

THESE de DOCTORAT de l'UNIVERSITE PARIS VI

Spécialité :

OPTIQUE ET PHOTONIQUE

présentée par :

Marion RIBEAUDEAU

pour obtenir le grade de DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS VI

**ELABORATION ET CARACTERISATION DE FILMS DE NIOBIUM
DEPOSES SUR CUIVRE**

**DETERMINATION DE LA RESISTANCE DE SURFACE PAR
THERMOMETRIE SOUS VIDE**

Soutenue le 7 Décembre 1999 devant la commission d'examen :

P. BOSLAND

JP. CHAUVINEAU

M. FOUAIDY } " " 33-07

G. LOUPIAS } 44-27-92-04. Loupias@pmcp.jussieu.fr

V. PALMIERI Rapporteur

L. WARTSKI Rapporteur



→ Question : environ \cong quel type moyen

} P-128
P-127

— ————— P-127

— mesures à faible σ_p à 4,2 k

P-130 \Rightarrow — ajout d'une puissance statique
— He prémurée

— détermination du seuil de rugosité
"acceptable" ?

P-133

— ~~P-135 : que devient le σ_p ?~~

— P-136 : tout le cas ou ne précipite pas

— Mise en page P-136.

— page 27 : intro cavité ?

— P-161 $V_{c1} \cong$ rugueux et lisse.

— P-162 $V_{c1} \cong 20 \times V_{c1}$ "Cronique CM"



SOMMAIRE

Introduction	11
<u>Chapitre 1</u> Supraconductivité et Hyperfréquences	13
1.1. La supraconductivité	15
1.1.1. Propriétés fondamentales	15
1.1.2. Aspect microscopique	18
1.1.3. Supraconducteurs de type I et II	23
1.1.4. Libre parcours moyen électronique et longueurs caractéristiques	25
1.1.5. Le niobium	26
1.2. Les cavités accélératrices supraconductrices	27
1.2.1. Principe de fonctionnement	27
1.2.2. Performances HF	29
1.2.3. Impédance de surface	32
1.2.4. Résistance de surface BCS	36
1.2.5. Résistance de surface résiduelle	37
<u>Chapitre 2</u> Elaboration et caractérisation de films de niobium	41
2.1. La pulvérisation cathodique : technique et dispositif de dépôt	43
2.1.1. Mécanisme de pulvérisation	43
2.1.2. Décharge luminescente	45
2.2. Elaboration des films de niobium	47
2.2.1. Bâti de pulvérisation	47
2.2.2. Paramètres de décharge	51
2.3. Caractérisations des films de niobium	53
2.3.1. RRR	53
2.3.2. Microstructure des films	55
2.3.3. Observations par microscopie à force atomique	58
2.4. Analyses des films de niobium par méthodes nucléaires	59
2.4.1. Diffusion dans les solides	59
2.4.2. Les Echantillons	61
2.4.3. Méthodes nucléaires d'analyses	62
2.4.4. Dispositif expérimental	63

2.4.5. Analyses RBS de l'interdiffusion cuivre niobium	65
2.4.6. Etude des impuretés légères des films de niobium par NRS	67
Chapitre 3 Mesure de la résistance de surface d'échantillons supraconducteurs	71
3.1. Mesures de R_s avec la cavité TE_{011}	73
3.1.1. Rappels sur les cavités cylindriques	73
3.1.2. Modes de résonance	74
3.1.3. Dispositif expérimental	76
3.1.4. Mesures	78
3.1.5. Erreurs de mesures	81
3.2. Détermination de R_s par thermométrie sous vide	83
3.2.1. La thermométrie comme diagnostic des pertes HF	83
3.2.2. Présentation de la thermométrie sous vide	83
3.2.3. La thermométrie sous vide associée à la cavité TE_{011}	85
3.2.4. Profils de température	88
3.2.5. Interprétation des mesures	93
3.3. Bilan	95
Chapitre 4 La thermométrie sous vide : Aspect expérimental	97
4.1. Dispositif expérimental	99
4.1.1. Chambre à vide	99
4.1.2. Equipement thermométrique	102
4.1.3. Chauffelette	104
4.2. Protocole expérimental	105
4.2.1. Etalonnage des capteurs	105
4.2.2. Mesures d'échauffements de l'échantillon	109
4.3. Résultats expérimentaux à $T=1,7K$	111
4.3.1. Validation des échauffements mesurés sous puissance statique	111
4.3.2. La relation $\Delta T=f(P_{stat})$	116
4.3.3. Echauffements mesurés sous puissance HF	118
4.3.4. Validation de la méthode calorimétrique	120
4.3.5. Précision de la méthode calorimétrique	121
4.3.6. Mesures d'échantillons Nb/Cu	123

4.4. Résultats expérimentaux à 4,2K	123
4.4.1. Calibration en puissance statique	123
4.4.2. Echauffements mesurés sous puissance HF	125
4.4.3. Validation de la méthode calorimétrique	127
4.4.4. Incertitude sur Rs	128
4.4.4. Mesures d'échantillons Nb/Cu	129
4.5. Bilan	129
<u>Chapitre 5</u> Rugosité du cuivre et Résistance de surface des films de niobium	131
5.1. Préparation du substrat cuivre	133
5.1.1. Voie chimique	134
5.1.2. Voie électrochimique	137
5.1.3. Polissage mécanique	139
5.2. Caractérisation du substrat cuivre	140
5.2.1. Micrographies	140
5.2.2. Mesures de rugosité	142
5.3. Effet de la rugosité du cuivre sur les films de niobium	146
5.3.1. Morphologie	146
5.3.2. RRR	154
5.3.3. Teneur en impuretés	154
5.3.4. Température et champ critique	156
5.3.5. Résistance de surface	163
5.4. Interprétation des résultats	164
<u>Chapitre 6</u> Préparation et Tests de cavités accélératrices Nb/Cu	169
6.1. Fabrication et préparation de surface de la cavité cuivre	171
6.2. Le dépôt du niobium	174
6.3. Tests HF	176
6.3.1 Résultats	177
6.3.2. Cas de la cavité S -10-A	178
6.3.3 Effet de l'étuvage de la cavité	178
6.4. Bilan et Perspectives	179
Conclusion	183

Annexe I : Effet Josephson/ Introduction à la supraconductivité granulaire	189
Annexe II : Généralités sur les résonateurs	193
Annexe III : Principe des Mesures HF avec la cavité TE₀₁₁	199
Annexe IV : Les transferts thermiques Solide/Hélium	209
Références Bibliographiques	218

INTRODUCTION

INTRODUCTION

Les accélérateurs de particules (électrons, positrons, protons, ions lourds...) permettent par des expériences de collisions de particules entre elles ou sur des cibles de valider les connaissances théoriques sur la matière. L'emploi de cavités hyperfréquences supraconductrices se révèle de plus en plus nécessaire à mesure que la taille des accélérateurs augmente. En effet, de telles cavités sont capables de donner de forts champ électriques accélérateurs tout ne consommant qu'une faible puissance (quelques Watt par mètre de structure soit environ 10^5 fois moins que des cavités en cuivre) assurant ainsi un excellent rendement entre la puissance fournie au faisceau et la puissance électrique consommée.

Les excellentes performances de cavités supraconductrices résultent des recherches portant sur l'optimisation de la forme des cavités, l'amélioration des méthodes de fabrication et des traitements de surface des cavités. Aujourd'hui, deux types de projets motivent la poursuite de ces efforts.

La physique des particules soutient la construction d'un collisionneur e^+e^- TESLA constitué d'environ 20 000 cavités supraconductrices et fonctionnant à hauts gradients pour délivrer des faisceaux pulsés de 250 GeV.

Des accélérateurs linéaires de protons à faisceau continu de forte intensité (10 à 100 mA) sont également en cours d'étude et sont destinés à d'autres applications : réalisation de sources de neutrons de spallation, transmutation de noyaux radioactifs à vie longue, développement de réacteurs hybrides.

Le choix de la technologie supraconductrice implique en contrepartie l'utilisation d'un système coûteux de réfrigération à très basse température de rendement assez faible.

Actuellement, le matériau qui permet de minimiser les pertes énergétiques est le niobium de température critique 9,25K. Aux fréquences supérieures à 1 GHz, les cavités les plus performantes sont fabriquées à partir de tôles de niobium massif et fonctionnent à une température de 1,8K à 2K. C'est le cas de l'accélérateur de TJNAF de faisceau continu où l'utilisation des cavités supraconductrices est optimale. La technologie film de niobium déposé sur une paroi interne en cuivre a été adoptée pour des cavités 350 MHz fonctionnant à 4,5K dans le l'anneau LEP200 du CERN.

La technologie couche mince réduit le coût d'une cavité (diminution de coût de matière et possibilité de fabrication de la cavité par hydroformage). Cependant, à 1,3 GHz, ces cavités présentent des pertes HF encore trop importantes pour concurrencer les cavités en niobium massif dont les performances répondent déjà aux exigences du projet TESLA (facteur de surtension supérieur à $5 \cdot 10^9$ et champ accélérateur de 25 MV/m).

Il convient de comprendre l'origine des dissipations énergétiques des couches minces de niobium pour tenter de les diminuer. Dans cette perspective, nous avons mené des études sur échantillons Nb/Cu avant de mettre en application ces résultats sur cavités. Ces travaux ont nécessité en particulier le développement d'une nouvelle méthode de mesure de la résistance de surface HF d'échantillons par thermométrie sous vide.

Ce mémoire comporte 6 chapitres :

Le chapitre introductif est destiné à rappeler le fonctionnement et les performances des cavités accélératrices supraconductrices. Après un préambule sur la supraconductivité, il définit en relation avec l'impédance de surface, les pertes hyperfréquences apparaissant dans ce type de structure résonnante.

Le deuxième chapitre présente la technique de dépôt par pulvérisation magnétron et l'ensemble des méthodes mises en oeuvre pour caractériser les films de niobium. L'optimisation des conditions d'élaboration des films est expliquée. Au terme de ce chapitre, nous rapportons les analyses par méthodes nucléaires concernant l'influence de la température de dépôt sur la diffusion du cuivre dans le niobium.

Les troisième et quatrième chapitres abordent les méthodes de mesure de la résistance de surface des échantillons supraconducteurs. Nous détaillons le principe de la thermométrie sous vide avant de décrire le dispositif de mesure et le protocole expérimental requis et de présenter les résultats obtenus.

Le cinquième chapitre retrace l'influence de la rugosité du substrat cuivre sur caractéristiques et propriétés HF des films de niobium.

Le dernier chapitre présente les performances HF de 5 cavités accélératrices Nb/Cu à la fréquence de 1,5 GHz.

Chapitre 1

Supraconductivité et Hyperfréquences

1.1. La supraconductivité

- 1.1.1. Propriétés fondamentales
- 1.1.2. Aspect microscopique
 - 1.1.2.1. Appariement d'électrons
 - 1.1.2.2. Interactions attractives
 - 1.1.2.3. Théorie BCS
- 1.1.3. Supraconducteurs de type I et II
- 1.1.4. Libre parcours moyen électronique et longueurs caractéristiques
- 1.1.5. Le niobium

1.2. Les cavités accélératrices supraconductrices

- 1.2.1. Principe de fonctionnement
- 1.2.2. Performances HF
 - 1.2.2.1. Dissipations en hyperfréquences
 - 1.2.2.2. Caractéristique $Q_0=f(E_{acc})$
- 1.2.3. Impédance de surface
 - 1.2.3.1. Définition
 - 1.2.3.2. Modèle à deux fluides
- 1.2.4. Résistance de surface BCS
- 1.2.5. Résistance de surface résiduelle

Nous allons rappeler succinctement les propriétés générales de la supraconductivité avant d'aborder ses caractéristiques en hyperfréquences en guise d'introduction aux cavités supraconductrices accélératrices de particules.

1.1. La supraconductivité

1.1.1. Propriétés fondamentales

Dans l'état supraconducteur, les propriétés électriques et magnétiques de divers matériaux (éléments simples, alliages, composés chimiques) subissent de profondes modifications^[1].

Ainsi, lorsqu'un tel échantillon est refroidi en dessous d'une température critique T_C , sa résistivité électrique chute en dessous de toute valeur mesurable en courant continu ou devient très faible en courant alternatif. Les électrons de conduction semblent se déplacer sans subir de collisions avec les phonons du réseau cristallin ou de diffusion sur les dislocations, impuretés ou les défauts ponctuels du cristal. Des courants non entretenus peuvent ainsi circuler quasi indéfiniment dans une boucle supraconductrice en l'absence de champ électrique appliqué.

La transition entre l'état normal résistif et l'état supraconducteur est très brutale. La largeur de la transition dépend de la pureté du matériau et de sa structure cristalline. Pour un matériau donné, la température critique et le nombre de masse M sont liés par une relation de la forme : $T_C \propto M^{-\alpha}$ (α entre 0 et 0,5). Cet effet isotopique suggère l'importance des interactions entre les électrons et le réseau.

Placé dans un champ magnétique à une température inférieure à T_C , le supraconducteur expulse le flux magnétique de façon à annuler l'induction magnétique B à l'intérieur de l'échantillon : c'est l'effet Meissner. Le comportement du supraconducteur se distingue de celui d'un conducteur parfait qui s'oppose à la variation de flux magnétique. Cette propriété remarquable disparaît au-dessus d'une valeur de champ limite caractéristique du matériau appelée champ magnétique critique H_c (cf. Tableau 1-1).

Dans un supraconducteur, il existe enfin une valeur maximale de densité de courant sans résistance. J_c dépend à la fois du courant de transport issu d'une source externe et des courants induits qui font écran au champ magnétique appliqué.

En somme, en terme de diagramme de phase, l'état supraconducteur existe pour certains matériaux à l'intérieur d'un domaine bien défini ($T \leq T_c$, $H \leq H_c$, $J \leq J_c$).

Supraconducteurs	Eléments	Température critique T_c (K)	Champ magnétique critique H_c (kOe) à $T=0K$
Métaux	Al	1,19	0,1
	In	3,4	0,28
	Sn	3,71	0,303
	Ta	4,48	0,830
	Pb	7,19	0,803
	Nb	9,2	2
Alliages et Composés métalliques ou chimiques			H_{c2} (kOe) à $T=4,2K$
	NbTi	10	11
	Nb ₃ Sn	18	20
	TaC	10,2	46
	V ₃ Ga	14,5	21
	VHfZr	10,2	20,8
	PbMo ₆ S ₈	15	50
Composés Organiques et Fullerènes	(BEDT) ₂ Cu(CNS)	10,5	70
	K ₃ C ₆₀	19,3	-
Composés à haute température critique			H_{c2} (kOe) à $T=0K$ ($H//$ à c)
	BaPb _{0,75} Bi _{0,25} O ₃	12	-
	Bi ₂ Sr ₂ CaCu ₂ O ₈	80	400
	YBa ₂ Cu ₃ O _{7-δ}	92	130 à 400
	Ti ₂ Ba ₂ Ca ₂ Cu ₃ O ₁₀	125	-

Tableau 1-1 : Paramètres critiques de quelques supraconducteurs [2]

Légende :

H_{c2} = champ magnétique critique de deuxième espèce (cf. 1.1.3)

BEDT = Biséthylènedithiolo

c : axe cristallographique

• Le champ critique

S'agissant d'une transition de phase, le champ critique thermodynamique est déterminé à partir de la comparaison de l'énergie libre à l'état normal (N) et à l'état supraconducteur (S):

$$\Delta G = -\mu_0 V \int_0^{H_{ext}} M dH_{ext} \quad (E 1-1)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} H_{\text{ext}} : \text{champ magnétique statique extérieur} \\ M, \mu : \text{aimantation et perméabilité magnétique du corps} \\ V : \text{volume du corps} \end{array} \right.$$

Pour un supraconducteur classique, l'aimantation vaut $-H_{\text{ext}}$ en dessous du champ critique H_c et est nulle au-delà de H_c . Il vient :

$$H_c = \left[\frac{2}{\mu_0 V} (G_N - G_S) \right]^{\frac{1}{2}} \quad (E 1-2)$$

En présence d'un champ extérieur l'énergie libre du matériau est minimisée s'il est dans l'état supraconducteur à $T < T_c$ ($G_N > G_S$). L'entropie diminue : l'état S est plus ordonné que N.

Pour les métaux assez purs, H_c diminue à peu près comme le carré de la température suivant la loi de Gorter-Casimir :

$$H_c(T) = H_c(0) \left(1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right) \quad (E 1-3)$$

• La profondeur de pénétration

Nous avons vu que l'expulsion du champ magnétique appliqué s'explique par l'apparition de courants induits « de surface » annulant le champ magnétique appliqué à l'intérieur du matériau. L'intensité de ces courants d'écrantage diminue exponentiellement avec la profondeur

La longueur caractéristique qui traduit l'affaiblissement de ces courants est appelée profondeur de pénétration λ . Elle joue un rôle analogue à l'épaisseur de peau pour un conducteur normal. Si à une distance x dans le supraconducteur la densité de flux chute à la valeur $B(x)$ on peut définir la profondeur de pénétration par :

$$\int_0^{\infty} B(x) dx = \lambda B(0) \quad (E 1-4)$$

En d'autres termes, il y aurait la même quantité de flux à l'intérieur du supraconducteur si la densité de flux du champ externe appliqué demeurait constante et concentrée sur λ .

Cette grandeur déterminée à partir des équations combinées de l'électrodynamique est nommée profondeur de London λ_L . Dans l'état supraconducteur, la densité de courant est proportionnelle au potentiel vecteur A du champ magnétique local :

$$j = -\frac{n_s e^2}{m} A = -\frac{1}{\mu_0 \lambda_L^2} A \quad (E 1-5)$$

$$\lambda_L = \sqrt{\frac{m}{\mu_0 n_s e^2}} \quad (E 1-6)$$

n_s représente la densité d'électrons supraconducteurs (de masse m et de charge e) à $T=0K$.

La profondeur de pénétration, valeur intrinsèque du matériau, est pratiquement constante à basse température. La profondeur de London λ_L vaut typiquement 10 à 50 nm pour les métaux supraconducteurs et 150 à 700 nm pour les supraconducteurs à haute T_c en fonction de l'axe considéré. Toutefois, au-dessus de $0,8T_c$, λ_L augmente rapidement jusqu'à diverger à l'approche de T_c suivant la loi empirique de Gorter Casimir donnant $n_s \sim 1-(T/T_c)^4$:

$$\lambda_L(T) = \lambda_L(0) \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^4 \right]^{-\frac{1}{2}} \quad (E 1-7)$$

Les valeurs théoriques de λ_L se sont toujours avérées inférieures aux valeurs mesurées (cf. Tableau 1-2). En fait, le calcul de λ_L n'est pas toujours valable et il faut introduire une nouvelle longueur fondamentale caractéristique d'un supraconducteur : la longueur de cohérence ξ que nous définirons par la suite (cf. 1.1.2). λ est identifié à λ_L si $\xi < \lambda_L$ dans l'hypothèse de champ magnétiques appliqués faibles devant H_c et pour des échantillons de grande dimension devant λ (cf. 1.1.4.).

élément	$\lambda_{L(0)}$ (nm)	$\lambda_L(0)$ (nm)
Al	50	15
Sn	50	35
Pb	40	37
Nb	44	39

Tableau 1-2 : Profondeurs de London et de pénétration mesurées [3]

1.1.2. Aspect microscopique

La supraconductivité fait intervenir des électrons appariés responsables de la conductivité parfaite et de l'effet Meissner. Nous définirons cet état de paires introduit par Cooper ainsi que l'origine de l'attraction positive entre électrons.

Nous aborderons ensuite la théorie quantique de la supraconductivité établie en 1957 par Bardeen Cooper et Schrieffer^[4].

1.1.2.1. Appariement d'électrons

Pour modéliser la formation d'une paire d'électrons, Cooper considère un gaz de Fermi d'électrons sans interaction. De cet état fondamental d'énergie inférieure à E_F , il extrait deux électrons qui vont interagir sous l'action d'un potentiel attractif $V(r_1-r_2)$ à symétrie sphérique.

Les deux électrons dans un état excité sont confinés dans une mince couche d'énergie au-dessus de la surface de Fermi d'épaisseur égale à l'énergie caractéristique de Debye hf_D (f_D correspondant à la fréquence de coupure des phonons). Ils se condensent et le gain d'énergie résultant de cet état de paires est maximum dans la configuration où les deux électrons ont des moments cinétiques égaux et opposés et les 2 spins sont anti parallèles.

Les électrons forment un état lié et du fait de leur interaction attractive, l'énergie de la paire de Cooper est inférieure à $2E_F$. L'écart d'énergie à $2E_F$ se définit comme l'énergie de cohésion de la paire 2Δ . Cette énergie nécessaire pour rompre la paire vaut :

$$2\Delta = 2 \frac{hf_D}{\sinh\left(\frac{1}{N(0)V}\right)} \approx 4hf_D \exp\left(-\frac{1}{N(0)V}\right) \quad (E 1-8)$$

avec $N(0)$: densité d'états électroniques au niveau de Fermi

L'énergie de cohésion est d'autant plus grande que le potentiel d'interaction V est élevé.

1.1.2.2. Interactions attractives

Deux électrons exercent normalement l'un sur l'autre une répulsion coulombienne. L'origine des interactions attractives entre électrons qui neutralise cette répulsion s'explique schématiquement de la manière suivante. Un premier électron en mouvement dans un réseau d'ions polarisables, provoque une distorsion de ce réseau lors de son passage de manière à augmenter la densité de charges positives à son voisinage. Du fait de leur inertie, les ions ne peuvent pas relaxer immédiatement d'où une accumulation de charges positives dues à la déformation du réseau. Il en résulte une attraction d'un second électron de spin et de direction opposée au premier.

Ainsi, un premier électron de conduction à la vitesse de Fermi peut influencer la trajectoire d'un second sur une distance de $v_F \cdot f_D$ (quelques dizaines de nanomètres).

On peut se représenter ces interactions d'une façon équivalente suggérée par Frölich^[5]. Pour compenser la force de répulsion de Coulomb entre deux électrons, intervient une interaction supplémentaire avec un autre système de particules : les phonons. Un électron de vecteur d'onde k émet un phonon de vecteur d'onde $-q$ qui est réabsorbé par un 2^{ème} électron de vecteur d'onde k' (cf. Figure 1-1).

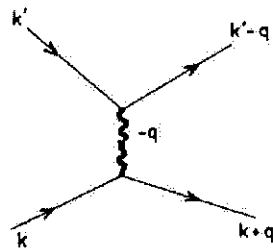


Figure 1-1 : Interprétation des interactions entre 2 électrons selon Frölich [6]

L'interaction électron réseau intervenant dans la supraconductivité est la même interaction qui détermine la résistivité des métaux à haute température. A titre d'exemple, le niobium de T_c élevée possède une grande résistivité à l'état normal à cause de la forte interaction électron phonon. A l'inverse, le cuivre avec une faible interaction électron phonon est un excellent conducteur électrique à l'état normal mais ne présente pas de transition supraconductrice.

1.1.2.3. Théorie BCS

Le modèle de Cooper ne considère qu'une seule paire d'électrons dans un état lié. Or s'il existe une interaction attractive entre particules, un grand nombre de particules vont s'associer deux à deux et former une paire afin de minimiser l'énergie.

La théorie BCS fournit un formalisme capable de traiter macroscopiquement ces corrélations de paires. Elle décrit le système par une même fonction d'onde antisymétrique à N paires. L'ensemble de paires est traité selon la statistique de Bose Einstein modifiée (et non par la statistique de Fermi Dirac applicable aux électrons de spins $1/2$), ce qui permet à un nombre macroscopique de paires d'occuper l'état fondamental de moment cinétique nul.

L'existence de paires d'électrons provoque l'apparition dans la structure de bande d'un conducteur d'une bande interdite au voisinage du niveau de Fermi. Les électrons appariés se regroupant dans un même état, l'énergie de chacun d'eux est abaissée d'une quantité Δ égale à

la moitié de l'énergie de cohésion 2Δ d'une paire.

Les états près de la surface de Fermi sont légèrement redistribués comme ceux disponibles au-dessus du niveau de Fermi. Ainsi, la densité d'états des excitations élémentaires diverge quand ε tend vers Δ à cause de l'accumulation des états électroniques consécutive à l'ouverture de la bande.

L'augmentation de la densité d'états pour $\varepsilon > \Delta$ peut être observée dans la relaxation nucléaire et dans les expériences d'effet tunnel.

D'après la théorie de BCS le gap d'énergie Δ (en meV) à $T=0K$ est relié à la température critique :

$$2\Delta(0) = 3,5k_B T_c \quad (E\ 1-9)$$

avec k_B facteur de Boltzmann = $0,86 \cdot 10^{-4} \text{ eV} \cdot \text{K}^{-1}$

Supraconducteur	$2\Delta_{\text{exp}}(0)$ (meV)	$2\Delta(0)/k_B T_c$
Al	0,34	3,3
Sn	1,15	3,5
Pb	2,73	4,38
Nb	3,1	3,94
Nb ₃ Sn	5,6	3,6
(BEDT) ₂ Cu(CNS) ₂	7	7,8
YBa ₂ Cu ₃ O ₇₋₈	20 à 45	3 à 12

Tableau 1-3 : Gap d'énergie de différents supraconducteurs

Les valeurs déterminées expérimentalement sont assez proches des valeurs théoriques pour la plupart des métaux supraconducteurs (cf. Tableau 1-3).

