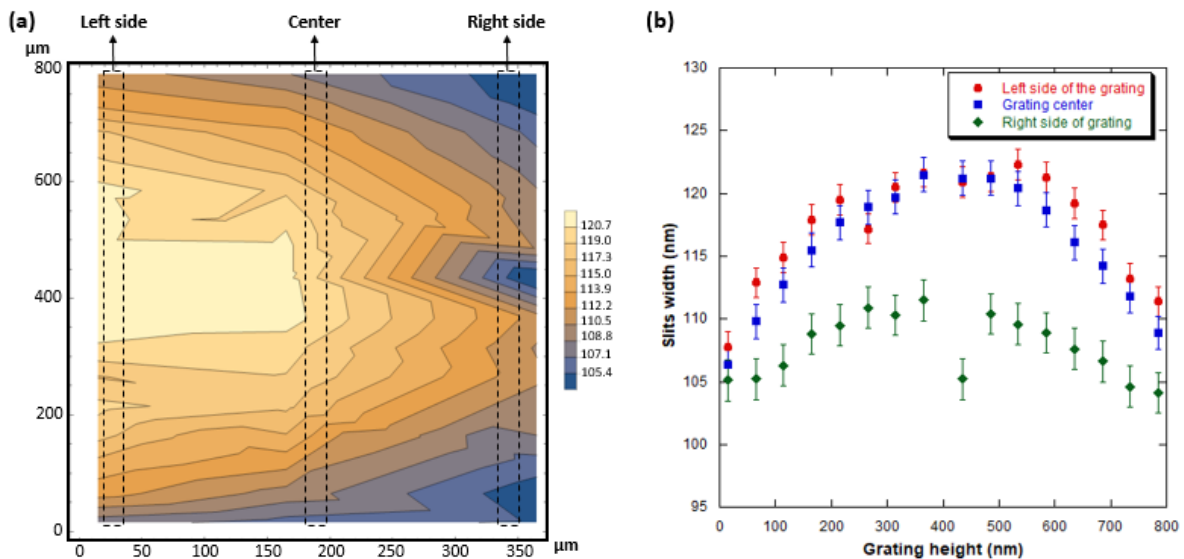


FIGURE II.24 – (a) Cartographie représentant la largeur des fentes dans différentes zones du réseau. (b) Variation des ouvertures sur toute la longueur verticale au centre et aux extrémités gauche et droite du réseau.

L'analyse des images de cette deuxième structure montre que l'écart maximal de la largeur des fentes a été réduit de 15 nm. Nous avons une amélioration de la taille du réseau de 50% par rapport aux résultats obtenus avec la première correction (60 % par rapport à sans PEC). Les courbes de la figure II.24.b présentent la variation des ouvertures dans chaque cellule sur toute la longueur verticale au centre et aux extrémités gauche et droite du réseau. Nous remarquons que les effets de proximité persistent et que le bord gauche et le centre de la structure reçoivent des doses presque similaires. Tandis que le bord droit reçoit une énergie plus faible. Cela peut être expliqué par la planéité du multicouche imparfaite (PMMA/Al/Si₃N₄).

Une troisième écriture du réseau en transmission sur une surface de $400 \times 400 \mu m^2$ avec un nouveau fichier de conception corrigé, a été effectuée. La PEC a été réalisée cette fois sur toute

la structure (pas uniquement sur une cellule unitaire). Nous avons réduit la taille du nanoréseau parce que la durée de calcul des doses attribuées pour chaque partition est assez lente (pour cette surface, la durée de calcul est d'une semaine). La figure II.25 présente les résultats obtenus à partir de l'analyse des données.

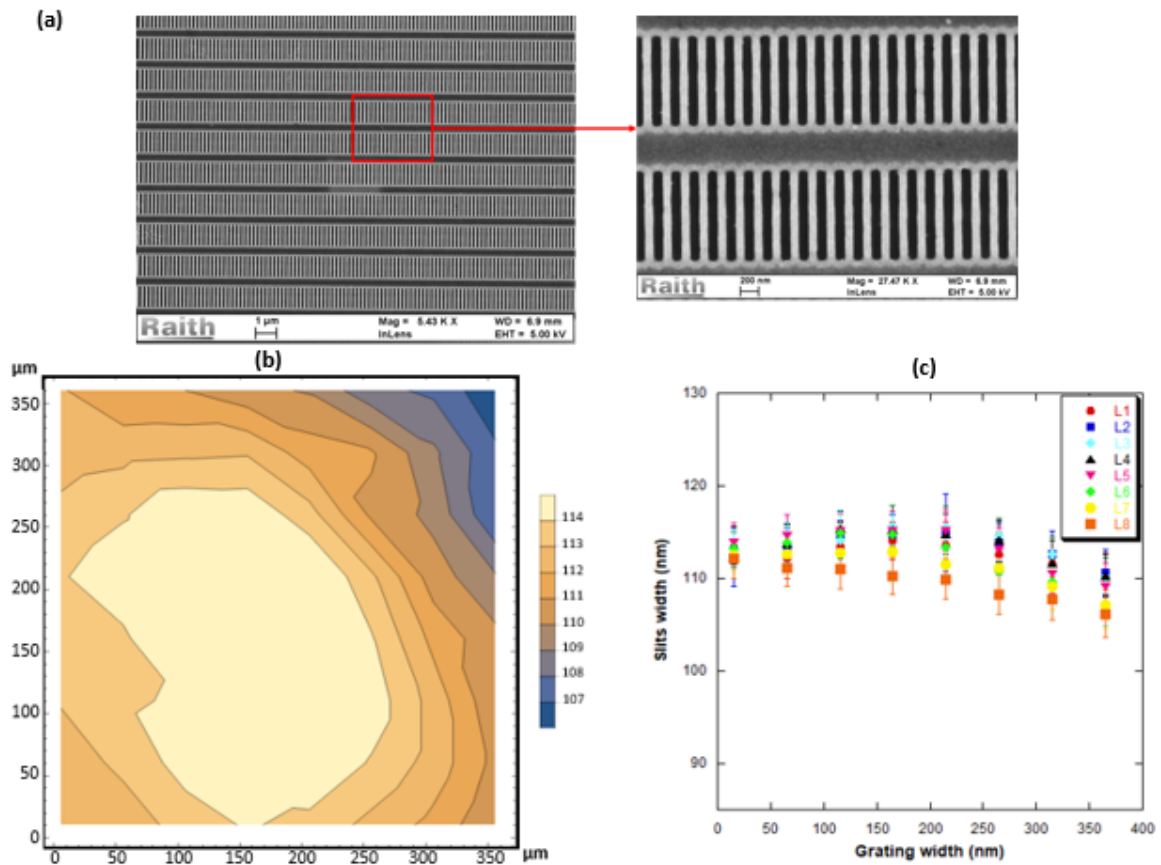


FIGURE II.25 – (a) Image du réseau structuré par la lithographie électronique. (b) Cartographie représentant la largeur des fentes dans toutes les zones constituant le réseau de $400 \times 400 \mu m^2$. (c) Courbes de variation des ouvertures en nm prises sur les 64 cellules du réseau. Chaque ligne (L1 par exemple) possède 8 points (8 cellules).

Les analyses des images obtenues avec cette correction révèlent que la différence entre la largeur maximale et minimale des fentes est de 10 nm. Nous avons donc amélioré d'avantage l'homogénéité de la taille des ouvertures sur l'ensemble du réseau de 34% par rapport à la deuxième correction effectuée (73% par rapport aux résultats obtenus sans PEC). Le tableau

II.4 regroupe l'ensemble des résultats que nous avons déterminés pour les 4 essais.

	Surface réseaux (μm^2)	Différence entre la largeur des fentes (nm)	Amélioration %
Sans PEC	960 × 400	37	-
PEC 1	960 × 400	29	22
PEC 2	800 × 400	15	60
PEC 3	400 × 400	10	73

TABLE II.4 – Récapitulatifs des résultats de mesures de la largeur de fentes pour les différents échantillons avec variations des paramètres de correction de dose. L'amélioration de l'homogénéité sur la taille du réseau est considérée par rapport aux résultats obtenus sans PEC.

D'après les résultats obtenus, nous ne pouvons pas espérer une amélioration sur les différences des ouvertures dans un réseau inférieures à 10 nm. En effet, le système de lithographie e-beam est limité par une énergie à 30 KeV qui, après focalisation, donne une taille minimale du spot de 2 à 3 nm. En plus, l'utilisation d'une couche de résine relativement épaisse de 170 nm de PMMA ne permet pas d'obtenir des résolutions ultimes, ceci est dû à l'élargissement du faisceau. Pour toutes ces raisons, il est compliqué d'avoir une résolution proche d'un nanomètre.

2.3 Gravure par plasma ICP (Inductively Coupled Plasma) de l'aluminium

2.3.1 Principe de la gravure ICP-RIE

La gravure sèche consiste à transférer, dans une couche ou un empilement de couches, un motif défini par différentes techniques comme la lithographie électronique. Ce transfert nécessite une étude approfondie suivant la taille du motif, la nature de la couche à graver, la sélectivité par rapport au masque, l'anisotropie, le rapport d'aspect et la rugosité de la surface. Son principe repose sur la production des espèces chimiques actives et ioniques réagissant avec le matériau à graver en le décomposant et en produisant des espèces stables et volatiles. Cette méthode per-

met de coupler les gravures physique et chimique. Elle se caractérise par une bonne anisotropie permettant d'avoir des flancs bien droits.

Le réacteur utilisé dans ce travail pour la réalisation de la gravure dite sèche est constitué d'une source plasma de type ICP (Inductively Coupled Plasma) obtenue grâce à une antenne hélicoïdale (sous la forme d'une inductance) soumise à une excitation RF à 2 MHz (nommée LF) et permet de densifier le plasma. La cathode supportant l'échantillon à graver est polarisée à une source RF à 13.56 MHz (nommée RF) permettant ainsi l'accélération des ions vers la surface à bombarder.

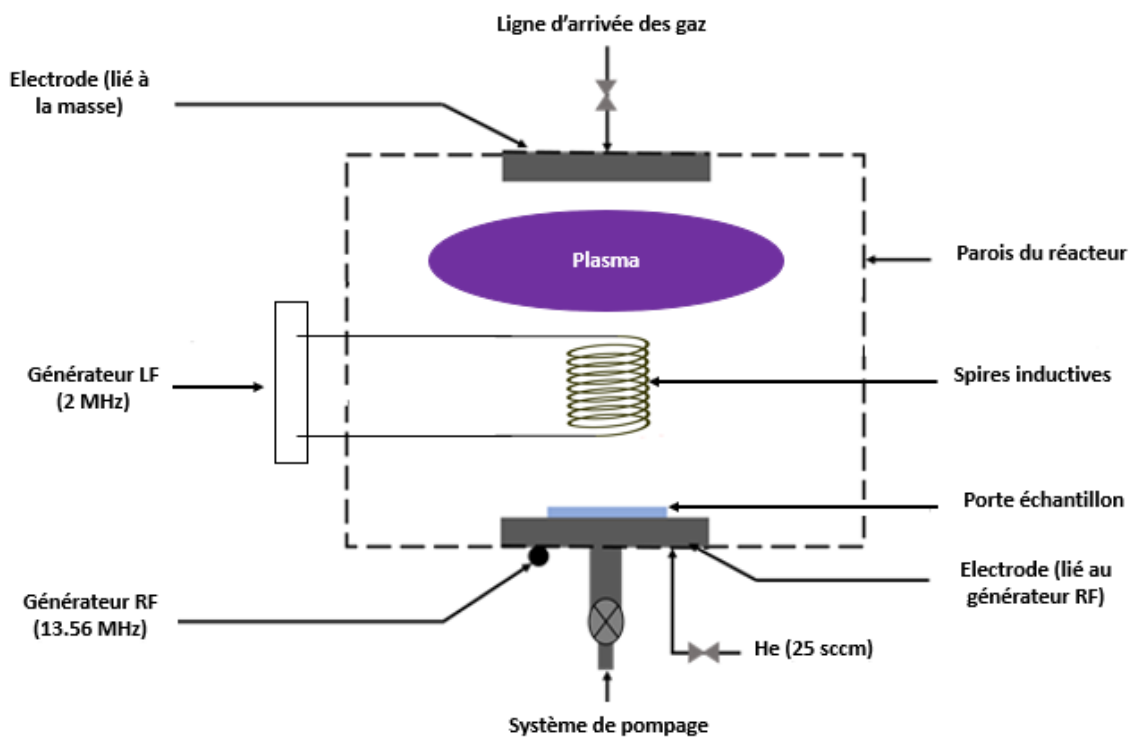


FIGURE II.26 – Schéma de principe du réacteur de gravure.

Deux gravures ICP ont été réalisées. L'une pour transférer d'abord, les motifs écrits dans la résine PMMA dans le masque métallique d'aluminium. L'autre ensuite consiste à transférer les motifs du masque métallique dans la couche de nitrure du silicium.

Afin, de déterminer quelques paramètres importants de la gravure de l'aluminium et du ni-

trure de silicium (comme la vitesse de gravure et la sélectivité), les premiers tests ont été effectués sur le bicouche d'Al/Si₃N₄ déposé sur substrat de silicium. Ainsi, après avoir développé un procédé fiable et reproductible, ce dernier sera transféré sur membrane.

2.3.2 Réalisation des motifs dans l'aluminium

Cette étape de fabrication s'effectue après l'étape de lithographie électronique. La gravure de l'aluminium nécessite d'utiliser les gaz de trichlorure de bore BCl₃ et de dichlore Cl₂ [29-45-46] avec des débits de 16 et 4 sccm respectivement. Le plasma est généré sous une basse pression à 20 mTorr (WP : Working Pressure). La tension appliquée pour l'accélération des ions est de 235 V. Dans ce process, les valeurs des puissances LF et RF valent 800 et 150 watts respectivement.

2.3.3 Analyse et optimisation

a Analyse des résultats

La figure II.27 montre deux exemples de réseau de fentes de pas de 200 nm (la taille des barreaux est de 100 nm) sur une petite surface de 300 μm × 40 μm après gravure dans les couches d'aluminium déposées par les deux techniques : évaporation et PVD. L'aluminium est gravé pendant 5 secondes, temps qui permet d'ouvrir totalement les fentes pour les deux dépôts. La sélectivité de ce procédé est inférieure à 1 car les vitesses de gravure de l'aluminium et de la résine PMMA sont estimées à $V_{Al} = 12$ nm/s et $V_{PMMA} = 26$ nm/s respectivement.

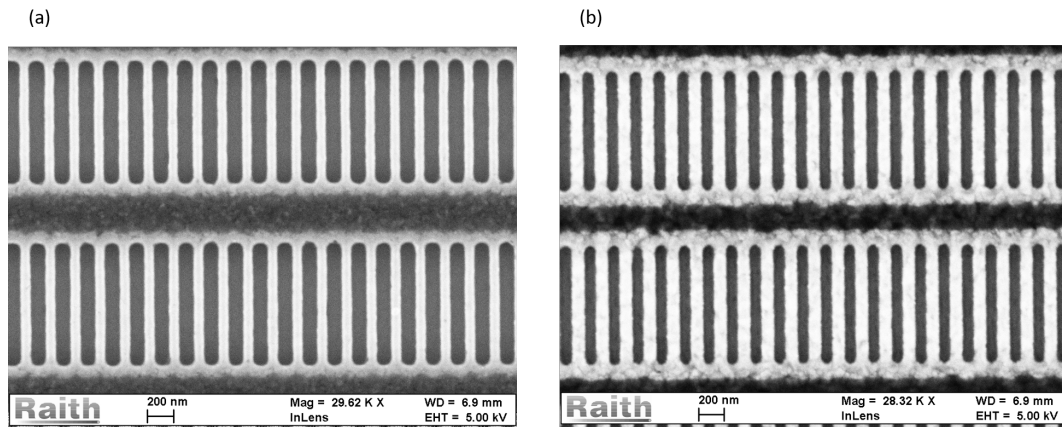


FIGURE II.27 – Photos MEB des réseaux de fentes après l'étape de la gravure de la couche d'aluminium déposée par : (a) évaporation, (b) PVD. Les barres de maintien pour la rigidité de la membrane font $0,5 \mu\text{m}$ de largeur.

Nous avons observé l'existence d'une corrugation sur les bords des fentes dans les deux réseaux probablement à cause des dépôts non cristallin de la couche d'aluminium. Il s'agit donc dans la suite de minimiser cette corrugation pour la caractérisation de ces réseaux avec un jet d'atomes lent.

Nous avons réalisé une analyse quantitative pour quantifier ce paramètre important de corrugation en s'appuyant sur le même programme développé avec mathematica dans la section 2.2.5.b (voir figure II.28).

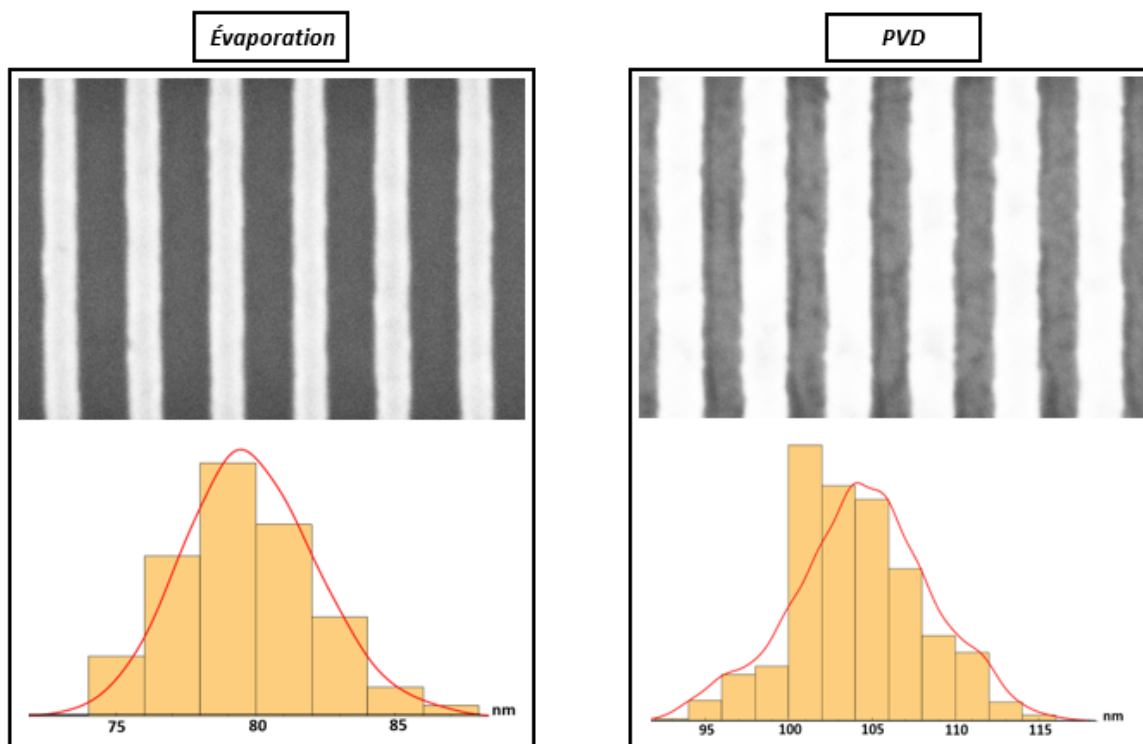


FIGURE II.28 – Images zoomées des fentes pour l’aluminium PVD et évaporation. Histogrammes représentant la répartition de la largeur des barreaux.

L’analyse des images nous a permis de déterminer : la taille des réseaux réalisés et leurs corrugation qui correspondent à l’écart type de la gaussienne liée à la distribution de la largeur des barreaux mesurée localement sur chaque ligne de l’image. Le tableau II.5 regroupe les résultats obtenus après le traitement des données.

	Évaporation (nm)	PVD (nm)	Référence (nm)
Pas	200	200	200
Largeur des fentes	126	95	100
Largeur des barreaux	74	104	100
Corrugation (Écart type)	2.4	3.10	0
Rugosité de la surface	3.2	4.2	0

TABLE II.5 – Tableau regroupant les résultats du traitement d’images pour les deux réseaux.

Nous avons déduit que la corrugation est plus élevée de 24% avec un dépôt d'Al par PVD qu'avec un dépôt par évaporation. Au vu de ce résultat et l'étude sur la rugosité menée au chapitre II paragraphe 2.1.1, nous optons sur l'évaporation comme technique de dépôt de la couche d'aluminium pour examiner l'effet des paramètres de gravure sur la corrugation.

b Optimisation de la gravure de la couche d'aluminium

Une série de tests de fabrication du réseau, sur différents échantillons en modifiant quelques paramètres dans la recette de la gravure d'aluminium (du départ), a été réalisée. Le but de ces tests est d'obtenir un réseau de fentes avec des flancs droit et une corrugation minimale.

Chaque réseau a été observé au MEB après l'étape de gravure de l'aluminium (figure II.29).

