**ÉTUDE DU TAUX DE PULVÉRISATION ET DU COEFFICIENT
D'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE SECONDAIRE
DE CIBLES MÉTALLIQUES POLYCRISTALLINES BOMBARDÉES
PAR DES IONS Hg^+ ,
DANS UN DOMAINE D'ÉNERGIE ALLANT DE 5 A 30 keV**

par H. ISMAIL

Institut d'Electronique Fondamentale (*),
Faculté des Sciences, Bâtiment 220, 91, Orsay

(Reçu le 12 mars 1970, révisé le 19 mai 1970)

Résumé. — En utilisant un faisceau monocinétique d'ions Hg^+ , une étude des variations du taux de pulvérisation S et du coefficient d'émission électronique secondaire γ , en fonction de l'énergie E des ions, a été effectuée sur différents métaux polycristallins pouvant être utilisés dans la technologie des sources d'ions ou de moteurs ioniques. Le carbone, le titane, le molybdène et le tantale correspondent à de très faibles valeurs de S (2 à 3 atomes/ion pour $E = 20$ keV). Les plus faibles valeurs de γ sont obtenues avec le molybdène et le tantale. On observe de larges variations de S dans chacune des périodes du tableau de Mendéléiev. Il semble que la chaleur de sublimation E_1 joue un rôle important, car, à énergie donnée, S varie approximativement comme une fonction exponentielle décroissante de E_1 .

Abstract. — Using a monochromatic Hg^+ ion beam, a study of variation of sputtering yield S and electron secondary emission coefficient γ as function of ion energy E has been made with different polycrystalline materials, which can be used in ion sources (or ionic motors). Large variations of S have been observed in each period of the periodic chart of elements. Lower values of S are obtained with carbon, titanium, molybden and tantalum (2 to 3 atoms per ion at $E = 20$ keV). Concerning γ , molybden and tantalum give a weak electron secondary emission. It seems that the evaporation heat E_1 is an important parameter, the sputtering yield varying approximately as a decreasing exponential function of E_1 , for a given value of the ion energy.

1. La source d'ions. — **1.1 DESCRIPTION.** — La source d'ions utilisée pour le bombardement ionique, du type duoplasmatron, a déjà été décrite [1]. Elle est constituée d'une cathode en tantale, d'une anode et d'une électrode intermédiaire réalisées en acier doux ; ces deux dernières électrodes forment les pôles de l'électro-aimant créant une induction magnétique intense (quelques kilogauss) dans la zone de décharge. L'électrode intermédiaire est percée suivant l'axe d'un trou de diamètre 8 mm ; l'anode est munie en son centre d'une pastille en molybdène de diamètre également 8 mm, percée d'un trou de diamètre 2,5 mm. Le faisceau ionique est extrait de la source grâce à une électrode accélératrice située à 6 mm de l'anode et portée à une tension négative variable entre 0 et 30 kV. Cette source peut débiter en régime permanent un faisceau d'ions d'intensité maximum de 20 mA.

1.2 COMPOSITION DU FAISCEAU IONIQUE. — Un petit électro-aimant disposé sur le trajet du faisceau ionique nous permet d'en faire l'analyse et de séparer les ions ayant des rapports q/m différents.

Dans les conditions de fonctionnement normales de la source (pression de 10^{-2} à 10^{-1} torr), le pourcentage des ions Hg^{++} ne dépasse jamais 10 % de la totalité du faisceau, quelles que soient les valeurs des autres paramètres de la décharge dans la source. Le faisceau ne contient pratiquement que des ions Hg^+ si la pression de la décharge est relativement élevée et les intensités d'arc et du champ magnétique sont suffisamment faibles [2]. Nos expériences de bombardement ionique ont toutes été effectuées dans ces conditions.

L'analyse en énergie des ions issus de la source, effectuée à l'aide d'un analyseur électrostatique, montre que le spectre d'énergie est relativement étroit (20-30 eV) pour une source à forte intensité lorsque le faisceau ne contient que des ions Hg^+ ; mais sa

(*) Laboratoire Associé au C. N. R. S.

largeur peut atteindre 200 eV dans les conditions de fonctionnement où le faisceau contient un pourcentage d'ions Hg^{++} relativement élevé, même si la tension d'arc reste inférieure à 20 ou 30 V.