Δ évolue très lentement avec la température jusqu'à $0,8 T_c$ puis chute brusquement, du fait de la diminution du nombre de super électrons due à l'agitation thermique, pour s'annuler à la température critique. La variation de Δ en fonction de T est donnée par la relation suivante :

$$\Delta(T) \approx \Delta(0) \cos \left[\frac{\pi}{2} \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (E\ 1-10)$$

L'énergie d'appariement varie aussi avec le champ magnétique et s'écrit :

$$\Delta(H) = \Delta(0) \left[1 - \alpha \left(\frac{H}{H_c} \right)^2 \right] \quad (E 1-11)$$

α est fonction du rapport entre l'épaisseur du matériau (e) et la profondeur de pénétration ⁽¹⁾

$$\alpha = \frac{\sinh\left(\frac{e}{\lambda}\right) - \frac{e}{\lambda}}{2 \frac{e}{\lambda} \cosh^2\left(\frac{e}{2\lambda}\right)} \quad (E 1-12)$$

L'attraction entre électrons est aussi caractérisée par la longueur de cohérence intrinsèque ξ qui indique l'étendue spatiale d'une paire dans l'état condensé. Pour les métaux purs :

$$\xi = \frac{\hbar v_F}{\pi \Delta} \quad (E 1-13)$$

L'extension de la paire est importante si l'énergie de cohésion est faible : la paire est plus diffuse en cas de faible interaction. Les valeurs de ξ montrent que chaque paire possède un ordre à grande distance (cf. Tableau 1-4). Cependant, une paire n'est pas considérée comme indépendante du fait de la proximité des autres centres de gravité. En combinant, les équations E1-9 et E1-13, on peut noter que $\xi \propto T_c^{-1}$.

Supraconducteur	ξ (nm)	T_c (K)
Al	1600	1,19
Sn	230	3,71
Pb	83	7,19
Nb	39	9,2
(BEDT) ₂ Cu(CNS) ₂	7	10,5
Nb ₃ Sn	3,6	18
YBa ₂ Cu ₃ O _{7-δ}	2,3-3,5 (axe a-b)	92
(δ =écart à la stœchiométrie)	0,5-0,7 (axe c)	

Tableau 1-4 : Longueurs de cohérence de quelques supraconducteurs

¹ Dans le cas de films de niobium assez épais ($e > 10\lambda$); $\alpha \approx 10^{-2}$ est faible

La théorie BCS donne une excellente description microscopique de la supraconductivité du moins pour les supraconducteurs conventionnels ($T_c < 25\text{K}$). Elle fait intervenir à la fois des paramètres de nature électronique (densité d'états) et atomique (spectre de phonons, température de Debye) et rend bien compte des grandeurs physiques comme Δ , T_c , ou ξ_0 .

Cependant, cette théorie doit être modifiée dans les cas des supraconducteurs à haute température critique et lorsque le couplage électron/phonon est fort, la répulsion coulombienne entre électrons ne devant plus être négligée. La force de l'interaction dépend de la fréquence du phonon considéré (émis et absorbé) et du nombre de phonons disponibles. V n'est plus indépendant de la fréquence.

1.1.3. Supraconducteurs de type I et II

Il existe deux types de supraconducteurs qui se différencient par leur comportement en présence d'un champ magnétique extérieur. L'application de la théorie générale des transitions de phase de Landau à la supraconductivité a permis à Ginzburg et Landau (GL) d'expliquer ce phénomène^[7]. Les transitions de phase comme les changements d'états (solide-liquide...) ou les transitions magnétiques (paramagnétique, ferromagnétique) se traduisent toujours par le passage d'un état d'ordre donné à un autre état d'ordre supérieur ou inférieur.

L'idée générale de la théorie de Landau est d'introduire un paramètre d'ordre qui caractérise ces transitions. Ainsi, pour décrire les super électrons, Ginzburg et Landau définissent une fonction d'onde Ψ macroscopique ou paramètre d'ordre dont le module est compris entre 0 et 1 dans l'état supraconducteur et s'annule pour $T > T_c$. Sa norme est assimilée à la densité d'électrons supraconducteurs. L'enthalpie libre G devient alors fonction de cette variable supplémentaire Ψ qui, à T et H donnés, prendra la valeur qui rend G minimale.

La longueur de cohérence ξ apparaît comme la longueur caractéristique des variations spatiales de Ψ . Le paramètre d'ordre ne peut s'annuler sur une distance inférieure à quelques ξ par exemple à l'interface normal/supraconducteur.

Les équations de GL permettent de connaître la dépendance en température de la longueur de cohérence ξ et de la profondeur de pénétration magnétique λ . Près de T_c , on trouve le même type de variation pour ξ et λ en $(1 - \frac{T}{T_c})^{-\frac{1}{2}}$ caractéristique des transitions de phase du premier ordre. C'est le cas pour la transition normal/supraconducteur sous champ magnétique non nul.

Le paramètre de Ginzburg-Landau (κ) caractérise le comportement magnétique des matériaux supraconducteurs et les divise en deux espèces selon la valeur du quotient des deux longueurs caractéristiques λ et ξ :

$$\kappa = \lambda(T) / \xi(T)$$

Dans la limite de validité de la théorie de GL, κ est constant.

Considérons un matériau supraconducteur où coexistent des zones normales. En présence d'un champ magnétique H voisin de H_c , chaque interface introduit un terme d'énergie de surface G_{NS} donné approximativement par l'expression :

$$G_{NS} \approx \frac{\mu_0}{2} H_c^2 (\xi - \lambda) \tag{E 1-14}$$

Si $\kappa < 1$ l'énergie de surface G_{NS} est positive. la présence de barrières normales supraconductrices n'est donc pas favorisée⁽²⁾. Ceci caractérise les supraconducteurs de type I, pour lesquels l'effet Meissner intervient complètement jusqu'au champ critique H_c .

Si $\kappa > 1$ l'énergie de surface G_{NS} est négative si bien que le système dans l'état mixte à tendance à maximiser les interfaces entre les deux phases supraconductrices et normales donc à augmenter le nombre de régions alternativement normales et supraconductrices.

Ce phénomène intrinsèque est caractéristique des supraconducteurs de type II, pour lequel l'effet Meissner est total jusqu'à un premier champ critique H_{c1} puis devient partiel jusqu'à un certain champ critique H_{c2} (cf. Figure 1-2). Le système est alors dans l'état mixte : une partie des lignes de champ pénètre alors sous forme de vortex dont le cœur est cylindrique et parallèle à la direction du champ magnétique appliqué. Les vortex contiennent chacun un quantum de flux magnétique ϕ_0 . Notons qu'une couche superficielle de l'échantillon peut rester supraconductrice jusqu'à un champ encore plus élevé H_{c3} ^[8].

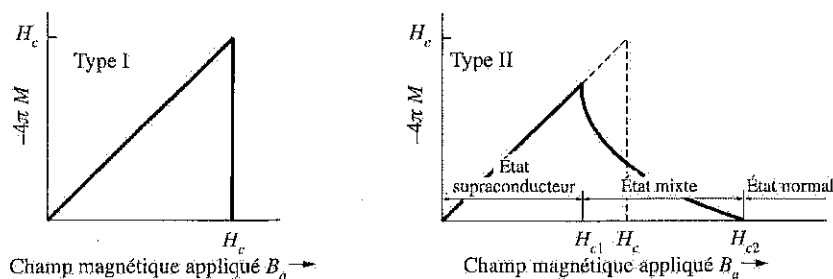


Figure 1-2 : Courbe d'aimantation pour les 2 types de supraconducteurs

² S'ils existent, les domaines normaux assez gros sont des juxtaposition de phases macroscopiques, le matériau est alors dans un état intermédiaire qui est possible pour certaines géométries de l'échantillon

En fait par intégration exacte des équations de GL, Abrikosov a montré qu'il existe une valeur limite de κ séparant les 2 catégories de supraconducteurs. Si $\kappa < 1/\sqrt{2}$ le matériau est de type I sinon le matériau est de type II.

1.1.4. Libre parcours moyen électronique et longueurs caractéristiques

La présence d'impuretés dans les métaux et alliages engendre la diffusion des électrons appariés et peut aller jusqu'à briser les paires. En conséquence, la longueur de cohérence est d'autant plus diminuée que le libre parcours moyen l des électrons est faible. On parle de supraconducteurs « sales » ($l \ll \xi_0$). On définit une longueur de cohérence effective telle que:

$$\frac{1}{\xi_{\text{eff}}} = \frac{1}{\xi_0} + \frac{1}{\alpha l} \quad (E 1-15)$$

avec ξ_0 longueur de cohérence du matériau pur et $\alpha=0,8$ selon Goodman^[9]

Pippard a montré expérimentalement que λ était aussi fonction du libre parcours moyen (cf. Figure 1-3) et a proposé une généralisation non locale de l'équation de London E1-5. Cela introduit la notion de pénétration magnétique effective λ_{eff} ^[10].

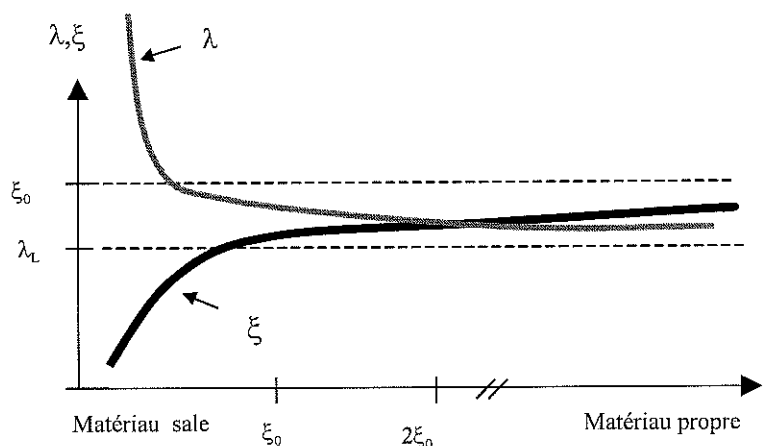


Figure 1-3 : Evolution de la pénétration magnétique λ et de la longueur de cohérence ξ en fonction du libre parcours moyen des électrons de conduction dans l'état normal (cas $\xi_0 > \lambda_L$)

Il est possible de corriger la valeur de λ et ξ dans deux cas limites ^[11]:

1) la limite propre :

C'est le cas des supraconducteurs purs avec $\lambda_L \ll \xi_{\text{eff}}$ (composés intermétalliques, métaux...)

Il vient : $\xi_{\text{eff}} \sim \xi_0$.

La solution analytique de l'équation non locale fournit :

$$\lambda_{\text{eff}} \approx \left(\frac{\sqrt{3}}{2\pi} \xi_0 \lambda_L^2 \right)^{\frac{1}{3}} \quad (E 1-16)$$

2) la limite sale :

Pour la plupart des supraconducteurs de type II (alliages, haut T_c ...), le libre parcours moyen est réduit : $\xi_{\text{eff}} \sim 1$. Une forme simplifiée de l'équation non locale peut s'écrire :

$$\mathbf{j} = - \frac{n_s e^2}{m} \frac{\xi_{\text{eff}}}{\xi_0} \mathbf{A} \quad (E 1-17)$$

soit :

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda_L \sqrt{\frac{\xi_0}{\xi_{\text{eff}}}} = \lambda_L \sqrt{\frac{\xi_0}{l}} \quad (E 1-18)$$

1.1.5. Le niobium

La plupart des métaux sont de type I et ne deviennent de type II qu'en présence d'impuretés. Néanmoins il existe quelques métaux purs qui sont intrinsèquement de type II comme le vanadium et le niobium. Ce dernier, de température champ et courant critiques relativement élevés, est souvent choisi pour la fabrication des cavités accélératrices de particules. Il offre un bon compromis entre les caractéristiques supraconductrices requises et les critères métallurgiques nécessaires à la fabrication des cavités.

Les paramètres supraconducteurs du niobium sont rassemblés dans le Tableau 1-5. La valeur de κ_{Nb} est proche de $1/\sqrt{2}$ et contrairement aux autres supraconducteurs de type II, la transition de l'état normal à l'état supraconducteur peut être du premier ordre (existence de chaleur latente) suivant la nature de l'interaction entre vortex ^[12]. La courbe de magnétisation peut présenter une discontinuité à la transition notamment pour T proche de T_c ^[13].

$2\Delta/k_B T_c$	H_c (Oe)	T_c (K)	J_c (A/m)	ξ_0 (nm)	λ_L (nm)
3,94	2000	9,2	$2,510^{11}$	39	40

Tableau 1-5 : Propriétés supraconductrices du niobium [14]

Le libre parcours moyen électronique dépend de la qualité du niobium massif et en particulier s'il a subi des traitements thermiques de purification. Ainsi l varie entre 50nm (niobium industriel) et 1500nm (niobium destiné à la fabrication des cavités).

1.2.1. Principe de fonctionnement

Les cavités résonnantes constituent la structure de l'accélérateur de particules^[15]. Sur chaque mode de résonance, dont la fréquence et la distribution spatiale des champs magnétiques et électriques dépendent de la géométrie de la cavité, de l'énergie électromagnétique est emmagasinée^[16].

Dans le cas des cavités accélératrices supraconductrices développées pour les particules relativistes ($\beta=1$), la géométrie est déterminée de telle sorte que le mode accélérateur corresponde au mode fondamental de fréquence la plus basse. Il s'établit un régime d'ondes stationnaires dont la seule composante du champ électrique est axiale et permet d'accélérer les particules chargées traversant la cavité sur son axe longitudinal.

Les cavités sont généralement composées de plusieurs cellules en forme d'ellipsoïde (de 1 à 9 voire plus) d'une hauteur dépendant de la vitesse des particules et de la fréquence de résonance. A un instant donné, les champs électriques de deux cellules contiguës sont déphasés de π et les particules, en synchronisme avec le champ électrique HF, sont accélérées successivement à chaque passage de cellule (cf. Figure 1-4).

Un coupleur de puissance permet l'injection de l'énergie électromagnétique d'une source de type klystron; des coupleurs de modes supérieurs (HOM) sont disposés de part et d'autre des cellules, afin d'absorber les modes parasites générés par les particules lors de leur passage et susceptibles de perturber le faisceau. Une antenne faiblement couplée permet par la mesure de la puissance transmise de connaître le champ accélérateur.

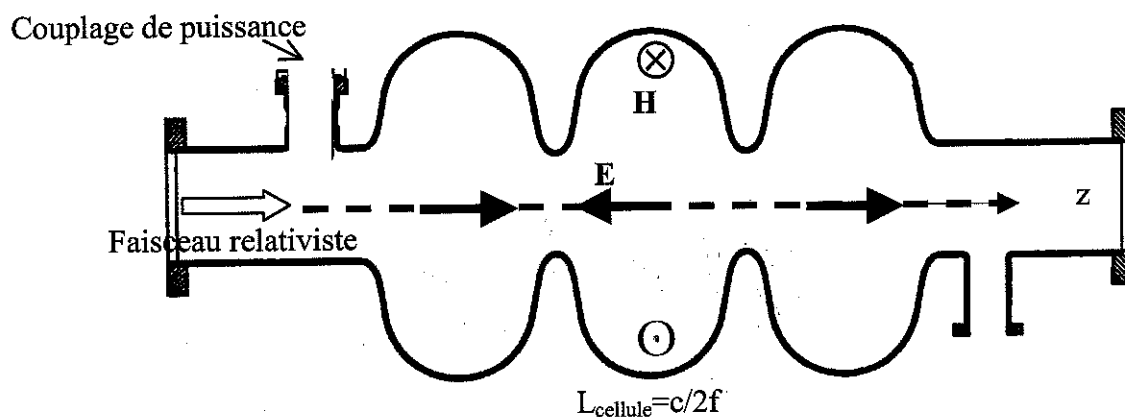


Figure 1-4 : Schéma de principe d'une cavité accélératrice tricellule

Les fréquences choisies à Saclay sont 1,3 GHz (projet TTF/TESLA) et 1,5 GHz (MASCE, TJNAF) et conduisent des cavités facilement maniables et intéressantes pour les phases de

recherche^[17] et développement (cf. Figure 1-5).

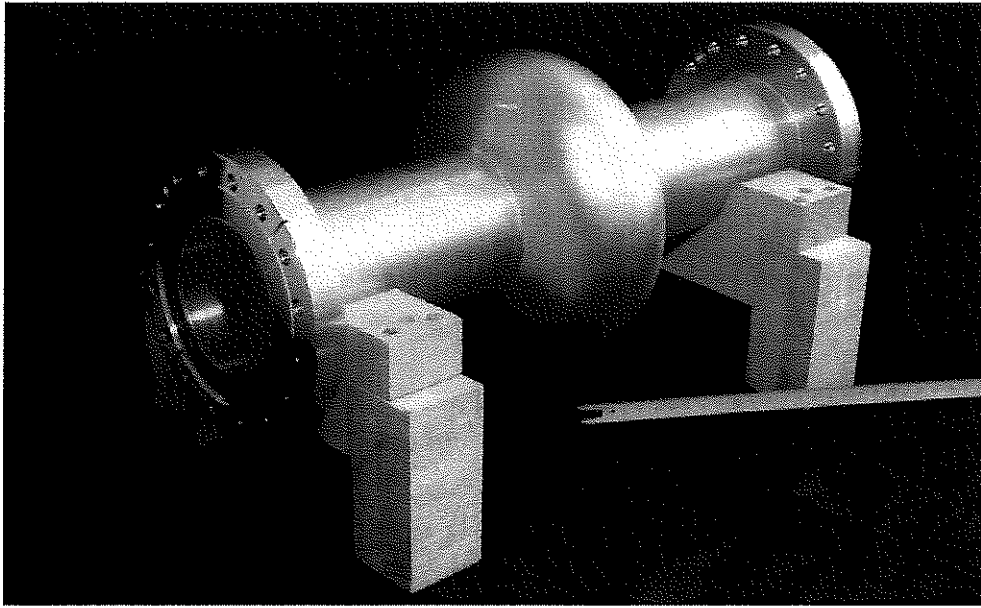


Figure 1-5 : Cavité mono cellule en cuivre de fréquence 1,5 GHz

La distribution des champs électriques et magnétique de surface dans la cavité est déterminée avec précision à l'aide de codes de calcul comme URMEL ou SUPERFISH (cf. Figure 1-6).

Dans une cellule existent deux régions remarquables pour le mode accélérateur :

→ les équateurs où le champ magnétique de surface H est maximum

→ les iris où le champ électrique de surface E est maximum

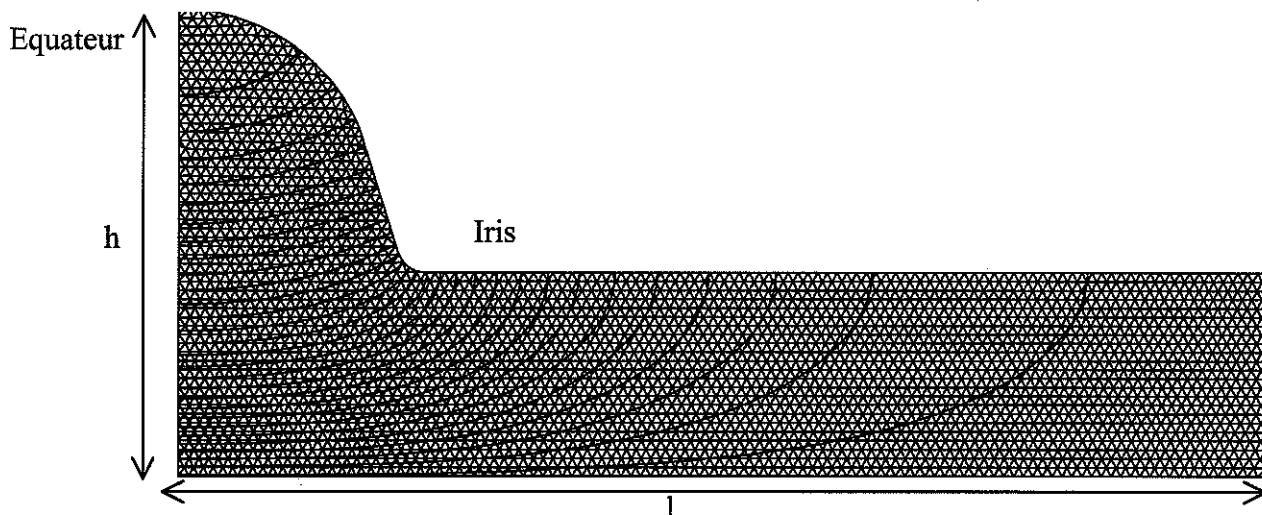


Figure 1-6 : Distribution des lignes de champ électrique dans une cavité accélératrice par Superfish ($f=1,45$ GHz, $\beta=1$, $l=22,23$ cm, $h=9,18$ cm, $l_{maille}=0,2$ cm)

1.2.2. Performances HF

1.2.2.1. Caractéristiques HF d'une cavité

Les performances d'une cavité sont caractérisées à partir de deux paramètres essentiels :

1) le champ accélérateur E_{acc} (en MV/m) communiquant l'énergie aux particules et donné par la relation :

$$E_{acc} = \frac{2}{T_{RF}} \int_0^{\frac{T_{RF}}{2}} E(z,t) dt \tag{E 1-19}$$

$$\left\{ \begin{array}{l} T_{RF} = \text{période de l'onde HF de pulsation } \omega \\ E(z,t) = \text{champ électrique longitudinal} \end{array} \right.$$

2) le facteur de qualité Q_0 définie comme le rapport entre l'énergie emmagasinée par cycle

HF ($U = \frac{\mu_0}{2} \iiint_{V_{cavité}} H^2 dV$) et la puissance dissipée par les parois de la cavité P_{diss} :

$$Q_0 = \frac{\omega U}{P_{diss}} \tag{E 1-20}$$

P_{diss} traduit les pertes globales :

$$P_{diss} = \frac{1}{2} \iint_{S_{cavité}} R_s H_s^2 dS \tag{E 1-21}$$

H_s est le champ magnétique local de surface

Le terme R_s représente la résistance de surface HF du supraconducteur. En effet, en courant alternatif, la dissipation d'énergie dans un supraconducteur n'est plus nulle. Les paires de Cooper subissent des accélérations et créent ainsi un champ électrique; ce dernier va agir sur une faible proportion d'électrons non appariés présents dans le supraconducteur qui vont participer au transport de courant donc absorber de l'énergie.

Les paires de Cooper se déplacent sans frottement mais à cause de leur inertie ne parviennent pas totalement à expulser le champ appliqué dans la cavité. Ainsi, lorsqu'un champ électromagnétique HF est appliqué dans une cavité il y a dissipation dans la paroi interne par l'intermédiaire de courants surfaciques sur une profondeur de l'ordre de la pénétration magnétique.

En supposant que la résistance de surface est uniforme dans la cellule, on déduit des équations E1-20 et E1-21 l'expression suivante :

$$Q_0 = \frac{G}{R_s} \quad (E\ 1-22)$$

Le coefficient G ou facteur géométrique (en Ω) dépend uniquement de la géométrie de la cavité et du mode de résonance utilisé

La résistance de surface d'un supraconducteur est très inférieure à celle d'un conducteur normal (quelques n Ω pour des cavités en niobium au lieu de quelques m Ω pour des cavités en cuivre). Les pertes sont très faibles et la conversion de l'énergie électromagnétique en énergie cinétique des particules est optimale..

1.2.2.2. Courbe $Q_0=f(E_{acc})$

Les performances HF d'une cavité accélératrice sont données par la caractéristique $Q_0=f(E_{acc})$. Les cavités en niobium massif sont la référence actuelle en terme de performances HF. Aux fréquences 1,3 GHz ou 1,5 GHz, des gradients supérieurs à 30 MV/m sont couramment atteints à 1,7K et le facteur de qualité Q_0 voisin de 10^{11} à bas champ varie peu avec le champ accélérateur (cf. Figure 1-7). Inversement, à cette température de travail, les cavités de technologie couche mince Nb/Cu, sont souvent caractérisées par une forte pente de la courbe $Q_0=f(E_{acc})$, faiblesse actuelle de cette technologie. Néanmoins, les efforts de R et D conduisent à une constante diminution de cette pente^{[18],[19]}.

D'autres solutions alternatives au niobium massif sont également envisagées^{[20],[21]} : il s'agit des cavités en (NbTi)N ou Nb₃Sn, matériaux dont les températures critiques -respectivement 17K et 18,2K - permettent d'espérer un fonctionnement à 4,2K pour des fréquences supérieures à 1 GHz. Des cavités Nb/Cu réalisées à partir de tôles de niobium explosées sur du cuivre présentent aussi de résultats prometteurs^[22].

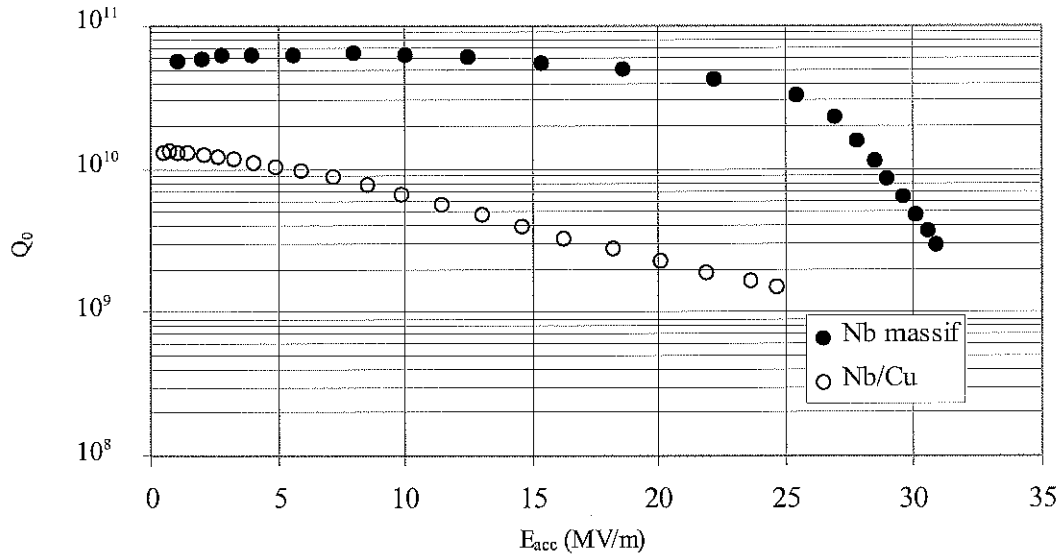


Figure 1-7 : Caractéristique HF de cavités accélératrices à $T_{bain}=1,7K$ à $f=1,5GHz$

Différents paramètres ou phénomènes ont une incidence sur les performances d’une cavité :

1) l’émission électronique par effet de champ

Un champ de surface très intense, notamment aux iris, peut entraîner l’extraction des électrons d’une paroi qui sont accélérés et consomment une partie de la puissance HF^{[23],[24]}. Une partie de ces électrons peut venir frapper localement la paroi qui s’échauffe et peut transiter vers l’état normal. Ce phénomène d’émission électronique se traduit par une forte pente dQ_0/dE_{acc} et une limitation en champ accélérateur.