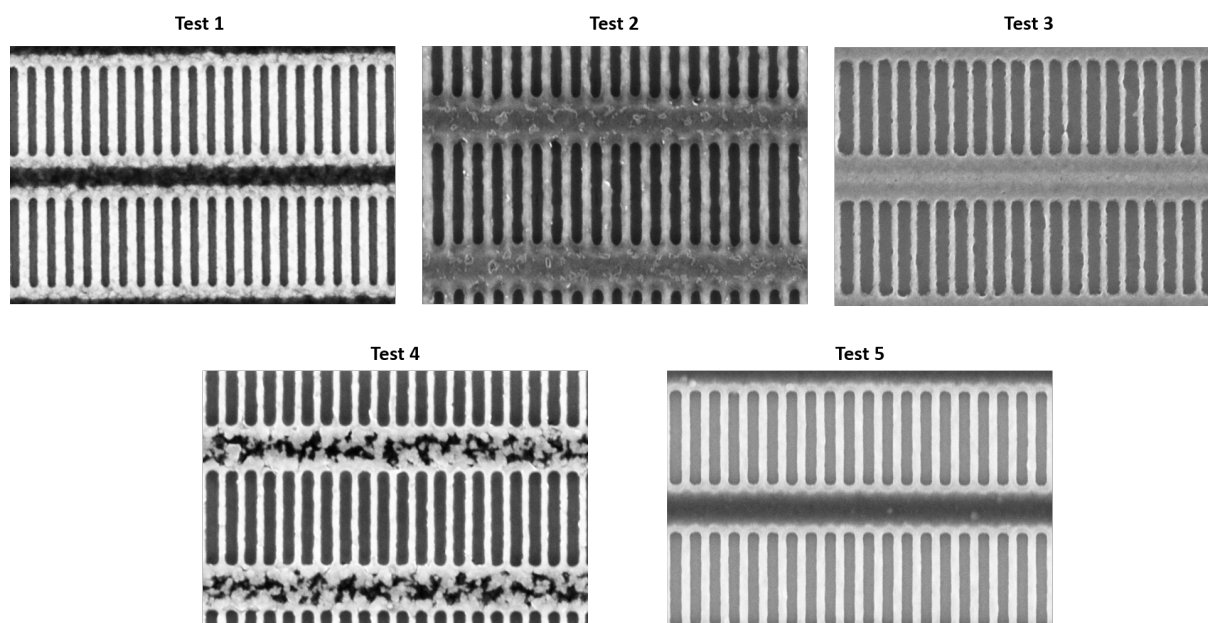


FIGURE II.29 – Images MEB des nanoréseaux de fentes pour chaque test après l'étape de gravure de la couche d'Al (voir tableau II.6).

Le mélange des gaz BCl_3/Cl_2 est couramment utilisé pour réaliser la gravure anisotrope d'une couche d'aluminium [46-47]. En effet, après le dépôt d'aluminium, une couche d'oxyde d'aluminium Al_2O_3 (oxydation à l'air) mince mais très dure se forme sur la surface de l'échantillon. Le but principal de l'utilisation du BCl_3 est d'accroître le phénomène de pulvérisation et

de supprimer rapidement et de manière reproductible l'alumine (Al_2O_3). Tandis que le Cl_2 est utilisé pour augmenter la vitesse de gravure de l'aluminium [46].

Dans le premier test, la durée de stabilisation des gaz dans le réacteur ICP a été augmenté de 10 à 15 secondes. La figure II.30 montre le réseau de fentes après la gravure.

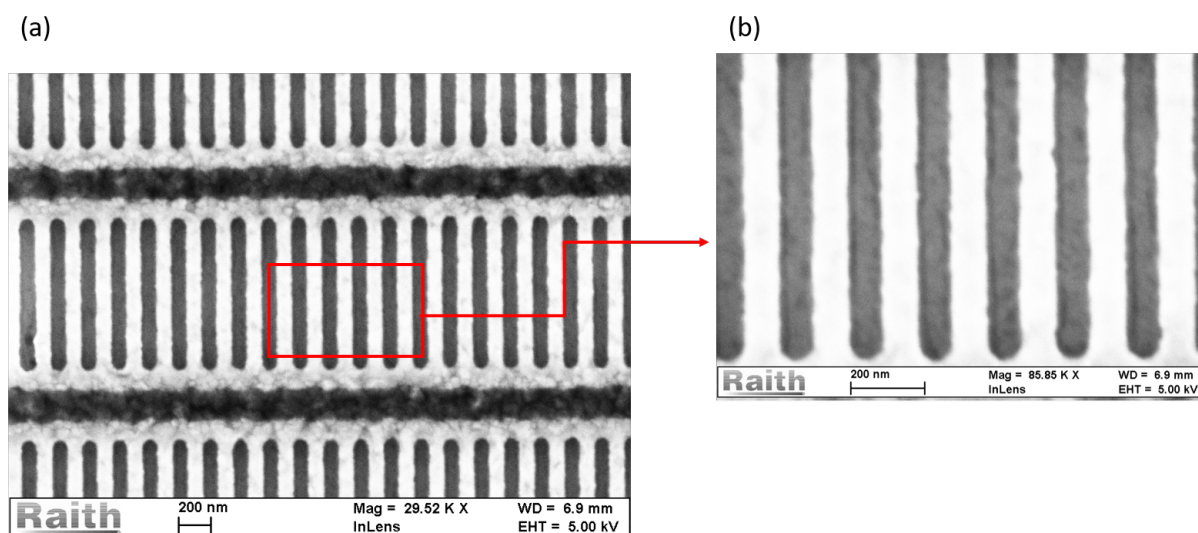


FIGURE II.30 – (a) Photo MEB du réseau après l'étape de la gravure de la couche d'aluminium. (b) Zoom sur une zone de l'image.

La taille du réseau obtenue présente une la largeur des motifs de 104 nm et un écart type de 2.4 nm. Cette première modification du process permet de réduire l'écart type de 8%. Nous avons donc choisi de conserver cette valeur (15s) dans les prochaines recettes de gravure de la couche d'Al.

Le deuxième test consiste à introduire le gaz CHF_3 dans le mélange BCl_3/Cl_2 . Ce gaz permet d'accélérer la gravure de l'aluminium [48-49]. La figure II.31 représente une image du réseau après gravure.

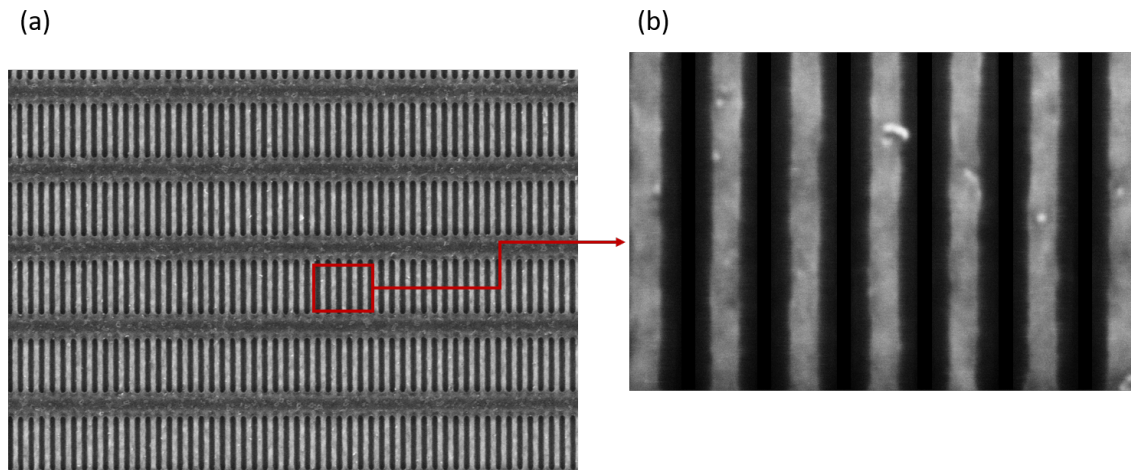


FIGURE II.31 – (a) Photo MEB du réseau après l'étape de la gravure de la couche d'aluminium. (b) Zoom sur une tranchée du réseau.

Comme l'illustre la figure II.31, les largeurs des fentes dans la résine et dans l'aluminium ont augmenté. Cette largeur est évaluée à 160 nm avec un écart type de 6.8 nm. Nous avons remarqué aussi que le profil de la structure en Al a changé, les flancs de la gravure sont inclinés formant un trapèze. En réalité, un film organique polymérisé composé du fluorure d'aluminium AlF_3 et une couche de passivation comprenant du sel d'ammonium et d'oxyde de bore se sont formées sur les parois latérales de l'aluminium [48].

Nous en avons déduit que la gravure d'Al dans une décharge comprenant le mélange des gaz $CHF_3/BCl_3/Cl_2$ entraîne la formation des profils inclinés [48]. Contrairement à une gravure avec le BCl_3/Cl_2 en absence du CHF_3 , le plasma conduit à un profil anisotrope sans formation apparente de polymères.

Dans le troisième test, nous avons diminué la pression de travail dans le réacteur à 10 mTorr. Les dimensions du réseaux ne'ont pas été respectées. Pour le réseau de pas de 200 nm, la largeur des fentes est égale 138 nm avec un écart type de 8.4 nm. Nous avons constaté qu'avec ce changement (de la pression), les bords des barreaux contiennent plus de creux, la corrugation devient trop élevée (figure II.32)

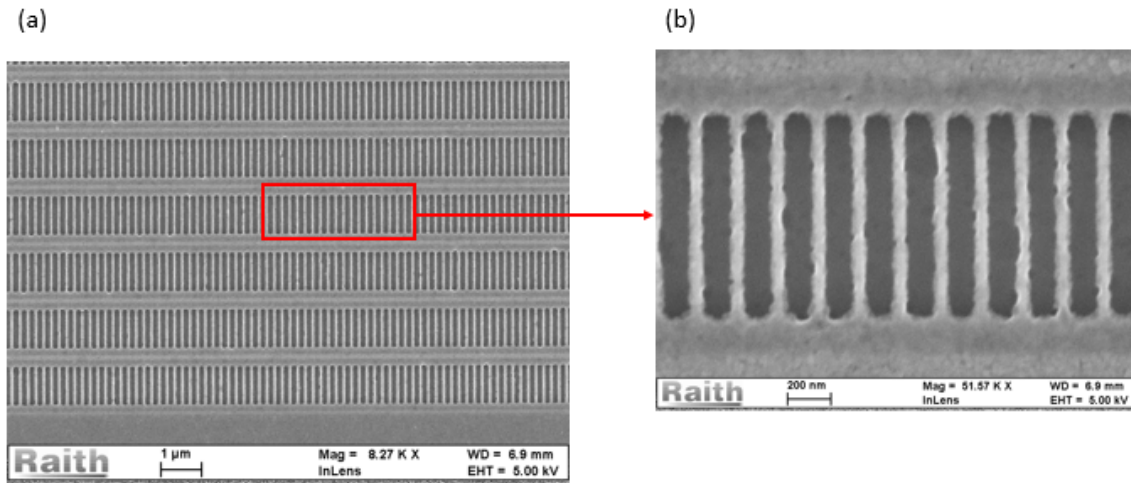


FIGURE II.32 – (a) Photo MEB du réseau après l'étape de la gravure d'aluminium. (b) Zoom sur une tranchée du réseau.

L'effet de l'auto-polarisation du substrat, qui permet d'accélérer les ions du plasma et d'induire une gravure anisotrope, est compensé tout en partie pour la diminution de la pression dans la chambre [45]. La gravure devenant plus chimique que physique, laisse apparaître des trous sur les bords des barreaux du réseau.

La puissance radio-fréquence RF a été réduite dans le quatrième test (à 75W). Après 5 secondes de gravure, les ouvertures du réseau ne sont pas complètement réalisées. Par conséquent, la gravure est devenue plus lente (augmentation du temps de gravure de la couche d'aluminium). La figure II.33 présente le réseau de fentes obtenu après cette étape de fabrication.

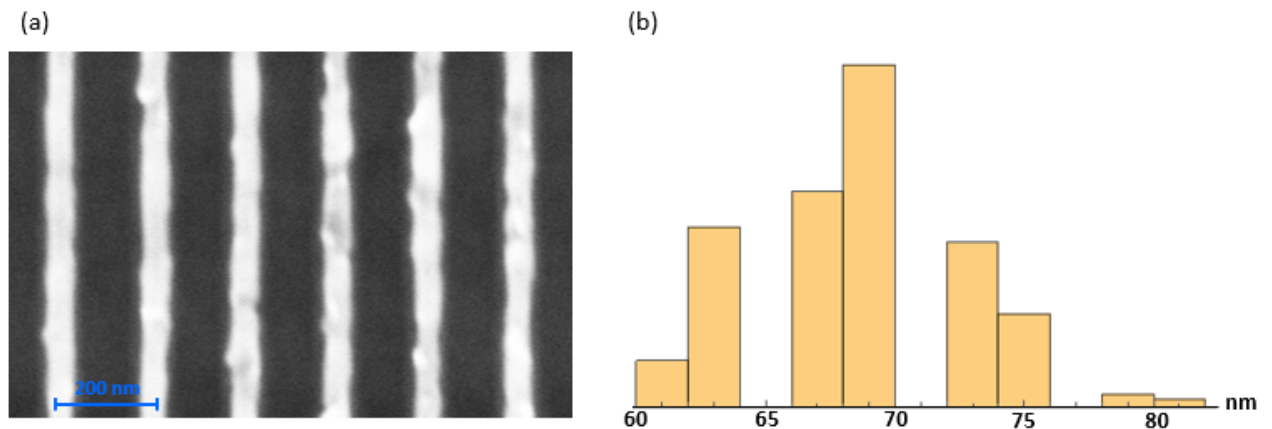


FIGURE II.33 – (a) Image MEB du réseau de fentes après l'étape de la gravure d'aluminium. (b) Histogramme de la répartition de la largeur des barreaux.

D'après la figure II.33, la géométrie du réseau n'est toujours pas respectée. La largeur des fentes est plus grande que celle initialement prévue. Elle vaut 130 nm avec un écart type de 2.4 nm. Une RF est utilisée pour allumer le plasma (décharges capacitives) et accélérer les ions vers le substrat grâce à une tension d'auto-polarisation. Le flux des ions injectés dans le plasma vers le substrat est donc contrôlé par la puissance RF. En diminuant cette puissance, la densité du plasma baisse. Cela permet de graver les motifs d'une manière lente et moins physique. C'est pour cette raison que nous avons eu un écart type aussi faible en comparaison avec les autres tests.

Les structures étant trop gravées, nous avons baissé le temps de gravure de la couche d'Al à 7 secondes (au lieu de 9 s) en gardant la puissance RF à 75 W pour ce dernier test (Figure II.34).

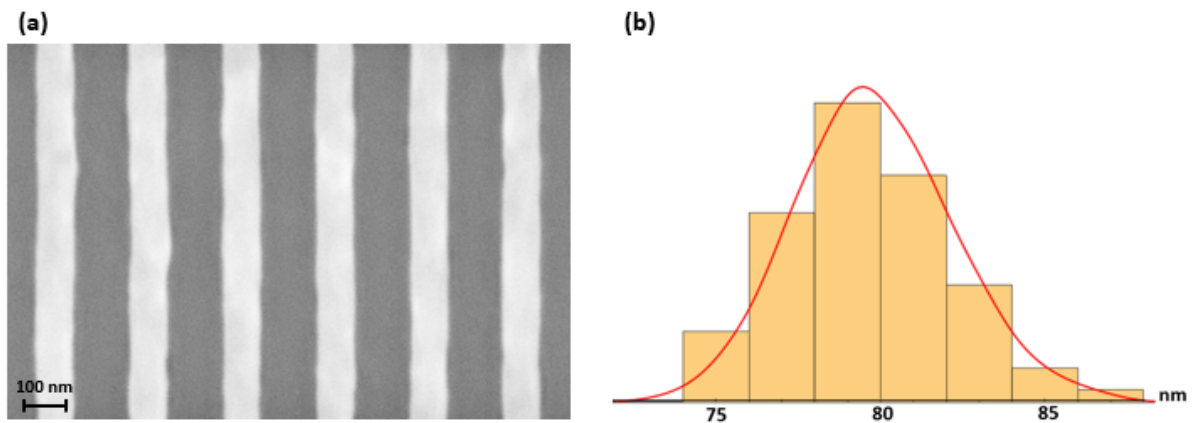


FIGURE II.34 – (a) Image MEB du réseau de fentes après l'étape de la gravure de la couche d'aluminium. (b) Histogramme de la répartition de la largeur des barreaux.

Nous avons trouvé que la largeur des fentes se rapproche de la valeur souhaitée, elle est de l'ordre de 105 nm avec un écart type de 1.5 nm. Nous avons remarqué que la corrugation a été réduite de 30%. Dans la suite de ce travail, nous avons gardé la recette de gravure utilisée dans le test numéro 6 pour la réalisation des réseaux de transmission.

Le tableau II.6 regroupe les variations sur ces recettes ainsi que les résultats obtenus pour la détermination de la valeur de la géométrie souhaitée, de la réduction de la corrugation et de la sélectivité de gravure.

	Modifications apportées sur le test 0	Taille des fentes moyenne (nm)	Corrugation (écart type (nm))	Sélectivité
test 0	WP : 20 mTorr <i>BCl</i> ₃ : 16 sccm <i>Cl</i> ₂ : 4 sccm LF : 800 W RF : 150 W Temps de gravure : 5s	126	2.4	0.42
Test 1	Augmentation du temps de stabilisations des gaz	104	2.2	0.47
Test 2	WP : 10 mTorr <i>BCl</i> ₃ : 50 sccm <i>Cl</i> ₂ : 50 sccm <i>CHF</i> ₃ : 10 sccm LF : 750 W RF : 150 W Temps de gravure : 1s	160	6.80	0.36
Test 3	WP : 10 mTorr Temps de gravure : 7s	138	8.4	0.36
Test 4	RF : 75 W Temps de gravure : 9s	130	2.4	0.59
Test 5	RF : 75 W Temps de gravure : 7s	105	1.5	0.64

TABLE II.6 – Tableau récapitulatif des tests réalisés pour l’optimisation de l’étape de la gravure de la couche d’aluminium.

2.4 Transfert des motifs dans le *Si*₃*N*₄

2.4.1 Gaz de gravure

Les plasmas fluorocarboné comme *CCL*₂*F*₂, *CHF*₃ et *CF*₄ ou les gaz fluorés *SF*₄ et *SF*₆ plus l’oxygène sont utilisés pour la gravure du nitrure de silicium [50-51-52].

Dans ce travail, nous avons choisi d’utiliser un mélange de gaz composé du *CHF*₃ et de *O*₂. Ce mélange permet d’avoir des profils anisotropes avec des flancs de gravure latérales verticaux

[53].

Le premier gaz permet de bombarder la matière tandis que le deuxième augmente le taux de gravure et la sélectivité de gravure [50]. En effet, dès que l'oxygène est introduit, il oxyde le fluorocarbure, ce qui conduit finalement à une augmentation considérable des espèces de gravure. Il forme également des oxydes d'azote volatils présents dans le nitrure de silicium.

Le transfert des motifs de fentes dans 100 nm de Si_3N_4 a été réalisé en choisissant des débits de 50 et 10 sccm des gaz CHF_3 et O_2 respectivement. La pression de travail est de 10 mTorr, la tension appliquée est de 150V, la puissance RF est égale à 500 W et la puissance LF est de 50W. Le temps qui permet de graver la totalité de la couche de Si_3N_4 est de 35s.

2.4.2 Analyse des résultats

Afin d'observer le réseau après le transfert des motifs dans le nitrure de silicium au MEB (voir figure II.35), nous avons supprimé au préalable la couche d'aluminium résiduelle grâce à une gravure chimique à base d'une solution composée de trois acides : phosphorique (40-80%), acétique (3-20%) et nitrique (1-5 %). Cette gravure n'attaque pas la couche de nitrure de silicium.

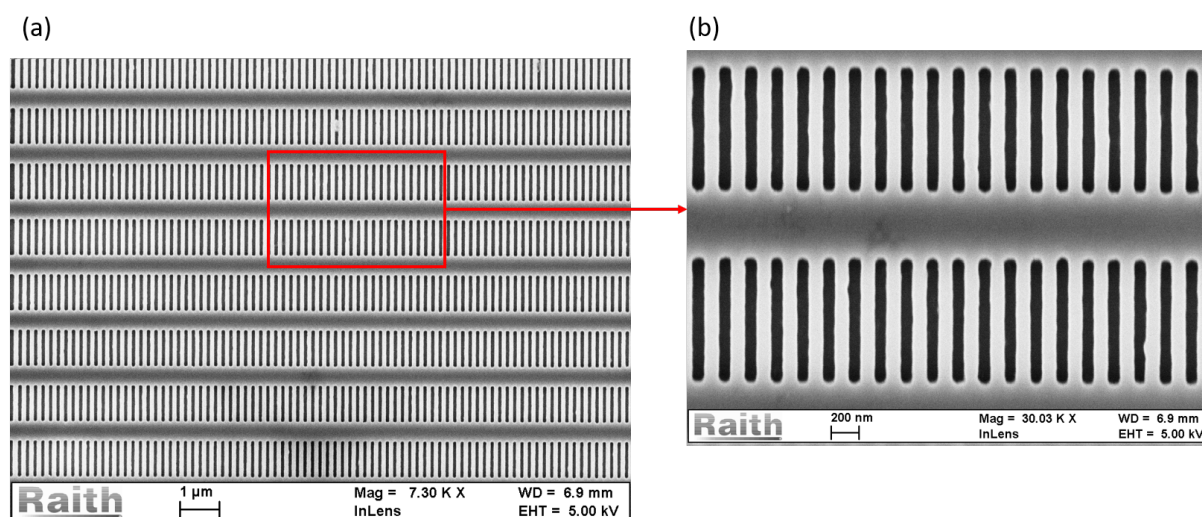


FIGURE II.35 – (a) Photo MEB du réseau de fentes après l'étape de gravure du Si_3N_4 . (b) Zoom sur une petite surface du réseau.

Nous avons procédé ensuite à l'analyse de la taille finale de ce réseau.

