

INRS ENERGIE MATÉRIAUX TÉLÉCOMMUNICATION
VARENNES (QUÉBÈC)

MÉMOIRE DE FIN D'ANNÉE

Modélisation de la nucléation dans un plasma de Silane

Laura CACOT

supervisé par
François VIDAL

25 juillet 2018

Sommaire

1	Introduction	2
2	Généralité sur les plasmas	3
2.1	Grandeurs caractéristiques	3
2.1.1	Neutralité macroscopique	3
2.1.2	Longueur de Debye	3
2.1.3	Fréquence plasma	3
2.2	Transport et diffusion	4
2.2.1	Diffusion et mobilité	4
2.2.2	Diffusion libre	5
2.2.3	Diffusion ambipolaire	5
3	Plasmas poudreux	7
3.1	Forces appliquées à une particule	7
3.1.1	Force gravitationnelle	7
3.1.2	Force électrostatique	7
3.1.3	Force de thermophorèse	7
3.1.4	Force de traînée des particules neutres	8
3.1.5	Force de traînée ionique	8
3.2	Chargement des particules de poussière	8
3.2.1	Courant de chargement	8
3.2.2	Charge des particules de poussière à l'équilibre	11
3.2.3	Temps de chargement	11
3.3	Croissance des nanoparticules	12
3.3.1	Nucléation	12
3.3.2	Coagulation	12
3.3.3	Collage	12
4	Modélisation de la chimie du plasma d'argon et de silane	14
4.1	Chimie du plasma d'argon et de silane	14
4.2	Algorithme du programme	14
4.3	Condition initiales	15
4.4	Température électronique	15
4.5	Évolution des densités	16
4.5.1	Injection et évacuation	16
4.5.2	Réactions	18
4.5.3	Diffusion	18
4.5.4	Chargement et croissance (par collage) des nanoparticules	20
5	Conclusion	22

Chapitre 1

Introduction

Les plasmas sont des gaz ionisés composés d'ions, d'électrons et des atomes ou molécules neutres du gaz. Certains plasmas contiennent des particules différentes de celles cités précédemment, ce sont des plasmas poudreux ou complexes. Les grains de poussière ont une taille qui varie de quelques nanomètres à plusieurs micromètres[1]. Le Picard parle dans son travail du processus de chargement de ces nanoparticules [2]. En effet leur charge est, pour la plupart, négative de par la mobilité élevée des électrons du plasma, et elles interagissent avec toutes les autres espèces du plasma. Les impacts électroniques et les réactions chimiques entre les molécules du gaz précurseur conduisent à la création de nouvelles espèces moléculaires. La particule grossit suite aux interactions avec les différentes espèces, par l'intermédiaire de divers processus tels que la nucléation, la coagulation et le collage [3]. D'autres espèces sont perdues au cours du temps. En effet certaines espèces sont entraînées vers la pompe avec la circulation du gaz ou vers les parois du réacteur par diffusion. D'autre part, plusieurs forces vont s'appliquer sur les particules, telles que les forces gravitationnelles, de thermophorèse, électrostatiques et de friction. Les particules, sensibles à ces forces de façon différente, dépendamment de leur taille et de leur charge, vont se répartir de manières définies dans le réacteur[4]. Les plasmas poudreux sont donc un sujet d'étude à la fois complexe et fascinant. Ce travail résume dans un premier temps la théorie des plasmas poudreux et par la suite applique cette théorie à la création d'un programme calculant la concentration des différentes espèces dans le plasma, le taux de nucléation et la croissance de particules de silicium par collage dans un plasma d'argon et de silane.

Chapitre 2

Généralité sur les plasmas

2.1 Grandeurs caractéristiques

2.1.1 Neutralité macroscopique

Un plasma à l'équilibre sans perturbation est macroscopiquement neutre, il en est de même pour un plasma poudreux. Cet équilibre de charge se traduit par l'équation

$$q_i n_i - e n_e + q_p n_p = 0 \quad (2.1)$$

où n désigne la densité de l'espèce dans le plasma (i pour les ions, e pour les électrons, et p les poussières)[1]. La charge q est égale à la charge élémentaire e multipliée par le nombre de charges Z de la particule, soit $q_p = Z_p e$ et $q_i = Z_i e$.

2.1.2 Longueur de Debye

La longueur de Debye est une zone de non neutralité dans le plasma. En effet, suite à l'agitation thermique, les électrons vont avoir tendance à s'éloigner des ions, en raison de leur plus grande mobilité, créant ainsi un écart à la neutralité. Pour un plasma à l'équilibre, cette longueur s'exprime formellement comme la moyenne quadratique des longueurs de Debye ioniques et électroniques :

$$\lambda_D = \left(\frac{1}{\lambda_{Di}^2} + \frac{1}{\lambda_{De}^2} \right)^{-1/2} \quad (2.2)$$

où

$$\lambda_{De,i} = \left(\frac{\varepsilon_0 k T_{e,i}}{e^2 n_{e,i}} \right)^{1/2} \quad (2.3)$$

Malgré que, en général, $T_e \gg T_i$ et $n_e \approx n_i$, la longueur de Debye du plasma est généralement donnée par λ_{De} en raison du fait que les ions sont peu mobiles, et donc hors équilibre [5].

A la frontière du plasma, il existe une région de non neutralité, appelée gaine, qui est entretenue par l'agitation thermique des électrons. Si un objet est plongé dans le plasma, les perturbations sur le champ électrique ne se feront que sur une distance de l'ordre λ_D . Par conséquent la largeur de la gaine sera également de l'ordre de λ_D , comme illustré à la Figure 2.1 La gaine crée un profil de potentiel présentant un maximum à l'intérieur du plasma. Il en résulte que les particules chargées négativement seront confinées à l'intérieur du plasma et les particules chargées positivement seront attirées vers les parois.

2.1.3 Fréquence plasma

Si, dans un plasma initialement neutre, il se produit une perturbation se traduisant par un excès local de charges négatives ou positives, le plasma va revenir à un état de neutralité en raison des forces

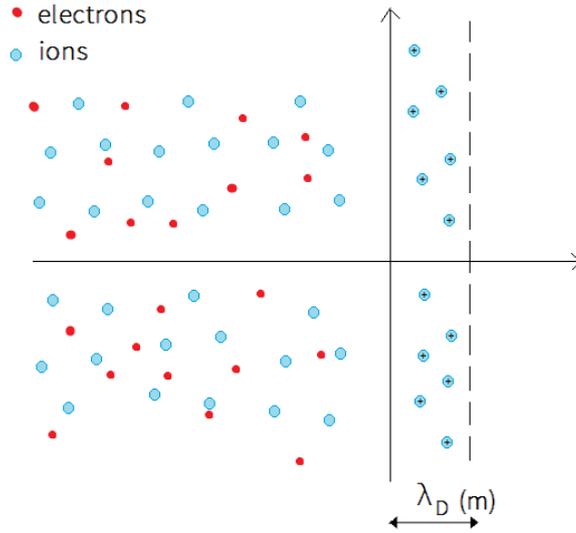


FIGURE 2.1 – Schéma représentant la longueur de Debye

électrostatiques. Pour cela, les électrons, qui sont beaucoup plus mobiles que les ions, vont se déplacer et il va ainsi se créer une oscillation de charges donnée par la fréquence plasma électronique

$$\omega_{pe} = \sqrt{\frac{n_e e^2}{\varepsilon_0 m_e}} \quad (2.4)$$

Dans cette expression, ε_0 est la permittivité du vide et m_e est la masse de l'électron.