Pour limiter l’émission de champ, un jet d’eau ultrapure sous haute pression est utilisé pour déloger les particules de contamination et améliorer la propreté des parois de la cavité^[25].

2) le « multipactor »

Dans les structures HF intervient parfois ce phénomène complexe de résonance impliquant un large nombre d’électrons qui vont heurter très localement la parois de la cavité. Toutefois, il est désormais évité pour les cavités $\beta=1$ grâce à un profil géométrique approprié de la cavité.

3) le « Qswitch »

Il est parfois observé un chute brutale du facteur de qualité au-delà d’un certain champ accompagné d’un hystérésis. Ce phénomène de « Qswitch » correspond généralement à la transition à l’état normal d’une zone de la cavité mal refroidie. La valeur du champ de transition et de l’amplitude de la chute est en relation avec la surface de la zone chaude.

4) le « quench »

La présence de défauts à la surface du matériau (inclusions, poussières...) peut provoquer une élévation locale de la température dans la zone considérée qui s'intensifie avec le champ et fait transiter la cavité à l'état normal. Toute l'énergie emmagasinée dans la cavité est brutalement transformée en chaleur : on parle de « quench » .

5) la résistance de surface R_s

Le facteur de qualité étant inversement proportionnel à la résistance de surface du matériau, tout est mis en œuvre pour réduire R_s et particulièrement sa dépendance vis à vis du champ accélérateur.

Nous allons maintenant décrire l'ensemble des modèles permettant de mieux comprendre les paramètres influant sur la résistance de surface.

1.2.3. Impédance de surface1.2.3.1. Définition

La résistance de surface d'un métal (normal ou supraconducteur) d'épaisseur e soumis à un champ hyperfréquence est introduite à partir de l'impédance complexe de surface Z_s . La composante du champ magnétique parallèle H_z à la surface pénètre dans le conducteur et induit perpendiculairement un champ électrique E_y parallèle à la surface.

Par analogie avec la résistance électrique, Z_s est définie comme le rapport entre le module du champ électrique de surface $E_y(0)$ et le courant total induit dans le matériau. Si la dépendance temporelle de l'onde électromagnétique est de la forme $e^{-i\omega t}$, Z_s s'écrit :

$$Z_s = R_s - iX_s = \frac{E_y(0)}{e \int_0^e j_y(x) dx} \quad (E 1-23)$$

Le terme imaginaire X_s représente la réactance de surface et traduit le fait que le champ de surface n'est pas en phase avec le courant dans le supraconducteur. X_s est directement lié à la profondeur de pénétration λ .

En utilisant l'équation de Maxwell-Ampère $rot H = j$, il vient :

$$Z_s = \frac{E_y(0)}{H_z(0)} \quad (E 1-24)$$

Le calcul de l'impédance complexe de surface consiste donc à exprimer la relation locale constitutive entre le champ électromagnétique appliqué et la densité de courant induite $j = \sigma E$ (loi d'Ohm) et d'utiliser la relation $\Delta E = i\mu_0\sigma\omega E$ dérivée des équations Maxwell-Faraday, $\text{rot}E = -\mu_0 \frac{\partial H}{\partial t}$ et de Maxwell-Gauss $\text{div}E=0$.

Dans le cas de conducteur métallique normal, il vient :

$$Z_s = \frac{E_y(0)}{j / \sqrt{i\omega\sigma_n\mu_0}} = \sqrt{\frac{i\omega\mu_0}{\sigma_n}} \quad (E 1-25)$$

$$Z_s = \frac{1}{\sigma_n\delta_n}(1+i)$$

La longueur caractéristique de décroissance du champ électrique (supposée très supérieure au libre parcours moyen des électrons) et définie comme l'épaisseur de peau vaut :

$$\delta_n = \sqrt{\frac{2}{\omega\mu_0\sigma_n}} \quad (E 1-26)$$

Dans le cas de matériau supraconducteur, le calcul de Z_s est plus complexe. Nous présenterons ce calcul dans le cadre du modèle de conduction à deux fluides. Toutefois, il présente certaines limites que nous préciserons. Nous introduirons alors quelques résultats découlant du modèle plus rigoureux nécessitant l'emploi de la théorie BCS associée à la méthode de Mattis et Bardeen^[26]. Notons que les deux approches ne tiennent pas compte de la structure inhomogène du supraconducteur c'est à dire de la dépendance spatiale de la fonction d'onde.

1.2.3.2. Modèle à deux fluides

Le modèle à deux fluides permet de comprendre sur le plan physique le comportement en présence de champ HF d'un matériau supraconducteur à la température $T < T_c$.

Les électrons libres du métal se répartissent en deux groupes distincts :

→ le fluide normal constitué des porteurs de charges non appariés de faible densité $n_n(T)$ pour $T < T_c/2$ et de conductivité σ_n . Ce sont les électrons de conduction au-dessus de T_c .

→ le fluide supraconducteur constitué d'électrons regroupés en paires de Cooper de densité n_s complémentaire.

Le courant comprend les deux contributions correspondantes j_n et j_s

• Le courant normal

En supposant que la relation champ courant est locale, on peut employer le modèle classique de Drude pour déterminer la conductivité des électrons normaux σ :

$$\sigma = \frac{\sigma_n}{1 + i\omega\tau} \text{ avec } \sigma_n = \frac{n_n e^2 \tau}{m^*} = \frac{n_n e^2 l}{m^* v_F} \quad (E 1-27)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \tau : \text{temps de collision électronique } (\sim 10^{-14} \text{ s}) \\ m^* : \text{masse effective moyenne des électrons libres} \\ v_F : \text{vitesse de Fermi} \\ l : \text{libre parcours moyen des électrons} \end{array} \right.$$

Le produit $\omega\tau \ll 1$ dans le domaine des microondes ($\omega\tau \sim 10^{-5}$) peut être négligé, ce qui conduit à la densité de courant : $j_n = \sigma_n E$

• Le courant supraconducteur

Le courant supraconducteur obéit à l'équation de London :

$$j_s = -\frac{n_s e^2}{m^*} A \quad (E 1-28)$$

En combinant cette équation avec celle de Maxwell-Faraday, il vient :

$$\text{rot}(E) = -i\mu_0\omega H = -i\omega \text{rot}(A)$$

$$j_s = -\frac{in_s e^2}{m^* \omega} E = -\frac{i}{\omega\mu_0\lambda_L^2} E \quad (E 1-29)$$

Les super électrons ne subissent globalement pas de collisions qui conduisent à un transfert d'énergie au réseau cristallin. (ce qui revient à faire tendre τ vers l'infini).

• L'impédance de surface

Le courant total s'exprime à partir d'une conductivité complexe σ_{eff} tenant compte des 2 courants :

$$j = j_n + j_s = \left(\sigma_n - i \frac{1}{\omega\mu_0\lambda_L^2} \right) E = \sigma_{\text{eff}} E \quad (E 1-30)$$

On introduit la notion d'impédance de surface selon le modèle « deux fluides », de manière analogue à l'équation E1-29 :

$$Z_s = \sqrt{\frac{i\omega\mu_0}{\sigma_{\text{eff}}}} = \sqrt{\frac{i\omega\mu_0}{\sigma_n - i\sigma_s}} \quad (E 1-31)$$

On arrive à :

$$R_s^2 = \frac{\omega \mu_0 \sigma_s}{2(\sigma_n^2 + \sigma_s^2)} \left(\sqrt{1 + \left(\frac{\sigma_n}{\sigma_s}\right)^2} - 1 \right) \quad (E 1-32)$$

$$X_s^2 = \frac{\omega \mu_0 \sigma_s}{2(\sigma_n^2 + \sigma_s^2)} \left(\sqrt{1 + \left(\frac{\sigma_n}{\sigma_s}\right)^2} + 1 \right)$$

A basse température, il y a une faible proportion d'électrons normaux et la quantité σ_n est négligeable devant σ_s pour tous les supraconducteurs classiques et à haut T_c dans le cas d'échantillons monocristallins. Les parties réelles et imaginaires deviennent :

$$R_s = \frac{1}{2} \omega^2 \mu_0^2 \lambda_L^3 \sigma_n \quad (E 1-33)$$

$$X_s = \omega \mu_0 \lambda_L$$

On observe que la résistance de surface R_s dépend quadratiquement de la fréquence.

On déduit la dépendance en température de la résistance de surface R_s en fonction du libre parcours moyen :

$$R_s \propto \frac{1}{2} \cdot \omega^2 \cdot \mu_0^2 \cdot \lambda_L^3 \cdot l \quad (E 1-34)$$

L'équation ci dessus justifie d'employer un matériau à température critique élevée et de travailler à basse fréquence conduisant malheureusement à une taille de cavité importante.

Ce modèle propose une dépendance linéaire de R_s en fonction du libre parcours moyen, ce qui n'est pas observé expérimentalement. Les limites de ce modèle viennent du fait qu'il ne tient pas compte de la longueur de cohérence. En effet si $\xi_{\text{eff}} > \lambda_{\text{eff}}$, comme dans le cas d'un matériau sale, les deux électrons appariés ne voient pas le même champ et la relation courant champ ne peut plus être appliquée. L'expression de R_s devient :

$$R_s \propto l \cdot \lambda_{\text{eff}}^3 \propto \lambda_L^3 \xi_{\text{eff}}^{3/2} l^{-1/2} \quad (E 1-35)$$

Entre la limite « sale » et la limite « propre », la résistance de surface prend une valeur minimale lorsque le parcours moyen est comparable à la longueur de cohérence.

L'existence de ce minimum est observée expérimentalement : à $T=4,2\text{K}$ et $f=1,5\text{GHz}$, la résistance de surface du niobium massif de grande pureté est supérieure à celle du niobium en couche mince de libre parcours moyen inférieur et plus proche du minimum.

1.2.4. Résistance de surface BCS

A partir de la théorie B.C.S., Abrikosov et al^[27] d'une part, Mattis et Bardeen d'autre part, ont obtenu des expressions correctes sous forme d'intégrales de l'impédance de surface notée R_{BCS} d'un matériau supraconducteur soumis à un champ électromagnétique faible. Ensuite, la détermination de R_{BCS} a été menée par intégration numérique par Turneure^[28] et par Halbritter^[29]. Cela conduit à l'approximation suivante pour $T < T_c/2$ et $\hbar\omega < \Delta(T)/10$:

$$R_{BCS}(T) = \frac{A(\lambda, \xi, l, v_F) * \omega^2}{T} \exp\left(-\frac{\alpha T_c}{T}\right) \quad (E 1-36)$$

Les calculs théoriques sont en bon accord avec les valeurs expérimentales mesurées. Comme le modèle à deux fluides, il prévoit une dépendance en fréquence quadratique de R_{BCS} . Cependant, au-delà d'une certaine fréquence, il faut prendre en compte l'anisotropie de l'énergie de cohésion induite par l'anisotropie du réseau cristallin (cf. Figure 1-8).

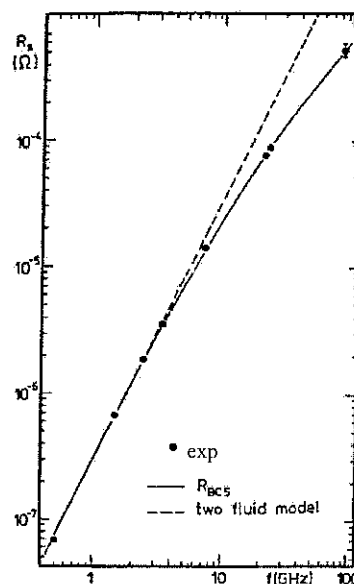


Figure 1-8 : Evolution de $R_s(Nb)$ en fonction de la fréquence [13]

Cependant, en dessous d'une certaine température, la résistance de surface mesurée est supérieure à la résistance prédite R_{BCS} (cf. Figure 1-9). On introduit une résistance de surface résiduelle R_{res} indépendante de la température (cf. 1.2.5). Ainsi :

$$R_s = R_{BCS}(T) + R_{res} \quad (E 1-37)$$

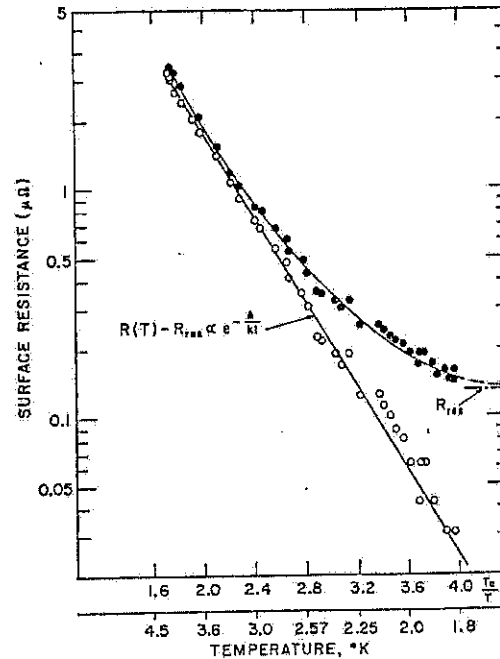


Figure 1-9 : Caractéristique $R_s=f(T)$ du plomb suivant le modèle BCS [13]

1.2.5. Résistance de surface résiduelle

La résistance de surface résiduelle recouvre l'ensemble des sources de dissipations n'intervenant pas dans R_{BCS} . Dans le domaine des basses températures où fonctionnent les cavités accélératrices supraconductrices de fréquence supérieure à 1GHz, la résistance résiduelle est importante voir dominante par rapport au terme R_{BCS} , pouvant provoquer des pertes HF rédhitoires pour la cryogénie.

Certaines causes de dissipation ont été identifiées et sont plus ou moins bien maîtrisées. On peut citer notamment:

- L'effet « 100K »

L'effet « 100K » a été une importante cause de dégradation des performances HF. Il intervient lorsque l'hydrogène dissout dans le niobium massif précipite en hydrures^[30]. La formation d'hydrures dépend non seulement du taux d'hydrogène dans le matériau mais aussi de la quantité des autres impuretés dans le matériau et de la vitesse de refroidissement de la cavité. On s'est aperçu qu'il n'y a pas formation d'hydrures si le niobium contient une forte concentration de sites interstitiels d'oxygène qui se comportent comme des pièges à hydrogène mais ceux-ci altèrent les propriétés supraconductrices et la conductivité thermique du matériau; La quantité d'hydrogène nécessaire à la naissance d'hydrures diminue au fur et à mesure que la température baisse, particulièrement entre 60K et 150K.

Le meilleur remède consiste alors à effectuer un recuit de purification du niobium entre 700°C et 900°C pour favoriser le dégazage de l'hydrogène. De plus, il est préférable de refroidir la cavité le plus rapidement possible (moins d'une heure).

• Le champ magnétique statique piégé

Nous avons vu que l'une des propriétés des supraconducteurs était l'expulsion des champs magnétique en dessous de H_C pour les supraconducteurs de type I ou H_{c1} pour ceux de type II. En réalité, ceci n'est rigoureusement exact que pour un matériau idéal : en présence de défauts cristallins ou d'autres inhomogénéités dans le matériau, il peut y avoir piégeage de flux magnétique lors du refroidissement sous un faible champ magnétique résiduel^[12].

Dans le cas du niobium, la résistance de surface résiduelle due aux fluxons s'écrit :

$$R_{s_{fl}} = R_n \frac{H_{ext}}{H_{c2}} = \sqrt{\frac{\omega \mu_0}{2\sigma_n}} \frac{H_{ext}}{H_{c2}} \quad (E 1-39)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} H_{c2} : \text{champ magnétique critique maximal} \\ H_{ext} : \text{champ magnétique continu externe} \end{array} \right.$$

Désormais, pour se protéger du champ magnétique terrestre, les cryostats sont équipés d'écrans et toutes les pièces nécessaires au montage sont amagnétiques. Ces précautions permettent de réduire le champ magnétique résiduel à 2-3mG^[31].

Par ailleurs, il a été démontré expérimentalement que les cavités de technologie couches minces étaient moins sensibles au champ magnétique rémanent^{[32],[33]}.

• L'absence de propreté de la surface

Des poussières ou toutes particules de contamination à la surface du supraconducteur peuvent absorber une partie de l'énergie stockée dans la cavité. Par conséquent, chaque étape de préparation des cavités (traitement chimique, rinçage, séchage, transport, assemblage) sont effectuées dans des conditions d'ultra propretés et rigoureusement contrôlées.

Certaines causes de dissipations sont directement liées aux aspects structurels du matériau :

• Les régions normales, isolantes ou faiblement supraconductrices

Une première catégorie des défauts locaux est liée à la métallurgie (fissures, porosités, inclusions de particules étrangères, impuretés...) ou à la fabrication des cavités (concentration d'impuretés, bulles au niveau de la soudure).

Une amélioration constante de la fabrication des cavités (par hydroformage^[34], par repoussage^[35]...) et le renforcement de contrôle des surfaces à chaque étape permet de réduire les défauts.

Une deuxième catégorie de défauts répartis à la surface sont d'ordre structurels (dislocations, lacunes, interstices, substitutions) soit de composition (régions non stœchiométriques, seconde phase..)

• Les joints de grains dans les matériaux polycristallins

Pour les matériaux de structure fortement polycristalline comme les supraconducteurs à haute température critique, de récents modèles prennent en compte la forte densité de joint de grains qui sont considérées comme des zones préférentielles de dissipation (cf. Annexe I).^{[36],[37],[38]} Ces modèles ont été également transposés aux matériaux en couches minces^{[39],[40],[41]} (Nb, Nb₃Sn, NbTiN..).

• La couche d'oxyde de surface

Le couche d'oxyde recouvrant le métal supraconducteur se comporte comme un diélectrique. Le calcul des pertes diélectriques par unité de volume de la couche d'oxyde de surface d'épaisseur h et de conductivité σ est déduit de la relation :

$$R_{s\text{diel}} = 2\mu_0\omega h \tan(\delta) \quad (E\ 1-40)$$

$$\text{avec l'angle de pertes } \tan(\delta) = \frac{\text{Im}(\sigma)}{\text{Re}(\sigma)}$$

A partir des données d'Halbritter pour du Nb₂O₅^[42] ($h=60\text{nm}$, $\tan(\delta)=10^{-5}$, $\omega=10^{10}\text{s}^{-1}$) $R_{s\text{diel}}$ a été estimée à 1nOhm donc est très faible. Les mesures de résistance de surface de cavités en niobium massif avant et après dissolution de l'oxyde de surface par chauffage à 1400°C se sont révélées comparables^[43].

Néanmoins, le rôle de la couche d'extrême surface sur la résistance de surface et son évolution après étuvage sont toujours à l'étude tant pour les cavités en niobium massif^[44] que pour celles en couche mince de niobium (cf. chapitre VI).

Certains facteurs sont spécifiques aux cavités de technologie couche mince :

• La qualité de la préparation de surface du substrat

L'oxydation du substrat, la rétention de résidus chimiques, ou des inclusions conduisent à une faible adhérence du supraconducteur^{[45],[46]} (zone d'écaillage...).

De même, la croissance du film peut être altérée du fait d'une forte rugosité du substrat (cf. chapitre V).

• La pureté du film supraconducteur

Lors de l'élaboration, le film supraconducteur peut être contaminé par implantation du gaz de décharge^{[47],[48]} (Ar, Xe, Ne ou Kr), par incorporation de gaz résiduel (H_2 , H_2O , CO, CO_2 , CH_4 ...). Si la température du substrat pendant le dépôt est élevée, on peut craindre une diffusion du substrat dans le matériau (cf. chapitre II).

• Le choix des conditions de dépôt

Des conditions de dépôt inadaptées favorisent la porosité de la couche mince ou la croissance de différentes phases aux propriétés supraconductrices mal définies (NbN.).

Chapitre 2

Elaboration et Caractérisation des films de niobium

2.1 La pulvérisation cathodique : technique et dispositif de dépôt

- 2.1.1 Mécanisme de pulvérisation
- 2.1.2 Décharge luminescente
- 2.1.3 Cathode magnétron

2.2 Elaboration des films de niobium

- 2.2.1 Bâti de pulvérisation
 - 2.2.1.1 Description
 - 2.2.1.2 Portes échantillons
- 2.2.2 Paramètres de décharge

2.3 Caractérisations des films de niobium

- 2.3.1 RRR
 - 2.3.1.1 Définition
 - 2.3.1.2 Mesure
- 2.3.2 Microstructure des films
- 2.3.3 Microscopie à force atomique
 - 2.3.3.1 Description de l'appareillage
 - 2.3.3.2 Observations

2.4 Analyses élémentaires des films de niobium par méthodes nucléaires

- 2.4.1 Diffusion dans les solides
- 2.4.2 Les échantillons
- 2.4.3 Méthodes nucléaires d'analyses
 - 2.4.3.1 RBS
 - 2.4.3.2 NRS
- 2.4.4 Dispositif expérimental
- 2.4.5 Analyses RBS de l'interdiffusion cuivre niobium
- 2.4.6 Etude des impuretés légères des films de niobium par NRS

Les dépôts de niobium sur cuivre sont réalisés par pulvérisation cathodique. Il existe une littérature abondante sur cette technique, découverte en 1852 par Grove et en 1858 par Plucker mais développée à partir des travaux de Holland et Sidall en 1953 qui en ont défini les conditions expérimentales générales^[1].

Dans une première partie, nous rappellerons les mécanismes physiques intervenant dans le processus de dépôt avant de présenter le banc de pulvérisation pour échantillons et de justifier le choix de conditions d'élaborations des couches minces de niobium.

Dans une deuxième partie, nous déterminerons l'influence de la température sur la croissance du film de niobium et le processus de diffusion du couple cuivre/niobium. Nous présenterons ainsi les analyses chimiques obtenues par méthodes nucléaires d'échantillons Nb/Cu élaborés à différentes températures et soumis à un traitement thermique.

2.1 La pulvérisation cathodique : technique et dispositif de dépôt

2.1.1 Mécanisme de pulvérisation

La pulvérisation cathodique fait partie des procédés de dépôt physiques en phase vapeur^{[2],[3]}. Elle résulte du bombardement par des ions de la cible constitutive du matériau à déposer. En heurtant la cathode les ions provoquent plusieurs bouleversements à l'échelle atomique (cf. Figure 2-1) :

→ l'éjection par effet mécanique d'une partie des atomes de la cible (principalement à l'état neutre). Lors de l'interaction ion solide, une énergie suffisante est communiquée à certains atomes de la cible pour briser les liaisons interatomiques et les éjecter de la cathode. La fonction de transfert d'énergie de cette collision binaire est de la forme :

$$\frac{E_i}{E_t} \approx \frac{4M_i M_t}{(M_i + M_t)^2} \quad (E\ 2-1)$$

Le nombre d'atomes éjectés N_a est proportionnel au nombre d'ions incidents N_i . Le rendement de pulvérisation est définie par le coefficient de pulvérisation $\eta = N_a/N_i$ en partie déterminé en fonction de l'énergie incidente E_i . L'ion incident d'énergie comprise entre 10^2 et 10^3 eV génère des cascades de collisions entre les atomes de la cible. η est alors proportionnel à la densité d'énergie déposé par unité de profondeur et par ion incident.

→ l'ionisation d'une partie des atomes de la cible accompagnée d'une émission d'électrons

secondaires

→ la transformation d'une partie de l'énergie cinétique de l'ion incident sous forme de chaleur, l'échauffement de la cathode favorisant l'émission thermoélectronique.

→ l'endommagement du matériau (déplacements d'atomes, création de lacunes...) par pénétration voire implantation de l'ion incident qui peut aussi être rétrodiffusé après une éventuelle neutralisation de sa charge électrique.

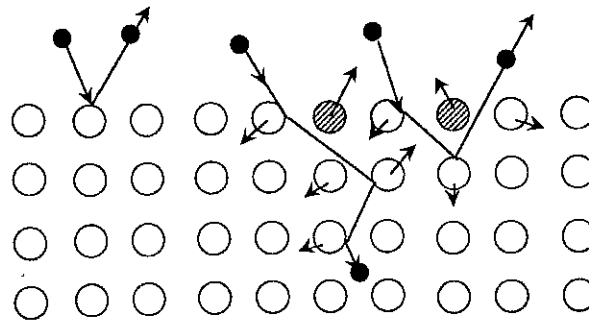


Figure 2-1 : Mécanismes résultant du bombardement d'un solide par des ions

La pulvérisation cathodique met en jeu (cf. Figure 2-2)

→ une cible fixée sur une électrode (la cathode) portée à une tension négative constante (pulvérisation continue) ou alternative (pulvérisation radiofréquence).