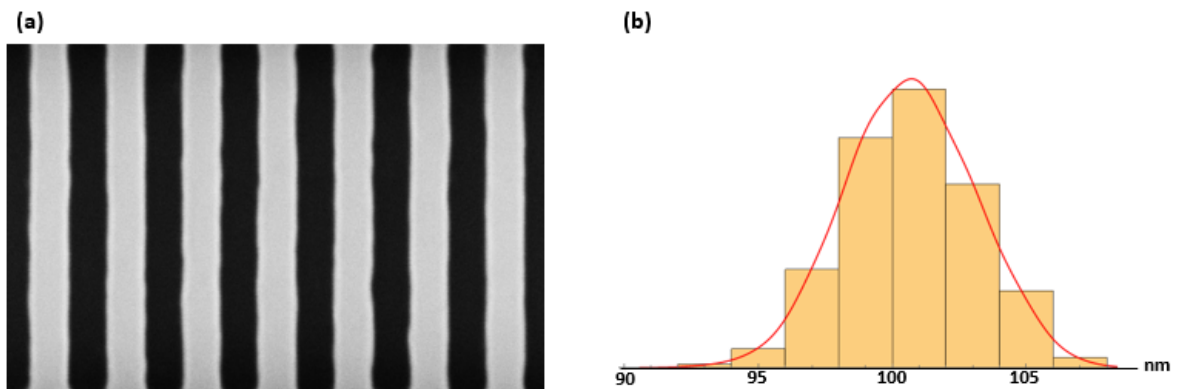


FIGURE II.36 – (a) Image MEB du réseau de fentes en fin de process. (b) Histogramme de la répartition de la largeur des barreaux.

D'après la figure II.36 ci-dessus, nous avons trouvé que le pas du réseau est de 200 nm, la largeur des fentes est de 99 nm et une largeur de barreau de 100.6 nm avec un écart type de 1.7nm. Nous pouvons en déduire que la géométrie du réseau a bien été respectée.

2.4.3 Coupe transverse du réseau

Comme vu dans la section précédente, la gravure des structures dans la couche de Si_3N_4 s'est déroulée avec succès. Par la suite, une observation transversale du réseau de fentes est réalisée sur substrat pour déterminer le profil de gravure (figure II.37).

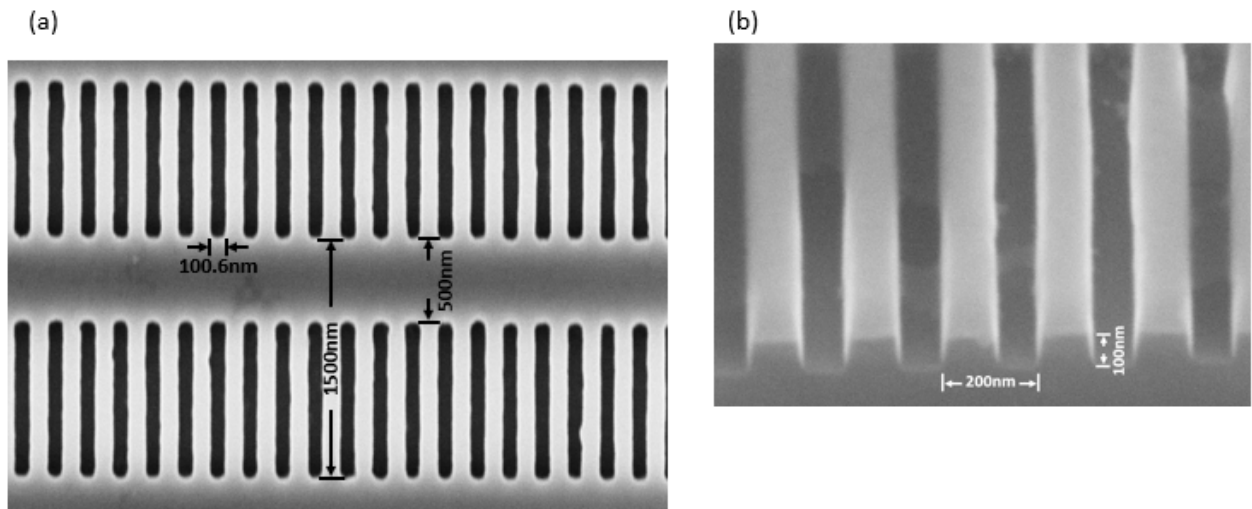


FIGURE II.37 – (a) Image MEB en vue de dessus du réseau de fentes de pas de 200 nm . (b) Vue en coupe transverse du même réseau.

Cette image révèle que les parois latérales sont verticales. La profondeur des barreaux est de 100 nm déterminée grâce à une mesure AFM. La gravure ICP a permis donc d’avoir une forme de barreaux rectangulaires.

2.4.4 Procédé de gravure optimisé sur membrane

Après la détermination des paramètres de gravure optimales pour le transfert des motifs dans le Si_3N_4 sur substrat de Si. Nous avons appliqué cette recette pour réaliser des réseaux de fentes sur membrane (voir figure II.38).

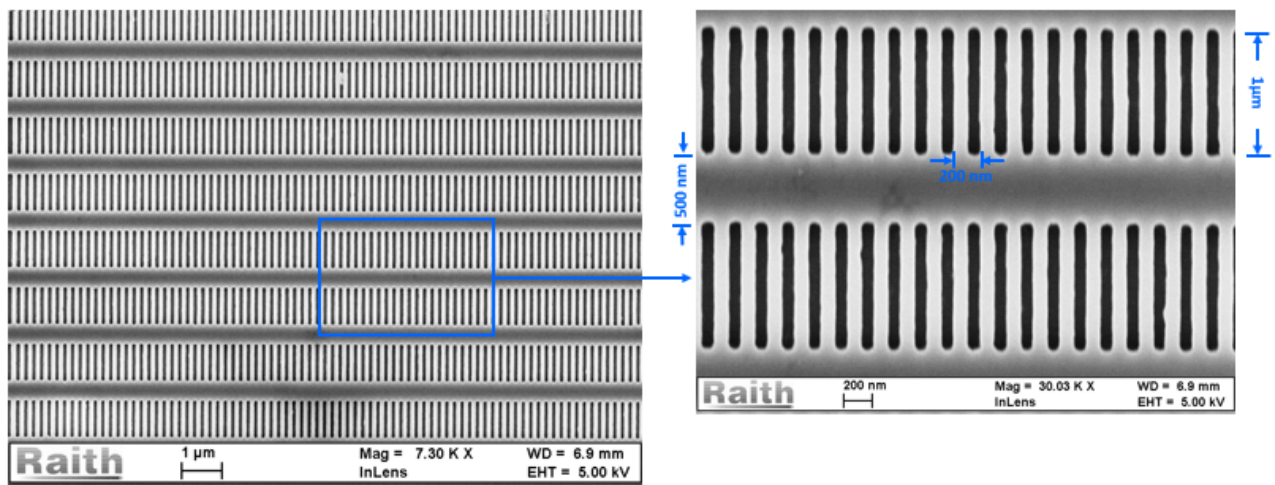


FIGURE II.38 – Image MEB dans une zone du réseau de fentes de pas de 200 nm sur membrane.

Grâce à une analyse quantitative, nous avons déterminé le pas et la largeur des fentes. Nous avons également analysé les images MEB pour remonter aux ouvertures sur les deux faces de l'échantillon dans le but de calculer l'angle d'inclinaison des flancs de gravure. La caractérisation du réseau de transmission en nitrure de silicium finale donne la géométrie suivante :

- Pas du réseau : 200 nm ;
- Largeur des ouvertures : 105-115 ;
- Profondeur des barreaux : 100 nm ;
- Angle de gravure 0.5° .

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les différentes étapes du process suivi pour la réalisation des nanoréseaux de fentes de diffraction. Le dépôt par évaporation du masque dur en aluminium permet d'avoir une surface moins rugueuse (3.2 nm) de 24% et des flancs de gravure plus droits par rapport à un dépôt par PVD (rugosité de 4.2 nm). Ces résultats ont été déterminés grâce à, des mesures AFM de l'état de la surface des couches d'Al (déposées par deux techniques, PVD et évaporation), ainsi qu'une comparaison des résultats de mesure de

la corrugation sur les bords des fentes après gravure ICP pour le transfert des motifs dans la couche d'aluminium. Dans ce travail, la lithographie électronique a été choisie pour la structuration de la surface du nitrure de silicium pour sa résolution et sa flexibilité sur la variation de la géométrie du réseau (pas, ...). Durant cette étape de fabrication, les effets de proximité (du aux électrons rétrodiffusés et de l'épaisseur de la résine) se traduisent par un élargissement de la largeur des ouvertures au centre du réseau. L'application d'un process de correction de ces effets s'est avéré nécessaire pour obtenir une géométrie homogène sur toute la surface du réseau. La PEC modélise la dose à l'intérieur de la structure à insoler. Elle a permis de diminuer la différence de largeur des fentes à une valeur entre 105 et 115 nm et d'homogénéiser la géométrie sur l'ensemble du réseau à 70% par rapport à un réseau sans application de la PEC. La minimisation de la corrugation sur les bords des fentes, quant à elle, a été réalisée au moyen de quelques changement des paramètres de gravure ICP de la couche d'aluminium. Elle a été réduite à moins de 30 % par rapport à la gravure de départ. Le transfert des motifs dans le Si_3N_4 et l'observation transversale du réseau ont permis d'obtenir des barreaux avec la forme rectangulaire souhaitée (pas de 200 nm, largeurs de fentes entre 105-115 nm, profondeur de 100 nm et un angle de gravure de 0.5°).

Chapitre III

Étude des interactions Casimir-Polder entre un jet d'atomes lent et la surface d'un réseau de fentes

Introduction

Des expériences de diffraction sont menées pour la mesure de l'interaction Casimir-Polder entre un jet atomique d'argon et une surface d'un ancien réseau de fentes en transmission prêté par A. Cronin de l'Université d'Arizona et fabriqué au MIT. Ce réseau (en Si_3N_4) a été fabriqué par le groupe de T. A. Savas [11] dans les années 95 avec la technique de lithographie interférométrique achromatique rapportée dans la section 1.1 du premier chapitre de ce travail. Le support qui nous a été envoyé contient trois réseaux identiques indépendants. Chacun d'eux a une surface de 8 mm x 600 μm (8 mm de longueur et 600 μm de largeur). La figure III.1 présente des photos que nous avons obtenu au MEB de ce réseau ainsi qu'un schéma de son profil.

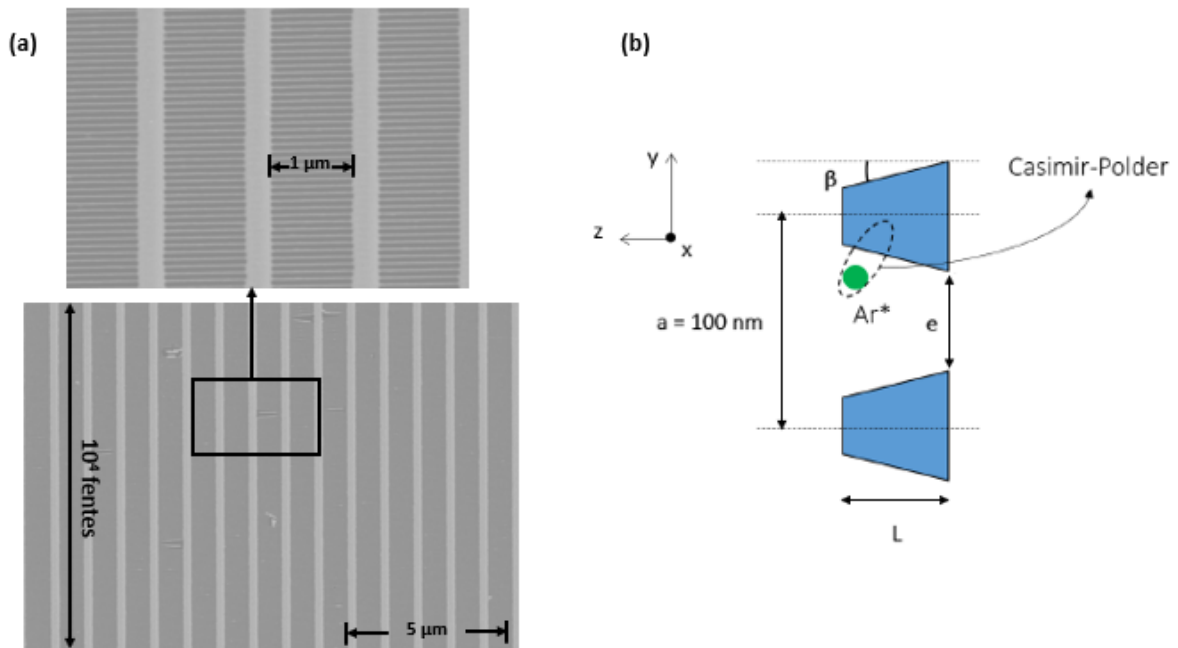


FIGURE III.1 – (a) Images MEB du réseau de Cronin de période 100 nm fabriqué par AIL. (b) Vue en coupe du motif périodiques constituant le réseau de diffraction (profil trapézoïdale).

L'observation au MEB de ce réseau montre l'ensemble de fentes pleines et creuses espacées régulièrement de 100 nm. Ce réseau est constitué de 10^4 fentes par mm. La largeur minimale des fentes e a été mesurée entre 50 et 65 nm.

D'après la figure III.1 (b) et contrairement aux réseaux que nous fabriquons, les flancs latéraux du réseau prêté ont un profil différents par rapport à ceux que nous fabriquons au CP2N. Les flancs sont inclinés avec un angle β (dû à la gravure plasma pendant le transfert des motifs dans le Si_3N_4) et une profondeur L qui sont mal connus. Dans ce contexte, nous avons réalisé des mesures de transmission du jet atomique pour déterminer au mieux sa géométrie. Avant de présenter les expériences avec leurs résultats, nous allons décrire : la production d'un jet supersonique puis sa transformation en un jet lent en passant par un ralentisseur Zeeman et le piégeage du jet atomique dans un piège magnéto-optique.

1 Montage expérimental de la diffraction atomique

1.1 Description générale

Le dispositif expérimental a été conçu pour l'étude des collisions atomiques par jets supersoniques croisés à la fin des années 1970. Celui-ci a beaucoup évolué pour devenir une source d'atomes d'argon métastables ralentis permettant ainsi d'augmenter le temps d'interaction entre les atomes et les nano-structures. La décélération des atomes se déroule dans un ralentisseur Zeeman en deux parties (champ magnétique positif puis négatif et laser désaccordé de -340 MHz). Cependant, le ralentissement du jet supersonique a deux inconvénients : la dispersion angulaire et le mauvais contrôle de la vitesse finale. C'est pour cette raison qu'un piège magnéto-optique a été réalisé dans les années 2015 [12-54]. Le montage expérimental est constitué de six parties (cf.figure III.2) :

- La production d'un jet atomique supersonique d'argon à partir d'une tuyère après une décompression de plusieurs bars à quelques 10^{-4} mbar ;
- La formation d'un jet d'atomes métastables Ar^* grâce à un système de bombardement électronique ;
- Le cube ou "Christine" (ainsi nommée en l'honneur de la première thésarde ayant travaillé sur ce dispositif), enceinte où s'effectuait l'étude des collisions atomiques en jets croisés ;
- La première partie du ralentisseur Zeeman pompée à vide grâce à une petite pompe turbomoléculaire. La deuxième partie du ralentisseur, plus courte, qui est à l'extérieur du vide ;
- Le MOT (Magneto-Optical Trap) ;
- la Chambre d'expérience à ultra-vide (quelques 10^{-9} mbar). Cette chambre contient : les objets diffractants (réseau nanométrique par exemple), des bobines en configuration

Helmoltz, un nanositionneur [55] et un système de détection [56,57] (MicroChannel-Plate(MCP) et Delay Line Detector (DLD)).

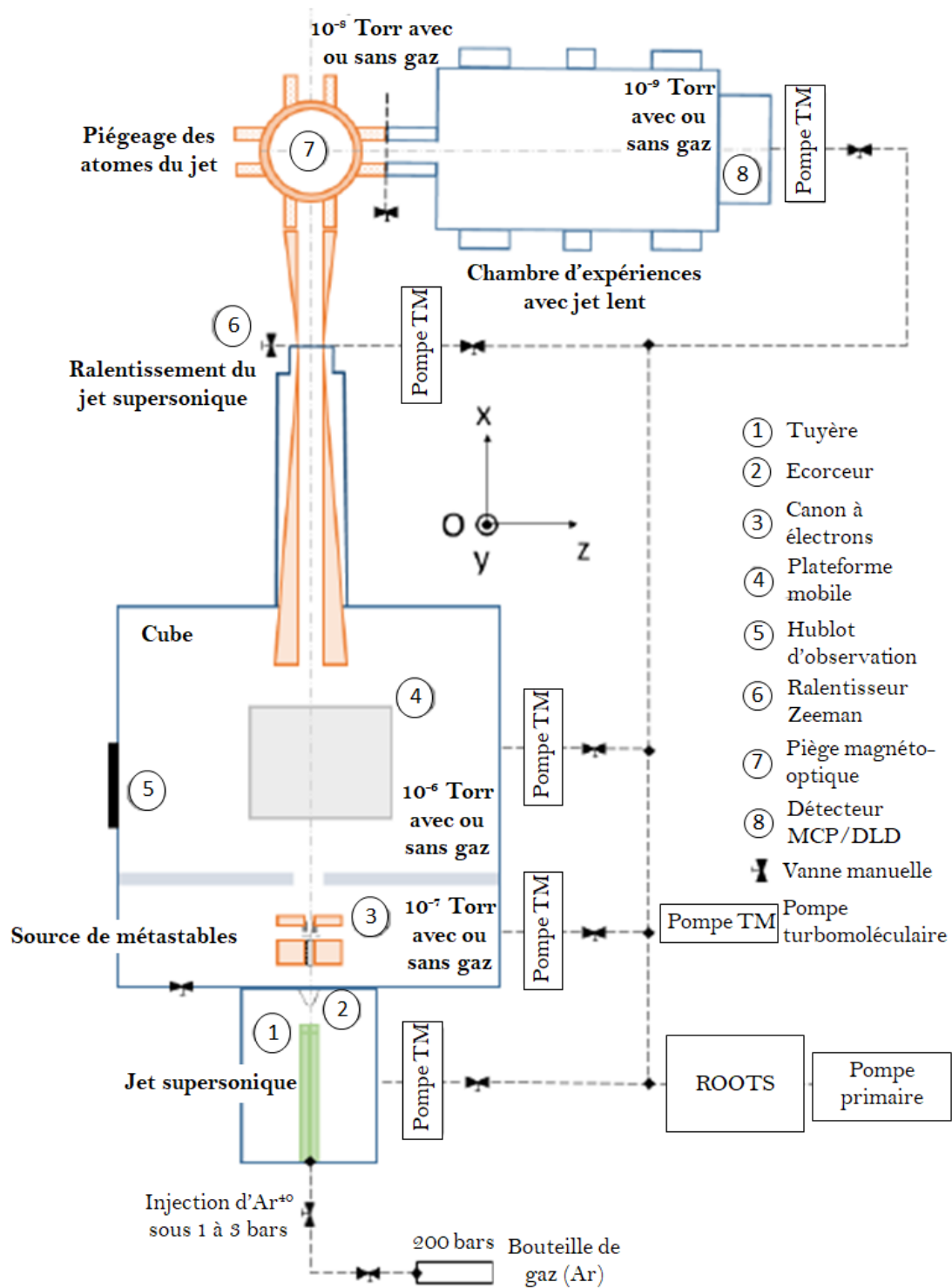


FIGURE III.2 – Schéma complet de l'expérience vue de dessus décomposable en six parties

1.2 Jet atomique d'argon métastable supersonique

La production du jet supersonique de type Haberland [58] est obtenue par un vide différentiel entre le gaz (1 à 2 bar) et la chambre de moyenne pression (10^{-4} mbar) grâce à une tuyère de $50\ \mu\text{m}$ (nozzle, cf. figure III.3). Une telle détente donne un jet supersonique sous forme d'une bouteille de Mach (exprime le rapport de la vitesse du gaz à la vitesse du son dans ce gaz) à température ambiante (560 m/s) de petite ouverture angulaire (10 mrad) et de grande cohérence transverse. L'écorceur (skimmer) est utilisé pour percer la bouteille de Mach et extraire les atomes d'argon du jet supersonique (cf. figure III.3).

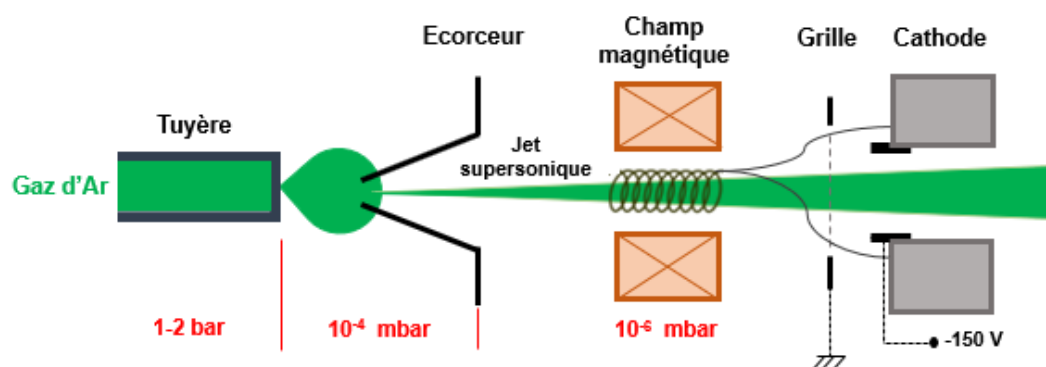


FIGURE III.3 – Schéma du principe de formation : d'abord, d'un jet d'atomes supersonique grâce à une forte différence de pression, ensuite, la production d'atomes métastables en se basant sur un canon à électron pour le bombardement électronique.

Les atomes d'argon sont excités par bombardement électronique en sortie de l'écorceur. Pour cela, nous utilisons une cathode cylindrique creuse commerciale qui émet des électrons issus d'un oxyde de baryum [59]. Cette cathode est montée sur une pièce en nitrure de bore et une monture auto-centrée en cuivre (cf. figure III.4). Le contrôle du courant se réalise grâce à un programme Labview déployé sur un châssis temps réel. Pour accélérer les électrons contre-propageants au jet atomique de fondamentaux (1S_0), une tension de -150 V est appliquée entre la cathode et une grille en molybdène. Dans le but d'augmenter la probabilité de collision entre

les atomes d'Ar et les électrons, nous faisons spiraler ces derniers autour des lignes de champ lorsque nous appliquons un champ magnétique de quelques centaines de Gauss (~ 600 Gauss).