2.2 Transport et diffusion

2.2.1 Diffusion et mobilité

Les particules du plasma vont se déplacer sous l'influence d'un champ électrique et du gradient de pression, et être freinées par les collisions avec les particules des autres espèces. L'équilibre des forces s'exprime de la manière suivante [6]

$$qn\vec{E} - \nabla p - mn\nu_m\vec{u} = 0 \quad (2.5)$$

où \vec{E} est le champ électrique, p est la pression et ν_m est la fréquence de collision subie par les particules de l'espèce donnée. Le terme $mn\nu_m\vec{u}$ représente le freinage dû aux collisions. La vitesse moyenne qui résulte de cet équilibre s'appelle vitesse de dérive \vec{u} . En utilisant la loi des gaz parfaits $p = nk_B T$, où k_B est la constante Boltzmann et T est la température, on peut extraire la vitesse moyenne de l'équation (2.5)

$$\vec{u} = \frac{q\vec{E}}{m\nu_m} - \frac{k_B T}{m\nu_m} \frac{\vec{\nabla} n}{n} \quad (2.6)$$

où nous avons supposé que la température T est uniforme.

Le flux de particules $\vec{\Gamma} = n\vec{u}$ peut également s'exprimer comme

$$\vec{\Gamma} = \pm\mu n\vec{E} - D\vec{\nabla} n \quad (2.7)$$

où \pm désigne le signe de la charge de la particule.

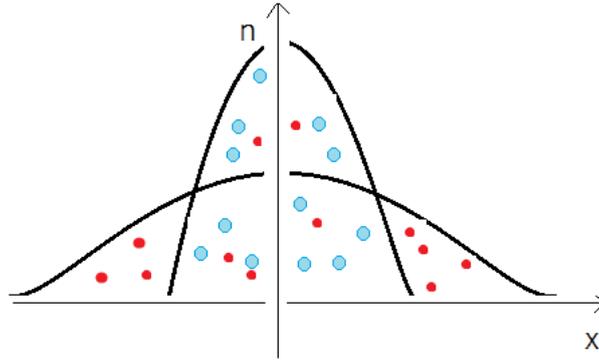


FIGURE 2.2 – Schéma représentant la diffusion libre des électrons et des ions

Cette expression permet de définir le coefficient de mobilité

$$\mu = \frac{|q|}{m\nu_m} \quad (2.8)$$

en m^2/Vs , et le coefficient de diffusion

$$D = \frac{k_B T}{m\nu_m} \quad (2.9)$$

en m^2/s .

Physiquement, la diffusion représente la capacité d'un type de particules à se déplacer dans un gradient de densité $\vec{\nabla}n$, et la mobilité sa capacité à se déplacer sous l'influence d'une force comme un champ électrique \vec{E} . Ces deux coefficients diminuent évidemment d'autant plus que la fréquence de collisions ν_m et la masse m sont élevées.

On en déduit la relation générale, appelée relation d'Einstein,

$$\frac{D}{\mu} = \frac{k_B T}{|q|} \quad (2.10)$$

qui n'est valable que dans le cas d'une distribution maxwellienne mais peut donner une bonne approximation du rapport D/μ également dans le cas d'une distribution non maxwellienne.

2.2.2 Diffusion libre

En l'absence de champ électrique, l'expression pour le flux de particules $\vec{\Gamma}$ se ramène à la loi de Fick

$$\vec{\Gamma} = -D\vec{\nabla}n \quad (2.11)$$

Cette expression indique que si la densité d'un type de particules donné présente une non uniformité spatiale, et qu'il se crée donc un gradient de densité, la diffusion agira de façon à aplanir la non-uniformité puisque cette dernière déplace les particules de la région de haute densité vers la région de basse densité, comme illustré à la Figure 2.2. Le coefficient de diffusion des électrons étant plus élevé que celui des ions en raison de leur faible masse, cet effet sera plus rapide pour les électrons.

2.2.3 Diffusion ambipolaire

Dans le cas de la diffusion libre vu précédemment, on considère que la longueur de Debye est grande (par exemple, lorsque les densités des particules sont faibles) de façon à pouvoir négliger le champ électrique qui résulte de la séparation des charges. Si les densités deviennent élevées, la diffusion (initialement) libre va entraîner la création d'une charge d'espace et donc d'un champ électrique. Les électrons diffusant plus

rapidement que les ions, ces derniers vont avoir tendance à ralentir la diffusion des électrons et les électrons à accélérer les ions. Les deux espèces vont éventuellement atteindre un régime où ils évoluent comme une seule : c'est la diffusion ambipolaire.

Dans l'hypothèse que $\vec{\Gamma}_e = \vec{\Gamma}_i \equiv \vec{\Gamma}$ et $n_e = n_i \equiv n$ (quasi neutralité), on trouve que

$$\vec{\Gamma} = -D_a \vec{\nabla} n \quad (2.12)$$

où

$$D_a = \frac{\mu_i D_e + \mu_e D_i}{\mu_i + \mu_e} \vec{\nabla} n \quad (2.13)$$

est le coefficient de diffusion ambipolaire.

Considérant que $\mu_e \gg \mu_i$, on obtient, en utilisant le relation d'Einstein,

$$D_a \approx D_i \left(1 + \frac{T_e}{T_i} \right) \quad (2.14)$$

La diffusion ambipolaire est donc principalement déterminée par la diffusion libre des ions mais avec facteur multiplicatif qui croît linéairement avec T_e/T_i .

Chapitre 3

Plasmas poudreux

La présence de poussières ou nanoparticules dans le plasma peut modifier profondément les propriétés du plasma lorsque leur surface effective devient importante. Dans ce chapitre nous allons examiner quelques unes de leurs principales propriétés.

3.1 Forces appliquées à une particule

Les particules de poussière ou nanoparticules vont subir plusieurs types de forces influençant leurs mouvements dans le plasma [4]. Cette section est consacrée à la description de ces forces.

3.1.1 Force gravitationnelle

Comme tout objet présent sur la terre, les particules du plasma subissent une force gravitationnelle les entraînant vers le sol, qui s'exprime, pour une particule supposée sphérique, comme

$$\vec{F}_G = m_p \vec{g} = \frac{4}{3} \pi r_p^3 \rho_p \vec{g} \quad (3.1)$$

où \vec{g} est l'accélération due à la gravité, m_p est la masse de la particule, r_p son rayon, et ρ_p sa densité massique.

3.1.2 Force électrostatique

Les champs électriques \vec{E} présents dans le plasma, notamment au voisinage des gaines, vont créer une force électrostatique sur les espèces du plasma.

$$\vec{F}_e = q_p \vec{E} \quad (3.2)$$

où q_p est la charge de la particule. Dans le cas du champ électrique causé par les gaines, cette force va entraîner les particules chargées négativement des électrodes vers le centre du plasma alors que les particules sans charge ou chargées positivement peuvent entrer en contact avec les parois du réacteur.

3.1.3 Force de thermophorèse

Un gradient de température dans le plasma va créer une force qui va entraîner les nanoparticules vers la partie froide du plasma. Cette force résulte du fait que la pression du plasma du côté chaud de la particule est supérieure à la pression du côté froid. Cette force s'exprime comme

$$\vec{F}_{th} = -\frac{35}{15} \frac{r_p^2}{v_{th,g}} \left(1 + \frac{5\pi}{32} (1 - \alpha_T) \right) \kappa_T \vec{\nabla} T_g \quad (3.3)$$

où $v_{th,g}$ est la vitesse thermique des particules du gaz (incluant les ions), T_g est la température du gaz, α_T est le coefficient d'accommodation thermique du gaz à la surface de la poussière et κ_T est la partie translationnelle de la conductivité thermique.

