

Forces d'interaction dipolaires capables de provoquer la migration des grains d'une couche métallique très mince déposée par évaporation thermique

G. Desrousseaux

▶ To cite this version:

G. Desrousseaux. Forces d'interaction dipolaires capables de provoquer la migration des grains d'une couche métallique très mince déposée par évaporation thermique. Journal de Physique, 1972, 33 (4), pp.401-406. 10.1051/jphys:01972003304040100 . jpa-00207263

HAL Id: jpa-00207263 https://hal.science/jpa-00207263

Submitted on 4 Feb 2008

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.

FORCES D'INTERACTION DIPOLAIRES CAPABLES DE PROVOQUER LA MIGRATION DES GRAINS D'UNE COUCHE MÉTALLIQUE TRÈS MINCE DÉPOSÉE PAR ÉVAPORATION THERMIQUE

G. DESROUSSEAUX

Centre d'Etude des couches minces, laboratoire d'Electrotechnique Université de Provence, Centre de Saint-Jérôme, 13, Marseille, 13^e

(Reçu le 26 juin 1971, révisé le 27 octobre 1971)

Résumé. — Au cours de leur préparation, les couches métalliques déposées par évaporation thermique, sont soumises au champ électromagnétique incident, émis par le creuset, et au champ fluctuant. Ces champs induisent dans chaque grain et ceux de son voisinage un même moment dipolaire instantané. Il en résulte une force d'interaction entre ces dipôles induits. Chaque grain se trouve ainsi soumis, de la part de ses voisins, à une force résultante dont nous proposons une expression approchée en tenant compte de la limitation du libre parcours moyen des électrons de conduction par les dimensions du grain. Une application numérique montre que ces forces peuvent être suffisantes pour provoquer le déplacement des grains.

Abstract. — During their preparation, the metal layers deposited by thermic evaporation are submitted to the incident electromagnetic field emitted by the crucible and to the fluctuating field. These fields induce into every grain as well as into its neighbouring grains the same instantaneous dipolar moment. An interaction between these induced dipoles results. Every grain is thus submitted, to a resultant force due to its neighbours; an approximate expression of this force is proposed by taking into account the limitation of the mean free path of conduction electrons by the dimensions of grain. A numerical application shows that these forces can be sufficient to trigger the shift of grains.

I. Introduction. — Les couches minces de certains métaux tels que l'argent, l'or, le cuivre évaporés puis condensés sur des grilles de microscopie électronique recouvertes de carbone (ou de melinex ou de formwar) présentent une structure granulaire lorsque le volume de métal par unité de surface, d, reste inférieur à 5 mµ environ. Suivant la vitesse d'évaporation, la nature et la température du substrat, l'épaisseur des couches déposées, les grains peuvent avoir des diamètres compris entre 4 et 50 mµ. Ces diamètres très inférieurs au libre parcours moyen des électrons de conduction dans le métal massif, nous conduisent à tenir compte de cette limitation du mouvement de ces électrons [4] pour le calcul de la polarisabilité des grains.

Comme Knight et Jha [1], nous considérons que l'évolution de la structure de la couche se fait de deux manières différentes. D'une part, des grains immobiles parviennent à se toucher après grossissement à partir d'adatomes et des atomes incidents. C'est la coalescence statique. D'autre part, les grains effectuent une migration et de cette manière parviennent au contact l'un de l'autre. L'existence de cette coalescence dynamique a été montrée durant la projection, par l'observation *in situ* de J. F. Pocza [2] entre autres. La migration des grains après arrêt de la projection a été également prouvée par les expériences de A. Masson, J. J. Metois et R. Kern [3]. Nous essayons ici de voir si parmi les forces agissant parallèlement au support, celles résultant d'une interaction dipolaire entre les grains ne pourraient pas expliquer partiellement ce mouvement. Nous assimilons pour cela la couche granulaire à un ensemble bidimensionnel d'ellipsoïdes de révolution autour d'un axe normal au plan du support. Ces ellipsoïdes seront ainsi entièrement caractérisés lorsqu'on aura déterminé a_{\parallel} et le rapport $\gamma = a_{\parallel}/a_{\perp}$. On désigne ici par a_{\parallel} et a_{\perp} les axes respectivement parallèle et perpendiculaire au plan du support.