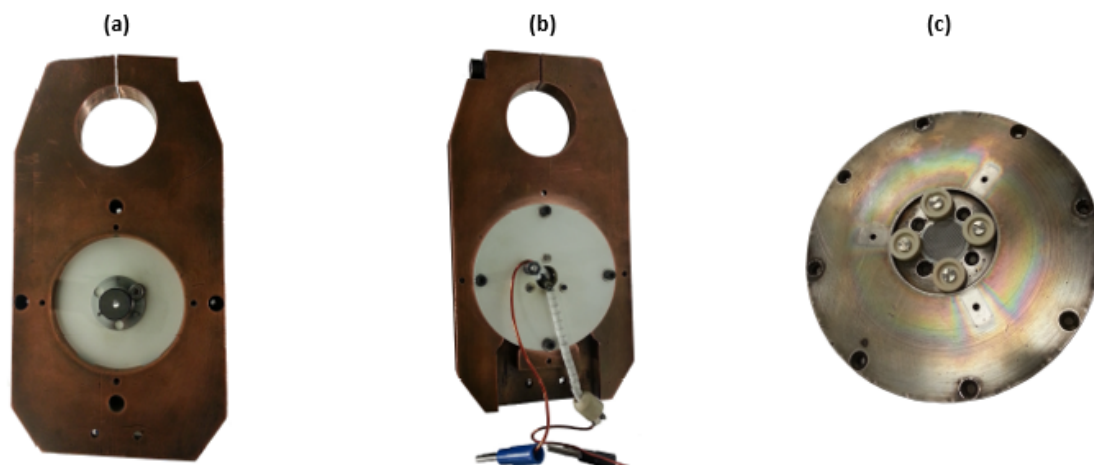


FIGURE III.4 – (a) Vue avant : cathode sur un isolant en nitrure de bore (blanc). (b) Vue arrière : filament de polarisation plus un autre en tungstène isolé par des rondelles en céramique. (c) Grille trouée circulaire en molybdène maintenue par des céramiques et des vis en molybdène.

Les atomes d'argon excités se trouvent dans leurs deux niveaux métastables 3P_2 et 3P_0 (cf. figure III.5) qui ont une durée de vie respective de 38 s et 45 s (niveaux peuplés respectivement de 85 % et 15 % d'atomes métastables). Le jet d'Ar* garde sa propriété "supersonique" après bombardement électronique puisque le faisceau est légèrement dispersé : $\delta v/v \sim 7\%$ pour une ouverture angulaire de 10 mrad. Le jet reste donc direct sans qu'il soit nécessaire d'employer une collimation avant d'entrer dans le ralentisseur Zeeman comme c'est le cas pour un jet effusif (distribution de vitesse de l'ordre de 100 %). Dans nos expériences, nous utilisons un courant de 8.6 A qui chauffe l'oxyde qui a son tour émet des électrons, ce qui permet d'atteindre un flux d'atomes métastables entre 10^8 et 10^{10} at/s mesuré à l'aide d'un détecteur Faraday [60].

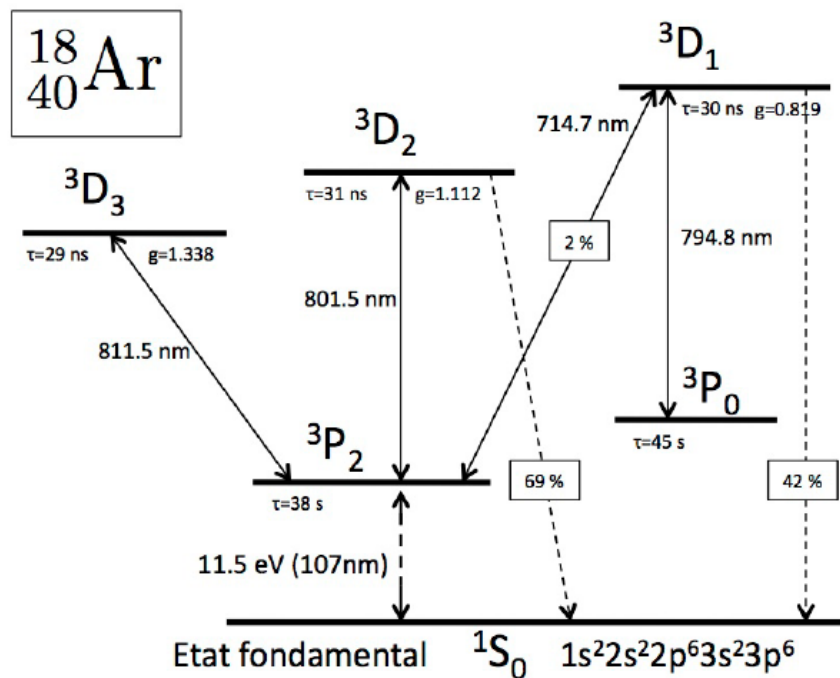


FIGURE III.5 – Premiers niveaux des transitions électroniques de l'atome d'Argon vers les niveaux 3D_n . Les longueurs d'onde (en nm) sont extraites de [61], les facteurs de Landé g de [62], les durées de vie τ (des niveaux 3D_n) et les taux de branchement (en pourcentage) de [63].

1.3 Ralentissement du jet supersonique

Le jet supersonique d'argon métastable dans l'état 3P_2 et à vitesse thermique de 560 m/s est ralenti grâce à un ralentisseur Zeeman construit en 2005 par l'équipe OIA. Ce dernier est constitué de deux parties. Une première bobine sous vide fabriquée par Jules Grucker [64] offre un champ magnétique positif allant de 240 Gauss à zéro sur une longueur de 80 cm pour diminuer la vitesse des atomes du jet à 276 m/s. Un autre bobinage est conçu à l'extérieur du tube à vide par Mehdi Hamamda [65] pour éliminer tout risque de dégazage qui dégrade le vide et par conséquent diminue l'intensité du jet ralenti. Cette deuxième partie permet d'obtenir une vitesse de sortie variable par simple contrôle du courant dans la bobine.

Le principe du ralentisseur repose sur l'application d'une force radiative d'un laser réson-

nant et contra-propageant aux atomes [66]. D'après la loi de conservation des moments, l'énergie cinétique d'un atome diminue lorsque celui-ci absorbe un photon [54]. Puisque nous travaillons avec une transition cyclante $^3P_2 \leftrightarrow ^3D_3$ (car le taux de branchement dans cette transition est de 100 % cf. figure III.5), aucun repompage optique n'est nécessaire, nous n'avons donc besoin que d'une seule longueur d'onde à 811.5 nm. Cette fréquence est obtenue grâce à une diode laser montée en cavité étendue [67] et un amplificateur à diode qui peut délivrer jusqu'à 750 mW de puissance. Le décalage en fréquence de -340 MHz du faisceau optique servant au ralentissement s'effectue à l'aide d'un modulateur acousto-optique (AOM). Nous utilisons une puissance optique de 20 à 30 mW pour ralentir les atomes.

L'ensemble du montage optique (largement détaillé dans la thèse de Franck Correia [60]) est agencé dans la salle laser (adjacente à la salle des expériences). Le transport de la fréquence laser d'une pièce à l'autre se réalise grâce aux fibres optiques.

1.4 Piège magnéto-optique

En sortie du ralentisseur Zeeman, les atomes d'Ar* dans l'état 3P_2 ont une vitesse faible ajustable de l'ordre de 50 m/s avec une grande ouverture angulaire (plusieurs dizaines de mrad). L'équipe a donc conçu un piège magnéto-optique (MOT : Magneto-Optical Trap) en s'appuyant sur le montage expérimental de Sukenik et Busch [68] qui utilise à la fois le refroidissement d'atomes par laser et le piégeage magnétique afin de produire une nouvelle source d'atomes froids, à des températures de l'ordre de quelques milliKelvins. Grâce à ce dispositif, le jet atomique peut être ralenti jusqu'à des vitesses de quelques dizaines de mètres par seconde (20 m/s) permettant ainsi l'étude des interactions de van der Waals entre un atome et une surface d'un nanoréseau. Le MOT dispose de six faisceaux lasers, répartis par paires, se propageant dans des sens opposés, selon les trois directions orthogonales de l'espace et qui assurent le refroidissement par effet Doppler des atomes. En plus, le MOT contient un dispositif de piégeage

magnétique utilisant un champ magnétique quadrupolaire, qui vise à assurer le confinement des atomes refroidis. Afin d'éviter des collisions entre le nuage atomique dans le MOT et le jet incident, les faisceaux lasers de la mélasse optique utilisés sont particulièrement large (2.5 cm de diamètre). Le nombre d'atomes dans le MOT est estimé à quelques 10^6 at/s. La figure III.6 montre une vue en coupe du montage expérimental contenant à la fois le ralentisseur Zeeman, le MOT, la chambre d'expérience et le système de détection composé d'une plaque à micro-canaux (MCP : microChannel Plate) suivis de deux paires de lignes à retard de 80 mm de diamètre (DLD : Delay Line Detector)[60].

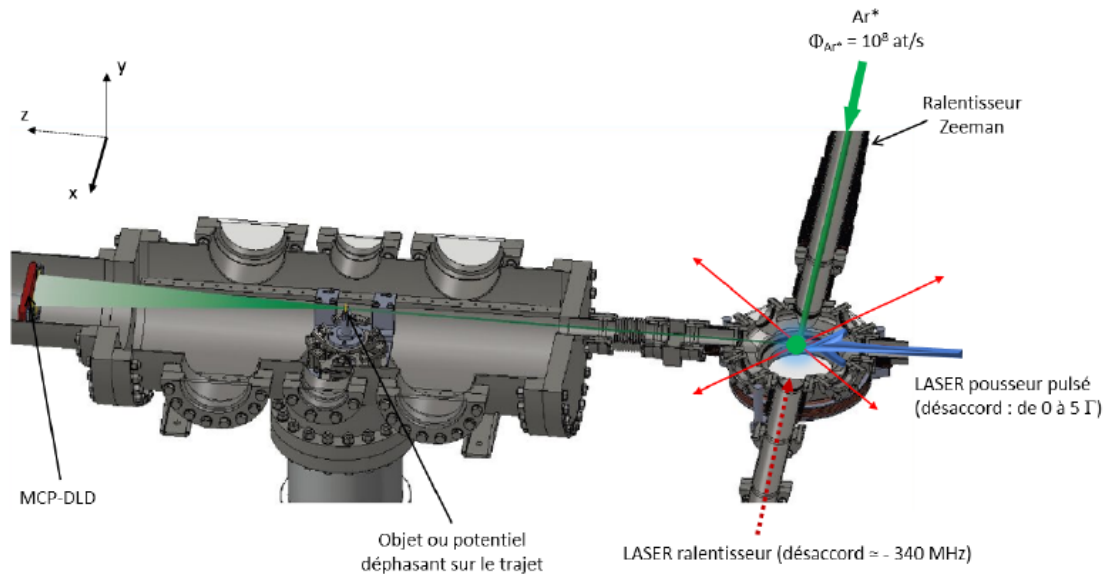


FIGURE III.6 – Schéma du montage expérimental contenant le ralentisseur Zeeman où seuls les atomes d'Ar* 3P_2 sont ralentis puis piégés par un MOT. A l'aide d'un laser pulsé, les atomes piégés sont poussés vers la chambre d'expérience afin de traverser un objet diffractant (réseau de fentes par exemple). Les atomes diffractés sont capturés par un détecteur temps-position synchronisé avec le déclenchement du laser pulseur.

1.5 Caractérisation du faisceau atomique pulsé

Afin de traverser un objet diffractant, les atomes piégés du MOT sont envoyés vers la chambre d'expérience à l'aide d'un faisceau laser pulseur accordé sur la même transition cy-

clante que lors du ralentissement à 811.5 nm. Ce laser est contrôlable intégralement en temps d'ouverture, en intensité et en fréquence. On obtient un jet d'argon métastable de vitesses comprises entre 20 m/s et 150 m/s en variant : le temps de poussée t_p , le désaccord en fréquence du laser pousseur δ_L et l'intensité ajustable B_z^l d'un gradient de champ magnétique (du MOT). Des vitesses plus faibles (< 20 m/s) peuvent être atteintes. En revanche, à ces vitesses, les atomes peuvent arriver au-dessous du détecteur à cause de la chute libre.

Pendant la poussée des atomes du jet lent pulsé, la mélasse optique (champ laser du MOT) est coupée alors par le champ magnétique du MOT reste en fonctionnement. Le maintien du champ magnétique nous permet d'atteindre un taux de répétition relativement élevé de 12 Hz, ce qui permet de reformer le nuage atomique du MOT.

La production du faisceau atomique lent suit le principe d'un accélérateur Zeeman où le champ magnétique n'est pas ajusté pour permettre une accélération constante. Le calcul de la vitesse moyenne du jet atomique après un temps d'irradiation t_p est déterminée par le nombre de photons absorbés tel que [69] :

$$\frac{1}{\Gamma_{abs}} = \frac{1}{\Gamma_{sc}} - \frac{1}{\Gamma} \quad (\text{III.1})$$

avec Γ_{abs} le taux d'absorption, Γ_{sc} le taux de photons diffusés et Γ le taux d'émission naturelle (largeur de raie atomique) défini par :

$$\Gamma_{sc} = \frac{\Gamma}{2} \frac{s_0}{1 + s_0 + (2\Delta/\Gamma)^2} \quad (\text{III.2})$$

où $s_0 = I/I_{sat}$ est le paramètre de saturation avec $I_{sat} = 1.4$ mW/cm² et Δ le décalage Doppler lié au mouvement de l'atome tel que :

$$\Delta = (2\pi)\delta_L - k_L v + (g_f m_f - g_i m_i)\mu_B B/\hbar, \quad (\text{III.3})$$

avec $\delta_L = c(k_L - k_{res})/(2\pi)$ le décalage laser à résonance en MHz, $k_L = 2\pi/\lambda_L$ le nombre

d'onde du laser, $k_{\text{res}} = 2\pi/\lambda_{\text{res}}$ le nombre d'onde à résonance de l'Ar*, c la vitesse de la lumière, μ_B le magnéton de Bohr, $g_f = 1.338$, $g_i = 1.506$ les facteurs de Landé, $m_f = 3$, $m_i = 2$ et B l'intensité du champ magnétique.

La figure III.7 présente la vitesse finale estimée par temps de vol en fonction de la poussée du laser pousseur pour trois séries de paramètres. Nous pouvons atteindre une large gamme de vitesses (de 10 à 150 m.s^{-1}) en ajustant respectivement les paramètres : t_p , δ_L et B'_z . Nous remarquons que la vitesse moyenne est extrêmement stable et reproductible. Nous pouvons constater également que l'estimation de la vitesse finale ne peut pas être simplement la distance parcourue divisée par le temps de vol. Il faut estimer théoriquement la phase d'accélération des atomes pendant leur poussé pour déterminer la distance à laquelle se trouvent les atomes lorsqu'ils commencent leur vol balistique.

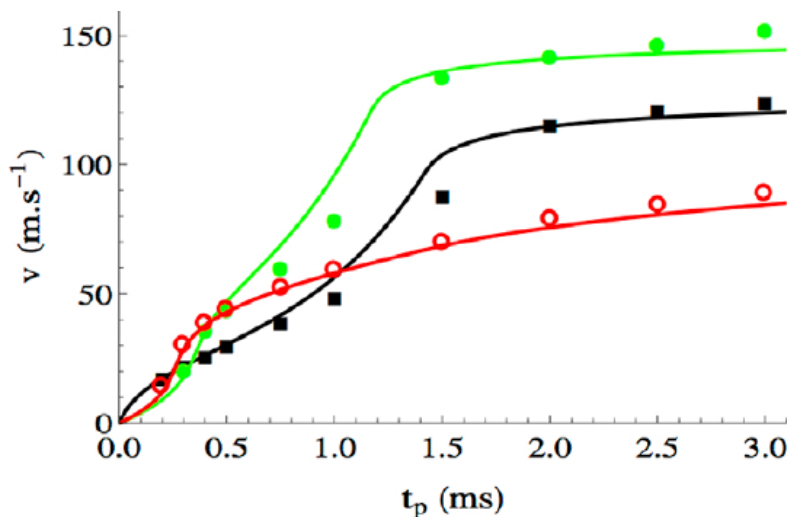


FIGURE III.7 – Vitesses théoriques (traits pleins) et expérimentales (carrés, ronds et cercles) estimées par temps de vol en fonction du temps de poussée t_p du laser pousseur. En rouge : $\delta_L = 26$ MHz et $B'_z = 2$ G/cm. En noir : $\delta_L = -4$ MHz et $B'_z = 12$ G/cm. En vert : $\delta_L = 28$ MHz et $B'_z = 12$ G/cm. Ces trois paramètres impactant la vitesse permettent d'atteindre trois plateaux de vitesses distincts [12].

Il est à noter que l'ensemble des caractéristiques spatiotemporelles (filtrage temporel ou spatial, sauvegarde, etc.) du jet sont traitées par un logiciel 'CoboldPC' sur ordinateur pendant

l'acquisition. Cette interface permet de visualiser une image 2D du jet où nous pouvons collecter un flux d'atomes conséquent. Elle permet également d'extraire une distribution du temps de vol à partir d'un domaine spatial sur l'image donnée par le détecteur. Ceci nous permettra de faire des mesures de vitesse à 1 ‰.

2 Mesure de la transmission pour la détermination de la géométrie du réseau

Comme nous l'avons abordé dans ce travail, le calcul du coefficient C_3 , notamment le potentiel d'interaction de Casimir-Polder, nécessite une bonne maîtrise des dimensions des nanobarres du réseau. Pourtant, il est impossible de mesurer la taille du réseau d'une manière non destructive. Le microscope électronique ne peut fournir que le pas du réseau a et l'ouverture des fentes e . La profondeur des barreaux L et l'angle des flancs de gravure (angle du trapèze) β restent inconnus. Il existe une technique optique permettant de mesurer ces paramètres en utilisant les rayons X mais elle est difficile à mettre en place car nous ne disposons pas au laboratoire de laser à rayons X ou de rayonnement synchrotron. Cependant, le groupe de Toennies [70] avait déjà estimé la taille des nanobarres par des mesures de transmission du jet atomique au travers du réseau. Cette méthode consiste à réaliser une mesure de transmission pour différents angles d'inclinaison du réseau sur son axe. Nous avons repris et développé cette technique de sorte que la mesure du rapport de flux entre le flux incident lorsque le réseau est incliné d'un angle θ , $F(\theta)$ et le flux $F(0)$ sous incidence normale au plan (x, y) contenant le réseau, s'exprime sous la forme d'une fonction divisée par domaines :

$$\omega(\theta) = \frac{F(\theta)}{F(0)} = \begin{cases} \frac{e}{a} & \text{si } |\theta| < \beta \\ \frac{e - L(\tan\theta - \tan\beta)}{a} & \text{si } \beta < |\theta| < \theta_{max} \\ 0 & \text{si } \theta_{max} < \theta \end{cases} \quad (\text{III.4})$$

où $\theta_{max} = \arctan(\frac{e}{L} - \tan\beta)$ présente un angle de coupure pour une annulation de transmission. A l'aide de cette méthode, nous avons réalisé des mesures de transmission de l'argon métastables pour des vitesses lentes et thermiques. Pour avoir un flux atomique le plus élevé possible, nous avons choisi la configuration expérimentale présentée dans la figure III.8.

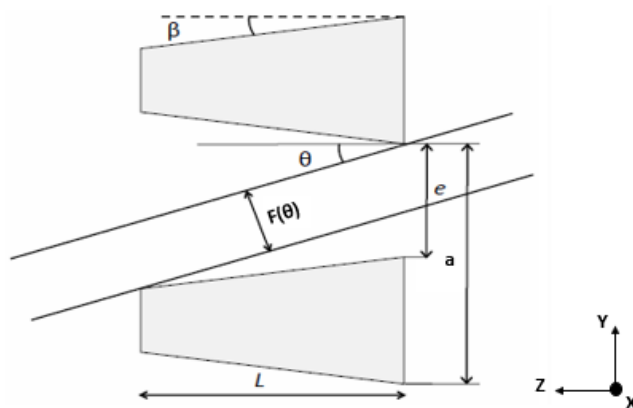


FIGURE III.8 – Vue en coupe de la section d'une fente avec deux trajectoires parallèles pour le calcul de la transmission.

2.1 Expérience à basse vitesse

Nous avons choisi la plus grande vitesse que nous pouvons atteindre (145 m/s) avec le jet lent pour effectuer les mesures de transmission afin de s'affranchir le plus possible de la contribution de l'interaction Casimir-Polder et de la pesanteur terrestre (figure III.9). D'après l'observation du réseau au MEB, la valeur de l'ouverture a été fixée à $e = 55$ nm. Dans le montage expérimental (détaillé dans la section III.1), nous avons placé une fente en amont du réseau de 1 mm de largeur pour filtrer la divergence angulaire du jet.

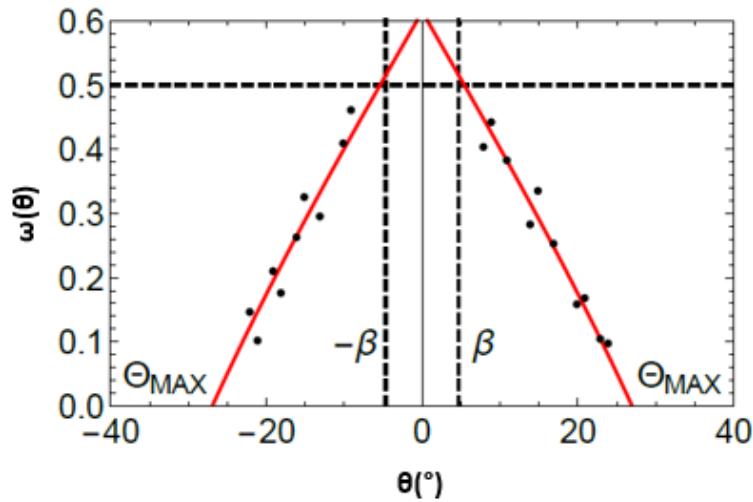


FIGURE III.9 – Courbe de transmission du flux atomique à 145 m/s à travers le nanoréseau en fonction de l’angle d’inclinaison θ . En noir : points expérimentaux. En rouge : calcul théorique correspondant à la deuxième égalité du système d’équations donnée par (III.4).