3.1.4 Force de traînée des particules neutres

Les plasmas de laboratoire comportent généralement un système de circulation du gaz qui permet de contrôler le plasma. Ce flot de gaz va entraîner les poussières dans leur mouvement, créant une force de traînée des particules neutres. Cette force s'exprime comme [7]

$$\vec{F}_n = \frac{4}{3}\pi r_p^2 n_g m_g v_{th,g} (\vec{v}_g - \vec{v}_p) \quad (3.4)$$

où n_g est la densité du gaz, m_g la masse des particules du gaz, \vec{v}_g sa vitesse moyenne, et \vec{v}_p est la vitesse moyenne des nanoparticules.

3.1.5 Force de traînée ionique

Le mouvement des ions dans le plasma aura un effet similaire à celui des particules neutres du gaz, mais les ions, étant chargés positivement, auront deux types d'impact sur les nanoparticules chargées. Dans le premier cas, l'ion entre en collision avec la particule et lui donne une impulsion par transfert de quantité de mouvement. L'expression pour ce type de force est similaire à celle pour la traînée des particules neutres.

$$\vec{F}_{coll} = \pi b_c^2 n_i m_i v_i (\vec{v}_i - \vec{v}_p) \quad (3.5)$$

Dans cette expression, b_c est le paramètre d'impact, m_i est la masse moyenne des ions, n_i leur densité et \vec{v}_i leur vitesse moyenne.

Dans le second cas, l'interaction coulombienne entre l'ion et la particule de poussière entraîne une déflexion des ions et produit sur la particule de poussière une force qui s'exprime

$$\vec{F}_{coul} = 4\pi b_{\pi/2}^2 \Gamma n_i m_i v_i (\vec{v}_i - \vec{v}_p) \quad (3.6)$$

Dans cette expression, $b_{\pi/2}^2$ est le paramètre d'impact pour une déflexion à 90° et Γ est le logarithme Coulombien.

$$\Gamma = \frac{1}{2} \ln \left(\frac{\lambda_L^2 + b_{\pi/2}^2}{b_c^2 + b_{\pi/2}^2} \right) \quad (3.7)$$

Les différents types de forces décrites dans cette section sont illustrées à la Figure 3.1.

3.2 Chargement des particules de poussière

3.2.1 Courant de chargement

Dans un plasma, la vitesse thermique des électrons est plus importante que celle des ions de par leur masse plus faible. Les électrons seront donc la première espèce à venir s'agglomérer sur la poussière tout en la chargeant négativement. Une fois la particule chargée négativement celle-ci aura tendance à attirer les ions positifs. Un courant d'ions et d'électrons est ainsi créé entre le plasma et la nanoparticule.

Nous pouvons ainsi calculer le taux de chargement des nanoparticules, donné par l'équation

$$\frac{dq_p}{dt} = I_i + I_e \quad (3.8)$$

où q_p est la charge des particules de poussière et I_i et I_e sont respectivement les courants ionique et électronique. Dans ce qui suit, l'indice j désigne soit l'ion soit l'électron.

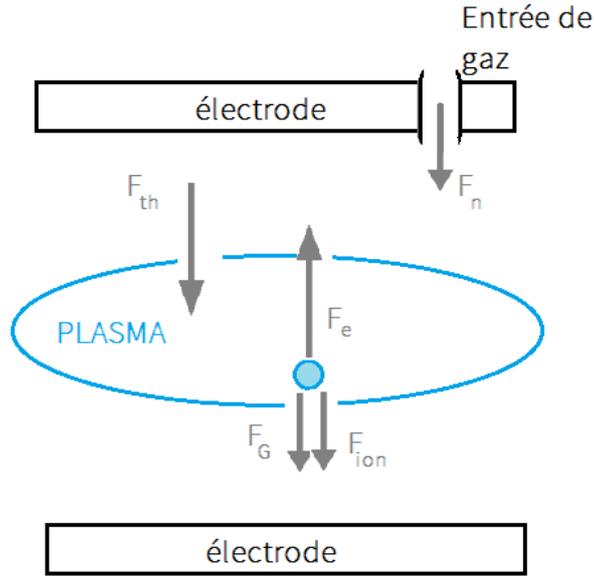


FIGURE 3.1 – Schéma représentant les différentes forces sur une poussière

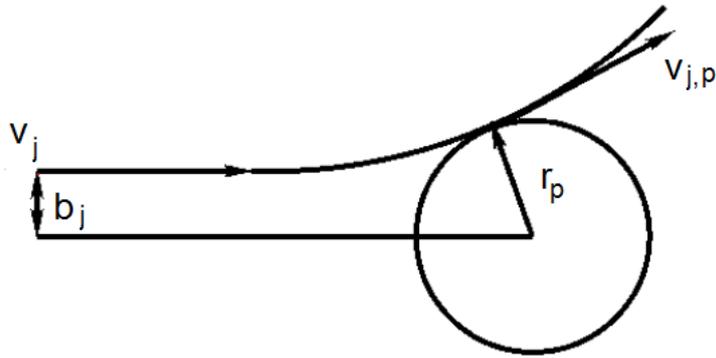


FIGURE 3.2 – Schéma de la section efficace d'une espèce à l'approche d'une poussière

Le courant s'exprime

$$I_j = q_j \int_{v_{jmin}}^{\infty} v \sigma_j^p f_j dv \quad (3.9)$$

où σ_j^d est la section efficace de collision, v_{jmin} est la vitesse minimum de la particule j requise pour atteindre la surface de la nanoparticule, et f_j est la fonction de distribution en vitesse v . Dans ce qui suit nous supposons une distribution maxwellienne, définie comme

$$f(v) = 4\pi n v^2 \left(\frac{m}{2\pi k_B T} \right)^{3/2} \exp\left(\frac{-mv^2}{2k_B T} \right) \quad (3.10)$$

où n est la densité, T leur température et m leur masse.

La section efficace est liée au paramètre d'impact b_j correspondant à une incidence tangentielle à la surface de la particule (voir Figure 3.2), comme $\sigma_j^p = \pi b_j$.

Le paramètre d'impact peut être calculé en utilisant les lois de conservation du moment angulaire et de l'énergie, suivant la théorie OML (Orbit Limited Motion) [8]. Dans ce qui suit nous supposons que la nanoparticule possède une masse infinie, ce qui nous permet de négliger son mouvement suite à son

interaction avec la particule incidente.

— Conservation du moment angulaire :

$$\begin{aligned}\vec{L} &= m(\vec{r} \wedge \vec{v}) \\ L &= mrv \sin \theta\end{aligned}\quad (3.11)$$

où θ est l'angle entre \vec{r} et \vec{v} . Or, à l'infini (à gauche sur la Figure 3.2), $r \sin \theta = b$ et sur la particule $\sin \theta = 1$. On en déduit que

$$m_j v_j b_j = m_j v_{j,p} r_p \quad (3.12)$$

où r_p est le rayon de la nanoparticule et $v_{j,p}$ est la vitesse de la particule j après avoir interagi avec la nanoparticule.