Cette grande dispersion d'énergie s'explique par l'apparition dans la décharge d'une région à fort potentiel positif [8], d'autant plus élevé que les valeurs de l'intensité de la décharge et du champ magnétique sont plus grandes.

1.3 FOCALISATION DU FAISCEAU. — Le faisceau d'ions à la sortie de la source diverge sous l'effet important de la charge d'espace (1 mA d'ions Hg^+ est, à ce point de vue, équivalent à 14 mA de protons). En utilisant une lentille électrostatique à trois électrodes, nous avons pu focaliser le faisceau d'ions Hg^+ sur une cible située à 25 cm de l'anode.

Le diamètre et l'émittance du faisceau ont été déterminés à la sortie de la lentille et en fonction des tensions de polarisation des différentes électrodes [4, 5]. Nous avons pu obtenir au niveau de la cible un faisceau convergent ayant une intensité maximum de 5 mA et un diamètre de 16 mm, pour une énergie finale de 25 keV.

2. Taux de pulvérisation et coefficient d'émission électronique secondaire. — **2.1 INTRODUCTION.** — Le bombardement d'une cible métallique par un faisceau d'ions donne naissance aux phénomènes suivants [6] :

- Ejection d'atomes de la cible bombardée ; la majorité de ces atomes sont neutres.
- Emission électronique secondaire.
- Emission d'ions caractéristique du métal bombardé de type M^+ (ions secondaires).
- Réflexion ou diffusion d'ions primaires ayant une énergie beaucoup plus grande que celle des ions secondaires.

Notre dispositif nous a permis de mesurer :

- Le taux de pulvérisation S qui est défini par le nombre moyen d'atomes neutres ou chargés arrachés à la cible par ion incident.
- Le coefficient d'émission électronique secondaire γ défini par le nombre moyen d'électrons émis de la cible par ion incident.

Les facteurs suivants peuvent influencer sur S et γ : la nature des ions incidents, leur énergie, la densité du faisceau incident, l'angle d'incidence du faisceau sur la cible, la nature de cette cible (élément pur, alliage, structure cristalline), son état de surface (polie, non polie, couche superficielle adsorbée), sa température.

Nous avons effectué nos mesures dans les conditions suivantes :

— La cible était portée à 60 °C pendant toute la durée du fonctionnement de la source pour éviter la condensation des vapeurs de mercure.

— Pour diminuer la contamination de la cible par le gaz résiduel, la pression dans l'enceinte à vide a été maintenue égale à 10^{-6} mm.

— Les cibles sont constituées par des disques métalliques polis mécaniquement et nettoyés soigneusement à l'acétone avant montage dans le porte-échantillon.

2.2 DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL [7]. — Le faisceau issu de la source puis focalisé atteint un récepteur percé en son centre d'un trou de diamètre 10 mm situé après la lentille électrostatique à trois électrodes (Fig. 1). La partie centrale du faisceau passe ensuite à travers une électrode E_1 percée d'un trou de diamètre 10 mm et portée au potentiel de la cible et du récepteur (cette électrode joue le rôle de diaphragme pour le faisceau), puis à travers une deuxième électrode E_2 , percée d'un trou de diamètre 17 mm, portée à -500 V par rapport à la cible. Cette deuxième électrode a un double effet : d'une part, empêcher les électrons secondaires émis par le récepteur et E_1 d'atteindre le collecteur final,

FIG. 1. — Dispositif expérimental.

et d'autre part d'empêcher les électrons secondaires émis par la cible de franchir cette électrode. Le collecteur est constitué d'un cylindre en acier inoxydable, percé d'un trou de diamètre 20 mm pour laisser passer le faisceau d'ions incidents. Il est porté à 250 V par rapport à la cible pour recueillir les électrons secondaires émis par celle-ci. À l'intérieur du collecteur, une grille en molybdène de transparence 90 %, nous permet éventuellement de séparer les ions primaires réfléchis ou diffusés, des ions et des électrons secondaires. La grille est portée au potentiel du collecteur lorsqu'on

mesure le courant électronique secondaire. Le diamètre du faisceau après l'électrode E_1 est inférieur aux diamètres respectifs des autres électrodes qui la suivent, comme le prouvent l'absence totale de courant ionique sur ces électrodes et l'examen du diamètre de la trace du faisceau sur la cible.