Pour déterminer les paramètres manquant de la taille du réseau, nous superposons d’abord les séries de mesures avec leurs modèles théoriques, ensuite nous appliquons l’équation III.1. Nous avons trouvé que pour une ouverture fixe de 55 nm, la profondeur L est de 132.8 ± 8.2 nm et l’angle β de $5.4 \pm 0.7^\circ$.

2.2 Expérience à grande vitesse

En réalité, l’interaction atome-surface contribue de manière importante même à 145 m/s (dans le cas du jet lent). Pour cette raison, des mesures de transmission du flux atomique ont été réalisées avec le jet thermique à 560 m/s afin de minimiser les changements de la trajectoire des atomes aux bords des nanobarres. Pour cela, nous avons utilisé une configuration expérimentale qui sera expliquée dans III.5.2.

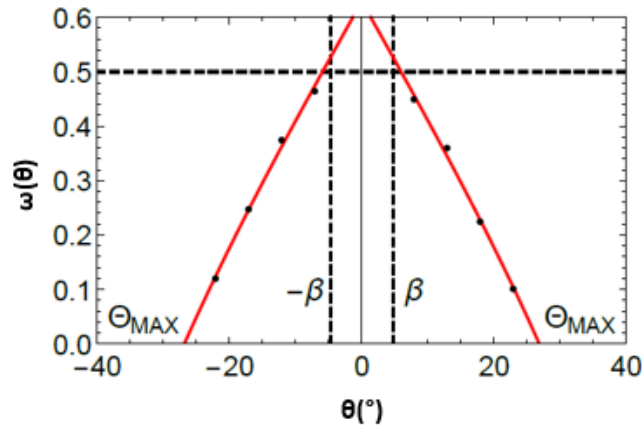


FIGURE III.10 – Courbe de transmission du flux atomique à 560 m/s à travers le nanoréseau en fonction de l’angle d’inclinaison θ . En noir : points expérimentaux. En rouge : calcul théorique.

La figure III.10 montre que les points expérimentaux du flux de transmission atomique collent mieux avec le calcul théorique à 560 m/s qu’à 145 m/s. Nous avons trouvé $L = 130$ nm et $\beta = 7^\circ$. D’après les expériences de transmission que nous avons réalisées avec les jets lent et thermique, nous déduisons que la taille du réseau est largement différente de ce qui été attribué par A. Cronin ($L = 50$ nm, $e = 50$ nm $\beta = 11^\circ$).

3 Diffraction d’un jet atomique à travers un nanoréseau

Avant d’analyser les résultats des expériences menées sur les interactions atome - surface, nous présenterons dans cette section la notion de cohérence d’un jet atomique ainsi que l’approche optique utilisée pour le calcul de la figure de diffraction.

3.1 Cohérence transverse d’un jet atomique

Le rayon de cohérence d’une onde de matière est une grandeur physique qui définit la capacité de l’onde atomique de produire des figures de diffraction avec des interférences comme dans le cas d’une onde plane monochromatique où son rayon de cohérence est infiniment grand.

Néanmoins, le jet atomique est typiquement une source incohérente, les atomes ne sont aucunement intriqués entre eux. Pour comprendre la cohérence transverse d'un jet atomique, nous nous appuyons sur le théorème de van Cittert Zernike [71] pour une source circulaire de rayon r . Cette approche estime que le rayon de cohérence R_c s'obtient à partir de la diffraction obtenue avec une onde plane transmise par un diaphragme de rayon r (source non cohérente) situé à une distance D du plan d'observation suffisamment grande. Quand R_c est grand ou de même ordre de grandeur que le pas du réseau a , les franges d'interférences sont plus visible. La figure III.11 illustre schématiquement ce rayon de cohérence.

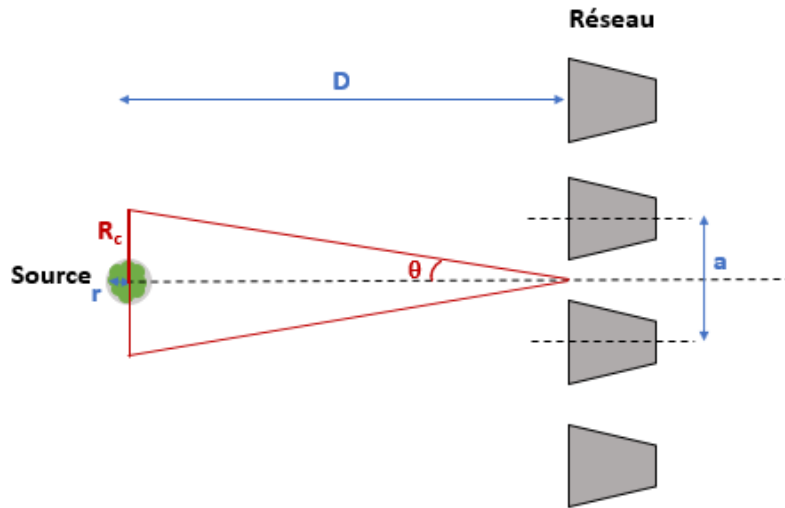


FIGURE III.11 – Schéma illustrant le rayon de cohérence R_c (largeur de cohérence) de l'atome lorsqu'il est considéré comme un paquet d'onde.

Le rayon de cohérence théorique d'une onde monochromatique est donné par la formule :

$$R_c \approx 0.257\theta D \approx 0.257 \frac{\lambda_{dB} D}{r} \quad (\text{III.5})$$

avec D la distance du plan d'observation par rapport la source (ou bien du trou). $\theta = \lambda_{dB}/r$, où r est le rayon de la source (ou bien du trou) et λ_{dB} est la longueur d'onde de de Broglie. Tandis que la constante 0.257 s'obtient grâce à la fonction de Bessel d'ordre 1 ($J_1(x)$) avec

$x = rR_c/(\lambda_{dB}D)$ dans notre cas) que l'on retrouve dans l'expression habituelle de l'intensité de la figure de diffraction par deux fentes $|2J_1(x)/x|^2$ quand cette fonction (à l'ordre 1) subit une diminution de 50 %.

Le rayon de cohérence donné par l'équation III.5 peut se manifester aussi à l'aide du principe d'incertitude de Heisenberg $\Delta x \cdot \Delta P_x \geq \hbar/2$ (suivant la direction verticale selon l'axe x). En faisant $\Delta P_x = m\Delta v_x$ où v_x est la vitesse transverse des atomes et v_z la vitesse longitudinale, m leur masse et en utilisant $\lambda_{dB} = h/(mv_z)$ avec v la vitesse totale, nous trouvons :

$$\Delta x \geq \frac{\hbar}{2m\Delta v_x} = \frac{\lambda_{dB}}{4\pi} \frac{v_z}{\Delta v_x} \quad (\text{III.6})$$

nous pouvons alors exprimer R_c comme $R_c = 2.36 \Delta y$ (Δy est la largeur du paquet d'ondes)

3.2 Approximation optique du calcul de la figure de diffraction

La majorité des expériences de diffraction avec un faisceau atomique supersonique ont des angles de déflexion faibles (les particules restent ainsi autour de l'axe de la propagation incidente). Dans ce cas, la modélisation théorique de la figure de diffraction peut se calculer avec l'approximation WKB : le déphasage subit par l'onde atomique dépend de sa position dans le réseau comme en optique lumineuse [72-73]. Une phase supplémentaire provenant du potentiel de Casimir Polder est ajoutée. Dans la zone de champ lointain sous un angle θ , la phase d'onde atomique peut être écrite comme $F(y, \theta) = K y \sin \theta + \phi_{C-P}(y)$. L'intensité du spectre de diffraction correspondant à une onde plane passante à travers une seule fente est :

$$I(1, \theta) = \left| \int_{-\frac{w}{2}}^{\frac{w}{2}} \exp[iF(y, \theta)] dy \right|^2 \quad (\text{III.7})$$

avec w est la largeur de fente. Le calcul de la diffraction est plus détaillé dans l'annexe A.

La Figure III.12 présente un exemple de la figure de diffraction à vitesse thermique à travers

un réseau de fentes de pas $p = 100$ nm et d'ouverture $w = 50$ nm en utilisant l'équation III.7. L'enveloppe présentée par la courbe bleue est la diffraction optique par une fente en absence des interactions de vdW. Tandis que la courbe rouge présente la diffraction par deux fentes ou plus. En faisant varier la vitesse du jet atomique, sa cohérence change aussi (tableau I.1 du premier chapitre). Lorsque le pas du réseau n'est pas du même ordre que R_c , la cohérence du jet n'intervient pas en général dans la figure de diffraction. En effet, ce n'est qu'à basse vitesse que nous observons la diffraction par deux fentes (la largeur des interfranges est supérieure à l'ouverture du jet).

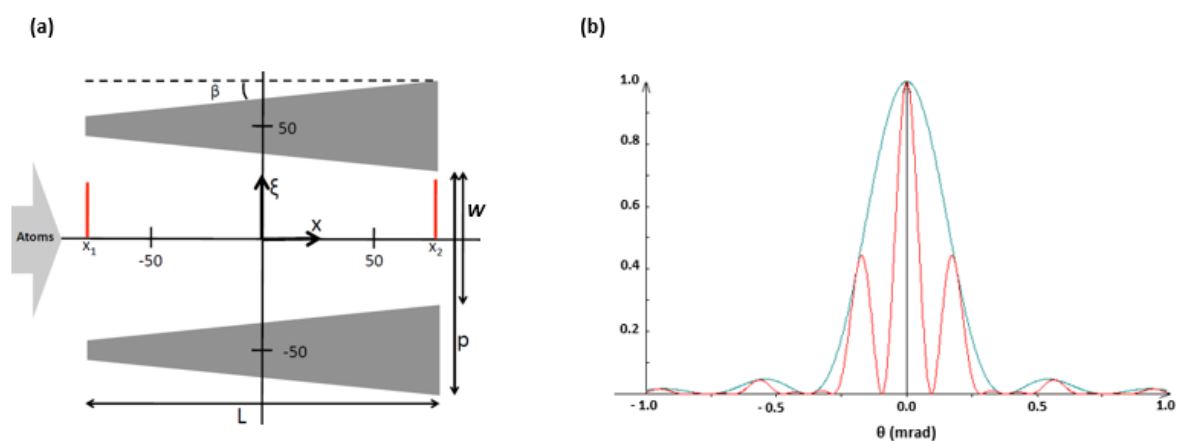


FIGURE III.12 – (a) Réseau en profil trapézoïdale d'ouverture $w = 50$ nm et de pas $p = 100$ nm. (b) Figure de diffraction atomique à travers le même réseau à vitesse thermique $V = 560$ m/s. La courbe bleue présente la diffraction optique sous forme d'un sinus cardinal. La courbe rouge montre la diffraction à deux fentes.

4 Calcul du potentiel d'interaction Casimir-Polder

Au cours de la dernière décennie, le potentiel de van der Waals (vdW) entre un atome et une surface a été mesuré par exemple à l'aide de la diffraction des réseaux nanométriques [9-10] et la réflexion quantique sur les surfaces [74-75]. Dans ce travail, nous nous intéressons à calculer le coefficient d'interaction vdW C_3 (Coefficient de proportionnalité) du potentiel

$U(z) = -\frac{C_3}{z^3}$ entre un atome et une surface plane semi-infinie d'un matériau diélectrique. Il existe plusieurs approches permettant ainsi le calcul de ce coefficient. Seulement deux méthodes vont être détaillées dans cette section.

4.1 Théorie de Lifshitz

La dépendance complexe en fréquence du coefficient de proportionnalité C_3 rend les conditions aux limites du champ électrique très lourdes et difficiles à gérer. Cependant, en introduisant dans les équations de Maxwell un terme supplémentaire analogue à un courant fluctuant de manière aléatoire, Lifshitz a été en mesure d'établir une expression de l'interaction de vdW sans quantifier explicitement le champ électromagnétique. Il a exprimé le coefficient C_3 comme étant la somme sur les différentes transitions accessibles depuis le niveau de l'atome (Ar^* dans l'état 3P_2) du produit entre la polarisabilité atomique et la fonction diélectrique d'une surface plane semi-infini. La formule de Lifshitz [76] pour le C_3 est :

$$C_3 = \frac{\hbar}{4\pi} \int_0^\infty \frac{\alpha(i\omega)}{4\pi\epsilon_0} \frac{\epsilon(i\omega) - 1}{\epsilon(i\omega) + 1} d\omega \quad (\text{III.8})$$

où $\alpha(\omega)$ est la polarisabilité complexe de l'atome et $g(\omega) = \frac{\epsilon(\omega) - 1}{\epsilon(\omega) + 1}$ la fonction diélectrique complexe de la surface du matériau évaluée à la fréquence complexe $i\omega$.

Le Modèle de Lorentz [77] à un oscillateur (seuls les électrons de valences sont pris en compte) décrit la polarisabilité atomique $\alpha(i\omega)$ comme suit :

$$\alpha(\omega) = \frac{\alpha}{1 - (\frac{\omega}{\omega_0})^2} \quad (\text{III.9})$$

avec α est la polarisabilité statique.

En regardant la fonction diélectrique complexe qui s'écrit comme $\epsilon(\omega) = \epsilon'(\omega) - i\epsilon''(\omega)$. La permittivité complexe du milieu diélectrique peut être déduite par le modèle de Drude [78]

en la décomposant sous forme de partie réelle et partie imaginaire :

$$\begin{cases} \varepsilon'(\omega) = \varepsilon_0 + \frac{\varepsilon_0 \omega_p^2 (\omega_m^2 - \omega^2)}{(\omega_m^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \zeta^2} \\ \varepsilon''(\omega) = \frac{\varepsilon_0 \omega_p^2 \omega \zeta}{(\omega_m^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \zeta^2} \end{cases} \quad (\text{III.10})$$

où ω_m la fréquence de résonance du matériau, ω_p fréquence plasma des électrons liés sous l'effet du dipôle électrique que représente l'atome et ζ la constante d'amortissement.

Dans notre cas, le Si_3N_4 est un milieu transparent pour les transitions atomiques de l'argon, ce qui permet de se placer dans les conditions où $\omega = \omega_0 \gg \omega_m, \omega_p$ et $\zeta \gg 1$. Ce résultat donne une permittivité qui tend vers ε_0 à haute fréquence. En reprenant alors les équation III.8 et III.9 et $g(\omega) = \varepsilon_0$, l'expression théorique du coefficient C_3 est donnée par :

$$C_3 \approx -\frac{\hbar}{16\pi^2 \varepsilon_0} \int_0^\infty \varepsilon_0 \alpha(\omega) d\omega \quad (\text{III.11})$$

Nous écrivons alors le potentiel d'interaction vdW entre un atome et une surface lorsque celle-ci est supposée semi-infini en utilisant l'équation (III.11) comme :

$$V_{vdW} = -\frac{C_3}{Z^3} \approx -\frac{\hbar}{16\pi^2 \varepsilon_0 Z^3} \int_0^\infty \varepsilon_0 \alpha(\omega) d\omega \quad (\text{III.12})$$

4.2 Approximation d'additivité par paire

En électrostatique, le potentiel d'un groupe de charges obéit au principe de superposition où le potentiel perçu par une seule charge est la somme de ses interactions avec chaque charge du groupe [79-80]. On pourrait suggérer que ce concept pourrait être appliqué aux calculs du potentiel vdW entre un atome et une surface [81] en additionnant simplement toutes les interactions atome-atome et en négligeant les interactions entre atomes de la matière des barreaux. Ce principe est nommé par approximation de type "pairwise" ou « par paire » (dans le contexte des interactions vdW et Casimir). Dans ce travail, nous utilisons cette approche pour le calcul

du potentiel V_{vdW} car la surface des barreaux (constituant le réseau) n'est pas une surface semi-infinie. Le potentiel d'interaction vdW est reconstruit alors en faisant une somme sur tous les interactions de l'atome du jet avec les atomes des barreaux lorsque celui-ci traverse le réseau de fentes (figure III.13).

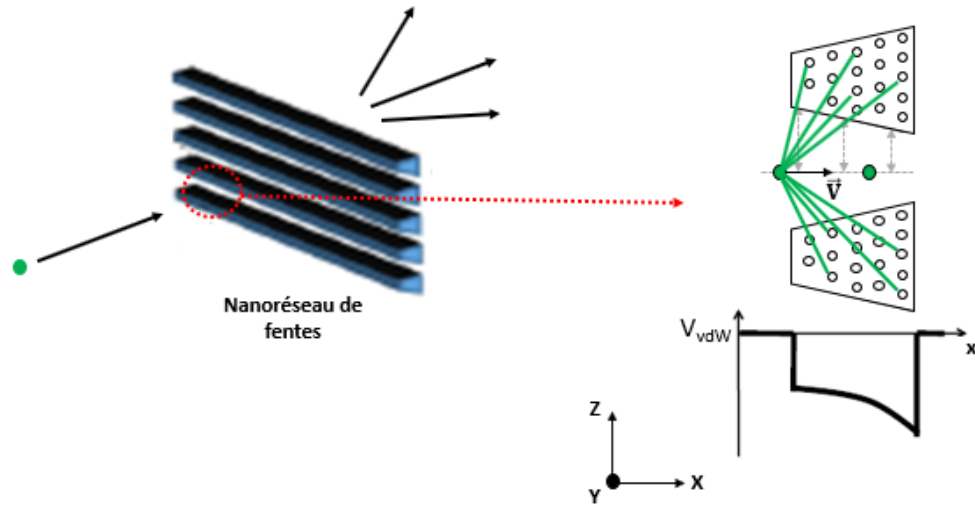


FIGURE III.13 – Schéma illustrant la technique de calcul du déphasage accumulé lors de l'interaction entre un paire d'atomes dans le cas d'un système atome-surface. Le graphe présente le potentiel d'interaction V_{vdW} en fonction de x .

L'interaction de vdW entre deux atomes identiques obtenue pour la première fois en 1930 par London [82] s'écrit sous la forme suivante :

$$V_{vdW} = -\frac{C_6}{Z^6} \quad (\text{III.13})$$

où C_6 est le coefficient d'interaction atome-atome. La méthode de calcul par paire atomique consiste à retrouver le potentiel donnée par l'équation (III.12) à partir des termes qui varient en Z^6 de l'équation (III.13). Par intégrations successives, nous retrouvons un potentiel d'interaction en Z^3 :

$$V_{at-ligne}(z) = -\int_{-\infty}^{\infty} \frac{C_6}{z^6} dz = -\frac{C_5}{z^5} \quad (\text{III.14})$$

$$V_{at-plan}(z) = - \int_{-\infty}^{\infty} \frac{C_5}{z^5} dz = -\frac{4}{3} \frac{C_5}{z^4} = -\frac{C_4}{z^4} \quad (\text{III.15})$$

$$V_{at-volume}(z) = - \int_{-\infty}^{\infty} \frac{C_4}{z^4} dz = -\frac{1}{3} \frac{C_4}{z^3} = -\frac{C_3}{z^3} \quad (\text{III.16})$$

où nous obtenons de nouveau un C_3 où $C_5 = (9/4)C_3$. A partir de l'équation III.1, l'approximation "pairwise" reproduit la même loi retrouvée dans l'équation III.9, mais avec quelques différences dans l'expression du coefficient C_3 . La figure III.14 présente un exemple de calcul théorique par cette approche de la diffraction atomique à 32 m/s en tenant compte de la contribution Casimir-Polder.

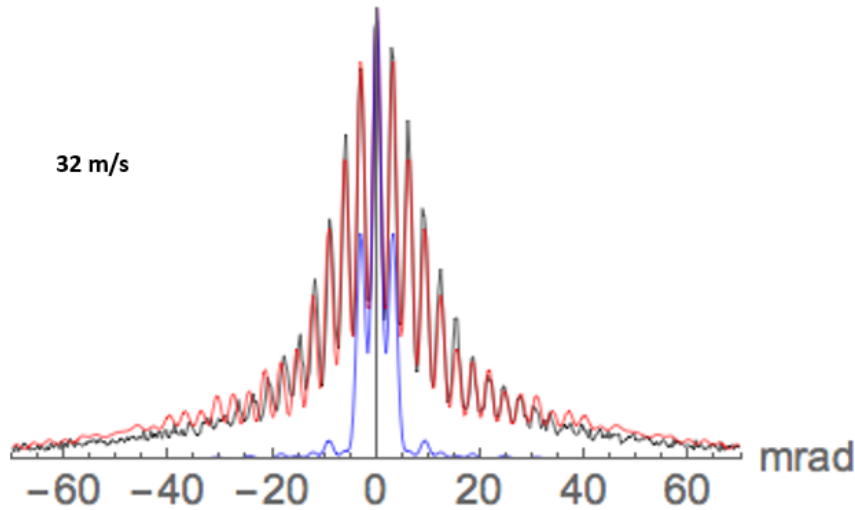


FIGURE III.14 – Profil de diffraction atomique. En rouge : calcul théorique à travers deux fentes avec interaction C-P réalisé dans notre équipe. En noir, nos données expérimentales. En bleu : Calcul de la diffraction à une fente sans interaction C-P.