— Conservation de l'énergie : La loi de conservation de l'énergie s'exprime

$$\frac{1}{2} m_j v_j^2 = \frac{1}{2} m_j v_{j,p}^2 + q_j \phi_p \quad (3.13)$$

où ϕ_p est la différence de potentiel entre la nanoparticule et le plasma. Lorsque $r_p \ll \lambda_D$, ϕ_p est simplement le potentiel d'une sphère chargée en surface, donné par

$$\phi_p = \frac{q_p}{4\pi\epsilon_0 r_p} \quad (3.14)$$

En utilisant les équations (3.12) et (3.13), on obtient :

$$b_j = r_p \left(1 - \frac{2q_j \phi_p}{m_j v_j^2} \right)^{1/2} \quad (3.15)$$

Cela permet d'exprimer la section efficace :

$$\sigma_j^p = \pi b_j^2 = \pi r_p^2 \left(1 - \frac{2q_j \phi_p}{m_j v_j^2} \right) \quad (3.16)$$

Afin que la section efficace soit positive, v_j doit être supérieure à une certaine valeur v_{jmin} qui est la vitesse minimale requise pour atteindre la surface de la particule.

On distingue deux cas.

— Cas de particules de charges opposées ($q_j q_p < 0$) :

$$v_j > 0 \equiv v_{jmin} \quad (3.17)$$

— Cas de particules de mêmes charges ($q_j q_p > 0$) :

$$v_j > \left(\frac{2q_j \phi_p}{m_j} \right)^{1/2} \equiv v_{jmin} \quad (3.18)$$

L'expression du courant (3.9) peut donc être exprimée, dans le cas d'une distribution maxwellienne (3.10), en utilisant la section efficace (3.16), comme :

$$I_j = q_j 4\pi^2 r_p^2 n_j \left(\frac{m_j}{2\pi k_B T_j} \right)^{3/2} \int_{v_{jmin}}^{\infty} v^3 \left(1 - \frac{2q_j \phi_p}{m_j v^2} \right) \exp\left(\frac{-m_j v^2}{2k_B T_j} \right) dv \quad (3.19)$$

$$= q_j 4\pi^2 r_p^2 n_j \left(\frac{k_B T_j}{2\pi m_j} \right)^{1/2} \left[1 + \frac{m_j v_{jmin}^2}{2k_B T_j} - \frac{q_j \phi_p}{k_B T_j} \right] \exp(a_j) \quad (3.20)$$

où $a_j = \left(-\frac{1}{2}v_{jmin}^2 \frac{m_j}{k_B T_j}\right)$. L'expression du courant sera différente selon le signe de $q_j q_p$, car v_{jmin} est différent dans les deux cas (voir Equations (3.17) et (3.18)).

En supposant que la nanoparticule possède une charge négative (voir la section suivante), nous distinguons les deux cas suivants.

— Courant ionique d'ions positifs :

$$I_i = q_i 4\pi^2 r_p^2 n_i \left(\frac{k_B T_i}{2\pi m_i}\right)^{1/2} \left[1 - \frac{q_i \phi_p}{k_B T_i}\right] \quad (3.21)$$

— Courant électronique :

$$I_e = -e 4\pi^2 r_p^2 n_e \left(\frac{k_B T_e}{2\pi m_e}\right)^{1/2} \exp\left(\frac{e \phi_p}{k_B T_e}\right) \quad (3.22)$$

3.2.2 Charge des particules de poussière à l'équilibre

Pour simplifier nous supposons des ions positifs avec une charge $q_i = e$. La charge $q_p = 4\pi\epsilon_0 r_p \phi_p$ des particules de poussière à l'équilibre est obtenue en résolvant $I_e + I_i = 0$ pour ϕ_p , ce qui conduit à l'équation suivante pour une particule de poussière chargée négativement :

$$e \phi_p = -k_B T_e \left[\frac{1}{2} \ln \left(\frac{m_i T_e n_e^2}{m_e T_i n_i^2} \right) - \ln \left(1 - \frac{e \phi_p}{k_B T_i} \right) \right] \quad (3.23)$$

Il n'y a pas de solution analytique à cette équation, cependant une solution approchée connue est [6]

$$e \phi_p \approx -0.365 k_B T_e \ln \left(\frac{m_i T_i n_e^2}{m_e T_e n_i^2} \right) \quad (3.24)$$

ce qui indique que $-e \phi_p$ est du même ordre de grandeur que $k_B T_e$. En utilisant l'équation (3.14), on conclut que $q_p = -\alpha 4\pi\epsilon_0 r_p k_B T_e / e$ où α est un facteur positif de l'ordre de 1. Le résultat important ici est que la charge à l'équilibre de la particule de poussière croît proportionnellement à son rayon r_p .

On note que si nous avons supposé une particule de poussière chargée positivement, nous aurions plutôt obtenu l'équation :

$$e \phi_p = -k_B T_i \left[\frac{1}{2} \ln \left(\frac{m_i T_e n_e^2}{m_e T_i n_i^2} \right) + \ln \left(1 + \frac{e \phi_p}{k_B T_e} \right) \right] \quad (3.25)$$

On voit que pour $n_e \approx n_i$, le membre de droite est négatif, ce qui est en contradiction avec l'hypothèse de départ. On en déduit que la charge des particules de poussière à l'équilibre est nécessairement négative.

3.2.3 Temps de chargement

L'expression du courant permet de calculer le temps de chargement de la nanoparticule. Ce dernier est déterminé par le courant le plus faible, celui des ions :

$$\frac{dq_p}{dt} = I_i + I_e \simeq I_i = q_i 4\pi^2 r_p^2 n_i \left(\frac{k_B T_i}{2\pi m_i}\right)^{1/2} \left[1 + \frac{q_i q_p}{k_B T_i r_p}\right] \quad (q_i q_p < 0) \quad (3.26)$$

Cette équation différentielle, de la forme $\frac{dq}{dt} = a + bq$, a pour solution exacte $q(t) = -\frac{a}{b} + e^{-bt} C_1$. La condition initiale est fixée telle que $q(0) = q_0$, soit $C_1 = q_0 + \frac{a}{b}$. En factorisant $\frac{a}{b} = \frac{q_i}{k_B T_i r_p}$, on obtient la solution exacte :

$$q_p(t) = -\frac{k_B T_i r_p}{q_i} \left(1 - \left(k_B T_i r_p \frac{q_0}{q_i} + 1 \right) e^{-t/\tau_i} \right) \quad (3.27)$$

Le temps de chargement est donc $\tau_c = \frac{1}{b}$, soit

$$\tau_c = \frac{1}{q_i^2 r_p n_i} \left(\frac{k_B T_i m_i}{2\pi} \right)^{1/2} \quad (3.28)$$

Comme prévu, on constate que le temps de chargement est plus long pour des particules de plus grande masse m_i et de plus faible densité n_i . Moins évidente est l'augmentation du temps de chargement aux plus hautes températures T_i . Le résultat le plus intéressant est la diminution du temps de chargement pour des nanoparticules de plus grandes tailles r_p .

3.3 Croissance des nanoparticules

La croissance de la nanoparticule se fait en trois étapes, la nucléation, la coagulation et le collage. Ces trois étapes sont représentées sur la figure 3.3.

3.3.1 Nucléation

La nucléation est le phénomène suivant lequel apparaissent les premières nanoparticules, aussi appelées nuclei, qui se forment à partir d'un gaz précurseur. Généralement, on convient que la taille des nuclei est d'environ 1 nm. Leur taille va atteindre 2-3 nm en environ 500 ms. Par exemple, lors de la nucléation, des particules de silicium se forment à partir du silane (SiH_4) ou des particules de carbone à partir du méthane (CH_4).

3.3.2 Coagulation

La coagulation est un phénomène d'agglomération entre plusieurs particules de poussière. Elle va se faire dans les deux premières secondes et va permettre aux particules d'atteindre une taille allant jusqu'à 50 nm. La coagulation commence lorsque la densité de nanoparticules produites par nucléation dépasse un certain seuil. En général la coagulation produit une distribution étalée en taille des particules de poussière.