→ une seconde électrode (l'anode) généralement maintenue à la masse, et disposée à quelques centimètres de la cible solide.

→ un gaz noble (argon, krypton...) ou réactif (azote, oxygène..) ou un mélange des deux.

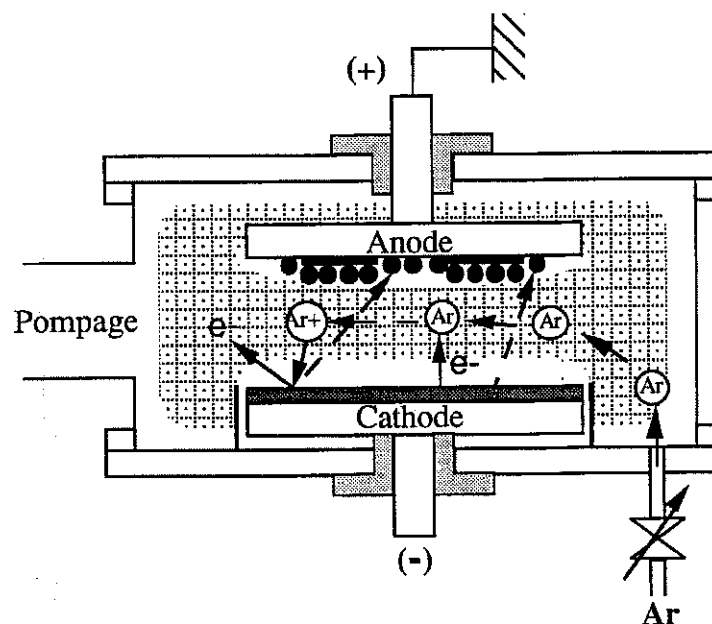


Figure 2-2 : Schéma de principe de la pulvérisation cathodique diode

2.1.2 Décharge luminescente

Les ions impliqués dans le processus de pulvérisation sont issus de l'ionisation des atomes et molécules du gaz introduit. Si la pression régnant dans l'enceinte est suffisante ($10^{-2} < P < 1 \text{ mbar}$), ce sont les électrons libres (venant de jauge d'ionisation, créés par le rayonnement cosmique, émis par la cathode...) qui amorcent par choc l'ionisation du gaz.

Les électrons produits et accélérés sont suffisamment énergétiques pour engendrer de nouvelles ionisations par collisions en cascade. Il y a création d'ions et d'électrons supplémentaires par effet multiplicateur.

Entre l'anode et la cathode, il s'établit un courant électrique : le gaz dont une portion des espèces est ionisée mais est électriquement neutre macroscopiquement devient conducteur. Il se définit comme le plasma de décharge. Le degré d'ionisation du plasma, rapport entre la densité d'ions positifs et la densité d'électrons et d'atomes neutres est voisin de 10^{-4} .

Il existe plusieurs types de plasma de décharge définis à partir de leur caractéristiques courant tension. Les plasmas luminescents utilisés pour la pulvérisation cathodique possèdent un courant et une tension élevés ($0,1 \text{ A} < I < 10 \text{ A}$ et $V > 100 \text{ V}$). Ils fonctionnent de manière autonome (aucun apport d'agent ionisant) et avec une grande stabilité même si des arcs peuvent parfois s'amorcer (points chauds, claquage...).

D'un point de vue spatial, le plasma luminescent utilisé pour les décharges continues de pulvérisation (faible distance interélectrode) est généralement composé de deux zones caractéristiques^[4] (cf. Figure 2-3).

- l'espace cathodique

C'est la région en contact direct avec la cathode où prend place l'essentiel de la chute de potentiel. Cette zone d'accélération s'étend sur 1 mm environ. Son épaisseur croît lorsque la pression diminue ou la tension appliquée augmente.

Les électrons émis de la cathode y sont fortement accélérés. Lorsqu'ils deviennent suffisamment énergétiques, ils ionisent les atomes lors des collisions ce qui provoque l'effet d'avalanche. Il y a peu d'émission de lumière, la plupart des électrons étant trop énergétiques pour se recombiner avec les ions.

- la lueur négative

A la lisière de la lueur négative, la diminution de la charge d'espace positive, limite l'accélération des électrons issus de la gaine cathodique. Les électrons rapides neutralisent ou

excitent les ions, ce qui provoque une luminosité intense, tandis que les électrons lents se thermalisent progressivement. Le plasma se polarise légèrement positivement jusqu'au niveau d'une gaine de charge d'espace ionique devant l'anode où il décroît jusqu'à s'annuler

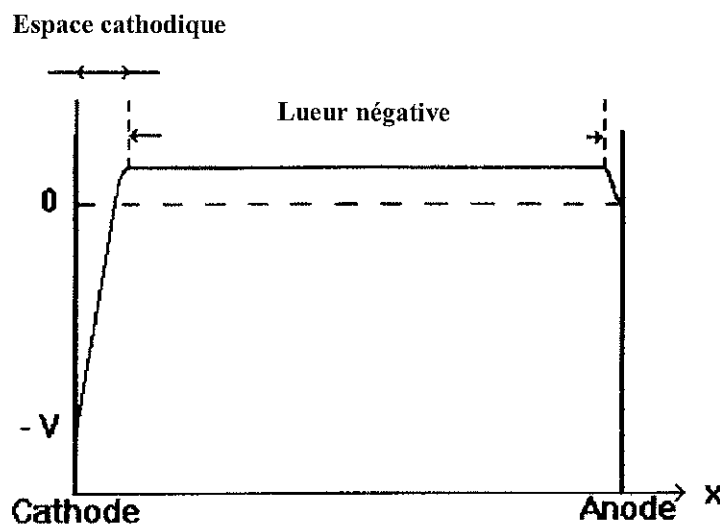


Figure 2-3 : Distribution de potentiel dans une décharge continue de faible distance interélectrode

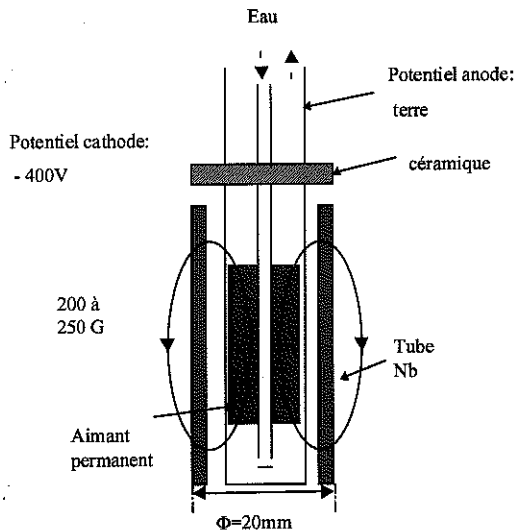
2.1.3 Cathode magnétron

La photographie de la cathode pendant un dépôt de niobium permet de visualiser les zones précitées (cf. Figure 2-4b). Notons qu'une zone dense de forte luminosité est concentrée à hauteur des lignes de champ magnétique produites par des aimants permanents placés dans la cathode magnétron (cf. Figure 2-4 a).

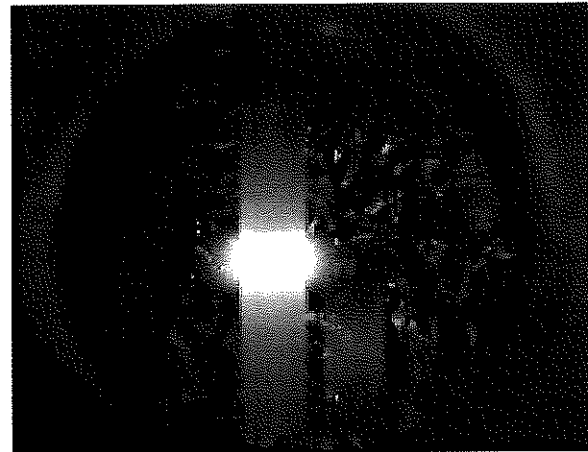
La pulvérisation magnétron est un perfectionnement de la pulvérisation diode classique. Comme le champ magnétique intense se superpose perpendiculairement au champ électrique, les électrons s'enroulent autour des lignes de champ magnétique (par effet de la force de Lorentz). En allongeant ainsi leur trajectoire, l'efficacité d'ionisation du gaz au voisinage de la cathode est considérablement augmentée.

Un plus grand nombre d'ions bombardant la surface de la cathode, il en résulte une augmentation de la quantité d'atomes éjectés donc de la vitesse de dépôt. Cela permet de minimiser le taux d'impuretés incorporées dans le film. De plus, la décharge luminescente peut être maintenue à des pressions de gaz nettement inférieures qu'auparavant. Ainsi, les couches minces obtenues sont de meilleure qualité (faible porosité, morphologie plus dense...).

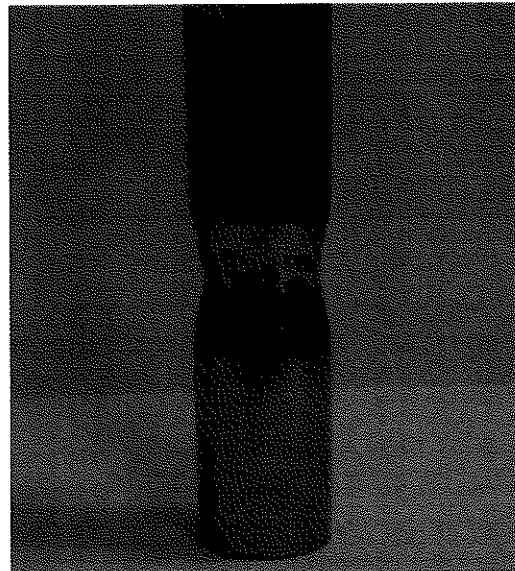
Après un certain nombre de dépôts, on enregistre une érosion non uniforme de la cathode, localisée au niveau de la zone dense de la décharge (cf. Figure 2-4 c).



a) schéma de la cathode magnétron



b) photographie de la cathode pendant un dépôt



c) cathode de niobium érodée

Figure 2-4 : La cathode magnétron

2.2 Elaboration des films de niobium

2.2.1 Bâti de pulvérisation

2.2.1.1 Description

Le dispositif de dépôt pour échantillons est principalement constitué d'une enceinte à vide, d'un système de pompage, d'une cathode magnétron mobile et de porte échantillons^[5] (cf. Figure 2-5).

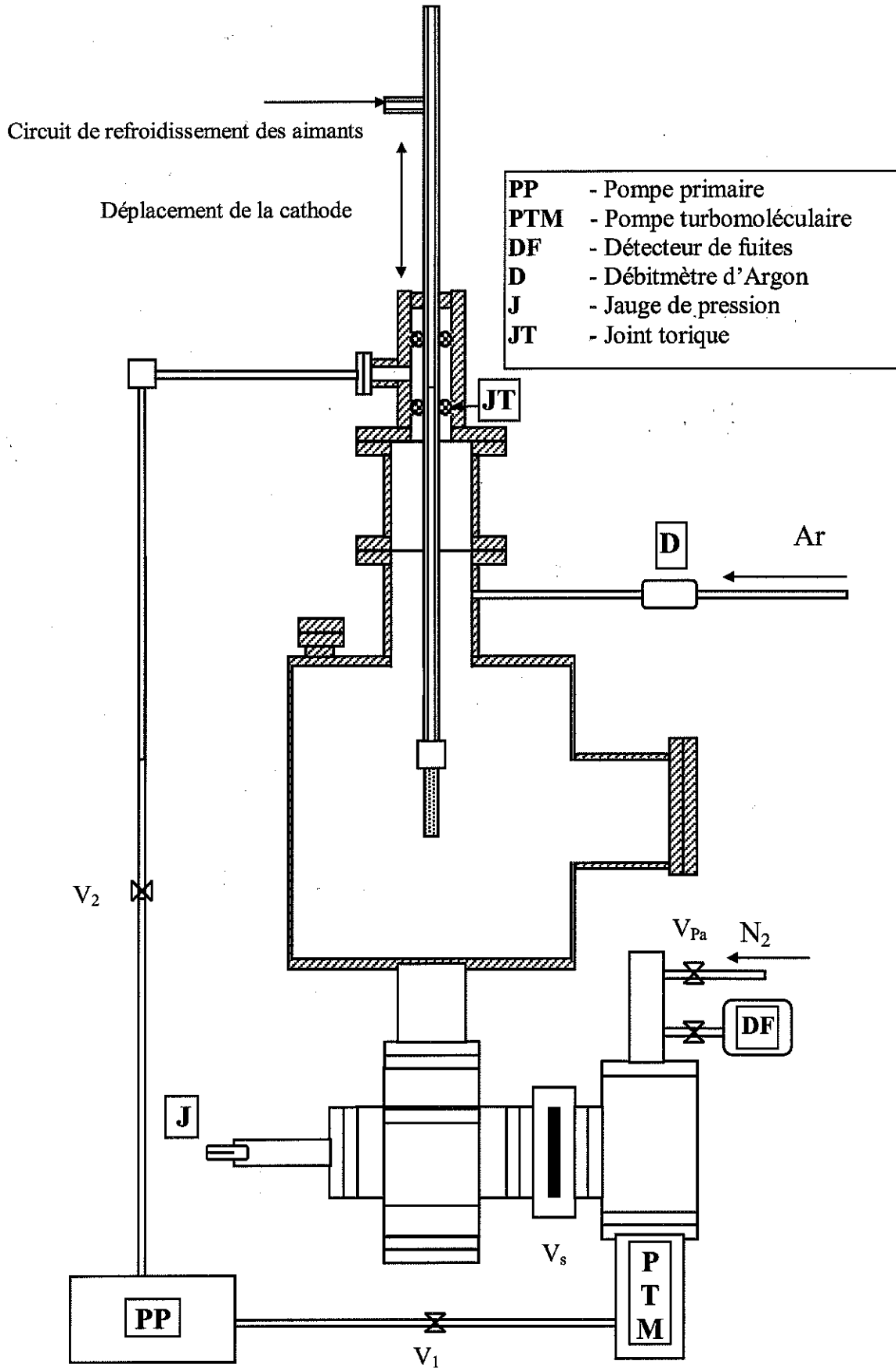


Figure 2-5 : Bâti de pulvérisation pour échantillon

L'enceinte à vide en acier inoxydable est un cylindre muni de deux piquages de 150mm de diamètre où sont fixés les bras porte échantillons ainsi que d'un hublot permettant d'observer le début du dépôt (cf. Figure 2-6). Le couvercle de l'enceinte de diamètre 200mm est démontable pour permettre le nettoyage de l'enceinte. La partie interne de l'enceinte est recouverte d'une feuille d'aluminium remplacée avant chaque dépôt pour éviter un nettoyage de l'enceinte. Un hublot permet d'observer la décharge pendant le premier quart d'heure de dépôt.

Le groupe de pompage est composé d'une pompe primaire de $12\text{m}^3/\text{h}$ associée à une pompe turbo moléculaire de 250l/s. La pompe primaire permet également de réaliser le vide entre les deux joints toriques qui permettent le déplacement vertical de la cathode et assurent l'isolement de l'intérieur de l'enceinte.

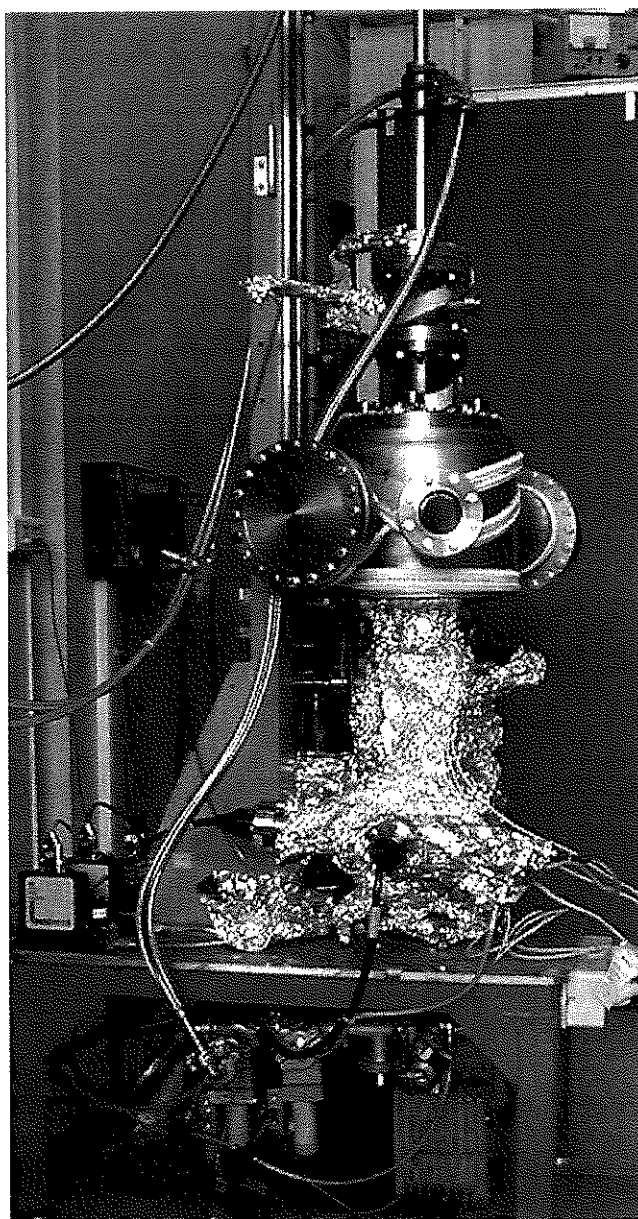


Figure 2-6 : Photographie du bâti de dépôt

L'étanchéité de l'enceinte est assurée par des joints en cuivre et les conduits de gaz disposant de vannes étuvables. L'ensemble du système est placé à 200°C au moyen de sangles chauffantes pendant le pompage pour accélérer la désorption des molécules d'eau sur les parois. Il reste principalement des molécules de H₂ difficilement pompé par la pompe turbo moléculaire, et CO et CO₂ dont la désorption est rapide au-delà de 400°C.

2.2.1.2 Portes échantillons

Nous avons utilisé deux types de porte échantillons au cours des différentes études (cf. Figure 2-7).

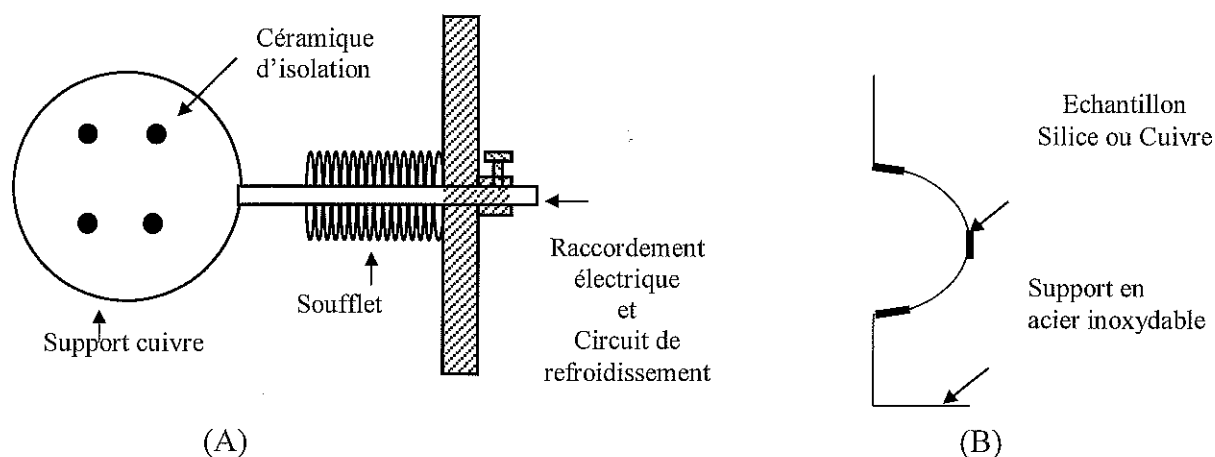


Figure 2-7 : Le porte échantillon disque (A) et le porte échantillon cellule (B)

Le porte échantillon disque (A) est employé pour la réalisation des disques Nb/Cu testés en hyperfréquences à 4 GHz et 5,6 GHz avec la cavité TE₀₁₁ à couvercle démontable (cf. chapitre 5). Il est disposé verticalement dans l'enceinte, à 80mm de la cathode soit la distance séparant l'équateur de la cellule d'une cavité 1,5 GHz et la cathode.

Avant un dépôt, le substrat peut subir un décapage ionique, phénomène identique à la pulvérisation. Isolé du disque support au moyen de quatre céramiques, l'échantillon est polarisé négativement. On introduit le gaz de décharge et la surface du substrat est bombardée ce qui permet de réduire l'empoussièrement de surface et de favoriser ainsi l'adhérence des couches et une croissance homogène (la cathode en position basse dans l'enceinte est protégée du flux de particules éjectées).

Le porte échantillon permet un relatif contrôle de la température de dépôt entre 20°C et 50°C grâce à une circulation d'eau dans la tige support. La mesure de température pendant le dépôt est effectuée au moyen d'un thermocouple.

Le porte échantillon B en acier inoxydable a été conçu pour réaliser des échantillons de petite dimension qui autorisent la mesure de certaines caractéristiques électriques du film. De forme identique à une cellule de cavité 1,5 GHz, il permet de comparer les films produits à l'équateur ou aux iris. Le système de fixation introduit une marche suffisante pour déterminer l'épaisseur du film et en déduire la vitesse de dépôt.

2.2.2 Paramètres de décharge

De nombreux paramètres interdépendants interviennent dans le procédé de dépôt par pulvérisation cathodique magnétron. Nous allons détailler le rôle de deux paramètres opératoires importants : la puissance appliquée à la cathode magnétron et la pression du gaz plasmagène.

• La puissance

Tous les dépôts ont été réalisés en régulant la puissance appliquée au magnétron, les paramètres tension et courant s'adaptant pour garder la puissance constante.

Le niveau de puissance appliquée au magnétron influe sur plusieurs facteurs : la vitesse de pulvérisation (donc la vitesse de dépôt), la température de la cathode non refroidie et du substrat, et la tension de décharge.

A basse puissance, l'intensité du courant de décharge est basse, la source principale d'électrons vient de l'émission secondaire par bombardement ionique de la cathode. Cela conduit à une tension de décharge assez élevée pour entretenir de la décharge. Cela peut favoriser l'implantation du gaz plasmagène dans la couche. En effet, les ions du plasma acquièrent une énergie cinétique d'autant plus grande que la tension est élevée dans l'espace cathodique et après leur impact sur la cathode et leur réflexion (voire neutralisation) ils peuvent garder l'énergie suffisante pour aller bombarder la couche en formation.

A forte puissance, la vitesse de dépôt est augmentée. Dans la zone d'érosion maximale, la cathode chauffe au-delà de 1500°C. Dans ce cas, le nouvel apport d'électrons par émission thermoélectronique rehausse la valeur du courant de décharge et permet d'abaisser la tension de décharge. La puissance rayonnée chauffe rapidement le substrat (cf. Figure 2-8).

L'ensemble de ces observations incite donc à travailler à forte puissance.

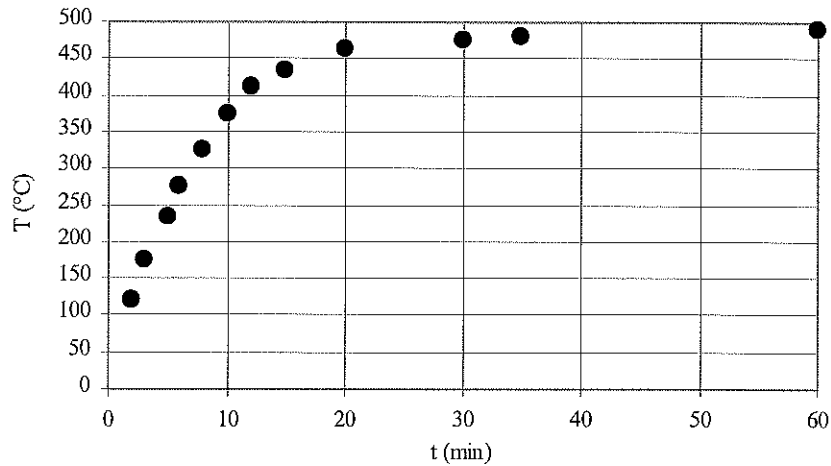


Figure 2-8 : Evolution de la température du substrat pendant un dépôt de Nb à 1000W

• La pression de gaz

La nature et la pression du gaz influent généralement sur la structure et la morphologie d'une couche mince et en particulier sur la composante intrinsèque des contraintes résiduelles^[6]. Ces contraintes mécaniques peuvent provoquer des effets indésirables sur l'adhérence des revêtements par microfissuration (contraintes en tension), ou décohésion de l'interface couche substrat (contraintes en compression). Dans le cas des dépôts de niobium, nous n'avons observé aucun de ces problèmes dans la gamme de pression étudiée.

Des gaz nobles tels que l'argon, le krypton ou le xénon^{[7],[8],[9]} sont employés pour la pulvérisation. Afin de poursuivre l'optimisation des conditions de dépôts, nous avons choisi le gaz argon déjà utilisé au SEA.

La pression influe sur la valeur du libre parcours moyen des particules pulvérisées ou du gaz.

A basse pression, les couches minces générées sont plus denses car les atomes pulvérisés sont énergétiques (peu de collisions). Cependant, on peut craindre l'implantation dans le dépôt des atomes de gaz rétrodiffusés sur la cathode. Néanmoins, si les dépôts de niobium sont élaborés au-delà $T > 300^\circ\text{C}$, le taux d'argon incorporé dans la couche est réduit^{[10],[11]}.