4.3 Déphasage induit par le potentiel vdW

Le calcul du déphasage induit par le potentiel van der Waals d'un atome de vitesse v (suivant x) à une distance z de la surface est historiquement considéré strictement entre l'entrée (0) et

la sortie (L) du nanoréseau (barreau). Nous le déterminons grâce à une approche d'optique géométrique – approximation d'eikonale – comme la variation de l'action S du potentiel U le long de la trajectoire des ondes de matière. L'expression générale de la phase $\Phi_{vdW} = k \cdot S(\vec{r})$ avec $S(\vec{r})$ l'action et \vec{r} est le vecteur position. Elle s'exprime par la suite comme $\Phi_{vdW} = \vec{k} \cdot \vec{r}$ après l'application de l'approximation d'eikonale qui considère que $S(\vec{r}) = \int L dt$ où L est le Lagrangien (défini par $E_c - V$) avec $k = p/\hbar = \sqrt{2mE}/\hbar$ (E est l'énergie totale). Ainsi le déphasage n'est autre que $\phi_{vdW} = \int (k - k_0)$, qui s'approxime aisément par la suite sous la forme :

$$\phi_{vdW} = -\frac{m}{\hbar^2 k} \int_{-\infty}^{+\infty} U_{vdW} dx \quad (\text{III.17})$$

L'équation III.17 n'est valable que lorsqu'on travaille à vitesses thermiques car la trajectoire des atomes a faiblement variée puisque le temps moyen d'interaction est très court. Ainsi, le potentiel est traité comme une perturbation extérieure au premier ordre non nul dans l'approximation où $U_{vdW} \ll E_c$.

5 Résultats d'expériences de diffraction atomique d'un nanoréseau

Nous distinguerons deux régimes de vitesses atomiques : (i) le régime thermique $v = 560$ m/s en jet supersonique direct, (ii) le régime lent où la durée de l'impulsion laser pousseur impose une vitesse comprise entre 20 et 150 m/s. Dans cette section, nous allons présenter les résultats des expériences obtenues dans le cadre des études des interactions de vdW ou de Casimir-Polder entre le jet d'argon métastable dans les deux régimes de vitesses et le nanoréseau de fentes en transmission de profil trapézoïdal en ce qui concerne les barreaux (cf. section 1 du troisième chapitre). Ces résultats seront comparés à un calcul de type diffraction optique donc sans interaction de C-P.

5.1 Expériences utilisant le jet lent

Une série de mesures a été effectuée avec le jet lent à travers le nanoréseau à différentes vitesses de 100, 50, 33 et 20 m/s. Nous remarquons d'après la figure III.15 un élargissement très notable de la largeur des courbes au fur et à mesure que la vitesse du jet diminue. Les atomes passent dans le potentiel environ 5 ns à 20 m/s et 1 ns à 100 m/s (le temps d'interaction est plus grand quand la vitesse diminue), ce qui représente un déphasage 20 à 100 fois plus important que dans le cas du jet thermique. A très basse vitesse (20 m/s), la contribution vdW provoque un élargissement considérablement grand de sorte que les ailes du signal sortent du détecteur (diamètre détecteur de 80 mm). Les interférences (visibilité de l'ordre de 90 % à 20 m/s) apparaissent avec la diminution progressive de la vitesse. Celles-ci sont les conséquences d'une augmentation de la cohérence de la source, que l'on peut expliquer par la diminution du nombre de photons émis par émission spontanée lors de la phase d'accélération de la vitesse (quelques 10^4 photons à 100 m/s contre seulement 1500 photons à 20 m/s). Le rayon de cohérence de la source a été estimé donc expérimentalement (à quelques pourcents près) grâce à la visibilité des pics de diffraction : environ 50 nm à 100 m/s jusqu'à 200 nm à 20 m/s.

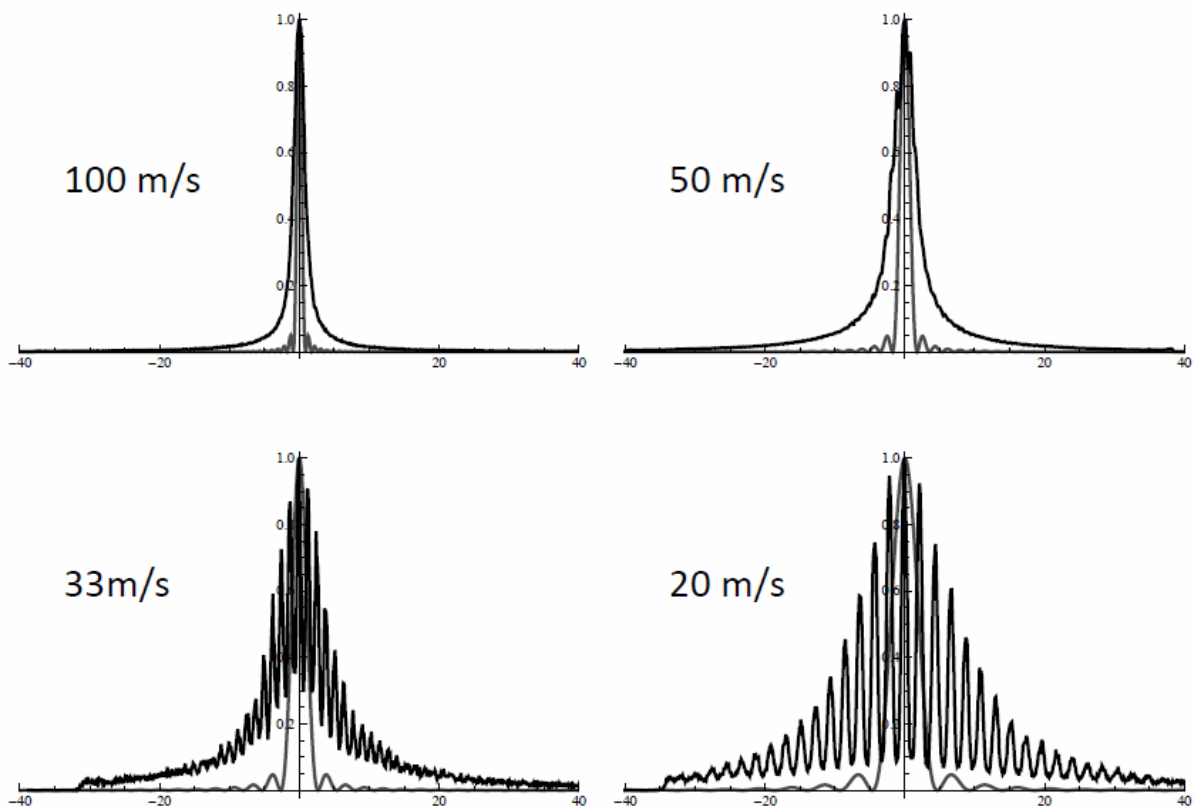


FIGURE III.15 – Figures de diffraction au travers le réseau pour différentes vitesses. En gris : calculs théoriques de la figure de diffraction à une fente de 50 nm sans interaction vdW (sinus cardinal). En noir : mesures expérimentales. L'axes des abscisses est gradué en mm sur le détecteur (le haut du détecteur est à +40 mm) et les intensités sont normalisées à l'unité.

5.2 Expériences utilisant le jet thermique

Des expériences de diffraction avec un jet thermique d'Ar* de vitesse 560 m/s à travers le même nanoréseau de diffraction (utilisé avec le jet lent) ont été réalisées en s'appuyant sur une autre configuration expérimentale (en absence du ralentisseur Zeeman et du MOT). Le jet supersonique est filtré spatialement ($\Theta \approx 0.1 \text{ mrad}$) en rajoutant deux fentes de $5 \mu\text{m}$ en amont du réseau (voir figure III.16) puisque la divergence de celui-ci est naturellement plus grande que la largeur de la tâche de diffraction. Un détecteur Burle sur bride UHV [83] qui contient une galette de micro-canaux, suivie d'un écran en phosphore vert dont la sortie est fibrée jusqu'à la

fenêtre de la bride. Il permet d'acquérir le profil de diffraction cohérent à l'aide d'une caméra extérieure.

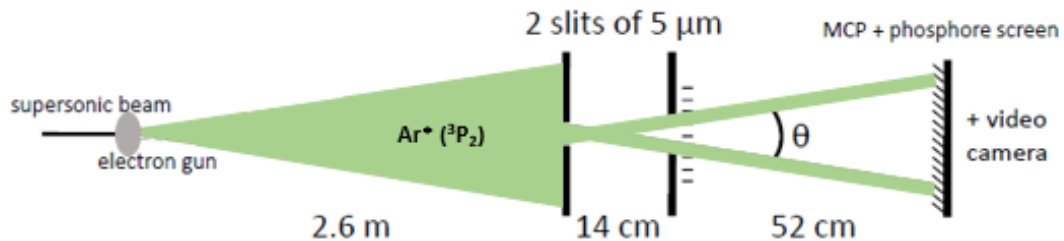


FIGURE III.16 – Montage expérimental de la diffraction au travers d'un réseau de fentes avec un jet thermique d'Ar* de vitesse de 560 m/s.

Les résultats de diffraction obtenus avec la configuration expérimentale d'un jet thermique sont présentés à gauche dans la figure III.17 (la figure à 100 m/s permet la comparaison entre les résultats du jet thermique et du jet lent). Les courbes noir représentent l'expérience avec le jet atomique. Tandis que les courbes en gris représentent le calcul de la figure de diffraction par une fente de 50 nm d'une onde de matière de vitesse 560 ou 100 m/s. Dans la figure de gauche, la contribution du vdW dans le signal à 560 m/s est relativement faible. Par contre à vitesse plus basse (figure de droite), elle devient prédominante dans les profils de diffraction. A 100 m/s, les courbes de diffraction sont très élargies (l'échelle des abscisses est dix fois plus grande).

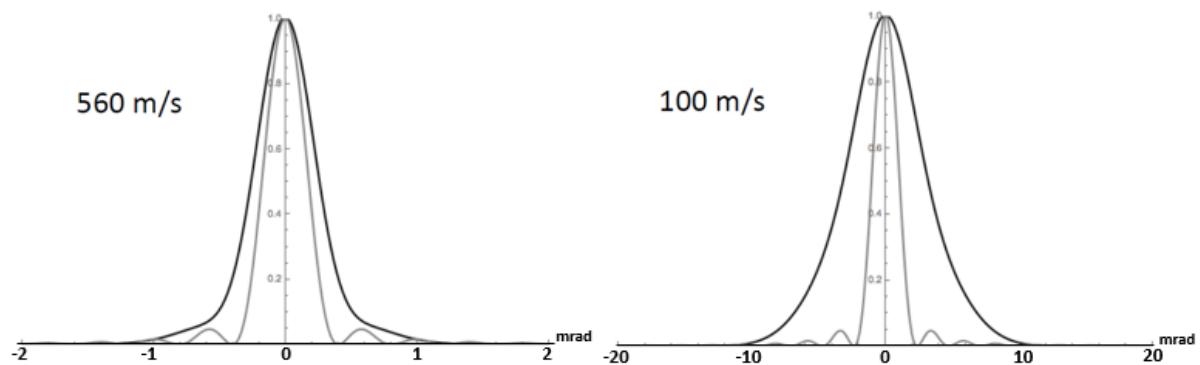


FIGURE III.17 – Figures de diffraction aux travers une fente de 50 nm aux vitesses de 560 et 100 m/s. En gris : calcul numérique sans interaction atome-surface. En noir : expérience. Les axes des abscisses sont en mrad. Les intensités sont normalisées à l'unité.

5.3 Trajectoire des atomes dans le potentiel du nanoréseau

Les expériences de diffraction à basse vitesse réalisées avec un jet atomique lent par notre équipe nous donnent plusieurs degrés de déflexions contrairement aux quelques milliradians obtenus à vitesse thermique. Il est alors très important d'évaluer les trajectoires des atomes en présence du seul potentiel attractif (vdW) dans le potentiel du nanoréseau. En effet, à basse vitesse (< 30 m/s), une grosse proportion des atomes vient heurter la surface et une autre est largement déviée hors de la direction incidente du jet (voir figure III.18). A 20 m/s, tous les atomes ayant une distance inférieure à 10 nm par rapport à la surface des barreaux ne traverseront pas le réseau. Nous parlons de la notion de fente effective décrite par le changement de la taille de fente réelle à cause de la déviation des atomes. Cela conduit à une transmission de 30%. Autrement dit, seuls les atomes situés au centre (34 nm : distance d'éviction de surface) des barreaux contribueront à la figure de diffraction.

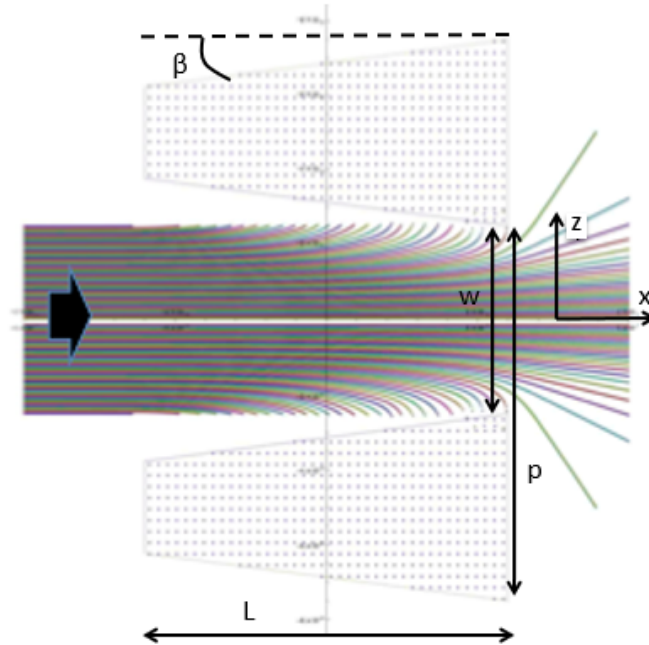


FIGURE III.18 – Vue en coupe. Trajectoires atomiques de gauche à droite aux abords d'un barreau du nanorésau à 20 m/s (en absence de gravité) dont le potentiel est calculé par l'approximation "pairwise" (points dans le barreau présentent quelques atomes de volume).

5.4 Corrélation des résultats de mesures avec les modèles théoriques de la figure de diffraction

Nous allons à présent nous intéresser à calculer l'enveloppe théorique contenant l'information sur les interactions de Casimir-Polder (vdW). La figure III.19 présente les calculs de l'enveloppe à deux vitesses 145 et 100 m/s pour deux formes hypothétiques de nanoréseaux différentes réalisées avec l'approche de l'approximation "eikonale" donnée par l'équation III.14. La taille du premier réseau correspond aux dimensions données initialement par A. Cronin ($L = 50$ nm, $e = 50$ et $\beta = 11^\circ$). Tandis que la deuxième correspond aux résultats des mesures de la géométrie du réseau effectuées par les expériences de transmission ($L = 130$ nm, $e = 50$ et $\beta = 7^\circ$).

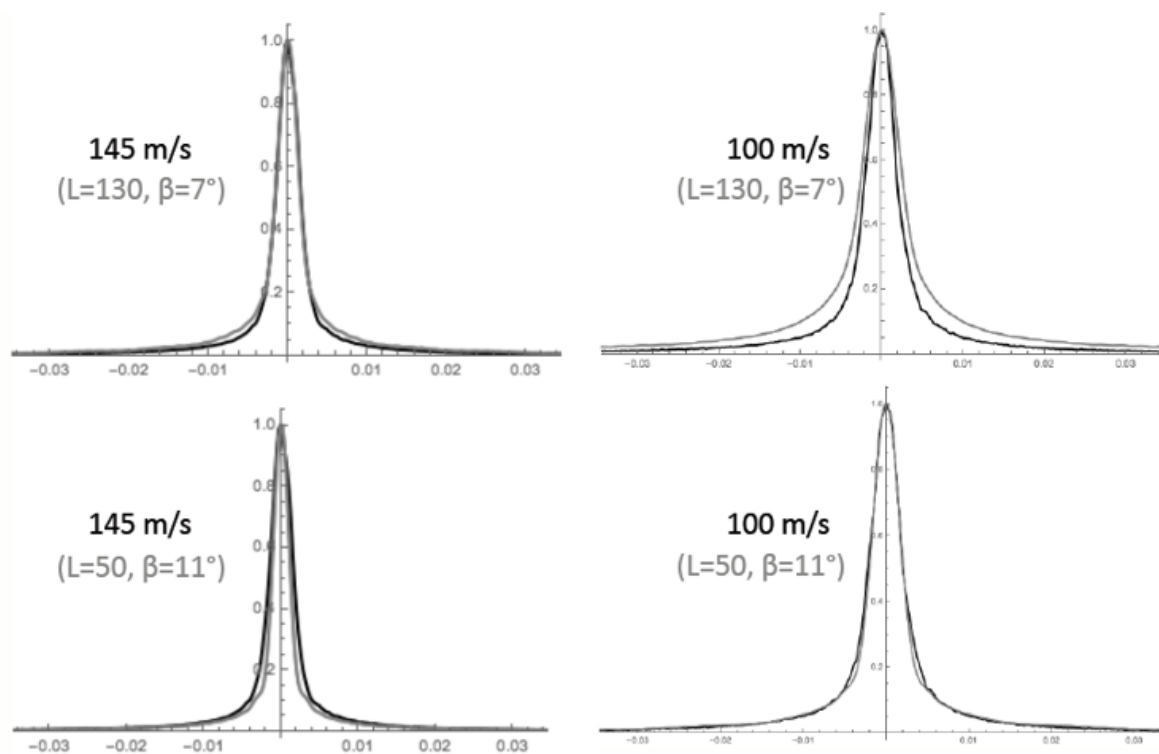


FIGURE III.19 – Diffraction atomique à 145 et 100 m/s. En noir, figures expérimentales. En gris, figures théoriques calculées avec l’approximation du déphasage donnée par l’équation III.18. L’axe des abscisses est en rad.

En comparant les courbes expérimentales et théoriques, nous pouvons constater un bon accord pour les deux vitesses. Dans cette gamme de vitesse (entre 100 - 150 m/s) le modèle théorique utilisé reste valide.

Regardons maintenant la validité du modèle à basse vitesse en considérant que la taille du réseau est $L = 50$ nm, $e = 50$ et $\beta = 11^\circ$ (correspond au bon accord à 100m/s présenté dans la figure III.19). La figure III.20 montre l’évolution des enveloppes aux vitesses 20, 33, 50 et 100 m/s.

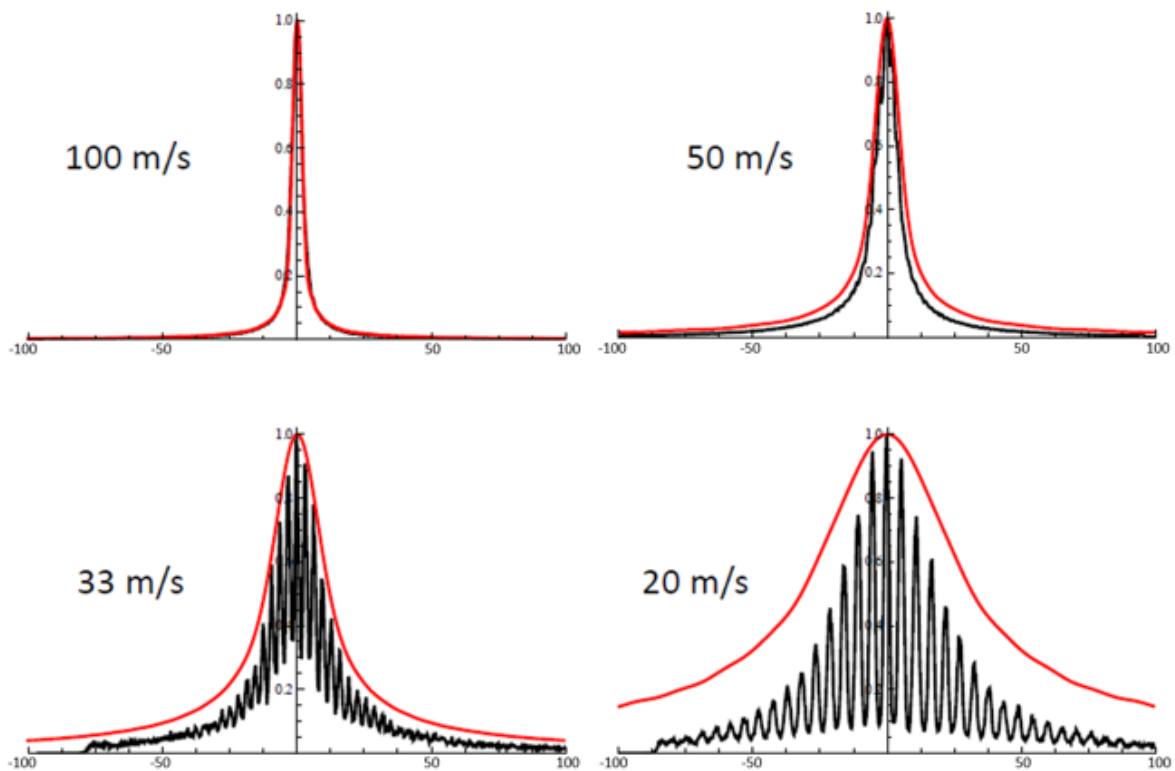


FIGURE III.20 – En noir, mêmes figures de diffraction expérimentales présentées dans la figure III.12. En rouge : courbes théoriques de l’enveloppe (c’est-à-dire diffraction par une fente en tenant compte de l’interaction vdW). Les axes des abscisses sont en mrad.

Nous remarquons un écart notable entre le calcul de la diffraction et l’expérience lorsque la vitesse diminue (< 50 m/s). En effet, le modèle propose une enveloppe trop large à basses vitesses. Les résultats expérimentaux présentent une largeur deux fois plus faible qu’attendue à 20 m/s. A ce stade, le calcul du déphasage induit par le potentiel vdW ne dépend pas uniquement de la taille du réseau qui reste incertaine malgré les mesures du flux atomique. Il faut également prendre en compte la déviation de la trajectoire des atomes dans le réseau car certains d’entre eux heurtent les surfaces latérales des nanobarres. De plus, aux basses vitesses, l’approximation de Glauber (Formule de l’équation III.17) pour le calcul du déphasage n’est plus satisfaite, elle reste valable uniquement aux grandes vitesses (car l’énergie cinétique (E_c) devient plus grande que le potentiel U).