3.3.3 Collage

Le collage se produit dès que les nuclei se forment, mais il devient le phénomène de croissance dominant seulement après la coagulation, soit après environ deux secondes. La taille des particules peut atteindre 1 μm après 10 secondes grâce au collage. Durant le collage, les radicaux et les ions vont venir se coller à la surface de la particule et donc faire augmenter son volume. La croissance des particules de poussière par collage aura tendance à ralentir à mesure que les particules augmentent de taille en raison du nombre limité de molécules du gaz précurseur (e.g. silane ou méthane).

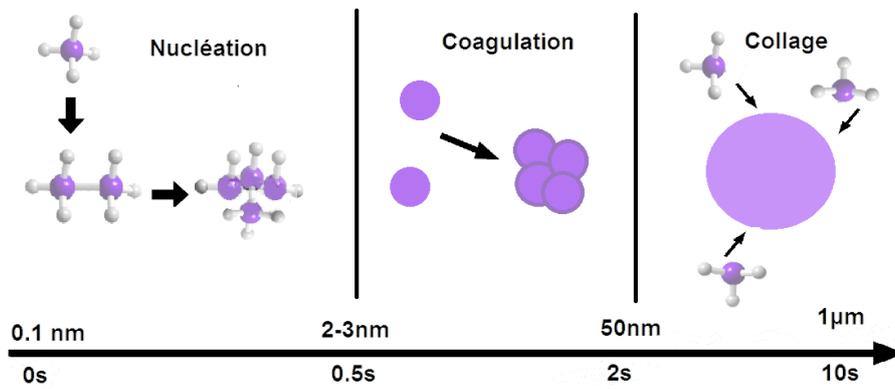


FIGURE 3.3 – Schéma des trois phases de croissance de la particule au cours du temps

Chapitre 4

Modélisation de la chimie du plasma d'argon et de silane

Le but de cette première partie de recherche a été de développer un code permettant de modéliser la chimie d'un plasma d'argon et de silane (SiH_4) en fonction du temps. Ce code est destiné à être intégré dans un code plus complet en 1D, permettant de simuler d'une manière cohérente l'évolution de la distribution en taille des particules de poussière et du plasma en tenant compte de tous les processus connus dans ce type de plasma poudreux. Le code discuté ici permet de calculer la densité des différentes espèces du plasma en fonction du temps, le taux de nucléation ainsi que la croissance des nanoparticules par collage. Cependant, la modélisation de la coagulation sortait du cadre de ce travail de maîtrise. En effet, la coagulation est décrite par l'équation de Schmolukowski, qui est difficile à résoudre numériquement et requiert des temps de calcul considérables.

4.1 Chimie du plasma d'argon et de silane

Le silane est le précurseur des nanoparticules de silicium. Les impacts électroniques sur les atomes et molécules du gaz génèrent plusieurs espèces ioniques et neutres. À leur tour, ces espèces interagissent entre elles pour se transformer les unes dans les autres et pour former de nouvelles espèces. Le tableau 4.1 contient les 21 espèces considérées dans notre modèle et le tableau 4.2 contient les 47 réactions considérées entre ces espèces. En outre, une équation algébrique transcendante est résolue numériquement pour obtenir la température électronique. Les taux de réaction sont tirés des travaux du groupe de S. L. Girshick de l'Université du Minnesota, notamment des thèses de P. Agarwal [7] et de R. Le Picard [2].

4.2 Algorithme du programme

L'algorithme du programme est représenté à la Figure 4.1. Au départ, une température électronique et les densités de chaque espèce sont initialisées (conditions initiales). Ensuite les équations différentielles des taux de réaction pour chaque espèce et pour la température électronique sont résolues sur un pas de temps dt . Les derniers résultats servent ensuite de conditions initiales pour la résolution des équations différentielles sur un nouveau pas de temps dt , et ainsi de suite. Le processus est répété jusqu'à atteindre le temps maximum prescrit. Étant donné que les constantes de vitesse peuvent varier sur des ordres de grandeur, il est nécessaire d'utiliser un solveur adaptatif pour résoudre l'ensemble des 47 équations différentielles.

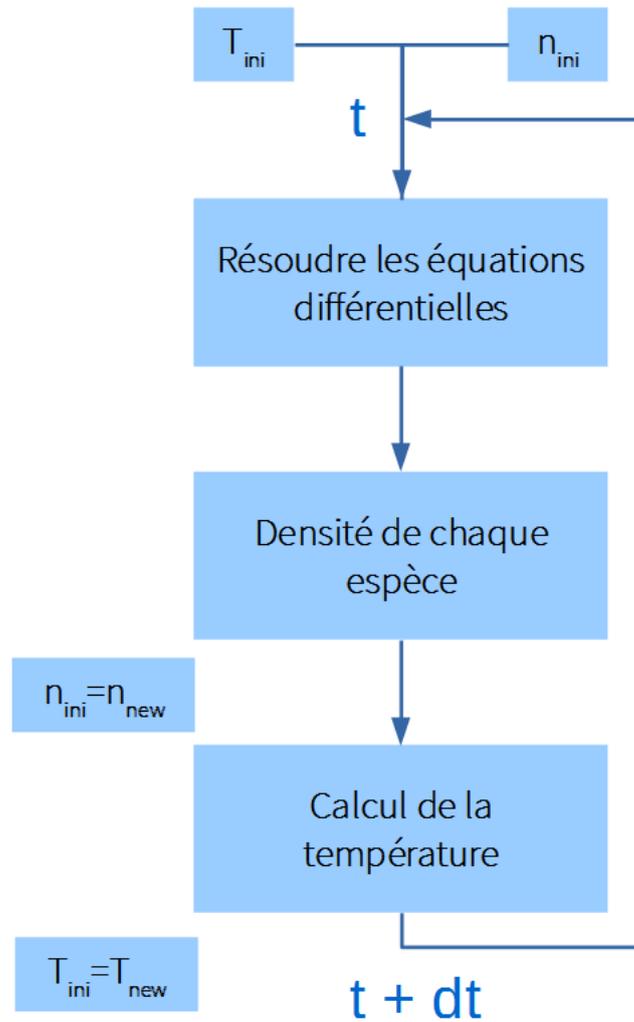


FIGURE 4.1 – Algorithme du programme

4.3 Condition initiales

Nous supposons un mélange d’argon et de silane dans une proportion de 30 :1 injecté dans le réacteur avec un débit de 31 sccm. Le volume du réacteur est supposé être de $4 \times 10^{-4} \text{ m}^3$, ce qui fait que le nombre de particules injectées dans le réacteur par unité de temps et de volume est de $3.5 \times 10^{22} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$. La pression dans le réacteur est fixée à 0.1 Torr et la température du gaz supposée 320 K. En utilisant la loi des gaz parfaits, la densité de particules est donc de $3.54 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$. Initialement, la proportion argon :silane est supposée 30 :1. Cependant cette proportion peut changer en fonction de la puissance injectée dans le réacteur. Le programme débute avec une température électronique de 3 eV qui sera recalculée à chaque pas de temps. La densité de certaines espèces déjà présentes dans le plasma est initialement fixée à 10^{16} , c’est le cas des métastables d’argon, du cation d’argon et des électrons. La densité des autres espèces, à l’exception de SiH_4 et de Ar, sont initialisées à 0. Ces densités sont recalculées à chaque pas de temps.