Lors de la projection, lorsque la couche reçoit les radiations émises par le creuset, celle-ci est soumise à un champ électromagnétique incident. Il en est également ainsi lorsque la couche est éclairée par une source auxiliaire. Après arrêt de la projection, cette couche demeure le siège d'un champ électromagnétique fluctuant, maintenant dans les interstices une densité énergétique w. Pour une valeur efficace E_v de la composante électrique de fréquence v, on a, pour une température absolue T de la couche

$$dw_{\nu} = \varepsilon_0 (E_{\nu})^2 d\nu = \frac{8 \pi h}{c^3} \frac{\nu^3 d\nu}{\exp \frac{h\nu}{kT} - 1}.$$
 (1)

L'incohérence de ce champ permet de considérer que toutes les directions du repère orthonormé (u_1, u_2, u_3)

d'un espace tridimensionnel sont équiprobables, ce q s'écrit :

$$E_1^2 = E_2^2 = E_3^2 = \frac{E^2}{3}$$
(2)

 \mathbf{u}_3 désignant le vecteur unitaire de la normale au plan du support.

Dans ces deux cas, le champ électrique induit dans chaque cristallite les moments dipolaires

$$\mathbf{p}_i = \alpha_{ij} \mathbf{E}_j \tag{3}$$

 α_{ii} est la composante du tenseur de polarisabilité donnant le moment dipolaire induit dans la direction \mathbf{u}_i , par le seul champ électrique instantané \mathbf{E}_i de direction \mathbf{u}_i . La distance entre les grains et leurs dimensions étant du même ordre de grandeur, nous considérons que, dans chacune de ces directions, les moments dipolaires sont vectoriellement égaux d'un grain à l'autre. Cette hypothèse se justifie lorsqu'on tient compte du fait que ces dimensions sont petites devant les longueurs d'onde pour toutes les composantes spectrales des champs polarisants. Ceci est vrai aussi bien pour la température que peut atteindre la couche que pour celle des sources de rayonnement. Nous supposons, en outre, qu'au sein d'une même couche les grains ellipsoïdaux sont sensiblement homothétiques et que, sauf en de rares endroits très disséminés, leur volume varie peu autour d'une valeur moyenne.

Dans le cadre de ces approximations, nous étudions la force d'interaction entre deux grains, puis la résultante de celles exercées sur un grain. Compte tenu d'une évaluation préalable de la contribution apportée à cette force par les grains situés hors du voisinage immédiat de l'un d'eux, nous nous limiterons pour le calcul de cette résultante à l'action exercée par les grains les plus proches. Des applications numériques seront faites dans le cas des couches d'argent, mais il n'y a aucune raison, *a priori*, pour limiter à ce métal l'application des expressions établies. Le choix du carbone comme substrat amorphe n'a pas non plus de caractère limitatif.

II. Force agissant sur un grain d'une couche soumise au seul champ fluctuant. — II.1 FORCE D'INTERAC-TION ENTRE DEUX GRAINS G_m ET G_n . — L'expression générale du tenseur de polarisabilité est :

$$\alpha_{ij} = \varepsilon_0 V \frac{\varepsilon_{g} - 1}{1 + (f_{ij} + \rho_{ij})(\varepsilon_{g} - 1)}$$
(4)

V est le volume du grain et ε_g sa permittivité relative complexe [4]. En raison de la limitation du libre parcours moyen 1 des électrons de conduction par les dimensions du grain, nous écrirons :

$$\varepsilon_{g} = \varepsilon_{1} - i\varepsilon_{2} = 1 - \frac{Ne^{2}}{m\varepsilon_{0}\left(\omega^{2} + \frac{1}{\tau_{g}^{2}}\right)} - \frac{i}{m\varepsilon_{0}\omega\tau_{g}\left(\omega^{2} + \frac{1}{\tau_{g}^{2}}\right)}$$

d'un espace tridimensionnel sont équiprobables, ce qui en prenant pour temps de relaxation de ces électrons

$$\tau_{\rm g} = \tau_{\infty} \, \frac{1_{\rm g}}{1_{\infty}} = \tau_{\infty} \, \frac{a_i}{1_{\infty}}$$

L'indice ∞ est relatif au métal massif L'indice g est relatif au grain

 a_i étant la dimension du grain dans la direction \mathbf{u}_i .