Les échantillons (métaux purs polycristallins ou carbone) ont un diamètre de 22 mm et une épaisseur variable entre 0,3 et 1 mm. Ils sont fixés sur un support de cuivre massif porté en permanence à 60 °C grâce à une circulation de pétrole chaud.

Le taux de pulvérisation est obtenu par pesée de l'échantillon (à 0,05 mg près) avant et après le bombardement effectué sous courant et énergie constants. La durée du bombardement a été choisie égale à quatre heures afin que la perte de masse de l'échantillon soit de quelques mg, pour un débit ionique total de 100 à 700 μA . Le taux de pulvérisation en atomes par ion est calculé par la formule suivante :

$$S = 26,6 \frac{\Delta m}{MI t}$$

Δm : perte de masse de l'échantillon en mg,

M : masse atomique de l'échantillon,

I : intensité du faisceau d'ions incidents en mA,

t : durée du bombardement en heures.

La mesure du coefficient d'émission électronique secondaire est faite une demi-heure après le commencement du bombardement, de telle sorte que la couche superficielle d'oxyde de métal soit totalement décapée et que la surface ait atteint un état d'équilibre qui se traduit par la stabilisation du courant électronique secondaire à une valeur constante. Ce coefficient γ est calculé à partir de la mesure du courant ionique incident I et du courant électronique I^- (mesuré sur le collecteur et la grille).

$$\gamma = \frac{I^-}{I^+}.$$

Le courant I^- est mesuré à l'aide du microampère-mètre A_1 en polarisant la grille et le collecteur à + 250 V par rapport à la cible et I^+ est mesuré par le microampère-mètre A_2 (voir Fig. 1).

Si on polarise le collecteur et la grille à - 250 V par rapport à la cible, on mesure un courant ionique (ions réfléchis et secondaires lents) qui, quelles que soient l'énergie, l'intensité du faisceau d'ions incidents et la nature de la cible, ne dépasse jamais 2 % du courant ionique incident sur la cible. D'autre part, en polarisant la grille à + 250 V par rapport à la cible et le collecteur à - 250 V, on ne décèle pratiquement aucun courant sur le collecteur : l'intensité du courant d'ions primaires rapides réfléchis est donc négligeable dans notre cas.

2.3 RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX : TAUX DE PULVÉRISATION. — 2.3.1 *Influence de la densité du faisceau d'ions incidents.* — Des expériences effectuées plus

particulièrement sur le cuivre, bombardé sous une incidence normale par le faisceau d'ions Hg^+ et pour différentes énergies, ont montré que le taux de pulvérisation est indépendant de la densité j du faisceau incident, pour $20 < j < 400 \mu\text{A}/\text{cm}^2$.

2.3.2 *Influence de l'énergie du faisceau d'ions incidents et de la nature de la cible.* — En général, pour une cible donnée et dans un domaine d'énergie compris entre 5 et 30 keV, S augmente avec la masse atomique M_1 et l'énergie cinétique E des ions incidents. On sait d'autre part que S passe par un maximum pour une certaine valeur de l'énergie E_m ($E_m \propto$ quelques keV pour H^+ et He^+), d'autant plus élevée que M_1 est plus grande. E_m serait de l'ordre de 100 keV pour le mercure ($M_1 = 200$). Dans le domaine d'énergie explorée, S doit donc être une fonction croissante de E , ce qui est bien confirmé par l'expérience.

D'autre part, S augmente avec la masse atomique M_2 de la cible (tout au moins pour des éléments situés dans une même période du tableau de Mendéléiev). La figure 2 montre les valeurs de S en fonction de la masse atomique M_2 , pour une incidence normale et avec une énergie E de 20 keV. On constate une croissance monotone de S avec M_2 pour les éléments de la 4^e période du tableau de Mendéléiev, mais pour la cinquième période, on note une discontinuité brutale de S en passant de l'argent à l'indium. Des variations semblables ont été observées par d'autres auteurs, avec des ions Ar^+ [8, 9].

FIG. 2. — Variations de S en fonction de la masse atomique des atomes de la cible.

La figure 3 donne les valeurs de $S = f(E)$ pour différents éléments et pour une incidence normale à la cible. Pour une énergie donnée, on observe de grandes différences entre les taux de pulvérisation relatifs aux différents éléments. Pour une énergie de 25 keV, nous avons obtenu par exemple 32 atomes/ion pour l'argent et seulement 3 atomes/ion pour le titane.