4.4 Température électronique

La température électronique est obtenue en supposant que la puissance par unité de volume P_e transmise par la source aux électrons du plasma est constante. Ceci implique la résolution de l’équation algé-

Électron	e				
Argon	Ar ⁺	Ar*			
Hydrogène	H	H ₂	H ₂ ⁺		
Si _n H _m	SiH ₄	SiH ₃ ⁺	Si ₂ H ₂	Si ₂ H ₃ ⁻	SiH
	SiH ₃	SiH ₃ ⁻	Si ₂ H ₅	Si ₂ H ₄ ⁻	SiH ⁻
	Si	SiH ₂	SiH ₂ ⁻	Si ₂ H ₆	Si ₂ H ₅ ⁻

TABLE 4.1 – Liste des espèces du plasma considérées

brique pour T_e :

$$P_\varepsilon = S_{Re}(T_e) + S_p(T_e) \quad (4.1)$$

où S_p représente les pertes par diffusion, chargement sur les particules de poussière et par entraînement du plasma vers la pompe, et

$$S_{Re} = \sum_r k_r n_e n_r \varepsilon_r \quad (4.2)$$

représente les pertes d'énergie ε_r des électrons par collisions inélastiques avec les espèces r . L'équation (4.1) est résolue au moyen d'un algorithme de recherche de zéro pour une équation non-linéaire générale.

4.5 Évolution des densités

Les densités n_α sont calculées en résolvant une équation différentielle du type

$$\frac{dn_\alpha}{dt} = S_\alpha(n_\alpha, n_\beta, n_\gamma, \dots) \quad (4.3)$$

où le terme source S_α dépend en général des densités de plusieurs espèces présentes dans le plasma (n_β, n_γ, \dots) ainsi que d'autres paramètres (taux d'injection du gaz, dimensions du réacteur, densité et taille des nanoparticules, coefficients de collage, etc.). Les principales contributions au terme source sont :

- L'injection et l'évacuation
- Les réactions
- La diffusion
- Les pertes sur les nanoparticules par chargement et collage

Dans ce qui suit nous développons les détails de ces différentes contributions.

4.5.1 Injection et évacuation

Les réacteurs comportent généralement un système de circulation du gaz où le gaz injecté est évacué vers la pompe avec le même taux. Nous supposons la densité des atomes d'argon comme invariable, étant donnée sa grande valeur en comparaison de celle des autres espèces. Compte tenu de l'injection continue de silane dans le réacteur, il est nécessaire de tenir compte de cette contribution dans l'équation différentielle décrivant la densité du SiH₄ :

$$\left. \frac{dn_{SiH_4}}{dt} \right|_{inj} = \frac{1}{30} S_{inj} \quad (4.4)$$

où S_{inj} est le taux d'injection du gaz par unité de volume et de temps, évalué plus haut à $3.5 \times 10^{22} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$.

	Reaction	$A(m^3.s^{-1})$	B	Ea (eV)
1	$Ar + e \rightarrow Ar^+ + 2e$	70.6E-18	0.6	16.14
2	$Ar + e \rightarrow Ar^* + e$	11.69E-15	0	12.31
3	$Ar^* + e \rightarrow Ar^+ + 2e$	124.92E-15	0	5.39
4	$Ar^* + Ar^* \rightarrow Ar + Ar^+ + e$	614.62E-18	0	0
5	$Ar^* + e \rightarrow Ar + e$	431.89E-18	0.74	0
6	$SiH_4 + e \rightarrow SiH_3 + H + e$	1.83E-9	-1	10.68
7	$SiH_4 + e \rightarrow SiH_2 + 2H + e$	8.97E-9	-1	10.68
8	$SiH_4 + e \rightarrow SiH_3^- + H$	3.77E-9	-1.63	8.29
9	$SiH_4 + e \rightarrow SiH_2^- + 2H$	3.77E-9	-1.63	8.29
10	$SiH_4 + e \rightarrow SiH_3^+ + H + 2e$	2.50E-2	-2.93	24.1
11	$SiH_3 + e \rightarrow SiH_2^- + H$	5.71E-9	-0.5	1.94
12	$SiH_3 + e \rightarrow SiH_3^+ + 2e$	2.26E-16	0.5	1.30
13	$SiH_3^- + e \rightarrow SiH_3 + 2e$	315E-16	0.5	1.16
14	$SiH_2^- + e \rightarrow SiH_2 + 2e$	315E-16	0.5	1.16
15	$SiH_2 + e \rightarrow SiH_2^-$	5.71E-16	-0.5	0
16	$H_2 + e \rightarrow 2H + e$	4.73E-14	-0.23	10.09
17	$H_2 + e \rightarrow H_2^+ + 2e$	1.1E-14	0.42	16.05
18	$SiH_4 + Ar^* \rightarrow SiH_3 + H + Ar$	140.03E-9	0	0
19	$SiH_4 + Ar^* \rightarrow SiH_2 + 2H + Ar$	259.15E-18	0	0
20	$SiH_3 + Ar^* \rightarrow SiH_2 + H + Ar$	99.67E-18	0	0
21	$SiH_2 + Ar^* \rightarrow SiH + H + Ar$	99.67E-18	0	0
22	$H_2 + Ar^* \rightarrow 2H + Ar$	69.77E-18	0	0
23	$SiH_3 + SiH_3 \rightarrow SiH_2 + SiH_4$	29.90E-18	0	0
24	$SiH_4 + SiH_3 \rightarrow Si_2H_5 + H_2$	2.94E-18	0	191.02E-3
25	$SiH_2 + H_2 \rightarrow SiH_4$	2.0E-19	0	0
26	$SiH_2 \rightarrow Si + H_2$	1.51E-9	1.658	1.66
27	$SiH_4 + H \rightarrow SiH_3 + H_2$	2.44E-22	1.9	0.09
28	$SiH_2 + SiH_2 \rightarrow Si_2H_2 + H_2$	1.08E-15	0	0
29	$SiH_2 + H \rightarrow SiH + H_2$	2.31E-17	0	0
30	$SiH_3 \rightarrow SiH + H_2$	328.9E-6	-3.1	1.94
31	$SiH_3 + H \rightarrow SiH_2 + H_2$	2.49E-17	0	0.11
32	$SiH_2^- + H_2^+ \rightarrow SiH_2 + H_2$	5.55E-12	-0.5	0
33	$SiH_3^- + H_2^+ \rightarrow SiH_3 + H_2$	5.55E-12	-0.5	0
34	$SiH_3^- + SiH_3 \rightarrow Si_2H_4^- + H_2$	21.1E-21	0	0
35	$SiH_3^- + SiH_3^+ \rightarrow Si_2H_6$	21.1E-21	0	0
36	$SiH_2^- + SiH_4 \rightarrow Si_2H_4^- + H_2$	21.1E-21	0	0
37	$SiH_2^- + SiH_3 \rightarrow SiH_2 + SiH_3^-$	21.1E-21	0	0
38	$SiH_3^- + SiH_2 \rightarrow Si_2H_3^- + H_2$	21.1E-21	0	0
39	$SiH_3^- + SiH_4 \rightarrow Si_2H_5^- + H_2$	21.1E-21	0	0
40	$SiH_2^- + SiH_3^+ \rightarrow Si_2H_5^-$	21.1E-21	0	0
41	$SiH_2^- + Ar^+ \rightarrow SiH_2 + Ar$	1.44E-12	-0.5	0
42	$SiH_3^- + Ar^+ \rightarrow SiH_3 + Ar$	1.44E-12	-0.5	0
43	$SiH_3 + e \rightarrow SiH_3^-$	5.71E-16	-0.5	0
44	$SiH + e \rightarrow SiH^-$	5.71E-15	-0.5	0
45	$SiH^- + e \rightarrow SiH + 2e$	3.16E-16	0.5	1.25
46	$SiH_2^- + SiH \rightarrow SiH_2 + SiH^-$	2.31E-17	0	0
47	$SiH^- + H_2^+ \rightarrow SiH + H_2$	3.21E-13	0	0

TABLE 4.2 – Liste des réactions du plasma considérées

espèce	s_i
SiH ₄	10 ⁻⁵
SiH ₃	0.045
SiH ₂	0.8
Si ₂ H ₅	10 ⁻⁵
Si ₂ H ₂	10 ⁻⁵
Si ₂ H ₆	10 ⁻⁵
SiH	0.95
Si	1.0

TABLE 4.3 – Valeur des coefficients de collage

Pour maintenir la pression fixe, toutes les espèces du plasma sont évacuées suivant l'expression

$$\frac{dn_\alpha}{dt}\Big|_{\text{évac}} = -\frac{S_{inj}}{n_g}n_\alpha \quad (4.5)$$

où n_g est la densité du gaz.