Compte tenu des hypothèses précédentes et des notations de la figure 1, les tenseurs du second ordre f_{ij} et ρ_{ij} se réduisent à leurs valeurs principales [5], [6], [7] qui, pour :



FIG. 1. — Représentation de deux grains voisins et de leur image électrique. Les flèches représentent les moments dipolaires que le champ électromagnétique fluctuant induit dans les directions u₁ et u₃. En raison de l'équipartition de l'énergie électromagnétique, ces moments seront maximaux dans la direction où le grain aura la plus forte polarisabilité.

s'écrivent [6], [7], [8].

$$f_{11} = f_{22} = f_{\parallel} = \frac{1}{2} \frac{1+q^2}{q^3} \left(\operatorname{arctg} q - \frac{q}{1+q^2} \right)$$
 (5)

$$f_{33} = f_{\perp} = 1 - (f_{11} + f_{22}) = \frac{1 + q^2}{q^3} (q - \arctan q)$$

$$\rho_{11} = \rho_{22} = \rho_{\parallel} = -\frac{d}{2l}; \quad \rho_{33} = \frac{d}{l} = \rho_{\perp} \tag{6}$$

d est ici le volume de métal par unité de surface du substrat. l est théoriquement [8] le rayon du cercle limitant intérieurement la couche autour d'un de ses grains. Le restant de la couche est alors supposé uniformément polarisé avec une densité superficielle $\left(\frac{\alpha}{V}d\right)$ E. Pratiquement, nous pouvons assimiler l à la distance moyenne du centre d'un grain à celui de ses plus proches voisins (Fig. 1).

La diagonale f_{11} , f_{22} , f_{33} du tenseur f_{ij} dans un système d'axes confondus avec ceux de l'ellipsoïde, caractérise complètement la forme de ce dernier. La valeur f_{ii} est d'autant plus grande que l'axe a_i est plus petit devant les deux autres. On vérifie pour un tel choix du repère : $\Sigma f_{ii} = 1$ et ici, pour des ellipsoïdes de révolution aplatis suivant l'axe \mathbf{u}_3 :

$$f_{11} = f_{22} = f_{\parallel} = \frac{1}{2}(1 - f_{\perp}).$$

On aura à la limite pour des grains sphériques $f_{\parallel} = f_{\perp} = \frac{1}{3}$ et pour des disques $f_{\parallel} = 0$ et $f_{\perp} = 1$. Entre ces limites, on a toujours $f_{\parallel} < \frac{1}{3}$ et $f_{\perp} > \frac{1}{3}$.

La diagonale ρ_{11} , ρ_{22} , ρ_{33} du tenseur ρ_{ij} permet dans ce même système d'axes de tenir entièrement compte du champ que créent suivant les trois axes d'un ellipsoïde, les moments dipolaires apparaissant dans les autres grains suivant ces trois directions. En effet $\rho_{11} = \rho_{22} = \rho_{\parallel} = -d/2 l$ représente l'influence du champ que crée une couche de dipôles parallèles au plan du support, tandis que $\rho_{33} = \rho_{\perp}$ représente celle du champ créée par une couche de dipôles perpendiculaires à ce plan [8].

En prenant pour expression de l'énergie d'interaction

$$W_{\rm mn} = \frac{1}{4 \pi \varepsilon_0} \left[\frac{(\mathbf{p}_{\rm m} \cdot \mathbf{p}_{\rm n})}{r_{\rm mn}^3} - 3 \frac{(\mathbf{p}_{\rm m} \cdot \mathbf{r}_{\rm mn})(\mathbf{p}_{\rm n} \cdot \mathbf{r}_{\rm mn})}{r_{\rm mn}^5} \right]$$
(7)

on obtient

$$F_{\rm mn} = -\frac{\partial W_{\rm mn}}{\partial r_{\rm mn}} = \frac{3 r^{-4}}{4 \pi \varepsilon_0} p^2(\theta) \left[1 - 3 \cos \theta\right] \quad (8)$$

pour un champ polarisant E_{θ} dans une direction d'angle polaire θ par rapport à la ligne d'interaction mn.

Pour des substrats de permittivité notable dans la région où se situe l'essentiel de la densité d'énergie électromagnétique liée au champ E, il faut tenir compte des images électriques des dipôles induits par ce champ. Or on sait que dans le cas de deux milieux formant un

dioptre plan, le champ électrique d'une charge ponctuelle q_1 dans le milieu (1) est influencé par le milieu (2). Il se comporte alors comme si existait dans (2) une charge q_2 symétrique de q_1 par rapport au plan limite et dont la valeur algébrique s'exprime par

$$q_2 = -\frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{\varepsilon_2 + \varepsilon_1} q_1 = -Aq_1$$

En utilisant ce théorème des images électriques, on obtient pour les composantes normales et tangentielles des dipôles du milieu (1), les images représentées dans le milieu (2) sur la figure 1.