A forte pression, les atomes sont rapidement thermalisés ce qui conduit à la formation de couches poreuses.

Il semble donc préférable d'opérer à des pressions relativement basses.

2.3 Caractérisations des films de niobium

2.3.1 RRR

2.3.1.1 Définition

En vue d'améliorer la qualité des films produits, nous avons réalisé des échantillons Nb/SiO₂ avec des paramètres opératoires différents. Le dépôt sur un substrat isolant permet de recourir aisément à des caractérisations électriques couramment utilisées pour qualifier le niobium massif ou en couches minces.

Il s'agit ainsi de déterminer la transition supraconductrice ainsi que le rapport résistif résiduel (RRR) du film de niobium.

Le RRR d'un matériau se définit comme le rapport entre la résistivité électrique à une température ambiante fixée (ρ_{amb}) et la résistivité électrique résiduelle à une température basse fixée (ρ_{basse}). Si le matériau est supraconducteur, cette dernière température est soit légèrement supérieure à la température critique, soit inférieure si l'on impose un champ magnétique supérieure au champ magnétique critique.

En appliquant la règle dite de Matthiessen (additivité des contributions résistives d'un métal), la résistivité électrique $\rho(T)$ du niobium à l'état normal est donnée par l'expression suivante :

$$\rho(T) = \rho_{ph}(T) + \rho_{def} \quad (E\ 2-2)$$

Les différentes contributions à $\rho(T)$ sont respectivement dues à la diffusion des électrons libres par les phonons (ρ_{ph}) et par l'ensemble des défauts internes du matériau (ρ_{def}) : les impuretés (O,C,N,H,Ta,W..), les dislocations et autres défauts ponctuels ainsi que les joints de grains. La diffusion par la surface limitant le volume est négligé, l'échantillon étant de grande taille.

La contribution des phonons à la résistivité électrique du niobium à 300K et 10K est respectivement égale à $1,46 \cdot 10^{-7} \Omega m$ et $5,810^{-11} \Omega m$ ^[12]. A 300K, cette contribution domine largement les autres phénomènes : $\rho(300K) \approx \rho_{ph}(300K)$

A basse température ($T < 30$ K), la résistivité électrique du niobium à l'état normal, est dominée par la contribution des défauts. La résistivité étant inversement proportionnelle au libre parcours moyen électronique selon le modèle de Drude, elle se trouve reliée au libre parcours moyen associé aux défauts l_{def} . On obtient donc :

$$RRR \approx \frac{\rho_{ph}(300K)}{\rho_{imp}(10K)} \propto l_{def} \quad (E\ 2-3)$$

La valeur du RRR est un bon indicateur de qualité du film puisqu'il permet d'évaluer le libre parcours moyen électronique associé aux défauts. Du fait de la nature fortement polycristalline des couches minces, il semble que les joints de grains et autres défauts prennent une part importante dans la résistivité ^{[13],[14],[15],[16]}

Mesurer le RRR au lieu d'une résistivité permet une indépendance vis à vis de la géométrie de l'échantillon. Notre méthode de mesure du RRR consiste à évaluer le rapport des tensions mesurées à 300K et à 10K à courant continu par la méthode des « quatre contacts »^[5].

Quatre électrodes parallèles sont pressées sur toute la largeur de l'échantillon, les contacts extérieurs imposant le courant constant et les contacts intérieurs servant à la mesure de la tension (de l'ordre de quelques μV). Cette méthode présente l'avantage d'être insensible à la qualité et à la géométrie des électrodes.

2.3.1.2 Mesure

Nous avons vu l'importance de la puissance appliquée au magnétron et de la pression de gaz choisie sur les caractéristiques d'une couche mince élaborée par pulvérisation magnétron. Pour optimiser les conditions de dépôts, nous avons mesuré le RRR d'échantillons Nb/SiO₂ élaborés dans des conditions différentes.

Le deuxième bâti de pulvérisation développé pour les cavités (cf. chapitre 6) a permis de simuler les conditions de dépôt des cavités. Deux échantillons ont été fixés sur un porte échantillon qui suit les contours internes de la cellule d'une cavité, l'un à l'équateur et l'autre au niveau de l'iris.

Nous avons réalisé 6 dépôts entre 500W et 1000W (la puissance maximale transmise par le générateur magnétron) en abaissant parallèlement la pression d'argon jusqu'au seuil minimal de stabilité de la décharge.

Les mesures de RRR sont présentées en Figure 2-9. Le RRR est d'autant plus grand que la puissance est élevée et la pression d'argon basse. Cette amélioration de la qualité des dépôts est plus sensible pour les échantillons situés à l'iris. Cela peut être attribué à une augmentation plus sensible de l'échauffement de l'échantillon qui est plus proche de la cathode.

Notons que la vitesse de dépôt v entre échantillons de même position évolue peu à partir de 700W ($v \sim 10 \text{Å/s}$). L'épaisseur des films est de l'ordre de $2 \mu\text{m}$.

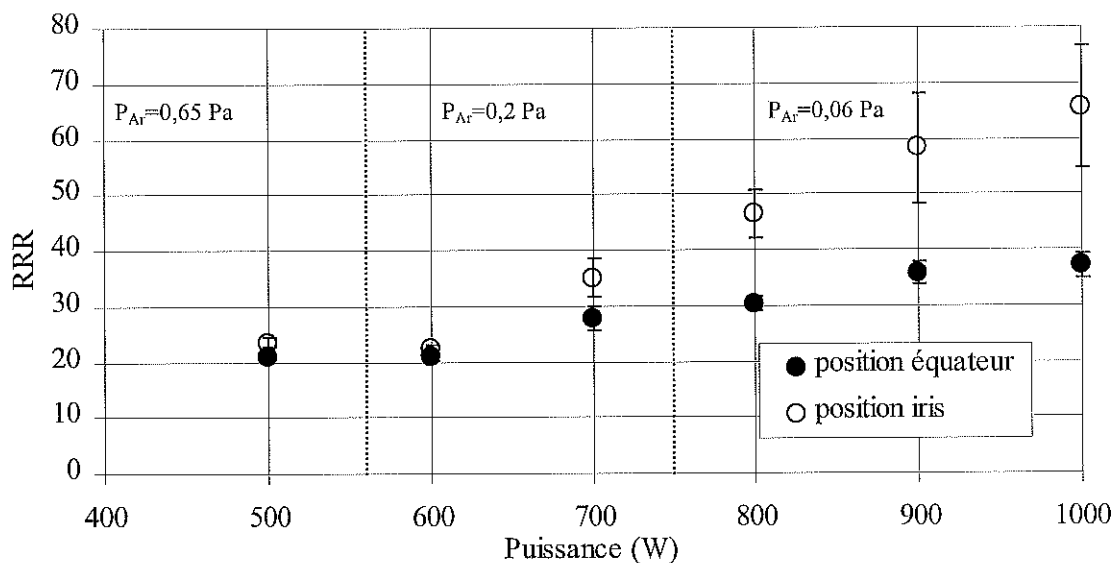


Figure 2-9 : Evolution du RRR d'échantillons Nb/SiO₂ en fonction de la puissance appliquée au magnétron et de la pression d'argon

Cette rapide étude concernant les paramètres opératoires de décharge nous a permis de fixer les nouvelles conditions de dépôt du niobium qui seront notamment appliquées lors de la fabrication des disques TE₀₁₁ Nb/Cu testés en hyper fréquences (cf. chapitre 5).

P _{ion} (10 ⁻² Pa)	P (W)	U (V)	I (A)	P _{ar} (10 ⁻² Pa)	t (min)
6	1000	300	3,3	6	60

Tableau 2-1 : Paramètres de dépôt

2.3.2 Microstructure des films

La microstructure du film de niobium (morphologie, caractéristiques cristallographiques...) peut jouer un rôle important sur ses propriétés en hyperfréquences.

Le processus de croissance d'une couche mince implique plusieurs phénomènes :

- le transport des atomes vers le substrat
- l'absorption de ces espèces par la surface
- leur diffusion le long de la surface
- leur incorporation dans la couche ou leur éjection de la surface par pulvérisation
- le mouvement éventuel des atomes de la couche jusqu'à leur position finale

Dans le cas des films produits par pulvérisation cathodique magnétron, les étapes de transport sont contrôlées par des paramètres comme la pression de travail ou la configuration expérimentale (position et orientation du substrat par rapport à la source...) tandis que les étapes de diffusion sont majoritairement contrôlées par la température du cuivre et le bombardement ionique pendant le dépôt si le substrat est soumis à une tension négative.

Pour caractériser la microstructure des dépôts métalliques, Thornton^[17] met en relation sous forme de diagramme la pression de gaz et la température relative du substrat, définie comme le rapport température du substrat et la température T_m de fusion du matériau déposé. Ce modèle structuré en quatre zones distinctes et inspiré des travaux de Movchan et Demchishin^[18], est un bon indicateur de la morphologie et la structure du dépôt (cf. Figure 2-10).

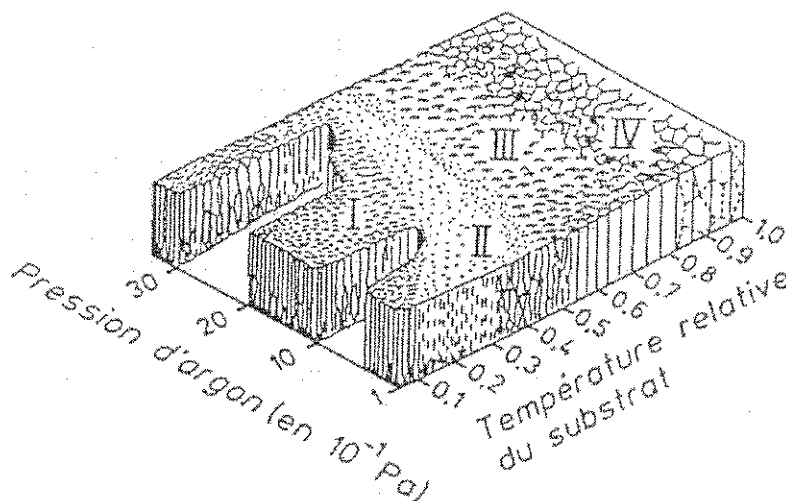


Figure 2-10 : Microstructure de films en fonction de la pression de travail et la température relative du substrat

• Zone I

La zone I définie approximativement par $T/T_m < 0,2$ correspond à des couches minces poreuse avec des grains allongés. Ces films contiennent une forte densité de défauts cristallographiques (réseaux de dislocations, lacunes).

• Zone II

Dans la zone II appelée zone de transition fibreuse apparaissent des films sans porosité dont les fines colonnes sont difficilement discernables entre elles. La compacité de la structure fibreuse confère aux dépôts de bonnes propriétés mécaniques.

Le passage de la frontière entre la zone I et II s'accompagne d'une transition souvent brutale de contraintes résiduelles de tension à des contraintes de compression.

• Zone III

Dans la zone III, la structure des films, formée de grains jointifs colonnaires traversant l'épaisseur du film, est dense. La densification du film vient du fait que la mobilité des atomes en surface augmente et ces derniers viennent combler les vides et se placer dans les zones d'ombres. La surface du film est plutôt lisse car les grains sont facettés en leur sommet. Cette morphologie intervient généralement pour des rapports T/T_m compris entre 0,5 et 0,8.

• Zone IV

Au-delà de $0,8T_m$, intervient le processus de recristallisation pendant le dépôt qui induit une structure dense composée de gros grains. Cette région est peu atteinte pour les métaux réfractaires comme le niobium.

2.3.3 Microscopie à force atomique

2.3.3.1 Description de l'appareillage

Le microscope à force atomique (AFM) permet d'obtenir une image à fort grossissement d'un échantillon à partir d'un relevé des profils de relief de sa surface. Les images ont été réalisées avec l'AFM du Laboratoire de Physique des Couches Minces de l'Institut d'Optique.

L'AFM mesure une force de contact (de type Van der Waals) entre une pointe monocristalline et la surface de l'échantillon. L'intensité de la force dépend fortement de la distance de la surface. La pointe mono cristalline -de forme très saillante pour limiter l'aire d'interaction- se situe en terminaison d'un cantilever. La force de contact est déterminée en mesurant la déflexion de ce cantilever lorsque la pointe entre en contact avec l'échantillon.

L'échantillon est posé sur un tube piézo-électrique pouvant se déplacer suivant les trois axes X, Y et Z. La pointe mono cristalline est amenée près de la surface à analyser.

Un ensemble laser et photo détecteur va détecter tout mouvement de cette pointe suivant l'axe Z, en liaison à un système d'asservissement qui va contrôler simultanément la position verticale du tube piézo-électrique pour que la pointe soit maintenue à la même hauteur.

Ensuite, un balayage de l'échantillon suivant les axes X et Y est réalisé. En enregistrant le signal du feedback, directement proportionnel au déplacement vertical du tube pour chaque position X et Y, on obtient une image de la surface.

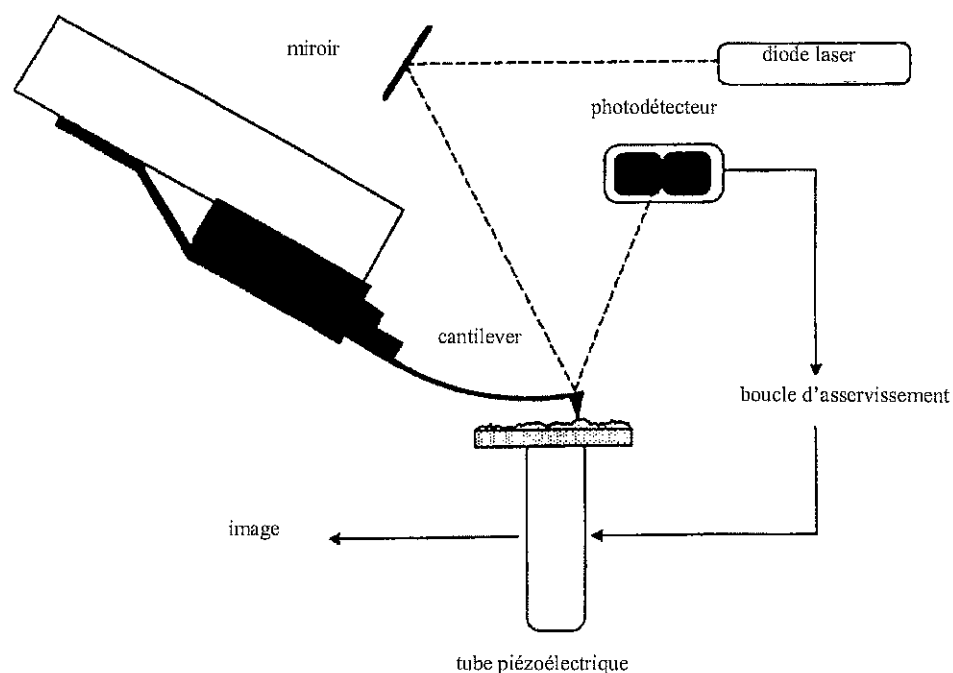


Figure 2-11 : Schéma de principe de l'AFM

2.3.3.2 Observations

L'étude cristallographique des couches de niobium a déjà été largement réalisée par diffractométrie X^[15]. Les films présentent généralement une texture d'axe de fibre perpendiculaire à la surface du substrat. Les plans atomiques les plus denses ($\{110\}$ pour la structure cubique centrée du niobium) s'orientent de préférence parallèlement à la surface du substrat.

Nous avons observé par AFM la surface des films de niobium qui voit l'onde HF. Nous avons essentiellement réalisé des images de films de Nb élaboré sur une surface peu rugueuse, qui conduit à une croissance typique^[19] des couches de niobium⁽¹⁾. A titre d'exemple, la Figure 2-12 correspond à l'image de la surface d'un échantillon Nb/Cu élaboré à 600W. Les grains sont allongés ($L \sim 0,1 \mu\text{m} \times l \sim 0,03 \mu\text{m}$) et plus ou moins aléatoirement orientés.

¹ La croissance des couches de niobium sur une surface accidentée est présentée au chapitre 5



Figure 2-12 : Image AFM de la surface d'un film de niobium (Taille $1 \times 1 \mu\text{m}$)

Pendant le dépôt d'une couche de niobium, si la partie externe de la cavité est en contact avec l'air ambiant la température du cuivre ne dépasse pas 150°C soit $0,16T_{\text{mNb}}$ ^[20]. En se plaçant à une pression de travail de l'ordre de 10^{-1}Pa , la morphologie déduite du diagramme de Thornton correspond à celle du début de la zone II. En augmentant la température du substrat pendant la pulvérisation pour favoriser la diffusion de surface nous pouvons obtenir des couches de niobium plus denses (voire des grains plus gros) et améliorer l'adhérence des films.

Mais chauffer le substrat pendant le dépôt comporte un risque majeur : la pollution de la couche par le cuivre (ou d'autres impuretés) qui affecterait les propriétés supraconductrices de la couche. Nous avons étudié par la suite l'effet de la température sur la diffusion du cuivre dans la couche (dans la limite de 800°C soit $0,4 T_{\text{mNb}}$ pour maintenir la rigidité du cuivre).

2.4 Analyses élémentaires des films de niobium par méthodes nucléaires

2.4.1 Diffusion dans les solides

Trois processus de diffusion peuvent intervenir dans les solides polycristallins et sont gouvernés par la température du matériau : la diffusion en surface, la diffusion via les joints de grains, la diffusion en volume^[21].

Chaque processus est caractérisé par un coefficient de diffusion D (en $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) obéissant à la loi d'Arrhénius :

$$D \propto e^{\left(-\frac{E_0}{RT}\right)} \quad (E\ 2-4)$$

où E_0 correspond à l'énergie d'activation (en cal/mole) nécessaire^[22].

Dans le domaine de température exploré ($0,1T_{mNb} < T < 0,4T_{mNb}$), les joints de grains du niobium sont les seuls sièges possible de migration du cuivre et autres impuretés dans l'épaisseur de la couche ^[23]. Régions hautement désordonnées de quelques couches atomiques d'épaisseur ($\delta=0,5$ à 1nm), les joints de grains peuvent intervenir comme de véritables courts circuits pour la diffusion du cuivre.

Le profil de diffusion au joint (diffusion latérale et le long du joint) est principalement caractérisé par le paramètre β défini par la relation :

$$\beta \approx \frac{\delta D_j}{2D_v \sqrt{D_v t}} \quad (E\ 2-5)$$

où t est la durée de diffusion

On peut introduire trois paramètres de diffusion : tels que ξ , extension latérale dans le volume, η qui traduit l'influence directe de la diffusion volumique ou l'épaisseur de diffusion e :

$$\xi = \frac{(y - \frac{\delta}{2})}{\sqrt{D_v t}}$$

$$\eta = \frac{z}{\sqrt{D_v t}} \quad (E\ 2-6)$$

$$e \approx \sqrt{D_j t}$$

Dans le cas d'une faible diffusion en volume, β est très grand, ξ limitée, η négligeable mais e peut être importante. Le profil de concentration est resserré le long du joint.

Dans l'hypothèse idéalisée d'un solide polycristallin doté d'une répartition en joints de grains uniformément espacés, le profil de concentration attendu est présenté en Figure 2-13.

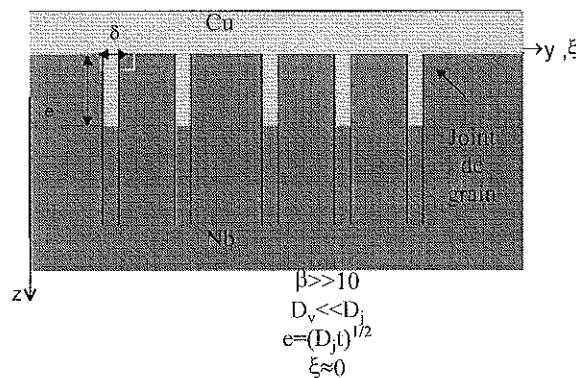


Figure 2-13 : Illustration schématique de diffusion via les joints de grains

La mesure du coefficient de diffusion D_j est délicate et n'est pas notre objectif. La solution exacte des équations de transport dans le milieu inhomogène que constitue le joint de grain n'a pas de forme analytique simple. A titre informatif, les solutions les plus célèbres ont été proposées par Fisher^[24], Whipple^[25] et Suzuoka^[26].

Les publications sur l'interdiffusion Cu/Nb sont peu nombreuses et contradictoires. Une première étude concerne l'influence des recuits sur des multicouches de Nb/Cu déposées sur silice à température ambiante^[27]. Les résultats obtenus par spectrométrie Auger indiquent qu'il n'y a pas de diffusion du cuivre dans le niobium pour $T_{\text{recuit}} \leq 800^\circ\text{C}$. D'autres travaux^[28] soulignent la diffusion du cuivre dans le niobium pour une température de dépôt $T_{\text{Cu}}=400^\circ\text{C}$. Toutefois la technique de pulvérisation HF employée et les paramètres opératoires diffèrent significativement des nôtres.

Ces divergences motivent la mise en place d'une nouvelle analyse de couches minces de niobium déposées sur substrat chauffé ou recuites ultérieurement.

2.4.2 Echantillons tests

Nous avons élaboré 5 échantillons Nb/Cu (notés A à E) accompagnés de 5 échantillons Nb/SiO₂ (1 à 5) pour étudier l'évolution du RRR en fonction des différents traitements thermiques.

Les substrats ont subi la même préparation de surface : dégraissage, polissage chimique du cuivre et mécanique de la silice, rinçage à l'eau ultrapure et séchage sous air filtré. Les films ont été déposés par pulvérisation cathodique magnétron à 600W sous une pression d'argon de 0,35 Pa pendant 10 minutes⁽²⁾. Cette durée de dépôt réduite a été choisie pour obtenir une bonne séparation des signaux Cu et Nb lors des analyses.

Les échantillons A et 1, placés sur un porte échantillon accolé à une cavité, ont été élaborés à 400°C en utilisant un dispositif de chauffage des parois externes de la cavité conçu au SEA.

Les autres échantillons ont été élaborés dans le bâti de pulvérisation pour échantillons. Après le dépôt à 50°C, les échantillons C à E et 3 à 5 placés dans une boîte en titane pour être protégés des impuretés résiduelles gazeuses, ont subi différents recuits sous vide respectivement à 400°C, 600°C et 800°C (cf. Tableau 2-2).

La durée du recuit (une heure) correspond à celle d'un dépôt dans une cellule. Avant chaque traitement thermique, la chambre à quartz du four est étuvée à 200°C puis la température est augmentée par paliers de façon à maintenir un vide inférieur à $5 \cdot 10^{-5}$ Pa.

² Il s'agit des conditions standards de pulvérisation utilisées avant l'optimisation des paramètres opératoires

Echantillon	n°	T _{DÉPÔT} (°C)	T _{RECUI} (°C)
Nb/Cu	A	400	-
Nb/Cu	B	50	-
Nb/Cu	C	50	400
Nb/Cu	D	50	600
Nb/Cu	E	50	800
Nb/SiO ₂	1	400	-
Nb/SiO ₂	2	50	-
Nb/SiO ₂	3	50	400
Nb/SiO ₂	4	50	600
Nb/SiO ₂	5	50	800

Tableau 2-2 :Présentation des échantillons

2.4.3 Méthodes nucléaires d'analyses

Pour étudier l'interdiffusion du cuivre avec le niobium et connaître la teneur en impuretés légères dans le film, nous avons analysé les échantillons par des méthodes nucléaires, en collaboration avec l'IPN de Lyon^[29]. Les profils de concentration en profondeur du cuivre et du niobium sont déterminés par rétrodiffusion élastique d'ions (RBS). Les teneurs en oxygène et en carbone sont établies par réaction nucléaire (NRS).

2.4.3.1 RBS

La spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford est une méthode d'analyse élémentaire, bien adaptée pour l'identification de surfaces ou les mesures de diffusion d'atomes dans des couches minces

La technique utilise les propriétés de la collision élastique des noyaux. Un faisceau mono énergétique d'ions rapides irradie la surface et pénètre dans l'échantillon. Certains ions diffusent élastiquement sur les noyaux des atomes présents. A partir de l'analyse des spectres des ces particules rétrodiffusées, on peut donc obtenir une identification des ions présents et également leur localisation sous la surface (profils de concentration en profondeur).

La détermination de profils en profondeur est aisée pour les éléments bien séparés de leurs voisins tels que le cuivre et le niobium. Pour suivre l'interdiffusion cuivre niobium sur une profondeur de 0,5µm avec une bonne sensibilité, nous avons donc décidé d'utiliser cette méthode d'analyse avec des ions ⁴He à 3 MeV.

2.4.3.2 NRS

La détection des produits de réactions nucléaires à des fins d'analyse chimique remonte au début des années 1960. Le principal champ d'application de cette méthode est l'analyse superficielle.

Dans le cas de la RBS, la diffusion est un phénomène dû uniquement à la charge électrique des noyaux. Les noyaux restent éloignés les uns des autres et ne s'interpénètrent pas.

Dans le cas de la NRS, du fait de l'énergie cinétique plus élevée, la barrière coulombienne est franchie et l'on a une véritable réaction nucléaire sur l'élément à analyser. Cette réaction produit l'émission d'une particule dont l'énergie à un angle θ et pour une énergie E_1 définie de la particule incidente, est caractéristique. La mesure de cette énergie conduit à l'identification de l'élément analysé, le nombre de particules détectées ayant cette énergie permet l'analyse quantitative.