4.5.2 Réactions

Pour une réaction $A + B \mapsto C + D$ nous avons :

$$\frac{-dn_A}{dt}\Big|_{\text{réac}} = \frac{-dn_B}{dt}\Big|_{\text{réac}} = \frac{dn_C}{dt}\Big|_{\text{réac}} = \frac{dn_D}{dt}\Big|_{\text{réac}} = Kn_A n_B \quad (4.6)$$

où K la constante de vitesse qui s'exprime suivant la loi d'Arrhenius,

$$K = GT^\beta \exp\left(\frac{-E_a}{T}\right) \quad (4.7)$$

Ici G est le facteur de fréquence ($\text{m}^3 \text{s}^{-1}$), β une constante, E_a est l'énergie d'activation de la réaction, et T est la température (T_i si A et B sont des ions ou des neutres, T_e si A ou B est un électron). Les constantes G , β et E_a sont disponibles dans les travaux de l'Université du Minnesota. On y trouve cependant plusieurs contradictions.

4.5.3 Diffusion

La majorité des espèces chargées positivement sera perdue par diffusion vers les parois où elles se recombinent avec les électrons pour former des espèces neutres. Les changements de densité dus à la diffusion sont décrits par des expressions du type :

$$\frac{dn_\alpha}{dt}\Big|_{\text{diff}} = -\vec{\nabla} \cdot \vec{\Gamma}_\alpha \quad (4.8)$$

Pour la diffusion ambipolaire, les flux sont définis comme

$$\vec{\Gamma}_\alpha = -\Delta_\alpha \vec{\nabla} n_\alpha \quad (4.9)$$

où les Δ_α sont les coefficients de diffusion ambipolaires. Pour décrire la diffusion, il est nécessaire de supposer un profil spatial des densités. Nous supposons donc que les profils de densité ont la forme $n_\alpha(x) = n_\alpha(0) \cos(\pi x/L)$ pour $-L/2 \leq x \leq L/2$ où L est la distance inter-électrodes.

Nous obtenons donc les équations différentielles

$$\frac{dn_\alpha}{dt}\Big|_{\text{diff}} = -\frac{\pi^2}{L^2} \Delta_\alpha n_\alpha \quad (4.10)$$

Diffusion ambipolaire multiespèces

Nous obtenons ici les expressions pour la diffusion ambipolaire de plusieurs espèces, qui s'expriment en fonction des coefficients de diffusion libres D_α .

Afin de calculer les Δ_α , on utilise d'abord la relation pour la conservation de la charge entre toutes les espèces :

$$\sum_{\alpha} q_{\alpha} \vec{\Gamma}_{\alpha} = 0 \quad (4.11)$$

où q_{α} est la charge de l'espèce α et le flux de particules est, comme précédemment,

$$\vec{\Gamma}_{\alpha} = \pm \mu_{\alpha} n_{\alpha} \vec{E} - D_{\alpha} \vec{\nabla} n_{\alpha} \quad (4.12)$$

On en déduit le champ électrique dans la direction perpendiculaire aux électrodes (supposées parallèles) $\vec{E} = \frac{\sum_{\beta} q_{\beta} D_{\beta} \vec{\nabla} n_{\beta}}{\sum_{\beta} n_{\beta} \mu_{\beta}}$ où la somme est sur toutes les espèces chargées présentes dans le plasma. Substituant cette expression dans celle de $\vec{\Gamma}_{\alpha}$, on obtient

$$\vec{\Gamma}_{\alpha} = -D_{\alpha} \vec{\nabla} n_{\alpha} \pm \mu_{\alpha} \frac{\sum_{\beta} q_{\beta} D_{\beta} \vec{\nabla} n_{\beta}}{\sum_{\beta} \frac{n_{\beta}}{n_{\alpha}} \mu_{\beta}} \quad (4.13)$$

On applique l'opérateur $\vec{\nabla} \cdot$ sur les équations (4.9) et (4.13) et on extrait Δ_{α} par identification. On obtient

$$\Delta_{\alpha} = \frac{D_{\alpha} \sum_{\beta} n_{\beta} \mu_{\beta} \mp \mu_{\alpha} \sum_{\beta} q_{\beta} D_{\beta} n_{\beta}}{\sum_{\beta} n_{\beta} \mu_{\beta}} \quad (4.14)$$

où les mobilités sont reliées aux coefficients de diffusion par la relation d'Einstein $\mu_{\alpha} = \frac{|q|}{k_B T_{\alpha}} D_{\alpha}$.

Diffusion libre

L'expression (2.9) pour le coefficient de diffusion libre peut s'exprimer en utilisant la définition de la vitesse thermique $v_{th} = \left(\frac{8k_B T}{\pi m}\right)^{1/2}$ et du libre parcours moyen $\lambda = \frac{v_{th}}{\nu_m}$ (qui est la plus petite distance que peut parcourir une particule sans faire de collision) :

$$D = \frac{\pi}{8} \lambda^2 \nu_m \simeq \frac{1}{3} \lambda^2 \nu_m \quad (4.15)$$

Pour une particule de l'espèce α , $\lambda_{\alpha} \simeq \frac{1}{n_g \sigma_{\alpha}}$ où n_g est la densité du gaz ambiant, ici principalement l'argon, et σ_{α} est la section efficace de collision. Cette dernière peut s'exprimer $\sigma_{\alpha} \simeq \frac{\pi}{4} d_{\alpha}^2$ où $d_{\alpha} = \frac{1}{2}(\phi_{\alpha} + \phi_g)$ est la moyenne des diamètres entre la particule α considérée et le gaz. Pour l'argon $\phi_{Ar} = 3.76 \text{ \AA}$.

La *vitesse thermique relative* s'exprime $v_{th,\alpha} = \left(\frac{8k_B T_{\alpha}}{\pi \mu_{\alpha}}\right)^{1/2}$, où $\mu_{\alpha} = \left(\frac{1}{m_{\alpha}} + \frac{1}{m_g}\right)^{-1}$ est la masse réduite et T_{α} est la température de la particule α . Le coefficient de diffusion libre s'exprime donc comme

$$D_{\alpha} = \frac{4}{3\pi} \frac{1}{n_g d_{\alpha}^2} \left(\frac{k_B T_{\alpha}}{\mu_{\alpha}}\right)^{1/2} = \left[\frac{4}{3\pi} k_B^{3/2}\right] \frac{T_{\alpha}^{1/2} T_g}{p_g d_{\alpha}^2 \mu_{\alpha}^{1/2}} \quad (4.16)$$

où $p_g = n_g k_B T_g$ est la pression du gaz. Dans les cas où $T_{\alpha} = T_g$ (la température du gaz), comme ce sera le cas pour toutes les particules autres que les électrons, alors l'expression du coefficient de diffusion se rapproche de l'approximation de Chapman-Enskog [9]. Cette dernière expression fait intervenir un facteur Ω au dénominateur (l'intégrale de collision) qui est généralement de l'ordre de 1.