En considérant que les milieux (1) et (2) sont ici le vide et le substrat, nous écrirons pour la composante monochromatique E_{ν}

$$A_{\nu} = \frac{\varepsilon_{\rm s}(\nu) - 1}{\varepsilon_{\rm s}(\nu) + 1} \tag{9}$$

 ε_s étant la permittivité relative du substrat.

Pour tenir compte de ces images, nous devrions avec les notations de la figure 1 exprimer F_{mn} par la relation vectorielle

$$\mathbf{F}_{mn} = \mathbf{F}_{m'n'} + \mathbf{F}_{m'n''} + \mathbf{F}_{m''n'} + \mathbf{F}_{m''n''}.$$
 (10)

Mais compte tenu de l'uniformité approximative des grains, nous pouvons écrire

$$\frac{1}{2} \left(r^{0}_{m'n''} + r^{0}_{m''n'} \right) \simeq r^{0}_{m''n''} = r^{0}_{m'n'} = r^{0}_{mn}$$

et donc

$$\mathbf{F}_{mn} = \mathbf{F}_{m'n'} + 2 \mathbf{F}_{m'n''} \frac{l}{\sqrt{l^2 + a^2}} + \mathbf{F}_{m''n''}.$$
 (11)

Or pour une valeur donnée de v, nous avons

$$F_{\mathbf{m}'\mathbf{n}'} = \frac{3 r_{\mathbf{m}\mathbf{n}}^{-4}}{4 \pi \varepsilon_{0}} \left\{ \alpha_{11}^{2} E_{1}^{2} \left[\cos\left(\mathbf{u}_{1}, \mathbf{u}_{1}\right) - 3 \cos^{2}\left(\mathbf{u}_{1}, \mathbf{u}_{1}\right) \right] + \alpha_{22}^{2} E_{2}^{2} \left[\cos\left(\mathbf{u}_{2}, \mathbf{u}_{2}\right) - 3 \cos^{2}\left(\mathbf{u}_{2}, \mathbf{u}_{1}\right) \right] + \alpha_{33}^{2} E_{3}^{2} \left[\cos\left(\mathbf{u}_{3}, \mathbf{u}_{3}\right) - 3 \cos^{2}\left(\mathbf{u}_{3}, \mathbf{u}_{1}\right) \right] \right\}$$

$$F_{\mathbf{m}'\mathbf{n}''} = F_{\mathbf{m}''\mathbf{n}'} = \frac{3 r_{\mathbf{m}\mathbf{n}}^{-4}}{4 \pi \varepsilon_{0}} A \left\{ \alpha_{11}^{2} E_{1}^{2} \left[\cos\left(\mathbf{u}_{1}, -\mathbf{u}_{1}\right) - 3 \cos\left(\mathbf{u}_{1}, \mathbf{u}_{1}\right) \cos\left(-\mathbf{u}_{1}, \mathbf{u}_{1}\right) \right] + \alpha_{22}^{2} E_{2}^{2} \left[\cos\left(\mathbf{u}_{2}, -\mathbf{u}_{2}\right) - 3 \cos\left(\mathbf{u}_{2}, \mathbf{u}_{1}\right) \cos\left(-\mathbf{u}_{2}, \mathbf{u}_{1}\right) \right] + \alpha_{33}^{2} E_{3}^{2} \left[\cos\left(\mathbf{u}_{3}, \mathbf{u}_{3}\right) - 3 \cos^{2}\left(\mathbf{u}_{3}, \mathbf{u}_{1}\right) \right] \right\}$$

$$F_{\mathbf{m}''\mathbf{n}''} = \frac{3 r_{\mathbf{m}\mathbf{n}}^{-4}}{4 \pi \varepsilon_{0}} A^{2} \left\{ \alpha_{11}^{2} E_{1}^{2} \left[\cos\left(-\mathbf{u}_{1}, -\mathbf{u}_{1}\right) - 3 \cos^{2}\left(-\mathbf{u}_{1}, \mathbf{u}_{1}\right) \right] + \alpha_{33}^{2} E_{3}^{2} \left[\cos\left(\mathbf{u}_{3}, \mathbf{u}_{3}\right) - 3 \cos^{2}\left(\mathbf{u}_{3}, \mathbf{u}_{1}\right) \right] \right\}$$

$$= 4 \pi \varepsilon_0^{A} \left\{ \alpha_{11}^{A} E_1 \left[\cos \left(-\mathbf{u}_1, -\mathbf{u}_1 \right) - 3 \cos^2 \left(-\mathbf{u}_1, \mathbf{u}_1 \right) \right] + \alpha_{33}^2 E_3^2 \left[\cos \left(\mathbf{u}_3, \mathbf{u}_3 \right) - 3 \cos^2 \left(\mathbf{u}_3, \mathbf{u}_1 \right) \right] \right\}$$