5.5 Accord théorie-expérience pour le calcul du coefficient C_3 et discussion

Comme nous l'avons évoqué dans ce travail, nous cherchons à minimiser le désaccord entre le modèle théorique et l'expérience pour le calcul du coefficient d'interaction C_3 à moins de 10%. Pour cela, la technique du χ^2 a été utilisée pour déterminer ce désaccord. Le χ^2 dépend dans notre cas de cinq paramètres : le coefficient C_3 , la largeur des fentes w , la profondeur L , l'angle du trapèze β , la distance d'éviction de surface (présentée dans III.5.3) et la vitesse des atomes. Cette dernière ne sera pas considérée comme un paramètre de calcul de χ^2 car elle est connue à 1 ‰. Une fois de plus, nous pouvons remarquer l'importance de la connaissance exacte de la géométrie du réseau. Un couple de paramètres (w, C_3) a été choisi pour le calcul de χ^2 (les autres paramètres restent fixes). Ce calcul consiste d'abord à mesurer le bruit de la figure de diffraction pour deux acquisitions de 3 heures. Le bruit est de faible valeur 10^{-4} pour nos expériences. La détermination de ce paramètre nous permettra d'estimer l'incertitude théorique par rapport à l'expérience. Ensuite, nous faisons varier le C_3 de plus ou moins 20% autour de sa valeur théorique - qui est 2.2 u.a - et l'ouverture de la fente du réseau de 56 à 72 nm (d'après l'observation au MEB). Une matrice de ces deux paramètres se constitue et peut se mettre en plan 2D (voir figure III.21). L'écart quadratique moyen χ^2 doit être autour de l'unité pour satisfaire les conditions de validité de calcul [84].

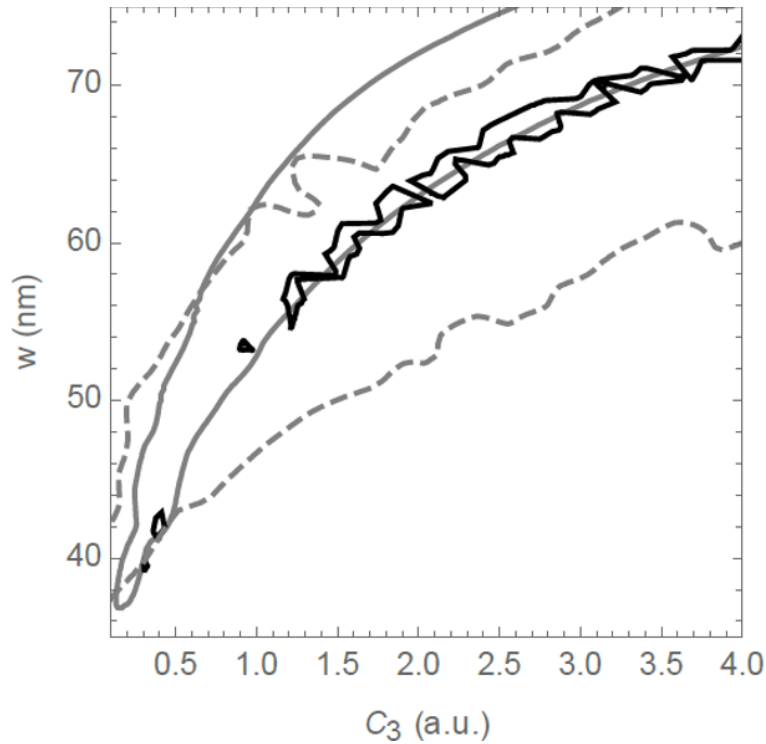


FIGURE III.21 – χ^2 pour le couple de paramètres C_3 et W . Les contours en : noir, gris et gris pointillés représentent les intervalles de confiance (surfaces d'incertitudes) de 68 % à un σ (cohérence) aux vitesses 33, 97 et 560 m/s respectivement.

Nous définissons, d'après la figure III.20, des contours pour l'intervalle de confiance à 68% (à 1σ) de nos courbes en fonction de l'ensemble des paramètres (en un point) pour trois vitesses différentes 33, 97 et 560 m/s. Le calcul de χ^2 dans ces intervalles a une certaine cohérence dans le plan pour C_3 et w . Ils sont définis par la formule $\chi_{min}^2 + 5.9$ [84], car χ_{min}^2 est dans la gamme de l'unité. A 33.2 m/s, le désaccord minimum χ_{min}^2 se déplace sur une ligne dans la zone de pertinence (contour noir). Si nous diminuons le C_3 et le w , nous aurons la même figure de diffraction que si nous avons un grand C_3 et une fente large dans le même intervalle de confiance de cette vitesse. La zone de pertinence est beaucoup plus fine à 33 m/s par rapport à celle de 97 m/s (contour gris). A 560 m/s, elle est beaucoup plus grande que les deux autres zones (contour gris pointillé).

D'après la même figure, à une valeur du coefficient C_3 nous pouvons déduire l'incertitude

sur l'ouverture. Ceci n'est pas complètement valable pour notre cas car le C_3 n'est pas parfaitement connu (géométrie du réseau qui reste mal définie). En revanche, à l'aide de nos nouveaux nanoréseaux fabriqués par lithographie électronique où les dimensions des réseaux seront parfaitement connues, nous pouvons déduire le coefficient d'interaction C_3 et espérer une précision sur ce coefficient de l'ordre de 1 % à partir du paramètre w .

Conclusion et perspective

Nous avons présenté dans ce dernier chapitre la production d'un jet thermique d'argon métastable dans l'état 3P_2 ralenti grâce à un ralentisseur Zeeman puis piégé dans un MOT (10^6 at/s). En utilisant un laser pousseur, les atomes du nuage atomique piégés sont envoyés vers la chambre d'expérience en formant un jet lent pulsé à vitesse contrôlable. En effet, la variation du temps de poussée t_p , du désaccord en fréquence du laser pousseur δ_L et d'intensité du champ magnétique du MOT B'_z permet d'atteindre une gamme de vitesses lentes comprises entre 150 et 20 m/s. Le flux atomique de ce jet lent est gigantesque, il peut aller jusqu'à 50 kHz.

Nous avons réalisé des expériences à travers un nanoréseau de fentes fabriqué au MIT par la technique AIL pour l'étude des interactions de Casimir-Polder entre le jet atomique lent et la surface de ce réseau. Cette étude nécessite une détermination de sa géométrie à savoir la profondeur L , l'angle du trapèze β et l'ouverture des fentes w . Cette dernière a été déterminée grâce à des observations au MEB, elle varie entre 55 et 72 nm. Les autres paramètres sont évalués par des mesures de transmission du jet atomique au travers du réseau à différents angles d'inclinaison, à 145 m/s (la plus grande vitesse que nous pouvons atteindre avec un jet lent) et à 560 m/s (vitesse thermique). Nous avons trouvé que $L = 130$ nm et $\beta = 7^\circ$. Les modèles théoriques basées sur les approximations semi-classiques sont valables à grande (560 m/s) et à moyenne vitesse (30-150 m/s). A basse vitesse, nous devons parvenir à un modèle théorique fidèle qui prenne en compte la déviation de la trajectoire atomique dans le réseau.

La mesure d'incertitude sur le potentiel d'interaction notamment le coefficient C_3 porte sur la géométrie du réseau à vitesses < 30 m/s (la précision obtenue pour la vitesse est très bonne). Les nanoréseaux fabriqués par lithographie électronique auront l'avantage d'une géométrie bien définie permettant de calculer avec une grande précision l'accord entre la théorie et l'expérience.

Les structures fabriquées seront utilisées pour construire un interféromètre à boucle fermée de type Mach-Zehnder à trois réseaux pour les prochains travaux envisagés par l'équipe. Le premier réseau sera considéré comme séparateur du faisceau atomique où les ondes de matières (ordres de diffraction) vont chacune parcourir un trajet différent. Ensuite elles seront diffractées sur le deuxième réseau. Le dernier réseau permettra de recombinaison des faisceaux atomiques (voir figure III.22). Nous pouvons réaliser un tel interféromètre en sélectionnant deux ordres de diffraction cohérents en plaçant des fentes en amont (de chaque réseau) pour filtrer et obstruer les autres ordres qui ne nous intéressent pas. Nous pouvons également réaliser un autre type d'interféromètre en évaluant tous les ordres de diffraction cohérents pour des expériences de Quantum Randon Walks (marche aléatoire quantique) [85].

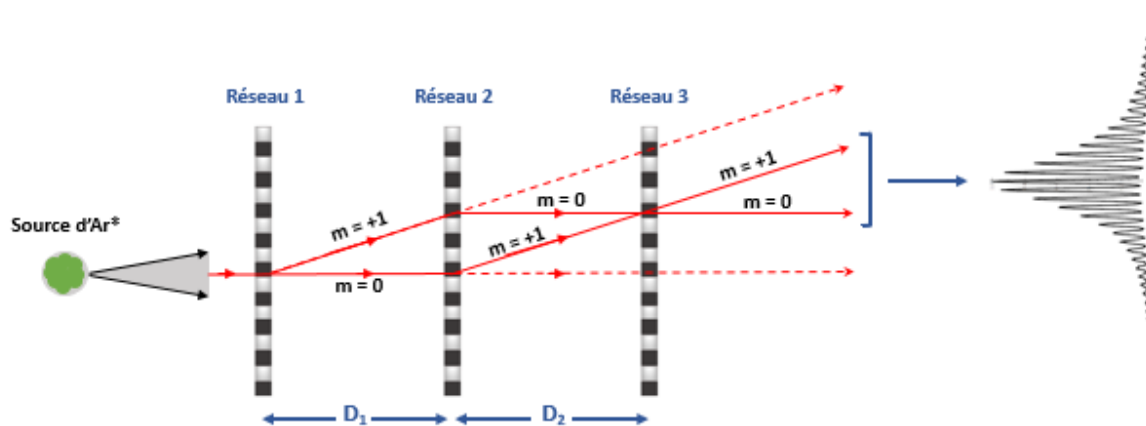


FIGURE III.22 – Interféromètre atomique à boucle fermée de type Mach-Zehnder constitué par trois réseaux de diffraction.

Conclusion générale

Les travaux présentés dans ce manuscrit ont porté sur la réalisation des réseaux en transmission (constitués de fentes parallèles) à l'échelle nanométrique dans le but d'étudier les interactions de Casimir-Polder entre un jet atomique lent et la surface de ces réseaux.

La première partie de cette thèse a été consacrée au développement d'un procédé de fabrication des réseaux de fentes sur membrane (avec des géométries qui répondent à nos attentes scientifiques) adapté aux dispositifs expérimentaux que nous disposons en salle blanche. Ceci est réalisé en s'appuyant sur une synthèse bibliographique sur les différentes techniques utilisées pour la réalisation de ce type de nanostructure permettant ainsi de comprendre les phénomènes mis en jeu au cours de la fabrication.

Le chapitre deux décrit les différentes étapes du processus suivies pour la réalisation des nanoréseaux de fentes de diffraction. Le choix de la méthode du dépôt du masque dur en aluminium est capital afin d'obtenir la valeur la plus basse possible sur la rugosité de surface. Nous avons opté pour un dépôt d'Al par évaporation. Celui-ci permet d'obtenir une surface plus homogène (rugosité de 3.2 nm) de 24% et des flancs de gravure plus droits par rapport au dépôt par PVD (rugosité de 4.2 nm). Dans ce travail, la lithographie électronique est choisie comme méthode d'écriture des motifs grâce à sa résolution qui peut aller jusqu'au nanomètre et sa flexibilité sur la variation de la géométrie du réseau (pas, ...). Lors de la réalisation de ces nanoréseaux sur des grandes surfaces ($400\ \mu\text{m} \times 960\ \mu\text{m}$), un élargissement de la largeur des fentes au centre du réseau lié aux effets de proximité a été observé. L'apparition de ces effets

est due aux électrons rétrodiffusés et à la résine épaisse utilisée (170 nm). La différence de taille des ouvertures sur l'ensemble du réseau a été déterminée à 37 nm (largeur fentes entre 99 et 136 nm). L'application du processus de correction des effets de proximité est donc nécessaire pour obtenir une géométrie homogène sur toute la surface du réseau. La PEC qui repose sur la modélisation de la dose à l'intérieur de la structure à insoler a permis de réduire la différence de taille des ouvertures à 73% pour un réseau ayant une surface de $400\ \mu\text{m} \times 400\ \mu\text{m}$ par rapport à un réseau sans application de la PEC (ouverture entre 105 et 115 nm avec un pas de 200 nm). La limitation de notre système de lithographie e-beam à une énergie de 30 KeV (taille minimale du spot de 2 à 3 nm) ne nous permet pas une ouverture du réseau à moins de 10 nm. Concernant l'écriture des motifs dans la couche d'aluminium par gravure ICP, elle a été optimisée pour minimiser la corrugation observée sur les bords de fentes grâce à une série de tests en variant quelques paramètres de gravure d'Al. Cette dernière a été réduite à 37% par rapport au cas sans optimisation (en passant d'une corrugation de 2.4 à 1.5 nm).

Le transfert des structures de fentes dans la couche de nitrure de silicium membranaire a été bien opéré. L'observation transversale du réseau nous a permis de visualiser des barreaux avec une forme rectangulaire - contrairement aux réseaux réalisés par la technique AIL où ses barreaux présentent une forme trapézoïdale - et une géométrie du réseau bien déterminée (pas de 200 nm, largeurs de fentes entre 105-115 nm, profondeur de 100 nm et un angle de gravure de 0.5°).

Les prochaines travaux de fabrication consistent à augmenter le pas du réseau (500 nm jusqu'à $1\ \mu\text{m}$) pour explorer la physique des interactions atomes-surface dans le régime retardé et la réalisation d'un nouveau type de réseau de trous périodique en transmission. La limitation de notre système de lithographie électronique en énergie ne nous permet pas de réduire la période des structures (100 nm par exemple) ni d'augmenter la surface du réseau. C'est pourquoi, il serait intéressant que cette étape soit effectuée par un autre système de lithographie e-beam plus énergétique (50 KeV ou 100 KeV) ou par la technique de nano-impression mentionnée dans

le premier chapitre pour réaliser des motifs de meilleure résolution réalisés sur des grandes surfaces.

En parallèle de la fabrication des nouveaux nanoréseaux, des expériences en transmission à travers un ancien réseau fabriqué par la technique AIL et prêté par A. Cronin de l'Université d'Arizona - menées pour l'étude des interactions de vdW avec un jet lent pulsé d'atomes métastables d'argon - sont présentées dans le chapitre trois. La difficulté de cette étude réside dans le manque de données sur la géométrie du réseau. Des tentatives de détermination de cette dernière se sont basées sur des mesures de transmission atomique pour différents angles d'inclinaisons du réseau à vitesse thermique de 560 m/s et à basse vitesse de 146 à 20 m/s. Ces mesures ont permis de révéler certaines caractéristiques géométriques ($L = 130$ nm, $e = 50$ et $\beta = 7^\circ$ et un pas de 100 nm) qui satisfont aux modèles théoriques pour le calcul du potentiel d'interaction à grande et moyenne vitesses (de 560 jusqu'à 30 m/s). Par contre à plus basse vitesse (<30 m/s), les approximations semi-classique : JWKB, eikonale, Fresnel etc... pour la modélisation du déphasage induit par les interactions Casimir-Polder ne sont plus satisfaisantes. Le calcul de l'accord entre le modèle théorique et l'expérience contient certaines limitations. En effet, la barre d'erreur sur le coefficient d'interaction C_3 dépend principalement de la géométrie du réseau à basse vitesse contrairement aux grandes vitesses. La connaissance de la taille du réseau est donc cruciale pour la détermination de cet accord. A l'aide de nos nouveaux nanoréseaux fabriqués en lithographie électronique où les dimensions de ces réseaux seront parfaitement connues, nous pourrions déterminer le coefficient C_3 à basse vitesse.

A ce stade, la mise en place d'un nouveau modèle théorique capable de montrer un accord de l'ordre du pourcent sur l'interaction atome - surface ouvrirait la voie à des expériences de nature métrologique. Comme premier exemple, on peut prendre en compte la déviation de la trajectoire atomique dans le réseau (à basse vitesse) à très courte portée due à la 5^{ème} force. De plus, la réalisation expérimentale d'un jet lent de l'isotope 36 de l'Argon fournirait encore davantage d'éléments à la contrainte de cette hypothétique force puisque le potentiel Casimir-Polder est

identique pour les deux isotopes. Un deuxième exemple consiste à réaliser des interféromètres atomiques pour les mesures de grandes précision. Finalement, nous espérons réaliser une étude détaillée du potentiel de Casimir-Polder entre 10 nm et 1 μ m, dont aucune étude expérimentale précise n'a jamais été réalisée à ce jour. Cela sera effectué à l'aide de la nouvelle gamme des nouveaux réseaux qui seront réalisés en salle blanche de l'Université Paris 13.

Annexe A

Calcul de la figure de diffraction

La majorité des expériences de diffraction avec un jet atomique thermique ont des angles de déflexion faible (les particules restent ainsi dans l'axe de la propagation incidente). Dans ce cas, la figure de diffraction peut se calculer avec l'approximation WKB : le déphasage subi par l'onde atomique dépend de sa position dans le réseau comme en optique lumineuse. L'interprétation de cette approximation consiste à regarder la transformée de Fourier (TF) de l'équation de Schrödinger donnée par la formule (A.1) :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{R}, t) = \left[\frac{-\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(\mathbf{R}) \right] \psi(\mathbf{R}, t) \quad (\text{A.1})$$

avec \hbar la constante de Planck, m la masse de l'atome et $V(\mathbf{R})$ le potentiel indépendant du temps. La TF est décrite par l'équation suivante :

$$\left[\nabla^2 + \left(1 - \frac{V(\mathbf{R})}{\hbar\omega} \right) k_0^2 \right] \psi(\mathbf{R}, \omega) = 0 \quad (\text{A.2})$$

où $\omega = \hbar k_0^2 / 2m$ est la relation de dispersion. Nous retrouvons donc l'équation de Helmholtz $(\nabla^2 + n^2 k^2)A(\mathbf{R}) = 0$ qui décrit la propagation de l'onde atomique diffractée si l'indice de réfraction et l'amplitude de diffraction sont définis par $n(\mathbf{R}) \equiv \sqrt{1 - V(\mathbf{R})/\hbar\omega}$ et $A(\mathbf{R}) \equiv$

$\psi(\mathbf{R}, \omega)$. Du point de vue de la mécanique quantique, l'atome possède une double nature d'onde et de corpuscule. Le formalisme de l'optique s'applique donc en principe. Nous allons présenter l'approche optique qui calcule la diffraction de l'onde atomique à grande vitesse (≥ 50 m/s) développée en détail par Born & Wolf [71], ensuite nous allons discuter de la validité de ce modèle théorique à basses vitesses (< 50 m/s).

C'est tout d'abord en commençant par le principe de Huygens (1690), qui propose que chaque point d'une surface d'onde M_0 peut être considéré comme une source secondaire produisant des ondelettes sphériques. À tout instant ultérieur, la surface d'onde est l'enveloppe des surfaces d'ondes émises par les sources secondaires (vaguelettes) convenablement réparties sur la surface d'onde primaire (cf. figure A.1). En 1817, Fresnel a donné une formule mathématique au principe évoqué connue sous le nom de principe de Huygens-Fresnel. Celui-ci évoque que les vibrations issues des différentes sources secondaires interfèrent entre elles en un point M . En reprenant les notations de la figure A.1, l'amplitude de l'onde diffractée par une ouverture W donnée par Huygens-Fresnel est :

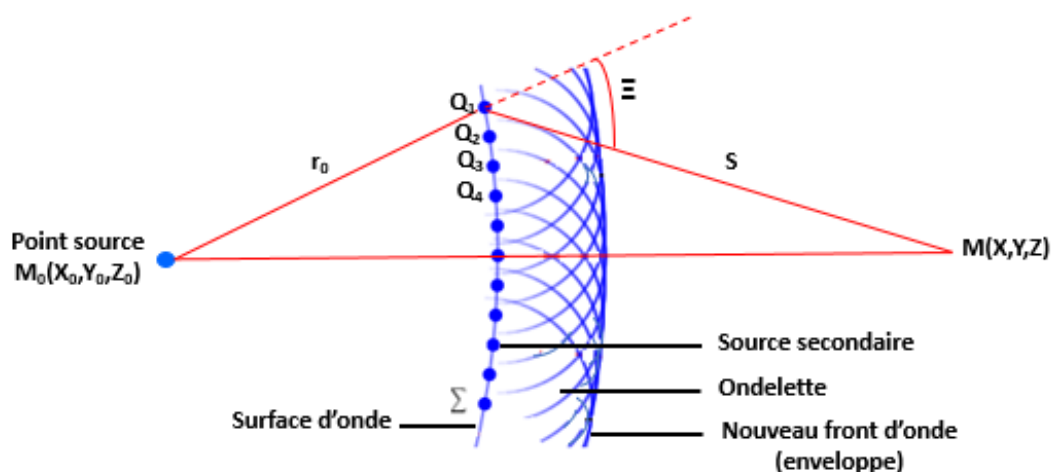


FIGURE A.1 – Construction schématique pour le calcul de l'amplitude de diffraction d'une onde par une ouverture W en un point d'interférence M

$$A(M) = \frac{W \exp(ikr_0)}{r_0} \iint_{\Sigma} \frac{\exp(iks)}{s} K(\Xi) d\Sigma \quad (\text{A.3})$$

où Σ est la surface de l'onde sphérique, $K(\Xi)$ le facteur d'inclinaison à déterminer et $k = \omega/c$ le vecteur d'onde associé.