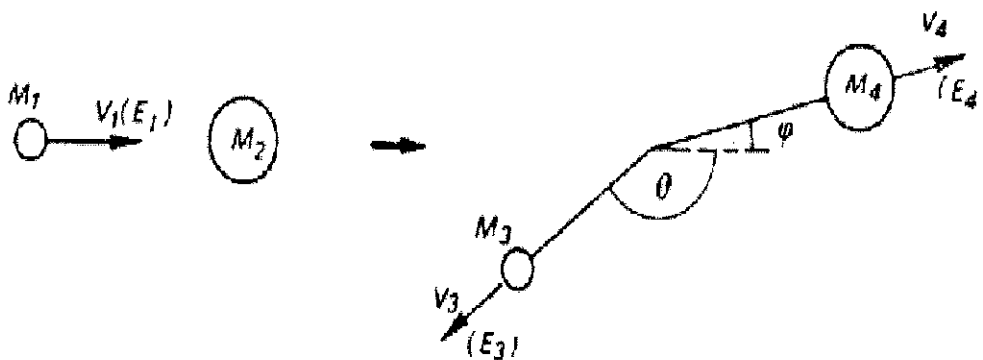


Figure 2-14 : Collision intervenant dans la NRS

Nous utiliserons ${}^4\text{He}$ comme particule incidente à 7,5 MeV pour détecter le carbone et l'oxygène. Dans le cas de C et O, le phénomène reste élastique.

2.4.4 Dispositif expérimental

Les deux méthodes de mesures s'appuient sur l'utilisation d'un même appareillage qui se décompose en 3 unités distinctes : la production du faisceau, la chambre d'analyse et le traitement électronique.

1) La production du faisceau

Un accélérateur Van der Graaf est équipé d'une source d'ions multichargés portés à un potentiel positif élevé de 4MV. Ces ions sont accélérés suivant leur degré d'ionisation (essentiellement 1 et 2) dans un tube sous vide.

A la sortie de l'accélérateur, intervient un système de guidage et de sélection du faisceau (électroaimant, lèvres de tri, ligne de quadripôles). Il permet d'une part de redresser le faisceau et de le focaliser sur la cible du matériau à analyser (impact de l'ordre du mm^2) et d'autre part de le purifier pour obtenir un faisceau d'ions d'énergie E précisément définie (résolution $\Delta E/E < 10^{-3}$).

Pour prévenir les contaminations provenant de l'accélérateur, un piège tubulaire rempli d'azote est interposé entre la ligne de faisceau et la chambre d'analyse

2) La chambre d'analyse

La chambre d'analyse dispose d'un système de pompage cryogénique assurant un vide de 10^{-8} Pa. Le support de la cible est entouré d'un manchon refroidi à l'azote liquide afin de piéger les hydrocarbures résiduels (cf. Figure 2-15).

Le porte-cible, orienté suivant la direction du faisceau de particules, est isolé et associé à un intégrateur de courant afin de mesurer le flux de particules incidentes. Pendant ces mesures, l'échantillon est à température ambiante.

La détection des particules rétrodiffusées est effectuée grâce à un détecteur en silicium, comprenant une diode à ions implantés de faible courant de fuite (quelques nA de résolution en énergie de 12keV. Il est fixé au plus proche de 180° (172°) par rapport à la direction incidente ce qui permet une sélectivité en masse maximale.

Dans ce détecteur, il existe une zone sans porteur de charge. Quand une particule arrive dans cette zone, elle perd une partie de son énergie ce qui fait passer les ions du silicium dans la bande de conduction. Au niveau d'une électrode positive, les électrons sont collectés. On compte ainsi les impulsions ou coups dus aux chocs énergétiques.

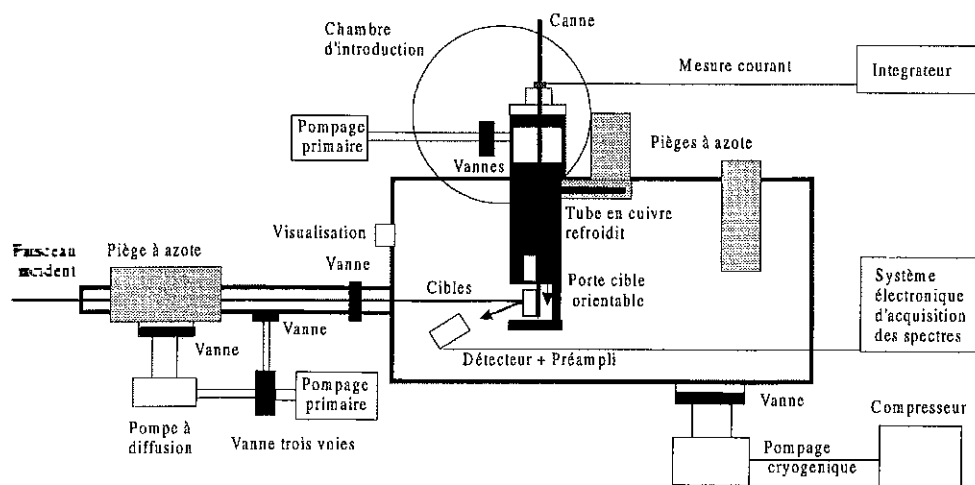


Figure 2-15 : Schéma de la chambre d'analyse

3) Le traitement électronique

Derrière la capacité de liaison, un préamplificateur sous vide (PA) permet la sortie du signal sous faible impédance. Ensuite, un amplificateur met en forme l'impulsion et un filtrage optimise le rapport signal sur bruit.

Le signal de sortie de forme gaussienne a une amplitude entre 0 et 8V proportionnelle à l'énergie laissée dans le détecteur. Un convertisseur analogique numérique classe les impulsions en amplitude.

Le spectre en énergie est traité avec un logiciel d'analyse pour retrouver le profil de concentration en profondeur de chaque élément présent dans l'échantillon. L'échantillon est découpé en couches élémentaires de faibles épaisseurs avec un pouvoir d'arrêt constant. Chaque couche est formée par les espèces atomiques dont les concentrations relatives sont à déterminer. L'analyse se fait par comparaison avec des spectres de simulation : on étalonne le spectre par envoi de particules d'énergies différentes. L'énergie de la particule incidente est fonction de la profondeur de l'impact avec la particule analysée.

2.4.5 Analyses RBS de l'interdiffusion cuivre niobium

Les spectres correspondent aux signaux des particules produites après impact des ions rétrodiffusés, signaux stockés par tranches d'énergie ou canaux. Pour obtenir des spectres normalisés et optimiser le temps d'analyse et la résolution en profondeur (30nm), nous avons compté 300 000 coups ($1,875 \cdot 10^{14}$ particules) pour chacun des spectres. La limite de détection est estimée à 1‰ atomique.

L'analyse des spectres RBS s'appuie sur deux principes simples. En premier lieu, l'énergie de rétrodiffusion est d'autant plus élevée que la masse du noyau heurté est élevée. En second lieu, les particules ayant effectué une collision en profondeur apparaîtront avec une énergie réduite en raison du freinage lors du trajet aller-retour dans la matière. La perte d'énergie de la particule observée sera également une mesure de la profondeur où se situe l'atome heurté.

Dans le cas d'un échantillon Nb/Cu, les particules sont rétrodiffusées sur les deux éléments. Le cuivre est un échantillon épais, le spectre résultant sera un long palier. Le niobium n'est présent que sur une petite couche en surface, son spectre sera donc un palier plus étroit et décalé vers les hautes énergies par rapport au cuivre car il est en surface. Les profils de concentrations sont ainsi déduits des spectres.

La Figure 2-16 montre le spectre global RBS correspondant à l'échantillon B non recuit.

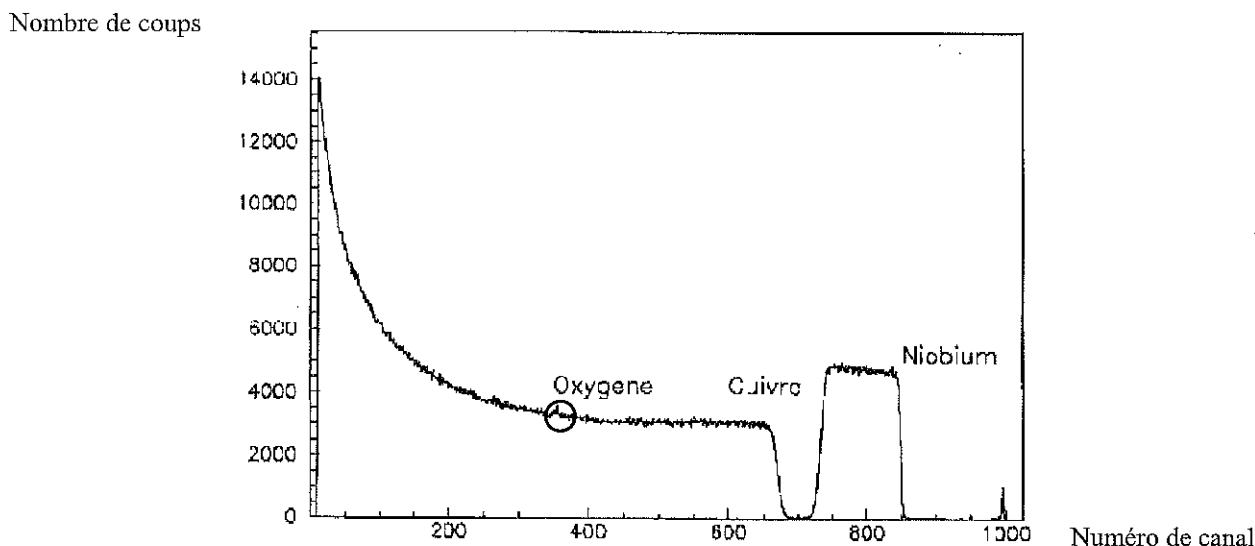


Figure 2-16 : Spectre global RBS de l'échantillon non recuit B

Entre les canaux 650 et 750, le signal du niobium chute verticalement jusqu'à zéro tandis que le signal du cuivre débutant à zéro augmente brutalement. Il n'y a donc pas de diffusion du cuivre dans la masse du niobium, et l'interdiffusion à l'interface est faible (80nm). Au canal 845, le pic de niobium a une forme arrondie diagnostiquant une contamination de surface. Un petit pic situé au canal 354 précise la présence d'oxygène sous forme d'eau ou d'oxyde de niobium.

Les spectres des échantillons C et A respectivement recuit ou élaboré à 400°C sont très semblables au spectre de référence (cf. Figure 2-17).

Lorsque la température de recuit s'élève à 600°C, une légère augmentation de l'épaisseur d'interdiffusion apparaît. A 800°C, on peut remarquer que le signal de niobium n'atteint pas la ligne de base : l'interdiffusion augmente encore (cf. Figure 2-18).

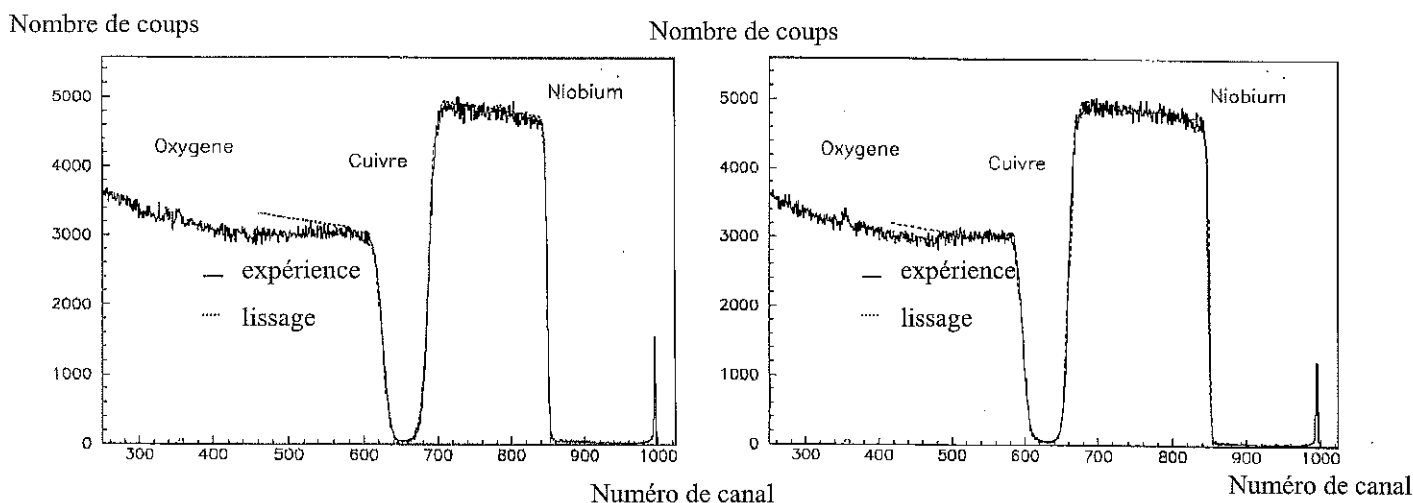


Figure 2-17 : Spectre RBS de l'échantillon C (à gauche) et A (à droite)

Nombre de coups

Nombre de coups

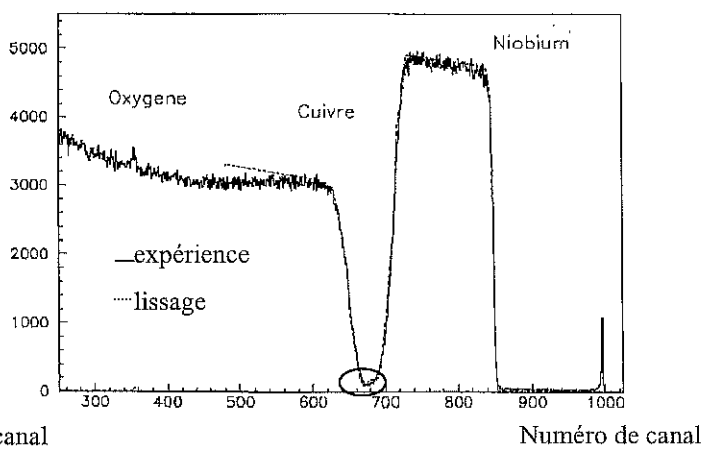
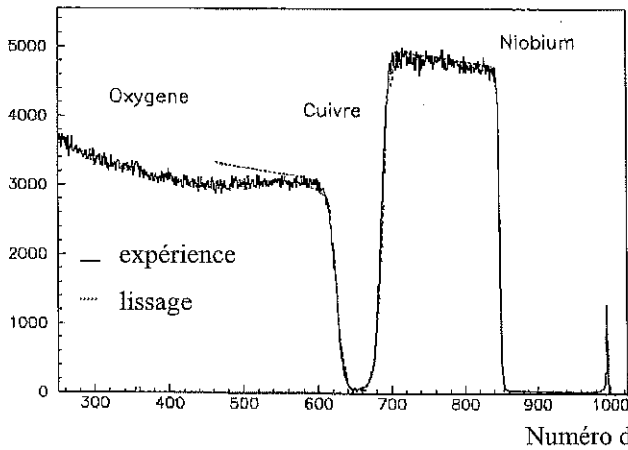


Figure 2-18 : Spectre RBS de l'échantillon D (à gauche) et E (à droite)

Pour l'ensemble des échantillons, les analyses par RBS montrent qu'il n'y a pas de diffusion significative du cuivre dans le niobium soit au-delà de la limite de détection globale par couche élémentaire analysée (1‰).

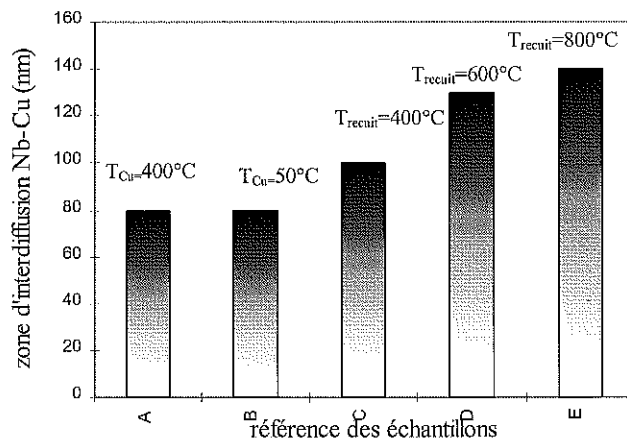


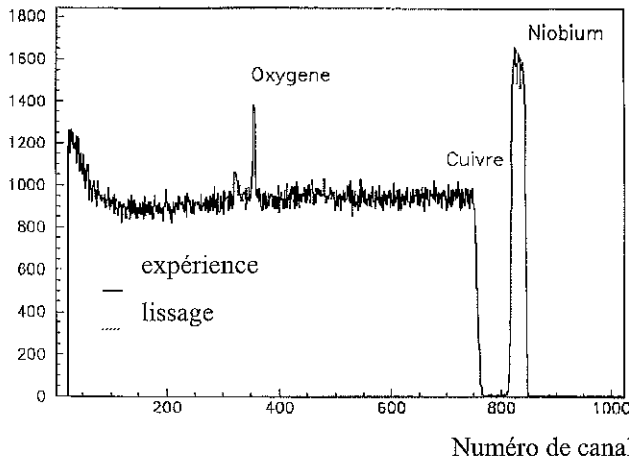
Figure 2-19 : Evolution de l'interdiffusion Nb-Cu

2.4.6 Etude des impuretés légères des films de niobium par NRS

La spectrométrie par méthodes nucléaires permet de déterminer la concentration en impuretés légères telles que l'oxygène et le carbone dans les films de niobium. La limite de détection est d'environ 0,3% atomique en oxygène et est inférieure à 1% atomique en carbone.

Sur le spectre NRS de l'échantillon B non recuit, on remarque deux pics de taille différente (cf. Figure 2-20).

Nombre de coups



Nombre de coups

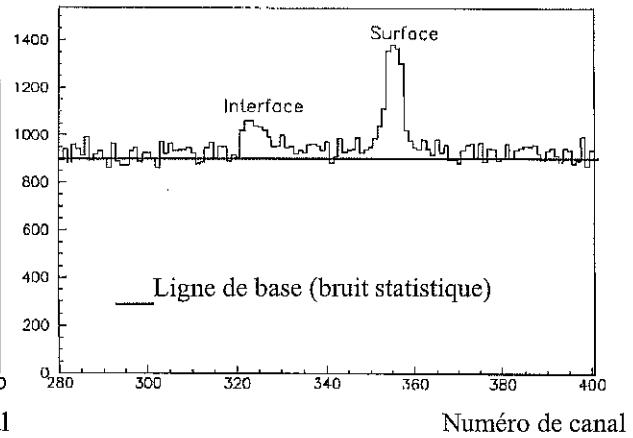


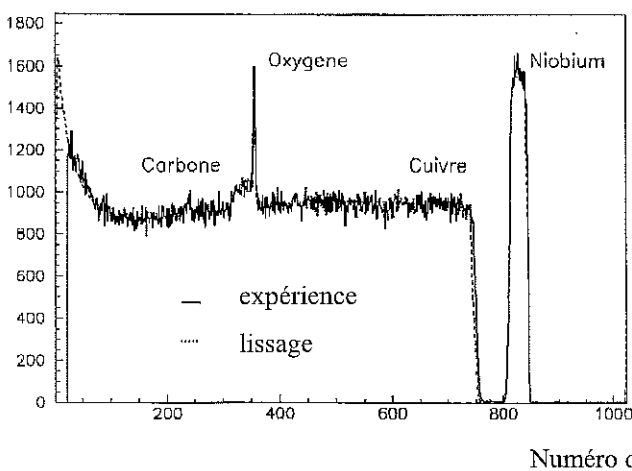
Figure 2-20 : Spectre NRS global (à gauche) et tronquée (à droite) de l'échantillon B

Le pic de plus faible intensité, centré au canal 300, met en évidence la présence d'oxygène à l'interface Nb/Cu, sur une épaisseur inférieure ou égale à 90nm, et attribué à l'adsorption de gaz résiduel avant le dépôt ainsi qu'à l'oxydation du cuivre. Le pic le plus important, centré sur le canal 354, correspond à l'oxydation en surface du niobium sur une épaisseur de l'ordre de 30 nm. Ces deux pics sont étroits : il n'y a pas d'oxygène détecté dans le volume (<0,3% atomique) . Il n'y a également pas de traces de carbone dans la couche de niobium.

Tous les échantillons recuits contiennent plus de 0,5% d'oxygène dans la masse. A 800°C, le pic d'oxygène interfacial disparaît par mécanisme de diffusion (cf. Figure 2-21).

Des traces de carbone sont également détectées.

Nombre de coups



Nombre de coups

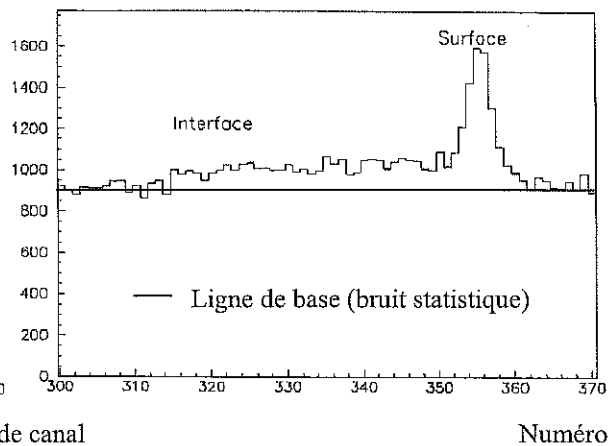


Figure 2-21 : Spectre NRS global (à gauche) et tronquée (à droite) de l'échantillon E

Nous avons mesuré la température critique et le RRR des échantillons Nb/SiO₂ avant et après les mêmes traitements thermiques que les échantillons C D et E (cf. Tableau 2-3).

Echantillon	T _{RECUI} (°C)	RRR		T _c (°C)	
		Avant recuit	Après recuit	Avant recuit	Après recuit
3	400	4,3±0,04	4,07±0,03	9,2	9
4	600	4,3±0,03	3,8±0,03	9,2	8,7
5	800	-	2,25±0,1	-	7,3

Tableau 2-3 : Température critique et RRR mesurés sur échantillons Nb/SiO₂

La dégradation de la température critique et du RRR après les différents recuits confirme la pollution en oxygène des échantillons.

Le spectre de l'échantillon élaboré à 400°C diffère de ceux des échantillons recuits. (cf. Figure 2-22).

Nombre de coups

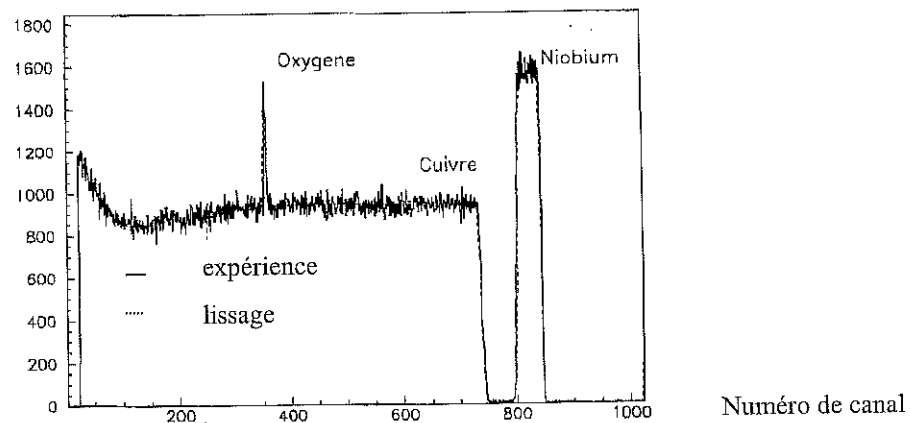


Figure 2-22 : Spectre NRS global de l'échantillon A

Il existe un seul pic très étroit correspondant à la présence d'oxygène surfacique. On en déduit d'une part qu'il n'y a pas diffusion d'oxygène ni de carbone dans la couche (dans les limites respectives de 0,3% atomique et 1% atomique). D'autre part, il semble probable que le chauffage du substrat à 400°C avant le dépôt élimine les couches de gaz adsorbés (CO, CO₂) à la surface du cuivre. Les observations de la cavité après dépôt confirment également l'élimination de l'oxyde de cuivre.

L'échantillon Nb/SiO₂ élaboré à 400°C présente un RRR nettement plus élevé que l'échantillon non recuit préparé à 50°C (11 contre 4). Ceci confirme l'influence de la température du substrat sur la qualité du dépôt.

Ces résultats nous ont incité à réaliser l'ensemble des dépôts sur cavités à 400°C au lieu de 150°C (cf. chapitre 6).

Chapitre 3

Mesure de la résistance de surface d'échantillons supraconducteurs

3.1. Mesures de R_s avec la cavité TE_{011}

- 3.1.1. Rappels sur les cavités cylindriques
- 3.1.2. Modes de résonance
- 3.1.3. Dispositif expérimental
- 3.1.4. Mesures
- 3.1.5. Erreurs de mesures
 - 3.1.5.1. à $T=1,7K$
 - 3.1.5.2. à $T=4,2K$

3.2. Détermination de R_s par thermométrie sous vide

- 3.2.1. La thermométrie comme outil de diagnostic des pertes HF
- 3.2.2. Présentation de la thermométrie sous vide
- 3.2.3. La thermométrie sous vide associée à la cavité TE_{011}
 - 3.2.3.1. Principe
 - 3.2.3.2. Modélisation
 - 3.2.3.3. Isothermes
- 3.2.4. Profils de température
 - 3.2.4.1. à $T= 1,7K$
 - 3.2.4.2. à $T= 4,2K$
- 3.2.5. Interprétation des mesures
 - 3.2.5.1. à $T=1,7K$
 - 3.2.5.2. à $T=4,2K$
- 3.2.6. Bilan

La résistance de surface R_s caractérise les pertes HF d'un supraconducteur. Les cavités résonantes^[1] sont les dispositifs conventionnellement utilisés pour déterminer la dépendance en fréquence, en température ou en champ de la résistance de surface d'échantillons supraconducteurs. Une cavité destinée à ces tests est définie par :

- sa géométrie
- les modes résonnants exploités définissant la fréquence et la configuration des champs électromagnétiques
- l'emplacement et la géométrie de l'échantillon test
- la nature du matériau de fabrication (métal normal ou supraconducteur, diélectrique)

Les principales techniques de caractérisation HF employées pour qualifier un échantillon supraconducteur sont les suivantes : les résonateurs diélectriques, les résonateurs coaxiaux et microbandes ainsi que les cavités cylindriques à section circulaire. Les divers types de résonateurs sont présentés dans l'annexe II. Par ailleurs, les recherches portant sur l'amélioration des performances du niobium, ont conduit à la fabrication de petites cavités de la forme des cavités accélératrices TM_{010} résonant à 3 GHz^[2] ou 6 GHz^[3].