Dans le plasma étudié, seules la diffusion des électrons, des espèces positives (SiH_3^+ , H_2^+ et Ar^+) et des métastables (Ar^*) seront prises en compte car les ions négatifs sont confinés dans le plasma par les gaines.

L'approximation de Chapman-Enskog servira à calculer uniquement la diffusion libre de SiH_3^+ et H_2^+ . Pour les autres espèces nous utiliserons des valeurs suivantes, tirées de la littérature [10] [11] :

$$\begin{aligned} D_e p &= 120 \text{ Torr m}^2 \text{ s}^{-1} \\ D_{\text{Ar}^+} p &= 4 \times 10^{-3} \text{ Torr m}^2 \text{ s}^{-1} \\ n_g D_{\text{Ar}^*} &= 2.48 \times 10^{18} \text{ cm}^{-1} \text{ s}^{-1} \end{aligned}$$

4.5.4 Chargement et croissance (par collage) des nanoparticules

Les particules chargées du plasma contenant du silicium qui impactent sur les nanoparticules contribuent à leur chargement et à leur croissance en y déposant des atomes de silicium et en libérant de l'hydrogène. Les processus de chargement et de collage sont en fait un seul et même processus pour les particules chargées contenant du Si. Cependant les électrons et les ions Ar^+ contribuent d'une manière importante au chargement mais non au collage. À l'inverse, les particules neutres contenant du Si contribuent au collage mais non au chargement. Comme mentionné précédemment, nous ne considérons pas ici le processus de coagulation. Nous supposons un nombre fixe de nanoparticules ayant toutes la même taille.

Les processus de chargement et de collage s'accompagnent de pertes conséquentes des particules du plasma, qui s'expriment :

$$\frac{dn_\alpha}{dt}|_{\text{charg+coll}} = -\Gamma_\beta S_p n_p. \quad (4.17)$$

où $S_p = 4\pi r_p^2$ est la surface des nanoparticules supposées sphériques, n_p est la densité de nanoparticules et Γ_α est le flux net de particules implactant sur les nanoparticules.

Notons que, puisque les nanoparticules sont essentiellement constituées de Si, l'impact des particules contenant du Si sur les nanoparticules va entraîner la libération de H_2 dont il faut tenir compte dans le bilan de cette espèce. Par conséquent,

$$\frac{dn_{\text{H}_2}}{dt}|_{\text{charg+coll}} = \frac{1}{2} S_p n_p \sum_\alpha N_{\text{H},\alpha} \Gamma_\alpha. \quad (4.18)$$

où $N_{\text{H},\alpha}$ est le nombre d'atomes d'hydrogène contenus dans l'espèce α .

Pour les particules chargées, nous supposons que chaque impact dépose sur la nanoparticules autant d'atomes de Si que l'espèce α en contient. Le flux est donc donné par $\Gamma_\alpha = I_\alpha / S_p q_\alpha$ où q_α est la charge de la particule de l'espèce α et I_α est le courant de l'espèce α causé par son interaction avec la nanoparticule. Ce courant est déterminé par les expressions dérivées précédemment de la théorie OML (Équations (3.21) et (3.22)), qui peuvent se réécrire comme

$$I_\alpha = q_\alpha f_\alpha v_{th,\alpha} n_\alpha \quad (4.19)$$

où

$$f_\alpha = \frac{1}{4} S_p \exp\left(\frac{\phi_p}{k_B T_\alpha}\right) \quad q_\alpha q_p > 0 \quad (4.20)$$

$$f_\alpha = \frac{1}{4} S_p \left(1 - \frac{\phi_p}{k_B T_\alpha}\right) \quad q_\alpha q_p < 0 \quad (4.21)$$

Pour les espèces neutres, nous avons $\Gamma_\alpha = s_\alpha v_{th,\alpha} n_\alpha$ où s_α est le coefficient de collage (< 1) donné au tableau 4.3 [2].

Les nanoparticules se chargent suite à leurs contacts avec les différentes espèces chargées présentes dans le plasma. Leur taux de chargement est donné par l'équation

$$\frac{dq_p}{dt} = \sum_\alpha I_\alpha \quad (4.22)$$

Par ailleurs, les particules chargées et neutres contenant du silicium vont contribuer à la croissance des nanoparticules. Le taux d'augmentation du volume v_p de la nanoparticule s'exprime

$$\frac{dv_p}{dt} = S_p v_{Si} \sum_{\alpha} \Gamma_{\alpha} \quad (4.23)$$

où la somme porte sur toutes les espèces contenant du Si, v_{Si} est le volume d'un atome du Si à la densité solide ($\sim 1.054 \times 10^{-29} \text{ m}^3$) en supposant le Si solide composé d'atomes sphériques en contact.

Chapitre 5

Conclusion

Les nanoparticules créées dans un plasma sont soumises à plusieurs effets qui entraînent des gains et pertes de celle-ci. Ce travail a permis de développer une démarche afin de calculer l'évolution des densités de nanoparticules au cours du temps. L'évolution des densité permet également de calculer le taux de nucléation et le taux de collage. Cependant les résultats restent à être analysés et comparer avec la littérature [12]. De plus un futur travail pourrait ajouter une définition dans l'espace de ce programme.

Bibliographie

- [1] P K Shukla and A A Mamun. *Introduction to Dusty Plasma Physics*. Institute of Physics Publishing Bristol and Philadelphia, 2002.
- [2] Romain Le Picard. *Mechanisms for Nanoparticle Synthesis and Charging in Nonthermal Plasmas*. PhD thesis, UNIVERSITY OF MINNESOTA, 2016.
- [3] A. Bouchoule. *Dusty Plasmas : Physics, Chemistry, and technological Impacts in plasma*. Wiley, 1999.
- [4] Kathleen De Bleecker. *Modeling of the formation and behavior of nanoparticles in dusty plasmas*. PhD thesis, Universiteit Antwerpen, 2006.
- [5] Mierk Schwabe. *Microparticles as Probes in a Highly Magnetized Dusty Plasma*. PhD thesis, Technische Universitat Munchen AND Max Planck Institut fur Extraterrestrische Physik, 2006.
- [6] Michael A. Lieberman and Allan J. Lichtenberg. *Principles of plasma discharges and materials processing*. John Wiley and Sons Inc, 2005.
- [7] Pulkit Agarwal. *Numerical Modeling of Plasmas in which Nanoparticles Nucleate and Grow*. PhD thesis, UNIVERSITY OF MINNESOTA, 2012.
- [8] J. Goree. Charging of particles in a plasma. *Plasma Sources Science and Technology*, december 1993.
- [9] A.B. Murphy. Diffusion in equilibrium mixtures of ionized gases. *Physical Review*, september 1992.
- [10] J. Passchier and W. Goedheer. A two-dimensional fluid model for an argon rf discharge. *Journal of Applied Physics*, december 1993.
- [11] D. Lymberopoulos and D. Economou. Fluid simulations of glow discharges : Effect of metastable atoms in argon. *Journal of Applied Physics*, december 1993.
- [12] Pulkit Agarwal and Steven L. Girshick. Numerical modeling of an rf argon silane plasma with dust particle nucleation and growth. *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, december 2013.