FIG. 3. — Variations de S en fonction de l'énergie des ions incidents.

Nos résultats concernant S pour le cuivre sont en bon accord avec ceux de Rol et collaborateurs [10], mais en désaccord avec ceux de Wehner et Rosenberg [9]. Ces auteurs ont bombardé plusieurs éléments appartenant aux 4^e, 5^e et 6^e périodes dans le tableau de Mendéléiev, par des ions mercure d'énergie de 4 à 15 keV. Leur méthode consiste à déterminer la section du trou produit dans une cible de l'élément choisi, constituée d'une feuille métallique d'épaisseur 0,025 mm, sous l'effet d'un faisceau d'intensité donnée et le temps nécessaire pour effectuer cette opération. Ils ont trouvé que pour chaque période, S augmente avec la masse atomique.

Sur la figure 3, nous donnons avec nos résultats, les courbes obtenues par ces auteurs. On remarque que les valeurs données par Wehner et Rosenberg sont toujours supérieures aux nôtres et à celles données par

Rol et collaborateurs. Pour expliquer cet écart systématique, on peut supposer que la méthode de perçement de feuilles très minces conduit à des échauffements locaux importants de la cible, ce qui entraîne une augmentation apparente de S par évaporation ; d'autre part, on sait que le taux de pulvérisation S , à haute température, est supérieur à celui qu'on obtient à 60 °C [11] (cependant, aucune étude n'a été faite à notre connaissance sur ce sujet, avec des ions Hg^+).

2.3.3 Influence de l'angle d'incidence du faisceau sur la cible. — Par définition, l'angle d'incidence du faisceau α est l'angle que fait la direction du faisceau avec la normale à la surface de la cible.

Rol et ses collaborateurs [10], en bombardant le cuivre à 20 keV par des ions Tl^+ en fonction de l'angle d'incidence, ont trouvé que la fonction $S = f(\alpha)$ pouvait être représentée avec une bonne approximation, et pour $\alpha < 45^\circ$, par la formule empirique suivante :

$$S(\alpha) = S_0 \frac{2 - \cos \alpha}{\cos \alpha}$$

S_0 correspond à $\alpha = 0$.

Nous avons étudié pour le cuivre bombardé par des ions de 20 keV, la variation de S en fonction de α ; les résultats sont donnés sur la figure 4 ainsi que les valeurs obtenues par la formule empirique précédente, et par la loi :

$$S = S_0 / \cos \alpha.$$

FIG. 4. — Influence sur S de l'angle d'incidence α des ions sur la cible : (1) courbe expérimentale ; (2) loi empirique de Rol et coll. ; (3) loi en $(\cos \alpha)^{-1}$.

Nous avons trouvé que la formule empirique de Rol et collaborateurs est vérifiée dans notre cas de façon satisfaisante.

2.3.4 Relation entre S et la chaleur de sublimation des matériaux cibles. — Il semble que la chaleur de sublimation E_1 (énergie de liaison) des atomes de la cible, joue un rôle important lors de l'arrachement de ces atomes [8].

La figure 5 montre les variations de S en fonction de E_1 : en moyenne, S décroît très vite lorsque E_1 augmente.

FIG. 5. — Variations de S en fonction de la chaleur de sublimation E_1 .

2.4 COEFFICIENT D'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE SECONDAIRE. — **2.4.1 Lois de variation.** — Nous avons vérifié que γ ne dépendait pas de la densité de courant du faisceau incident pour $20 < j < 400 \mu\text{A}/\text{cm}^2$. Avec les ions Hg^+ , les valeurs de γ sont relativement faibles, par suite de la masse élevée des ions incidents.

Arifov et ses collaborateurs [12] ont étudié les variations de γ en fonction de l'énergie pour des ions He^+ , Ne^+ , Ar^+ et Kr^+ , et une cible en molybdène, avec des énergies comprises entre 2 et 10 keV, et montré que γ diminue rapidement lorsque la masse atomique des ions incidents augmente. Par exemple, à 10 keV : $\gamma = 1$ pour He^+ ($M = 4$) et 0,2 pour Kr^+ ($M = 84$), nous avons trouvé $\gamma = 0,1$ pour Hg^+ ($M = 200$), ce qui confirme cette loi expérimentale.