Pour caractériser en hyperfréquence des films supraconducteurs, nous disposons au SEA d'une cavité cylindrique TE_{011} à couvercle démontable. Nous allons rappeler les principales caractéristiques de cette cavité ainsi que la méthode de mesure de la résistance de surface R_s .

La mise en évidence de certaines limitations intrinsèques à cette méthode nous a conduit à déterminer R_s par thermométrie sous vide.

3.1. Mesures de R_s avec la cavité TE_{011}

3.1.1. Rappels sur les cavités cylindriques

Les cavités cylindriques à section circulaire présentent deux avantages : une certaine facilité de fabrication et la connaissance exacte de la distribution des champs électromagnétiques pour les différents modes TE_{mnp} ou TM_{mnp} .

Pippard a initié l'étude des propriétés HF de matériaux supraconducteurs au moyen d'une cavité résonante vers 1950^[4]. En 1963, des cavités en plomb massif puis en Pb/Cu fonctionnant

sur le mode TE_{011} à 3 GHz et à 2K ont été construites à l'IEF^[5] et ont atteint un facteur de surtension $Q_0=3 \cdot 10^9$. En 1968, des tests de cavités en niobium massif^[6] de type TM_{010} ($f=8,4$ GHz) ou TE_{011} ($f=11,2$ GHz) ont donné des Q_0 respectifs de $2 \cdot 10^9$ et $3,8 \cdot 10^9$.

Par la suite, les cavités TE_{011} composées de trois parties (corps cylindriques+fonds) ont été largement utilisées pour les caractérisations HF de supraconducteurs. Il y a deux façons de placer et de tester l'échantillon dans ces cavités.

La méthode de substitution consiste à remplacer l'un des fonds par l'échantillon à tester. Cette première méthode, utilisée au SEA, est décrite ultérieurement.

L'autre solution consiste à introduire l'échantillon à l'intérieur de la cavité dans la région où le champ électrique est maximal. Rubin et al^[7] ont mesuré par cette méthode de perturbation la R_s de céramiques et de monocristaux ($T_c \approx 100K$). Ils ont utilisé deux cavités : l'une en niobium massif à 6 GHz, la seconde en revêtement plomb à 9,5 GHz.

La plaque supérieure de chaque cavité est munie de deux ports de couplage (incident et transmis) avec des boucles (couplage inductif). Sur la plaque inférieure, est aménagé un trou central pour l'introduction de l'échantillon test. Ce dernier est fixé sur une tige cylindrique mobile en saphir permettant de régler et contrôler précisément sa position.

L'obtention de la R_s des échantillons est déduite de la comparaison des facteurs de qualité de la cavité en l'absence et avec l'échantillon. Par cette méthode, D.Chang a obtenu la courbe $R_s=f(T)$ d'oxydes de Tl-Ca-Ba-Cu de $0,5 \mu m$ d'épaisseur et de 15 à $20 mm^2$ de surface avec une résolution de $0,3 m\Omega$ ^[8].

3.1.2. Modes de résonance

Le résonateur cylindrique couramment appelé « cavité TE_{011} »^[9] par référence à son principal mode de fonctionnement a été construit dans notre laboratoire en 1988.

Elle permet de mesurer la résistance de surface de films supraconducteurs (Nb, (NbTi)N...) à 4 GHz (mode TE_{011}) et 5,6 GHz (mode TE_{012})^[10].

Par application des équations de Maxwell avec les conditions aux limites sur les parois métalliques, on obtient la distribution des champs électromagnétiques dans la cavité (hauteur h , rayon r_{cav}) qui se réduisent à trois composantes : les champs magnétiques H_r et H_z et le champ électrique E_θ (cf. Figure 3-1).

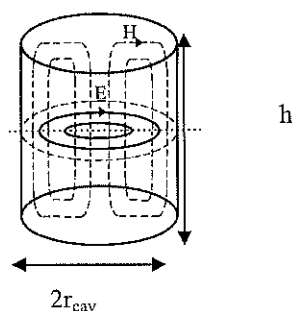


Figure 3-1 : Distribution des champs électromagnétiques pour le mode TE_{011}

Soit pour le mode TE_{011} de fréquence f_1 :

$$\begin{aligned}
 E_z &= jA_0 \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \frac{2\pi f_1}{c} \frac{\xi_{01}^1}{r_{cav}} J_1\left(\frac{\xi_{01}^1 r}{r_{cav}}\right) \sin\left(\frac{\pi}{h} z\right) \\
 H_z &= A_0 \left(\frac{\xi_{01}^1}{r_{cav}}\right)^2 \left(\frac{2\pi f_1}{c}\right)^2 J_0\left(\frac{\xi_{01}^1 r}{r_{cav}}\right) \sin\left(\frac{\pi}{h} z\right) \quad (E3-1) \\
 H_r &= A_0 \frac{2\pi f_1}{c} \frac{\xi_{01}^1}{r_{cav}} \frac{\pi}{h} J_1\left(\frac{\xi_{01}^1 r}{r_{cav}}\right) \cos\left(\frac{\pi}{h} z\right)
 \end{aligned}$$

Et pour le mode TE_{012} de fréquence f_2 :

$$\begin{aligned}
 E_z &= jA_0 \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \frac{2\pi f_2}{c} \frac{\xi_{01}^1}{r_{cav}} J_1\left(\frac{\xi_{01}^1 r}{r_{cav}}\right) \sin\left(\frac{2\pi}{h} z\right) \\
 H_z &= A_0 \left(\frac{\xi_{01}^1}{r_{cav}}\right)^2 \left(\frac{2\pi f_2}{c}\right)^2 J_0\left(\frac{\xi_{01}^1 r}{r_{cav}}\right) \sin\left(\frac{2\pi}{h} z\right) \quad (E3-2) \\
 H_r &= A_0 \frac{2\pi f_2}{c} \frac{\xi_{01}^1}{r_{cav}} \frac{2\pi}{h} J_1\left(\frac{\xi_{01}^1 r}{r_{cav}}\right) \cos\left(\frac{2\pi}{h} z\right)
 \end{aligned}$$

où J_0 et J_1 sont les fonctions de Bessel d'ordre 0 et 1 et ξ_{01}^1 correspond à la racine de J_1

Les composantes H_z et E_θ s'annulent en $z=0$ et $z=h$. Le champ magnétique de surface sur le disque se réduit à sa composante radiale et est homothétique d'un rapport deux entre le mode TE_{011} et TE_{012} . Il présente un maximum en $r_p=26,4$ mm pour notre cavité (cf. Figure 3-2).

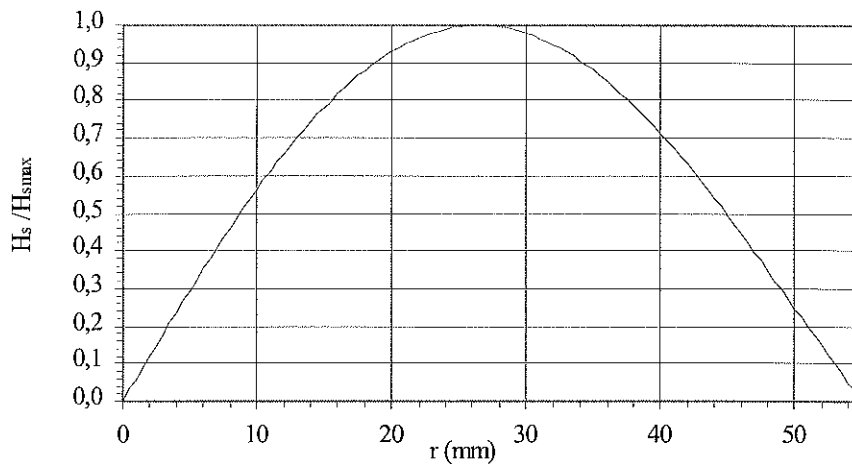


Figure 3-2 : Distribution radiale de H_s sur l'échantillon

La configuration des champs électromagnétiques associés aux modes de résonance TE utilisés présente des avantages majeurs :

- l'absence de phénomènes d'émission électronique par effet de champ du fait d'un champ électrique de surface nul sur toutes les parois
- l'absence de courant dans le plan de joint entre fond et cylindre permettant d'utiliser un fond démontable comme échantillon

3.1.3. Dispositif expérimental

La cavité TE₀₁₁ est composée (cf. Figure 3-3) :

- du couvercle supérieur démontable qui constitue l'échantillon à tester
- du corps cylindrique principal et du fond

Le disque test est soit en niobium massif (pour la calibration de référence) soit en cuivre recouvert d'un film supraconducteur de quelques microns. L'épaisseur de 3mm du disque est suffisante pour limiter les risques de déformations mécaniques lors de la mise sous vide. Le diamètre $\Phi=126$ mm de ce disque a été choisi pour permettre des observations de sa surface par microscopie électronique à balayage. L'étanchéité de la partie supérieure de la cavité est réalisée à l'aide d'un joint en indium ($\phi=0,8$ mm) inséré dans une gorge usinée sur le disque test.

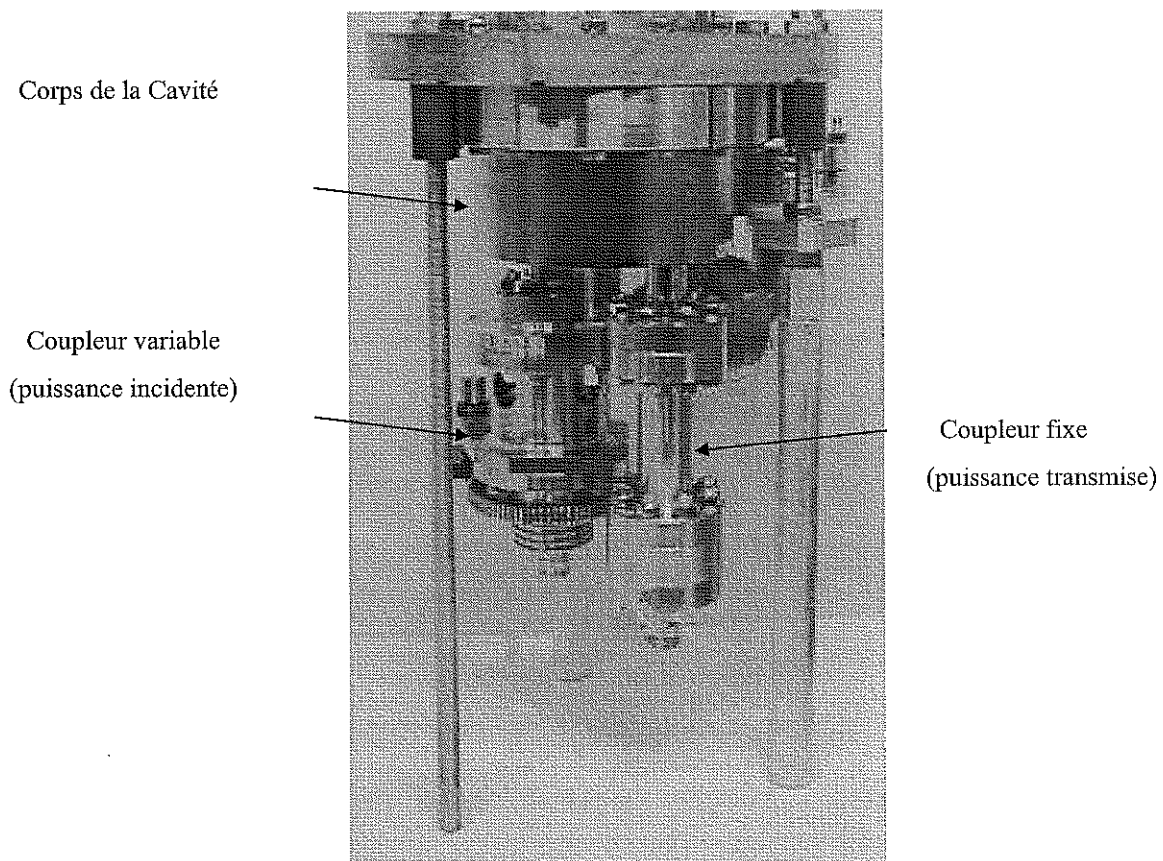


Figure 3-3 : La cavité TE_{011}

Le corps cylindrique ($h=66\text{mm}$) et le fond de la cavité ($\phi=110\text{ mm}$) sont en niobium de $RRR=180$. La cavité a subi un recuit de restauration (recristallisation) à 800°C pendant 2 heures. Une gorge périphérique usinée sur le fond fixe soudé par faisceau d'électrons au cylindre de la cavité permet la levée de dégénérescence entre les modes TM_{111} et TE_{011} .

Sur ce fond, trois piquages ($\phi=12\text{mm}$) ont été aménagés : le premier au centre pour le pompage et les deux autres pour placer les coupleurs à boucles de puissance HF incidente et transmise (cf. Figure 3-4). Le coupleur de puissance transmise est fixe, celui sur le port incident est variable avec une course de 25 mm afin de régler sa caractéristique Q_i entre 10^5 et $3 \cdot 10^{11}$.

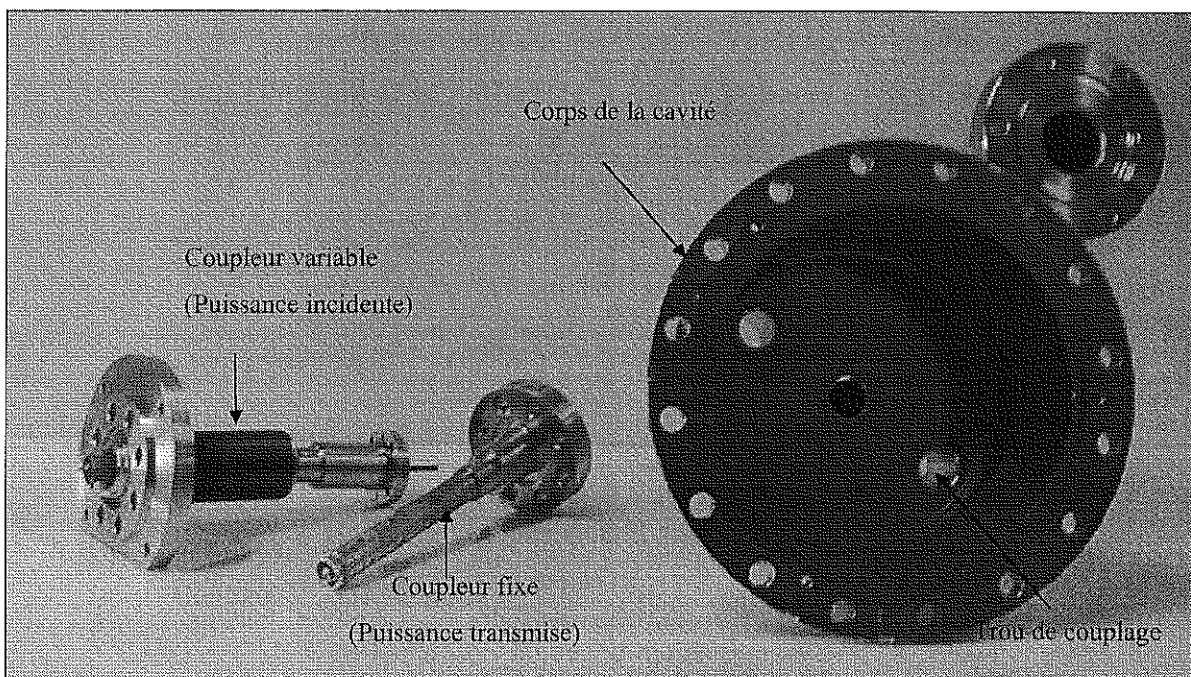


Figure 3-4 : Corps cylindrique et coupleurs de puissance de la cavité

La cavité fait l'objet d'une préparation de surface adaptée (traitement chimique, rinçage à l'eau ultra pure et séchage en salle blanche sous flux laminaire) de façon à éliminer les défauts de surface (fissures, inclusions...) et à limiter l'intrusion de corps étrangers (poussières, impuretés) lors du montage.

Préalablement à la mise en froid et aux tests, la cavité est connectée pendant plusieurs heures à un groupe de pompage (pompe primaire à palettes et pompe turbo moléculaire) afin d'atteindre un vide résiduel meilleur que 10^{-7} mb puis à une pompe ionique pour maintenir voire améliorer le vide. Ensuite, elle est montée sur l'insert d'un cryostat vertical blindé contre le champ magnétique terrestre. Il y règne un champ magnétique résiduel inférieur à 5 mG pour éviter un important piégeage de flux dans le supraconducteur pendant la mise en froid.

La température du bain est mesurée par une sonde Germanium calibrée type LakeShore®. Elle est contrôlée à mieux que $\pm 0,15$ mK pour $T_{\text{bain}} < 2,17$ K (pour des flux de chaleur inférieur à 1W) à l'aide d'une régulateur de la pression d'hélium vapeur

3.1.4. Mesures

La cavité TE_{011} permet de déterminer la courbe $R_s=f(T)$ entre 1,6K et 4,2K pour un champ magnétique fixé, ou la courbe $R_s=f(H_{s\text{max}})$ pour une température usuelle de 1,7K (bain d'hélium pompé) ou de 4,2K (bain d'hélium à la pression atmosphérique). $H_{s\text{max}}$ peut atteindre 500 Oe à 1,7K et 150 Oe à 4,2K.

En réchauffant lentement la cavité dans l'hélium gaz, il est également possible d'accéder à la valeur de la température critique T_c d'un dépôt autre que le niobium et à la profondeur de pénétration magnétique, en mesurant respectivement l'évolution du facteur de surtension et de la fréquence de résonance avec la température.

A 1,7K, on étudie principalement l'évolution de la résistance résiduelle des films de niobium ou du nitrure de niobium titane en fonction du champ magnétique appliqué. A cette température, R_{res} vaut typiquement de 50 à 500n Ω à 4,2GHz contre quelques n Ω pour R_{BCS} .

A 4,2K, la résistance de surface des dépôts de Nb est largement dominée par le terme R_{BCS} . Elle est voisine de 3500 n Ω à 4 GHz. Dans le cas du (NbTi)N, de température critique plus élevée ($T_c=17K$), la contribution de R_{BCS} est fortement dépendante des conditions de dépôts et a été estimé de l'ordre de 1000 n Ω à 4 GHz^[11], ce que semblent corroborer nos tests.

Le principe de la mesure de R_s de la cavité (corps+disque) est détaillée dans l'annexe III. Pour déterminer la R_s de l'échantillon on procède d'abord par une calibration; on mesure la R_s de la cavité avec un couvercle en niobium massif de RRR proche de celui de corps. En supposant celle-ci uniforme sur l'ensemble de la cavité, ceci permet de déduire la résistance de surface du corps. Ensuite, on détermine la R_s d'une cavité hybride (corps+disque dépôt à tester). Le remplacement du disque de référence par l'échantillon est effectué en salle blanche (classe 10) sous flux laminaire pour d'éviter de polluer la surface interne de la cavité par des poussières et des particules d'indium.

La valeur de la résistance de surface de l'échantillon est obtenue d'après la différence des pertes HF mesurées entre la cavité hybride et la cavité de référence en niobium. Les pertes HF étant additives, on retranche des pertes HF totales la contribution de la paroi cylindrique et du fond fixe.

Les valeurs respectives G_t , G_p et G_d des facteurs géométriques de l'ensemble, de la paroi cylindrique et du disque sont consignées dans le Tableau 3-1.

Mode	G_t	G_p	G_d
TE ₀₁₁	722	1283	3298
TE ₀₁₂	853	3507	2254

Tableau 3-1 : Facteurs géométriques(en Ω) pour les modes TE₀₁₁ et TE₀₁₂

On en déduit finalement la résistance de surface R_{sCM} du disque testé :

$$R_{sCM} = \frac{G_d}{G_c} R_{s_{hyb}} - \frac{G_d + G_p}{G_d G_p} R_{s_{Nb}} \quad (E 3-3)$$

$\left\{ \begin{array}{l} R_{s_{hyb}} \text{ la résistance de surface de la cavité hybride avec le disque « couche mince »} \\ R_{s_{Nb}} \text{ la résistance de surface de la cavité tout niobium} \end{array} \right.$

Soit :

Pour le mode TE_{011} : $R_{sCM} = 4,57 R_{s_{hyb}} - 3,57 R_{s_{Nb}}$ (E 3-4)

Pour le mode TE_{011} : $R_{sCM} = 2,643 R_{s_{hyb}} - 1,643 R_{s_{Nb}}$

Les mesures de résistance de surface typiquement effectuées sont présentées en Figure 3-5.

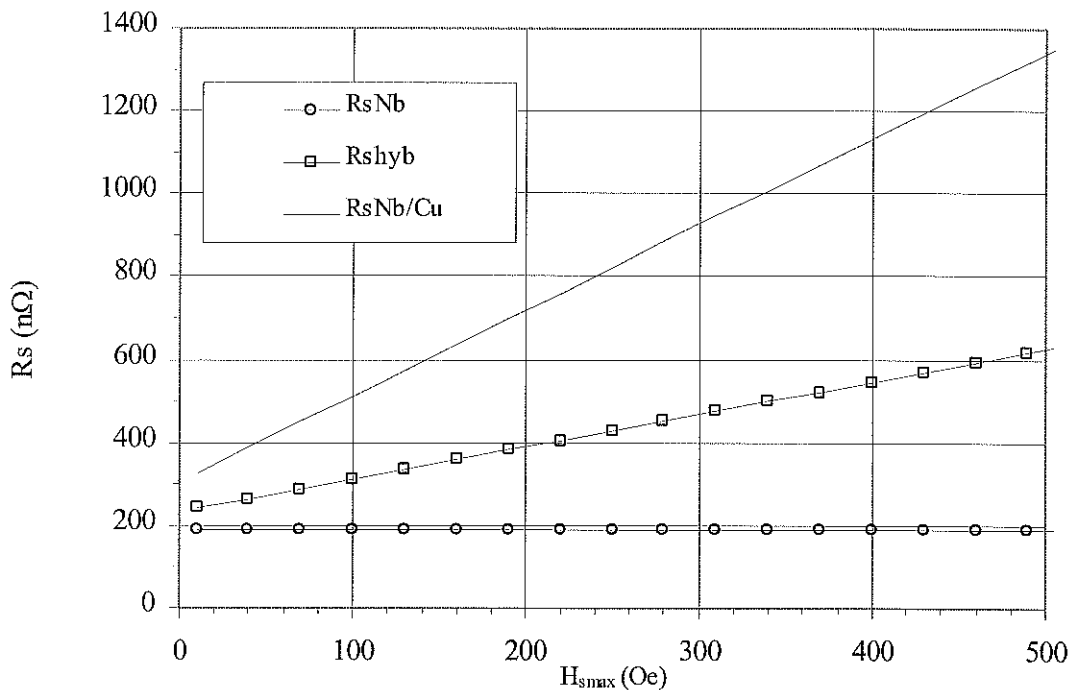


Figure 3-5 : Exemple de Mesures HF (mode TE_{012} , $T_{bain} = 1,7K$)

En toute rigueur, on devrait s'imposer de vérifier la résistance de surface référence de la cavité en niobium avant et après les mesures avec l'échantillon test. Mais la faible dispersion de la résistance de surface du niobium, observée après plusieurs montages et démontages successifs du disque Nb, nous permet d'espacer le calibrage de la cavité et de gagner ainsi du temps. Toutefois, la résistance de surface du niobium est vérifiée par prudence après deux ou trois tests.

3.1.5. Erreurs de mesures

3.1.5.1. à $T=1,7K$

A 4 GHz, et 5,6 GHz, les valeurs typiques de R_{sNb} sont respectivement 100 n Ω et 200 n Ω .

Deux sources d'erreurs interviennent sur R_{sNb} :

→ les incertitudes liées à l'appareillage

L'écart quadratique moyen relatif sur R_{sNb} (et R_{shyb}) a été estimé à 8% environ (1% lors de la calibration à bas champ) (cf. annexe III)

→ les incertitudes liées à l'appareillage tenant compte de l'éventuelle variation de R_{sNb} après plusieurs montages et démontages de la cavité.

Plusieurs calibrations de R_{sNb} séparées par des tests sur échantillons Nb/Cu donnent des valeurs assez proches (cf. Figure 3-6).