En posant

$$\beta = l(l^{2} + a^{2})^{-\frac{1}{2}} = \left[1 + \left(\frac{a}{l}\right)^{2}\right]^{-\frac{1}{2}}$$

et tenant compte de ce que

$$\alpha_{11} = \alpha_{22} = \alpha_{\parallel}$$
, $\alpha_3 = \alpha_{\perp}$ et $E_1^2 = E_2^2 = E_3^2 = \frac{E^2}{3}$

l relation (11) s'écrira

$$F_{\rm mn} = -\frac{r_{\rm mn}^{-4}}{4\pi\varepsilon_0} \int_0^\infty \left\{ \left[1 - 2\beta A(\nu) + A^2(\nu) \right] \alpha_{\parallel}^2(\nu) - \left[1 + 2\beta A(\nu) + A^2(\nu) \right] \alpha_{\perp}^2(\nu) \right\} E^2(\nu) \, \mathrm{d}\nu = -\frac{J}{4\pi\varepsilon_0} r_{\rm mn}^{-4}.$$
(12)
terme attractif terme répulsif





Le terme attractif représente l'interaction de dipôles parallèles au plan du support, celui répulsif l'interaction de dipôles perpendiculaires.

II.2 FORCE AGISSANT SUR UN CRISTALLITE EN INTERACTION DIPOLAIRE AVEC LE RESTANT DE LA COUCHE. — Si nous calculons la résultante des forces exercées sur G_m par les N grains G_n de son voisinage, nous obtenons [9]

$$\mathbf{F}_{\mathrm{m}} = \frac{J}{4 \, \pi \varepsilon_0} \sum_{\mathrm{n=1}}^{N} \frac{\mathbf{r}_{\mathrm{mn}}}{r_{\mathrm{mn}}^5} \,. \tag{13}$$

En admettant [9] la répartition des G_n autour des G_m représentée sur la figure 2, nous obtenons en choisissant \mathbf{u}_1 tel que

$$\mathbf{OG}_{\mathrm{m}} = \mathbf{u}_{1} \,\Delta l \tag{14}$$

$$\mathbf{F}_{m} = \mathbf{u}_{1} \frac{3 h}{\varepsilon_{0}^{2} c^{3}} \frac{NV^{2}}{l^{4}} \frac{\Delta l}{l} \int_{0}^{\infty} \left\{ \left[1 - 2 \beta A(v) + A^{2}(v) \right] \alpha_{\parallel}^{2}(v) - \left[1 + 2 \beta A(v) + A^{2}(v) \right] \alpha_{\perp}^{2}(v) \right\} \frac{v^{3}}{\exp \frac{hv}{hT} - 1} dv. \quad (15)$$

La température peut être extraite de l'expression sous le signe somme en posant x = hv/kT. On obtient alors en explicitant α_{\parallel} et α_{\perp}

Suivant la prédominance de I sur II, ou de II sur I le grain aurait ainsi tendance à rejoindre son plus proche voisin dans la direction de \mathbf{u}_1 ou à s'en éloigner pour se placer au barycentre de la distribution des N grains G_n de son voisinage immédiat. En fait comme nous allons le voir, pour ce modèle d'ellipsoïdes aplatis, la valeur du terme I est prédominante.

En effet $f_{\parallel} + \rho_{\parallel}$ somme de deux termes de signes opposés peut prendre localement des valeurs très petites alors que f_{\perp} variant entre le tiers et l'unité, maintient la somme $f_{\perp} + \rho_{\perp}$ au-dessus de $\frac{1}{3}$.

Or aux températures que peut atteindre la couche déposée, la densité d'énergie électromagnétique se répartit dans un domaine spectral où ε_{g} et ε_{s} sont très grands devant l'unité. Il s'en suit que le premier facteur de I tend vers $2(1 - \beta)$ tandis que ceux de II tendent respectivement vers $2(1 + \beta)$ et $(f_{\perp} + \rho_{\perp})^{-2}$. Le second facteur de I, ne pourra lui prendre des valeurs importantes que dans le cas où $(f_{\parallel} + \rho_{\parallel})$ $(\varepsilon_{g} - 1)$ est de l'ordre de l'unité ou lui est inférieur et dans celui où ce facteur est très supérieur à l'unité.