Les principes de FRESNEL ont été repris ensuite par Kirchhoff en 1882 qui les formalise à partir de la théorie électromagnétique de la lumière afin de rendre l'équation A.3 analytique [71]. Les calculs de diffraction sont très compliqués de manière générale car ils dépendent du milieu, de la source, de l'obstacle et du point d'observation. Nous utilisons les hypothèses de Kirchhoff pour le calcul de l'amplitude de l'onde diffractée par une ouverture et déterminer le facteur $K(\Xi)$ (ce qui n'est pas possible avec l'approche de Fresnel). Nous rappelons la formule de Fresnel-Kirchhoff où l'amplitude totale est la somme des contributions de tous les points de l'ouverture W :

$$A(M) \approx -\frac{iW \cos \delta}{\lambda r' s'} \iint_W \exp(ik(r+s)) d\Sigma \quad (\text{A.4})$$

où δ est l'angle entre la normale à la surface Σ et l'axe M_0M . La formule III.4 prend en compte les approximations paraxiales où $r' \approx r$ et $s' \approx s$.

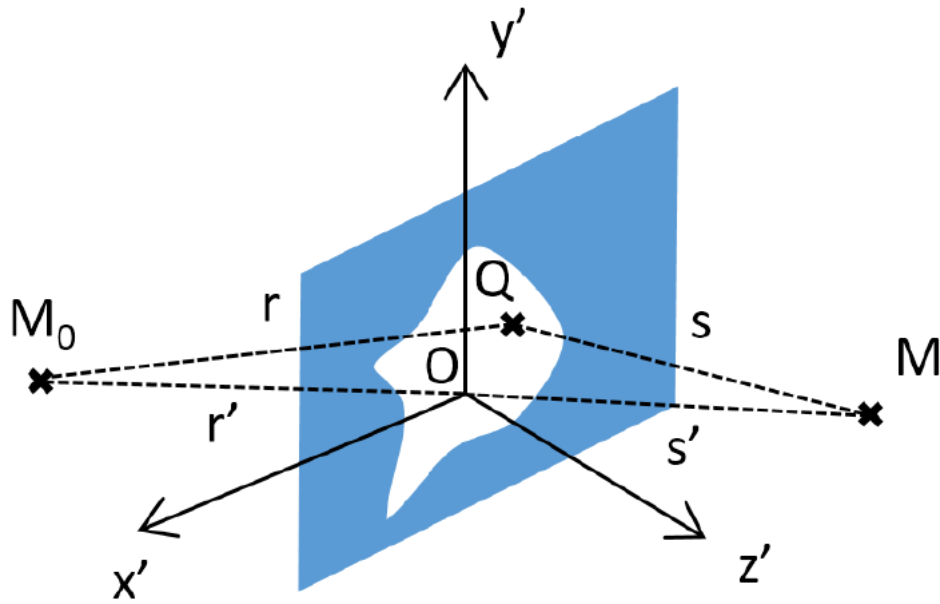


FIGURE A.2 – Schéma de calcul de la diffraction par une ouverture W et système de coordonnées utilisées. cf. Born & Wolf

Dans la suite du raisonnement, le passage entre les approximations de Fresnel et de Fraunhofer est faisable en prenant la distance $s' \approx s = \sqrt{(x-x')^2 + (y-y')^2 + (z)^2}$ grâce à l'application d'un développement limité car $x', y' \ll r, s$. L'amplitude de diffraction au point M :

$$A(M) \approx -\frac{iW \cos \delta \exp(ik(r'+s'))}{\lambda r's'} \iint_{x',y'} \exp(ikf(x',y')) dx' dy' \quad (\text{A.5})$$

où $f(x',y')$ est un développement en série donné par :

$$f(x',y') = -\frac{x_0x' + y_0y'}{r'} - \frac{xx' + yy'}{s'} + \left[\frac{x'^2 + y'^2}{2r'} + \frac{x'^2 + y'^2}{2s'} - \frac{(x_0x' + y_0y')^2}{2r'^3} - \frac{(xx' + yy')^2}{2s'^3} \right] + \dots \quad (\text{A.6})$$

avec (x_0, y_0, z_0) sont les coordonnées de la source M_0 , (x', y', z') des points sources secondaires et (x, y, z) celles du point M du plan d'observation comme la montre la figure A.2. La fonction $f(x',y')$ donnée par l'équation A.6 permet alors de définir le régime de Fresnel (ordres 1 et 2) et de Fraunhofer qui se contente de l'ordre 1.

Pour savoir si notre expérience de diffraction atomique à travers un réseau nanométrique se déroule dans le régime de Fraunhofer, il faut calculer le nombre de Fresnel $F = e^2/\lambda s'$ et vérifier si ce dernier respecte la condition $F \leq 0.5$ où e est le diamètre d'une ouverture circulaire. Dans notre cas, avec une ouverture W de 50 nm, une distance $s' = 50$ cm entre la source du jet et le détecteur et quel que soit la vitesse (λ_{dB}), l'approximation de Fraunhofer est bien acquise car $F < 3 \times 10^{-4}$.

Un exemple de calcul de l'amplitude de diffraction à vitesse thermique à travers un réseau de fentes d'ouverture $e = 50\text{nm}$ et de pas $a = 100\text{nm}$ avec les approches mentionnées est illustré dans la figure A.3.

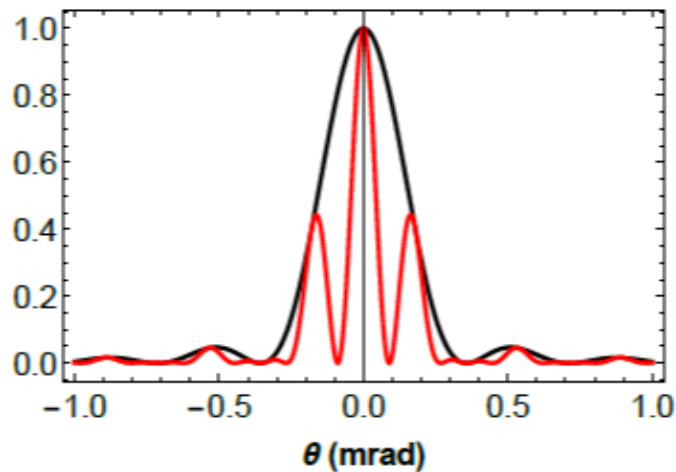


FIGURE A.3 – Diffraction atomique à travers un nanoréseau d'ouverture $e = 50$ nm et de pas $a = 100$ nm à une vitesse $V = 560$ m/s. La courbe noir présente la diffraction à une fente sous forme d'un sinus cardinal. La courbe rouge montre la diffraction à deux fentes.

Bibliographie

- [1] Jönsson, C. Elektroneninterferenzen an mehreren künstlich hergestellten Feinspalten. *Z. Phys.* 161, 454-474, 1961.
- [2] Zeilinger, A., Gähler, R., Shull, C. G., Treimer, W. Mampe, W. Single- and Double-Slit Diffraction of Neutrons. *Rev. Mod. Phys.* 60, 1067-1073 (1988).
- [3] D. W. Keith, M. L. Schattenburg, H. I Smith, D. E. Pritchard, "Diffraction of Atoms by a Transmission Grating". *Phys. Rev. Lett.* 61, 1580-1583 1988.
- [4] O.Carnal, J.Mlynek, "Young's Double-Slit Experiment with Atoms : A Simple Atom Interferometer". *Phys. Rev. Lett.* 66, 2689-2692, 1991.
- [5]] W.Schöllkopf, J. P.Toennies, "Nondestructive Mass Selection of Small Van der Waals Clusters". *Science* 266, 1345-1348, 1994.
- [6] J.E. Lennard-Jones," Processes of adsorption and diffusion on solid surfaces", *Transactions Of The Faraday Society*, 28 :333, 1932
- [7] H. B. G. Casimir and D. Polder. The influence of retardation on the London–van der Waals forces. *Physical Review*, 73 :360, 1948.
- [8] D. W. Keith, M. L. Schattenburg, Henry I. Smith, and D. E. Pritchard, "Atom Optics Using Microfabricated Structures", *Appl. Phys. B*, 1992

- [9] R. E. Grisenti, W. Schöllkopf and J. P. Toennies, "Determination of Atom-Surface van der Waals Potentials from Transmission-Grating Diffraction Intensities" *Phys. Rev. Lett.* 88 1755, 1999
- [10] J. D. Perreault and A. D. Cronin, "Observation of Atom Wave Phase Shifts Induced by Van Der Waals Atom-Surface Interactions", *Phys. Rev. Lett.* 95, 133201, 2005
- [11] T. A. Savas, Satyen N. Shah, M. L. Schattenburg, J. M. Carter, and Henry I. Smith, "Achromatic interferometric lithography for 100-nm-period gratings and grids," *J. Vac. Sci. Technol, B* 13(6), 2732,1995
- [12] T. Taillandier-Loize, S. A. Aljunid, F. Correia, N. Fabre, F. Perales, J. M. Tualle, J. Baudon, M. Ducloy and G. Dutier, "A simple velocity-tunable pulsed atomic source of slow metastable argon", *J. Phys. D : Appl. Phys.* 49 135503, 2016
- [13] D. W. Keith, R. J. Soave, and M. J. Rooks, "Freestanding gratings and lenses for atom optics," *J. Vac. Sci. Technol, B* 9, 2846, 1991.
- [14] S. J. Goh, H. J. M. Bastiaens, B Vratzov, Q. Huang, F. Bijkerk, and K. J. Boller, "Fabrication and characterization of free-standing, high-line-density transmission gratings for the vacuum UV to soft X-ray range," *OSA*, vol. 23, No. 4, 2015.
- [15] C. O. Bozler, C. T. Harris, S. Rabe, D. D. Rathman, M. A. Hollis, and H. I. Smith, "Arrays of gated field-emitter cones having 0.32 μm tip-to-tip spacing," *J. Vac. Sci. Technol, B* 12, 629, 1994.
- [16] R. E. Grisenti, W. Schöllkopf, and J. P. Toennies, "He-atom diffraction from nanostructure transmission gratings : The role of imperfections", *Phys.Rev. Lett.*, 61, 033608, 1999
- [17] BS Zhao, G Meijer, W Schöllkopf, "Quantum reflection of He₂ several nanometers above a grating surface", *Science* 331, 892-894, 2011.

- [18] M. Ahn, R. K. Heilmann, and M. L. Schattenburg, "Fabrication of ultrahigh aspect ratio freestanding gratings on silicon-on-insulator wafers", *J. Vac. Sci. Technol. B* 25, 2593, 2007
- [19] R. K. Heilmann, M. Ahn, and M. L. Schattenburg, "Fabrication and performance of blazed transmission gratings for x-ray astronomy", *Proc. of SPIE Vol. 7011* 701106-1, 2009
- [20] R. K. Heilmann, A. R. Bruccoleri and J. Song, "Critical-angle transmission grating technology development for high resolving power soft x-ray spectrometers on Arcus and Lynx", *Proc. of SPIE Vol. 10399*, 1, 2017
- [21] S.J. Goh, H.J.M. Bastiaens, B Vratzov, Q. Huang, F. Bijkerk and K.J. Boller, "Fabrication and characterization of freestanding, high-line-density transmission gratings for the vacuum UV to soft X-ray range", *Vol. 23, No. 4*, 4422, 2015
- [22] T. Juffmann, A. Milic, M. Müllneritsch, and M. Arndt, "Real-time single-molecule imaging of quantum interference", *Nature Nanotech.*, 7, 297–300, 2012
- [23] O. Nairz, M. Arndt, and A. Zeilinger, "Quantum interference experiments with large molecules", *Am. J. Phys.* 71 (4), 2003
- [24] C. Brand, J. Fiedler, T. Juffmann, M. Arndt, "A Green's function approach to modeling molecular diffraction in the limit of ultra-thin gratings", *Ann. Phys.* 527, No. 9–10, 580–591, 2015
- [25] M. Shikida, K. Sato, K. Tokoro, "Differences in anisotropic etching properties of KOH and TMAH Solutions", *IEEE*, 0-7803-5194-0/99 1999
- [26] www.microchemicals.com/downloads/application_notes.html
- [27] I. Bajwa. KOH etching of (100) Si wafer. No.1, http://repository.upenn.edu/scn_protocols, 2016

- [28] R. A. Wind, M.A. Hines, "Macroscopic etch anisotropies and microscopic reaction mechanisms : a micromachined structure for the rapid assay of etchant anisotropy", *Surface Science*, 460 , pages 21-38, 2000
- [29] P.E. Riley, "Plasma etching of aluminium metallizations for ultralarge scale integrated circuits", *Journal of the Electrochemical Society*, vol 140, pp 1518-1522, 1993
- [30] A. Richardt, A.M. Durand, "Le vide les couches minces les couches dures"
- [31] M. Hatzakis, "Electron resists for microcircuit and mask production," *Journal of the electrochemical society*, vol. 116, pp. 1033-1037, 1969
- [32]] B.P. Van der Gaag and A. Sherer, "Microfabrication below 10nm," *Applied physics letter*, vol. 56, no. 5, pp. 481-483, 1990.
- [33] T.H.P. Chang, "Proximity effect in electron-beam lithography," *Journal of vacuum science and technology*, vol. 12, pp. 1271-1275, 1975
- [34] L. I. Aparshina, S. V. Dubonos, S. V. Maksimov, A. A. Svintsov, and S. I. Zaitsev, "Energy dependence of proximity parameters investigated by fitting before measurement tests ",*J. Vac. Sci. Technol. B* 15(6), 2298, 1997
- [35] D. F. Kyser, N. S. Viswanathan, "Monte Carlo simulation of spatially distributed beams in electron-beam lithography", *J. Vac. Sci. Technol.* 12, 1305, 1975
- [36] W.H. Arnold et al., "Handbook of microlithography, micromachining and microfabrication", SPIE ed., P. Rai-Choudhury, Ed., 1997, vol. Volume 1 : Microlithography
- [37] S.Y. Lee and K. Anbumony, "Analysis of three dimensional proximity effect in electron-beam lithography," *Microelectronic engineering*, vol. 83, no. 2, pp. 336-344, 2006
- [38] I. Raptis, N. Glezos, E. Valamontes, E. Zervas, and P. Argitis, "Electron beam lithography simulation for high resolution and high density patterns," *Vacuum*, vol. 62, no. 2-3, pp. 263-271, 2001

- [39] Y. Yau, R.F.W. Pease, A. Iranmanesh, and K. Polasko, "Generation and applications of finely focused beams of low-energy electrons," *Journal of vacuum science and technology*, vol. 19, no. 4, 1981
- [40] M. Parikh, "Self consistent proximity effect correction technique for resist exposure (SPECTRE)," *Journal of vacuum science and technology*, vol. 15, no. 3, pp. 931-933, 1978
- [41] H. Hubner, "Strategy for the correction of the proximity effect in electron beam lithography," *Microelectronic engineering*, vol. 18, no. 4, pp. 275-293, 1992
- [42] S. A. Rishton and D. P. Kern, "Point exposure distribution measurements for proximity correction in electron beam lithography on a sub-100nm scale", *J. Vac. Sci. Technol. B*5, 135, 1987
- [43] Dix et al., "0.1 μm scale lithography using a conventional electron beam system", *J. Vac. Sci. Technol. B* 3(1), pp. 131-5, 1985
- [44] Application notes, Raith Gmnh
- [45] <https://www.ipen.br/biblioteca/cd/cbms/1997/SBMicro/artigo56.pdf>
- [46] D.W. Hess, "Plasma etching of aluminium", *Solid State Technology*, vol 34, nr. 4, pp 189-194, 1981
- [47] J.W. Lutze, A.H. Perera, J.P. Krusius, "Anisotropic reactive ion etching of aluminium using Cl_2 , BCl_3 and CH_4 gases", *Journal of the Electrochemical Society*, vol 137, pp 249-252, 1990
- [48] S. SAITO, K. SUGITA and J. TONOTANI, "Effect of CHF_3 Addition on Reactive Ion Etching of Aluminum Using Inductively Coupled Plasma", *Jpn. J. Appl. Phys*, Vol. 44, No. 5A, pp. 2971–2975, 2005

- [49] N. Selamoglu, c. N. Bredbenner, and T. A. Giniecki, "Tapered etching of aluminum with CHF₃/Cl₂/BCl₃ and its impact on step coverage of plasma-deposited silicon oxide from tetraethoxysilane", *J. Vac. Sci. Technol. B*9, 2530, 1991
- [50] B. D. Pant and U. S. Tandon, "Etching of Silicon Nitride in CCl₂F₂, CHF₃, SiF₄, and SF₆ Reactive Plasma : A Comparative Study", *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, Vol. 19, No. 4, 1999
- [51] B. E. E. Kastenmeier, P. J. Matsuo, J. J. Beulens, and G. S. Oehrlein, "Chemical dry etching of silicon nitride and silicon dioxide using CF₄/O₂/N₂ gas mixtures", *J. Vac. Sci. Technol. A* 14(5), 2802, 1996
- [52] H. M. Sanders, J. Dieleman, H. J. B. Peters, and J. A. M. Sanders, *J. Electrochem. Soc.* 129, 2559, 1983
- [53] T. C. Mele, J. Nulman, and J. P. Krusius, "Selective and anisotropic reactive ion etch of LPCVD silicon nitride with CHF₃ based gases", *J. Vac. Sci. Technol. B*, 684, 1984
- [54] T. Taillandier-Loize. Jet lent d'atomes d'argon métastables pour l'étude de l'échange de métastabilité, des interactions de van der Waals et des milieux d'indice négatif. PhD thesis, Université Paris 13, 2014.
- [55] SmarAct GMBH. www.smaract.com
- [56] Roentdek Handels GmbH : MCP Delay Line Detector Manual. www.roentdek.com.
- [57] M. Schellekens. L'effet Hanbury Brown et Twiss pour les atomes froids. PhD thesis, Université Paris 11, 2007.
- [58] B. Brutschy et H. Haberland : A high-intensity beam of metastable helium atoms with good velocity resolution. *J. Phys. E : Sci. Instrum.*, 10 :90–94, 1977.
- [59] Heat Wave Labs. www.cathode.com.

- [60] F. Correia. Jet lent d'atomes d'argon métastable pour l'étude de la diffraction au travers de nanoréseaux et de l'interaction avec des champs magnétiques co-mobiles. PhD thesis, Université Paris 13, 2018.
- [61] J.B. Schumaker Jr. and C.H. Popenoe. Experimental transition probabilities for the Ar I 4s-4p array. *Journal of the Optical Society of America*, 57(1) :8–10, 1967.
- [62] R.H. Garstang and J. van Blerkom. Transition probabilities in the Ar I spectrum. *Journal of the Optical Society of America*, 55(9) :1054–1057, 1965.
- [63] A. Derevianko and A. Dalgarno. Long-range interaction of two metastable rare gas atoms. *Physical Review A*, 62 :062501, 2000.
- [64]] J. Grucker. Expériences d'optique atomique cohérente ou non avec un jet superfin d'atomes métastables de gaz rares. PhD thesis, Université Paris 13, 2007.
- [65] M. Hamamda. Perspectives nouvelles pour l'optique atomique en jets : Interaction de van der Waals-Zeeman et milieux d'indice négatif pour les ondes de matière. PhD thesis, Université Paris 13, 2011.
- [66] W. D. Phillips et H. Metcalf : Laser deceleration of an atomic beam. *Phys. Rev. Lett.*, 48 :596–599, 1982.
- [67] K.B. MacAdam, A. Steinbach, and C. Wieman. A narrow-band tunable diode laser system with grating feedback, and a saturated absorption spectrometer for Cs and Rb. *American Journal of Physics*, 60(12) :1098–1111, 1992.
- [68] C. I. Sukenik and H. C. Busch, "Simultaneous trapping of rubidium and metastable argon in a magneto-optical trap", *Phys. Rev. A* 66 051402(R), 2002.
- [69] H. J. Metcalf and P. Van Der Straten, "Optical cooling and trapping", (Springer – Verlag New York Inc), 2001

- [70] R.E. Grisenti, W. Schöllkopf, J.P. Toennies, J.R. Manson, T.A. Savas, and H.I. Smith. He-atom diffraction from nanostructure transmission gratings : The role of imperfections. *Physical Review A*, 61(033608), 2000
- [71] M. Born, E. Wolf. *Principles of Optics : Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*.
- [72] R.E. Grisenti, et al., *Phys. Rev. Lett.* 88 1755, 1999.
- [73] V. P. A. Lonij, W. F. Holmgren and A. D. Cronin, “Magic ratio window width to grating period for van der Waals potential measurements using material grating”, *Phys. Rev. A* 80, 062904, 2009.
- [74] V. Druzhinina and M. DeKieviet, *Physical Review Letters* 91, 193202, 2003.
- [75] A. K. Mohapatra and C. S. Unnikrishnan, *Europhysics Letters* 73, 839, 2006.
- [76] A. D. McLachlan, "Van der Waals forces between an atom and surface". *Molecular Physics*, 1964.
- [77] P. Meystre and S. Sargent. *Elements of quantum optics*. AIP Press - Springer, 1998.
- [78] A. Lambrecht and S. Reynaud. Casimir force between metallic mirrors. *The European Physical Journal D*, 8 :309, 1999
- [79] D. J. Griffiths. *Introduction to Electrodynamics*. Prentice Hall, 1999.
- [80] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. John Wiley & Sons, 1999.
- [81] John. D. Perreault. Using atom optics to measure van der waals atom-surface interaction. PhD thesis, 2005.
- [82] F. London. Zur theorie und systematik der molekulärkraft. *Z. Phys.*, 63 : 245, 1930
- [83] Detector Burle. <https://www.google.com/search?client=firefox-b-d&q=Burle+detector>
- [84] W. H. Press, S. Teukolsky, W. Vetterling and B. Flannery, “Numerical Recipes”, Ed.

- [85] B. Perets, Y. Lahini, F. Pozzi, and Y. Silberberg. Realization of Quantum Walks with Negligible Decoherence in Waveguide Lattices. *Phys. Rev. Lett.*, PRL 100, 170506, 2008.