2.4.2 Influence de l'énergie du faisceau d'ions incidents et de la nature de la cible. — La figure 6 représente $\gamma = f(E)$. L'aspect général de ces courbes est le même pour tous les métaux étudiés. γ est faible pour les faibles énergies, et augmente avec l'énergie cinétique des ions incidents.

On remarque encore ici que γ augmente avec la masse atomique de la cible (tout au moins pour des éléments situés dans une même période au tableau de Mendéléiev).

FIG. 6. — Variation du coefficient d'émission secondaire γ en fonction de l'énergie des ions.

FIG. 7. — Influence sur γ de l'angle d'incidence α , pour différentes énergies.

2.4.3 *Influence de l'angle d'incidence du faisceau sur la cible.* — Nous avons étudié plus spécialement les variations de γ pour le cuivre, en fonction de l'angle d'incidence et pour différentes énergies (Fig. 7a). La courbe de $\gamma = f(\alpha)$ peut toujours être représentée par la formule empirique :

$$\gamma = \frac{\gamma_0}{\cos \alpha} \quad \text{pour} \quad \alpha < 45^\circ.$$

Nous pouvons tenter d'expliquer l'augmentation de γ avec l'angle d'incidence de la façon suivante : la pénétration Δ des ions dans la cible étant supposée constante, la distance x à la surface du point d'arrêt (Fig. 7b) varie comme $\Delta \cos \alpha$, et la probabilité de sortie d'un électron est alors proportionnelle à x^{-1} .

3. **Conclusion.** — Nous avons mis en évidence les

variations importantes de S en fonction du numéro atomique des atomes de la cible, dans chaque période du tableau de Mendéléiev. Pour la construction de sources d'ions (ou de moteurs ioniques) fonctionnant au mercure, les matériaux à faible taux de pulvérisation devront être choisis (molybdène, graphite, tantale titane) si l'on recherche de grandes durées de vie des systèmes d'électrodes.

Dans le domaine choisi, S croît de façon monotone avec l'énergie des ions incidents. Il en est de même pour le coefficient d'émission électronique secondaire. Les plus faibles coefficients sont obtenus avec le molybdène, le tantale et le titane.

Enfin, et bien que l'influence sur le taux de pulvérisation de la chaleur de sublimation E_1 soit très controversée [6], il semble que ce facteur joue un rôle important lors de l'arrachement des atomes de la cible (décroissance de S en fonction de E_1).

Bibliographie

- [1] SEPTIER (A.), PRANGERE (F.), ISMAIL (H.), 1964, Proc. Int. Conf. on Electr. and Ion Beam Sc. and Techn., p. 897, Wiley, New York.
- [2] SEPTIER (A.), PRANGERE (F.), ISMAIL (H.), GAUTHERIN (G.), *Nucl. Instr. Meth.*, 1966, **38**, 41.
- [3] GAUTHERIN (G.), LEJEUNE (C.), PRANGERE (F.), SEPTIER (A.), *Plasma Physics*, 1969, **11**, 397.
- [4] ISMAIL (H.), SEPTIER (A.), 1969, C. R. du colloque de La Plagne « Sur la Physique et la Production des Ions lourds » (publié par l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon, Lycen 6913), communication IV.4.1.
- [5] ISMAIL (H.), 1969, thèse de Doctorat, Orsay.
- [6] KAMINSKY (M.), 1965, Atomic and Ionic Impact phenomena on Metal Surfaces, Springer-Verlag, Berlin.
- [7] ISMAIL (H.), SEPTIER (A.), 1968, C. R. 3^e Symposium International sur « Les Décharges et l'Isolement électrique dans le Vide », Paris, p. 95.
- [8] ALMEN (O. E.), BRUCE (G.), *Nucl. Instr. Meth.*, 1961, **11**, 257.
- [9] WEHNER (G. K.), ROSENBERG (D.), *J. Appl. Phys.*, 1961, **32**, 5, 887.
- [10] ROL (P. K.), FLUIT (J. M.), KISTEMAKER (J.), *Physica*, 1960, **26**, 1000.
- [11] NELSON (R. S.), *Phil. Mag.*, 1964, **11**, 291.
- [12] ARIFOV (U. A.), RAKHIMOV (R. R.), *Akad. Nauk. S. S. S. R., Bull. Phys. Ser.*, 1960, **24**, 666.