Dans le premier de ces cas, il tend vers $(\varepsilon_g - 1)^2$ et dans le deuxième vers $(f_{\parallel} + \rho_{\parallel})^{-2}$.

Dans ces deux cas, compte tenu de ce que $1 - \beta$ reste généralement de l'ordre de 1/10, on peut, dans l'expression entre accolades, négliger le terme II devant le terme I. En dehors de ces deux cas, le calcul est sans intérêt car il conduit à une force tout à fait négligeable.

Lorsque $(f_{\parallel} + \rho_{\parallel}) (\varepsilon_{g} - 1)$ est de l'ordre de l'unité ou lui est inférieur, seule l'expression (16) fournit pour cette force un ordre de grandeur suffisamment approché.

Mais lorsque $(f_{\parallel} + \rho_{\parallel})(\varepsilon_{\rm g} - 1)$ est très supérieur à 1, il est possible de sortir les termes I et II de l'expression sous le signe somme. On obtient alors

$$\mathbf{F}_{m} = \mathbf{u}_{1} \frac{3 k^{4}}{c^{3} h^{3}} \frac{T^{4} N V^{2}}{l^{4}} \frac{\Delta l}{l} \left\{ 2(1-\beta) \left[\frac{1}{f_{\parallel} + \rho_{\parallel}} \right]^{2} - 2(1+\beta) \left[\frac{1}{f_{\perp} + \rho_{\perp}} \right]^{2} \right\} \int_{0}^{\infty} \frac{x^{3} dx}{\mathbf{e}^{x} - 1}.$$
 (17)

404

Soit en introduisant la constante de Stefan $\sigma = (2 \pi^5 k^4)/(15 h^3 c^3) = 5,67 \times 10^{-8}$ unités MKSA

$$\mathbf{F}_{m} = \frac{3 \sigma}{\pi c} \frac{T^{4} N V^{2}}{l^{4}} \frac{\Delta l}{l} \times \left[(1 - \beta) \left(f_{\parallel} + \rho_{\parallel} \right)^{-2} - (1 + \beta) \left(f_{\perp} + \rho_{\perp} \right)^{-2} \right] \mathbf{u}_{1}$$
(18)

puisque

$$\int_0^\infty \frac{x^3 \, \mathrm{d}x}{e^x - 1} = \frac{\pi^4}{15} \, .$$

Pour permettre de se rendre compte de l'importance d'une telle approximation et fournir l'ordre de grandeur que peut atteindre une telle force, nous donnons ci-après les résultats obtenus à partir des expressions (16) et (18) pour un exemple précis.

Les calculs sont faits pour une couche d'argent déposée par évaporation thermique sous une pression résiduelle toujours inférieure à 10^{-7} torr. Le substrat était un film de carbone.

L'aggrandissement photographique d'une micrographie a permis de déterminer les paramètres nécessaires à ce calcul. Cette détermination a exigé deux séries de moyennes figurant respectivement dans les colonnes A et B. Celles de la colonne A portent sur l'ensemble de la couche, tandis que celles de la colonne B sont des moyennes locales, prises dans le voisinage immédiat du grain soumis à la force F. Cette façon d'opérer nous est imposée par une double nécessité.

D'une part le paramètre d fait intervenir l'ensemble de la couche tandis que a_{\parallel} , a_{\perp} , l et $\Delta l/l$ traduisent essentiellement l'influence du voisinage immédiat du grain soumis à F. D'autre part, il est impossible de réaliser une mesure directe de a_{\perp} . La détermination se fait compte tenu de l'hypothèse d'une homothétie approximative des grains. On recherche à cet effet sur l'ensemble de la couche les valeurs moyennes de a_{\parallel} et du nombre N' de grains par unité de surface. La relation

$$\frac{d}{N'} = V = \frac{\pi}{6} a_{\parallel}^2 a_{\perp} \tag{19}$$

permet alors le calcul d'une valeur moyenne de $\gamma = a_{\parallel}/a_{\perp}$. A partir de la moyenne locale de a_{\parallel} , on calculera ensuite celles de a_{\perp} , puis de V, de f_{\parallel} et f_{\perp} . La moyenne locale de l fournira par ailleurs $\rho_{\parallel} = -d/2 l$ et $\rho_{\perp} = d/l$ dans ce voisinage du grain soumis à F.

On obtient ainsi dans le système d'unité MKSA le tableau ci-après. (Il convient de dire que le grain sur lequel portent les calculs a été choisi dans une zone où la force prend une valeur particulièrement importante.)

Paramètre	Unités	Α	В
d	m	$3,92 \times 10^{-9}$	
N	grains	6	6
N'	grains/m ²	$1,92 \times 10^{15}$	
l	m		6×10^{-9}
$\Delta l/l$			0,1
a_{\parallel}	m	16×10^{-9}	4×10^{-9}
V	m ³	2043×10^{-27}	32×10^{-27}
a_{\perp}	m	$15,24 \times 10^{-9}$	$3,8 \times 10^{-9}$
$\gamma = a_{\parallel}/a_{\perp}$		1,05	

On trouve alors :

		d'après la formule (16)	d'après la formule (18)	
,	2 00 eV			
а	300 °K	$0.5 \times 10^{-17} N$	$1,1 \times 10^{-17}$ N	
à	600 °K	$4,56 \times 10^{-17} \text{ N}$	$17,2 \times 10^{-17}$ N	

Pour juger de l'importance d'une telle force, on peut la rapprocher de celle trouvée par R. Faure et autres [11] pour la force d'adhésion. Pour un diamètre de 4 mµ, R. Faure trouve une force d'adhésion de 20 N/m², ce qui correspond pour le grain à une force normale au support $F = 75.4 \times 10^{-17}$ N. Cette force est bien de l'ordre de grandeur des forces d'origine électromagnétique que nous venons de calculer.

III. Force résultant du rayonnement du creuset. — On peut considérer que dans ce cas la couche est irradiée sous une incidence normale et que la source est vue de chaque grain sous un même angle solide Ω . On obtient alors en tenant compte de ce qu'ici

$$E_3 = 0$$
 et $E_1^2 = E_2^2 = \frac{E^2}{2}$

au lieu de

$$E_1^2 = E_2^2 = E_3^2 = \frac{E^2}{3}$$

$$\mathbf{F}_{m} = \frac{9}{2} \Omega \frac{k^{4} T^{4}}{c^{3} h^{3}} \frac{NV^{2}}{l^{4}} \frac{\Delta l}{l} \times \\ \times \left\{ \int_{0}^{\infty} \delta(x) \left[1 - 2 \beta A(x) + A^{2}(x) \right] \right. \\ \left. \times \left[\frac{\varepsilon_{g}(x) - 1}{1 + (f_{\parallel} + \rho_{\parallel}) (\varepsilon_{g}(x) - 1)} \right]^{2} \frac{x^{3} dx}{e^{x} - 1} \right\} \mathbf{u}_{1} \quad (20)$$

et pour A(x) voisin de 1 et $(f_{\parallel} + \rho_{\parallel}) (\varepsilon_{g} - 1) \ge 1$

$$\mathbf{F}_{m} = \frac{9 \sigma}{2 \pi c} N \delta(T) T^{4} \frac{V^{2}}{l^{4}} \frac{\Delta l}{l} \frac{1 - \beta}{\left(f_{\parallel} + \rho_{\parallel}\right)^{2}} \mathbf{u}_{1} \quad (21)$$

T étant alors la température absolue de la source et $\delta(T)$ son pouvoir émissif total à cette température.

Pour la couche précédente pour laquelle l'argent a été évaporé à partir d'un creuset en molybdène à 1 250 °K (métal pour lequel le pouvoir émissif total à cette température est de 0,127), on trouve sachant que $\Omega = 2 \times 10^{-2}$ steradian :

- par la formule (20) $F = 0.5 \times 10^{-17}$ N, - par la formule (21) $F = 3.2 \times 10^{-17}$ N.

L'écart accru entre les deux résultats s'explique par le fait que le domaine spectral où se répartit le rayonnement se situe essentiellement entre les longueurs d'onde $\lambda_m = 1 \ \mu \text{ et } \lambda_M = 8 \ \mu$. Or, près du spectre visible, ε_g est plus faible de sorte que $f_{\parallel} + \rho_{\parallel}$ étant très petit

$$\frac{\alpha_{\parallel}}{\varepsilon_{0} V} = \frac{\varepsilon_{g} - 1}{1 + (f_{\parallel} + \rho_{\parallel}) (\varepsilon_{g} - 1)}$$

sera plus voisin de $(\varepsilon_g - 1)$ que de

$$\frac{1}{f_{||} + \rho_{||}}$$

La force reste encore là, suffisante pour jouer son rôle dans les phénomènes de coalescence.

IV. Effet du rayonnement d'une source auxiliaire éclairant la couche. — La possibilité d'utiliser dans ce cas des sources à température plus élevée et d'augmenter par ailleurs l'éclairement au moyen d'un condenseur, permet d'atteindre des champs incidents nettement plus intenses. Le champ électrique figurant au carré dans les expressions de cette force, cette dernière peut être alors nettement supérieure.

De telles conditions se trouvent effectivement remplies dans les expériences de Knight et Jha [1]. La force que fournit l'expression (20) semble bien alors susceptible d'expliquer, tout au moins partiellement, la coalescence dynamique observée par ces auteurs.

V. **Conclusion.** — Il semble, à l'issue de ces calculs, que l'évolution de la couche sous vide pendant la projection d'une part, après celle-ci d'autre part, puisse s'expliquer partiellement par des forces d'origine dipolaire, le champ électromagnétique étant le champ polarisant les grains.

Certes d'autres forces importantes peuvent apparaître dans certains cas. Ce seront, par exemple, sous le faisceau d'un microscope électronique, les forces électrostatiques dues à la charge des grains par les électrons du faisceau [12], [13]. Mais il faut pour que les grains conservent ces charges, que le substrat soit suffisamment isolant. Des contraintes élastiques ont également un rôle important dans les corps partiellement cristallisés. Mais il faut là encore que la taille et le nombre des cristaux ne soient pas trop faibles comme dans les solides dits « amorphes ». Les forces dipolaires que créent le champ fluctuant et celui du rayonnement incident atteignent, elles, pour ces substrats amorphes des intensités suffisantes pour expliquer la coalescence dynamique dans les dépôts métalliques granulaires. Tel est le cas des couches minces granulaires d'argent, d'or, de cuivre... déposées sur des films de carbone.

Le calcul paraît relativement complexe mais des simplifications importantes sont possibles dans le cas où les permittivités du métal déposé et de son substrat deviennent très grandes dans le domaine spectral où se répartit la densité d'énergie électromagnétique.

Ces forces agissent plus particulièrement dans les zones où apparaissent des grains plus petits à plus faible distance. Des variations de f_{\parallel} et f_{\perp} difficilement accessibles à la mesure peuvent également augmenter ces forces. Leur importance devrait par ailleurs être fortement accrue pour des rapports $\Delta l/l$ plus voisin de l'unité. Dans ce cas sortant du cadre des hypothèses faites, l'interaction entre les deux grains les plus proches serait prépondérante, l'action antagoniste des autres devenant négligeable. Ce cas n'a cependant pas été envisagé car l'interaction entre les surfaces en regard deviendrait prédominante.

Certaines précautions s'imposent dans ces calculs. On doit tout d'abord les limiter aux structures granulaires pour lesquelles restent acceptables les hypothèses de l'homothétie des grains, de la faiblesse de leur dimension et de leur distance devant les longueurs d'onde des composantes spectrales du champ polarisant. Il est par ailleurs nécessaire de calculer la permittivité du grain en tenant compte de la limitation du libre parcours moyen des électrons.

Signalons enfin que l'effet de la force exprimée par (16) se retrouve dans toute élévation de température de la couche maintenue dans l'enceinte où elle a été préparée et que l'effet de celle donnée par (20) devrait être très marquée dans le cas où la couche se trouverait soumise à un éclairement intense.

Bibliographie

- [1] KNIGHT (J. A.) and JHA, *Thin solid films*, 1968, **2**, 131-140.
- [2] Pocza (J. F.), Proc. of the Colloq on the films, 1967, 93.
- [3] MASSON (A.), METOIS (J. J.) and KERN (R.), J. cryst. growth, 1968, 3, 196.
- [4] CARLAN (A.), Ann. Phys., 1969, 4, 5.
- [5] DAVID (E.), Zeits. Physik, 1939, 114, 389.
- [6] DURAND, Electrostatique, Tomes I-II-III. Masson et Cie, 1966.
- [7] LANDAU (L.) and LIFCHITZ (E.), VIII Electrodynamique des milieux continus, 1969.
- [8] BOUSQUET (P.), C. R. Acad. Sci., 1968, 266B, 505.
- [9] DESROUSSEAUX (G.), C. R. Acad. Sci. Paris, 1970, 270B, 1062.
- [10] FAURE (R.) and DESROUSSEAUX (G.), C. R. Acad. Sci. Paris, 1970, 270B, 967.
- [11] FAURE (R.), CARLAN (A.), CREBASSA (J.), DESROUS-SEAUX (G.), ROBRIEUX (B.), Thin solid films 1972, 9, 329.
- [12] DOVE (D. B.), J. Appl. Phys., 1964, 35, 2785.
- [13] MARCUS (R. B.) and JOYCE (W. B.), Thin solid films, 1971, 7, R 3.