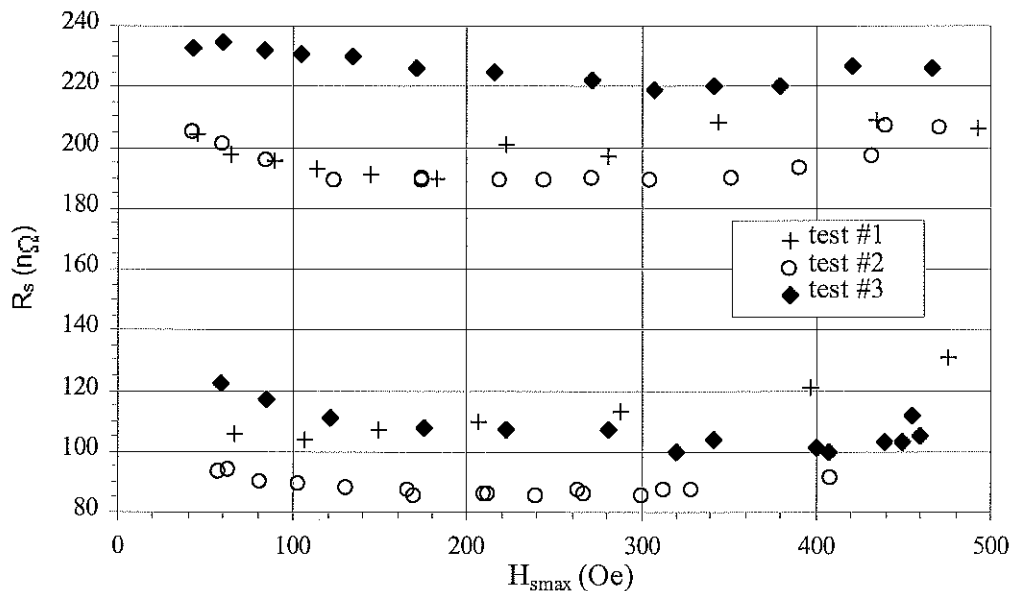


Figure 3-6 : Mesures de R_{sNb} après plusieurs démontages ($T=1,7K$, $f= 4$ et $5,6$ GHz)

On peut supposer globalement que :

$$\text{Pour le mode TE}_{011} : \Delta R_{sNb} = 12 \text{ n}\Omega \quad (E 3-5)$$

$$\text{Pour le mode TE}_{012} : \Delta R_{sNb} = 20 \text{ n}\Omega$$

L'incertitude sur R_{sCM} s'obtient simplement à partir de l'expression E3-4:

$$\text{Pour le mode TE}_{011} : \Delta R_{sCM} = 4,57 \Delta R_{shyb} + 3,57 \Delta R_{sNb} \quad (E 3-6)$$

$$\text{Pour le mode TE}_{012} : \Delta R_{sCM} = 2,643 \Delta R_{shyb} + 1,643 \Delta R_{sNb}$$

Les Tableaux 3-2 indiquent la valeur de $\sigma_{R_{sCM}}$ dans la fourchette de valeurs $R_{s_{hyb}}$ obtenues expérimentalement sur des disques Nb/Cu ou (NbTi)N/Cu et pour les valeurs précitées de R_{sNb} . La valeur minimale de $\sigma_{R_{sCM}}$ correspond à l'erreur lors de la calibration.

F=4 GHz			F=5,6 GHz		
$R_{s_{hyb}}(n\Omega)$	$R_{s_{CM}}(n\Omega)$	$\sigma_{R_{sCM}}(n\Omega)$	$R_{s_{hyb}}(n\Omega)$	$R_{s_{CM}}(n\Omega)$	$\sigma_{R_{sCM}}(n\Omega)$
100	100	45-55	200	200	35-55
120	190	45-60	300	470	35-70
150	330	45-70	400	730	35-90
200	560	45-85	500	990	35-110
300	1010	45-120	700	1500	40-150

Tableau 3-2 : Ecart quadratique moyen sur $R_{s_{CM}}$ à 1,7K

Plus les performances HF de l'échantillon s'améliorent, plus les erreurs de mesure augmentent. On notera que pour des faibles résistances résiduelles on se contente de ces estimations et que les courbes sont généralement présentées en échelle logarithmique.

3.1.5.2. à T=4,2K

A 4,2K la principale contribution à la résistance de surface du niobium est le terme R_{BCS} (cf. chapitre 1). La R_{BCS} du niobium massif est généralement supérieure à celle des films de niobium ou de nitrure de niobium titane. Par conséquent, on doit s'attendre à une grande incertitude de mesure de la R_s par la méthode HF à 4,2K.

A 4 GHz, et 5,6 GHz, les valeurs typiques de R_{sNb} sont respectivement 5700 n Ω et 10800 n Ω . De la même façon qu'à 1,7K, on a estimé l'incertitude globale sur la mesure de R_{sNb} :

$$\text{Pour le mode TE}_{011} : \Delta R_{sNb} = 600 \text{ n}\Omega \quad \text{pour } H_{smax} < 100 \text{ Oe} \quad (E\ 3-7)$$

$$\text{Pour le mode TE}_{012} : \Delta R_{sNb} = 1000 \text{ n}\Omega \quad \text{pour } H_{smax} < 100 \text{ Oe}$$

Ainsi, les erreurs de mesure sur $R_{s_{CM}}$ dépassent 1500n Ω à 4 GHz comme à 5,6 GHz. La méthode HF ne permet pas donc pas d'estimer correctement la résistance de surface à 4,2K.

Ces limitations de la technique HF classique ont motivé le développement d'une nouvelle méthode de mesure par thermométrie sous vide dont nous allons détailler le principe.

3.2. Détermination de R_s par thermométrie sous vide

3.2.1. La thermométrie comme outil de diagnostic des pertes HF

Tous les phénomènes à l'origine des pertes HF anormales dans les cavités supraconductrices - émission électronique par effet de champ, effet joule au niveau d'inclusions ou de défauts divers - se traduisent par une dissipation énergétique sous forme partielle ou totale de chaleur et par un échauffement local. C'est pourquoi la thermométrie utilisée depuis les années 1980 est un puissant outil de diagnostic des pertes HF anormales.

Le groupe GECS du SEA a développé avec l'IPN deux types de thermomètres dédiés aux mesures de température de surface de parois baignées dans l'hélium superfluide^[12]. Les premiers sont isolés de l'hélium par du STYCAST et les seconds mis sous vide. Ils sont fixes ou montés sur un bras rotatif. Avec ces dispositifs thermométriques ont été effectués les premiers relevés de température de disques TE_{011} supraconducteurs (Nb, NbTiN/Cu) qui ont permis de localiser des défauts^[13].

3.2.2. Présentation de la thermométrie sous vide

C. Liang et al^[14] ont mis au point en 1993 une méthode novatrice de caractérisation HF d'échantillons supraconducteurs, associant la thermométrie sous vide à une cavité triaxiale de structure tronconique (cf. Figure 3-7). La cavité est excitée dans un mode TEM à 1,5 GHz au moyen d'un coupleur variable (boucle magnétique).

Elle est constituée en trois pièces assemblées.

La pièce I en niobium est formée de la cavité triaxiale. La pièce II contient le couvercle supérieur de la cavité dont la face inférieure supporte l'échantillon test ($\phi=25,4\text{mm}$) et l'autre face l'ensemble thermométrique. Ce dernier est composé de seize thermomètres (résistances de carbone) disposés suivant quatre cercles concentriques et d'un tube en niobium chauffé au moyen d'un bobinage en constantan. La pièce III en acier inoxydable consiste en un barreau cylindrique percé en son centre pour assurer le refroidissement par l'hélium et supporte les ports de pompage et d'alimentation électrique.

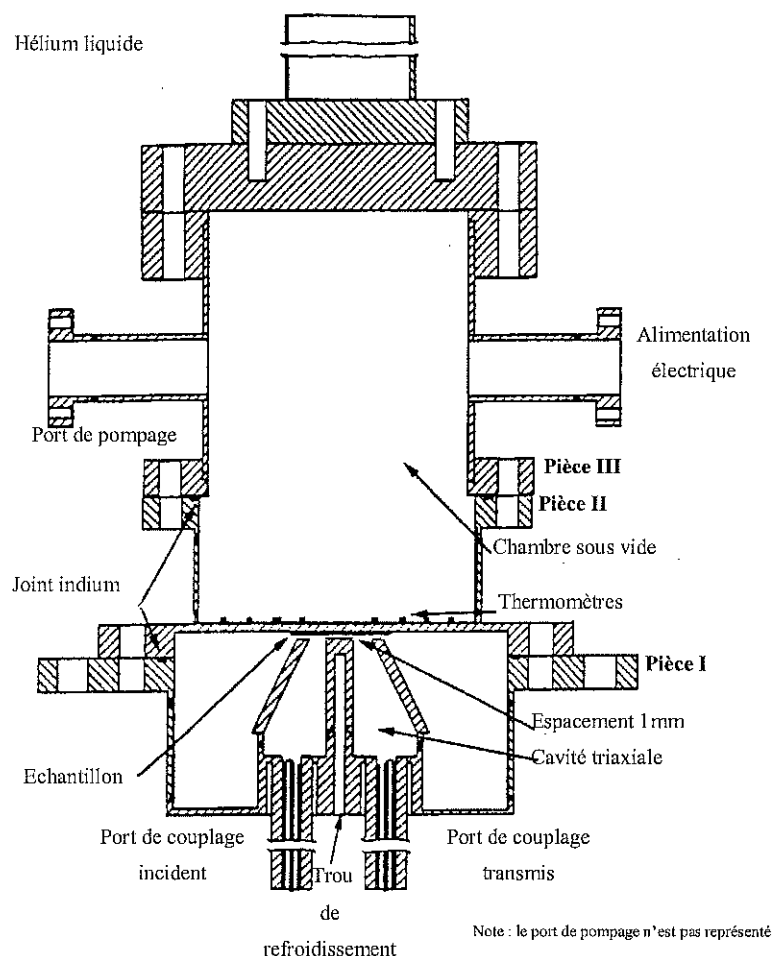


Figure 3-7 : La cavité triaxiale associée à la thermométrie sous vide

La technique de mesure employée est baptisée méthode calorimétrique. Elle est basée sur la comparaison des échauffements produits par la chaufferette ou par l'envoi de puissance HF sur l'échantillon. Son intérêt majeur par rapport aux mesures HF par substitution est l'accès direct aux pertes HF de l'échantillon, un gain en temps (pas de calibration de référence) et en sensibilité.

Le seuil de détection de ΔT indiqué par les auteurs est de $10\mu\text{K}$ à $T_{\text{He}}=2\text{K}$, soit une dissipation de $0,05\mu\text{W}$ qui correspond à une sensibilité sur la résistance de surface de $0,15\text{n}\Omega$ à 950e et $0,02\text{n}\Omega$ à 2500e . Cependant, la stabilité en température du système lors des tests était de 2mK à 2K et les erreurs de calibration estimées à 2%.

3.2.3. La thermométrie sous vide associée à la cavité TE_{011}

Nous avons développé comme d'autres laboratoires^[15] un système analogue de mesure de R_s par thermométrie sous vide. Notre principal objectif était d'améliorer la sensibilité des mesures de R_s à 4,2K de films supraconducteurs. En collaboration avec l'IPN nous avons fait évoluer le banc de test de la cavité TE_{011} en y incluant un nouveau dispositif thermométrique placé sur l'échantillon et thermiquement isolé du bain d'hélium par une chambre évacuée.

Après un rappel sur le principe de la méthode thermométrique, nous détaillerons la procédure et les résultats des simulations avant d'expliquer le procédé d'interprétation des mesures en terme de résistance de surface.

3.2.3.1. Principe

La mesure de R_s par thermométrie sous vide est basée sur l'utilisation d'une source de puissance statique qui permet une calibration des pertes HF sur le disque test^[16]. Il s'agit de comparer les échauffements mesurés sur la face du disque opposée à la face HF, le disque étant soumis successivement à une puissance statique et à une puissance HF. Ensuite, sous certaines conditions déterminées ci dessous à partir du code thermique de simulation numérique, on accède à la résistance de surface du disque en reliant la puissance dissipée sur le disque et le champ magnétique sur la surface du disque.

La calorimétrie permet non seulement l'accès à la valeur de la puissance dissipée avec précision mais dispense de la connaissance des paramètres thermiques mal connus qui influent sur les températures du disque (conductivité du substrat, coefficient d'échange LHe-Cu). Par une mesure sous vide, on s'affranchit des problèmes de l'efficacité des thermomètres rencontrés lorsque ceux ci sont en contact avec la paroi mouillée par l'hélium.

Avec un nombre suffisant de thermomètres, cette méthode doit permettre une mesure locale de R_s et d'obtenir une distribution spatiale de R_s sur le disque test. Cependant, l'exploitation de cette possibilité nécessiterait de faire des simulations numériques en 3D du comportement du disque soumis à une puissance HF ou statique, ce qui n'a pas encore été réalisé.

Cette méthode offre aussi la possibilité d'accéder in situ à la conductivité thermique du substrat cuivre et via la simulation numérique au coefficient d'échange entre le cuivre et l'hélium.

3.2.3.2. Modélisation

La simulation numérique par le code de calcul CASTEM2000 permet de connaître le profil radial des températures sur le disque refroidi par la tranche soumis à une puissance donnée (cf. Figure 3-8).

La surface mouillée par l'hélium qui correspond à la partie extérieure au joint indium vaut 4300mm^2 . Des gorges ont été usinées sur la tranche de chaque disque pour augmenter cette surface d'échange afin d'avoir une marge de stabilité thermique convenable sur une gamme étendue de champ magnétique de surface. Sur le schéma de principe, nous avons également représenté la distribution du champ côté HF et la répartition de la puissance statique appliquée côté chambre thermométrique.

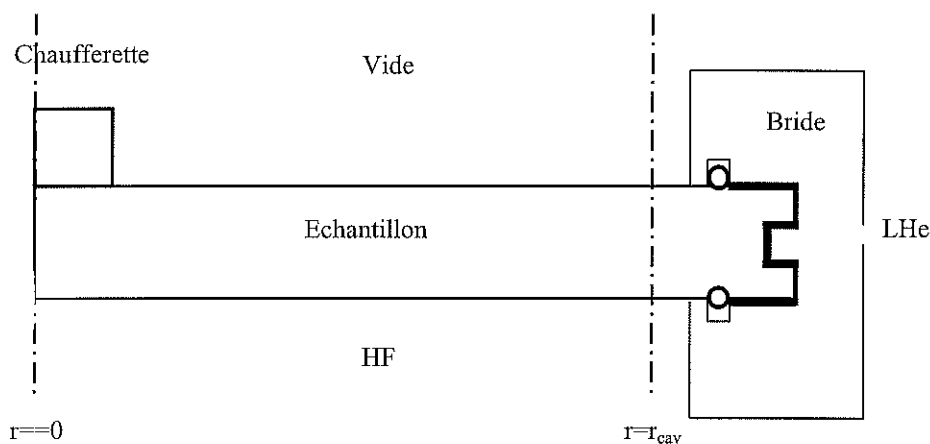


Figure 3-8 : Modélisation du couvercle TE_{011}

Les simulations numériques présentées ont été effectuées en régime permanent et en 2D axisymétrique. Le code de calcul utilise un jeu de données thermophysiques et de conditions aux limites pour obtenir la distribution radiale de température dans l'échantillon test.

Les plus importants paramètres sont les suivants :

- la température du bain T_b
- les caractéristiques de l'échantillon de type couche mince sur cuivre ou niobium massif:
 - l'épaisseur e du disque (e réduite par attaque chimique pour $r < r_{cav}$)
 - la courbe de conductivité thermique $k(T)$ du substrat cuivre ou du niobium massif
 - la valeur du coefficient d'échange h_k entre l'échantillon et l'hélium
 - la surface d'échange S_{ech} égale à $4,310^{-3} \text{ m}^2$

→ les caractéristiques de la source de puissance statique modélisée par un plot cylindrique :

- le rayon r égal à 9 mm et la hauteur h tronquée à 5mm
- la puissance P appliquée à l'échantillon

→ les caractéristiques HF du supraconducteur étudié

- le profil du champ magnétique de surface $H_s(r)$ et la valeur maximale H_{smax}
- les relations $R_{BCS}(T)$ et $R_s(H_{smax})$

3.2.3.3. Isothermes

Comparons les échauffements de chacune des parois d'un échantillon soumis à une puissance: la face HF interne et la face opposée (côté chaufferette et thermomètres).

Quels que soient les conditions de refroidissements et le type de puissance appliqué, les écarts obtenus pour un dépôt Nb sur Cu sont négligeables (cf. Tableaux 3-3 et 3-4). Les isothermes sont donc des cylindres de même axe que la cavité. A ce titre, les thermomètres placés sur la face opposée à la paroi HF reproduisent correctement le profil de température sur la face HF.

r (mm)	0	10	20	30	40	50
ΔT_{HF} (mK)	138,20	138,00	134,60	124,20	107,20	88,35
$\Delta T_{HF} - \Delta T_{th}$ (mK)	0,01	0,12	0,33	0,40	0,24	0,04

Tableau 3-3 : Echauffements à 1,7K sur un disque Nb/Cu
($P_{HF}=1,2W$, $f=4$ GHz, $k_{Cu}=700$ W/m.K et $h_k=4000$ W/m².K)

r (mm)	0	10	20	30	40	50
ΔT_{HF} (mK)	102,45	102,37	101,22	97,75	92,05	85,80
$\Delta T_{HF} - \Delta T_{th}$ (mK)	0,01	0,06	0,15	0,17	0,09	0,01

Tableau 3-4 : Echauffements à 4,2K sur un disque Nb/Cu
($P_{HF}=0,9$ W, $f=4$ GHz, $k_{Cu}=1750$ W/m.K et $h_k=9500$ W/m².K)

Dans le modèle utilisé, nous négligeons l'effet éventuel de la présence d'une résistance thermique entre le niobium et le cuivre. A basse température, de telles résistances à l'interface entre un métal supraconducteur et un métal normal semblent très faibles^[17].

3.2.4. Profils de température

3.2.4.1. à $T=1,7K$

Nous allons présenter quelques exemples typiques de distribution de températures calculées par CASTEM2000 de façon à définir un protocole de mesure. La simulation présente quelques limites car elle correspond à des échantillons idéaux (aucun défaut dû au dépôt, couvercle parfaitement homogène, pas de dissipation dans le joint) ce qui permet une résolution axisymétrique.

Les valeurs des paramètres thermiques seront discutées ultérieurement. Pour le choix de la résistance de surface résiduelle, nous nous sommes référés à des tests HF à 4 GHz des disques Nb/Cu ou (NbTi)N/Cu à 1,7K.

La dépendance en température de R_{BCS} est déterminée à partir de tests de cavités Nb/Cu à 1,5 GHz (dans l'hypothèse d'une dépendance quadratique en fréquence). Dans le cas du (NbTi)N/Cu, la loi $R_{BCS}(T)$ a été déterminée à partir de la valeur de R_s à 4,2K et de l'estimation du gap par Serban Cantacuzène.

•Echantillon Nb/Cu

Les paramètres de simulation utilisés pour les essais numériques sont présentés dans le tableau 3-5. Les figures 3-9 et 3-10 présentent les profils de température radiaux d'un disque Nb/Cu à deux niveaux de puissance dissipée (faible et fort).

Caractéristiques thermiques	Caractéristiques HF
- k_{Cu} linéaire entre 1,7K et 2K tel que: $k_{Cu}(1,7K)=690 \text{ W/m.K}$ $k_{Cu}(2K)=815 \text{ W/m.K}$	- $H_{smax1}= 60 \text{ Oe}$ (resp. $H_{smax2}= 430 \text{ Oe}$)
- $h_k=4000 \text{ W/m}^2.K$	- $R_{res}(H_s)=3,7 \cdot 10^{-7}+0,25 \cdot 10^{-9} H_s^2$
- $e(r<rcav)=2,6 \text{ mm}$ $e(r>rcav)=3\text{mm}$	- $R_{BCS}(T)=10^{-3} \exp(-18/T)/T$
	Soit une puissance estimée à :
	$P_1=22,5\text{mW}$ (resp. $P_2=1,8\text{W}$)

Tableau 3-5 : Paramètres de simulation

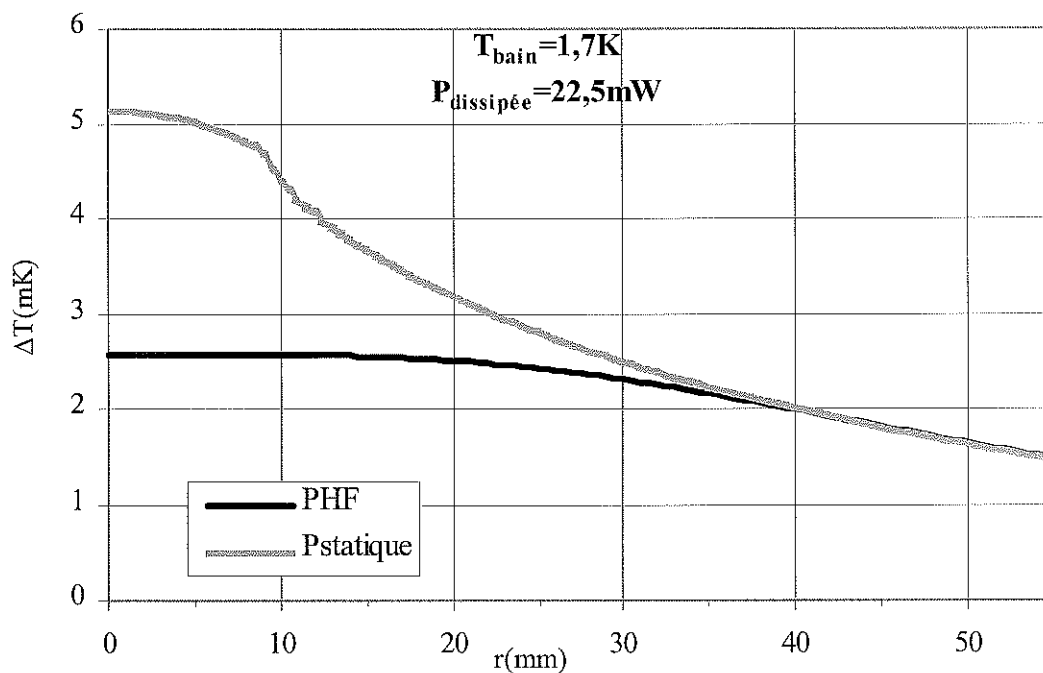


Figure 3-9 : Simulation du profil de température radial (rapporté à T_{bain}) sur un disque Nb/Cu soumis à une faible puissance de type HF ou statique

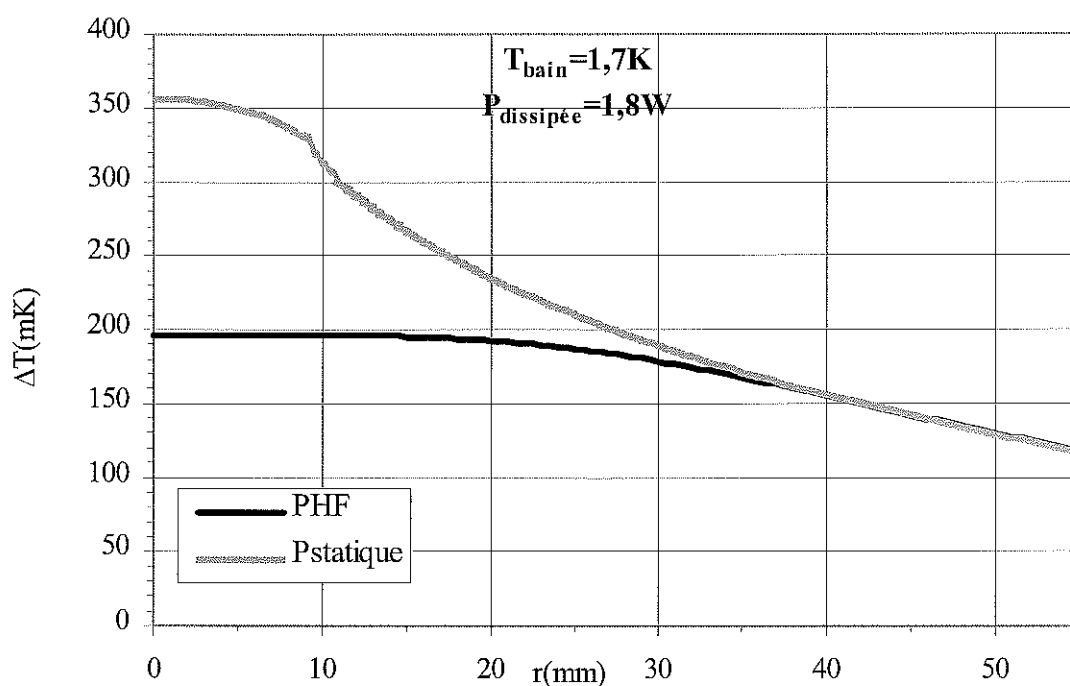


Figure 3-10 : Simulation du profil de température radial (rapporté à T_{bain}) sur un disque Nb/Cu soumis à une forte puissance de type HF ou statique

•Echantillon (NbTi)N/Cu

Les profils de température radiaux d'un disque (NbTi)N sont présentés à deux niveaux de puissance dissipée (cf. Figures 3-11 et 3-12). Les paramètres de simulation utilisés pour les deux essais numériques sont rassemblés dans le tableau 3-6.

<p><u>Caractéristiques thermiques</u></p> <ul style="list-style-type: none"> -k_{Cu} linéaire entre 1,7K et 2K : $k_{Cu}(1,7K)=690 \text{ W/m.K}$ $k_{Cu}(2K)=815 \text{ W/m.K}$ - $h_k=4000 \text{ W/m}^2.K$ - $e(r < r_{cav})=2,9\text{mm}$ $e(r > r_{cav})=3\text{mm}$ 	<p><u>Caractéristiques HF</u></p> <ul style="list-style-type: none"> - $H_{smax1}=60 \text{ Oe}$ (resp. $H_{smax2}=375 \text{ Oe}$) - $R_{res}(H_s)=1,1810^{-7}+8,610^{-9}H_s+9,310^{-10}H_s^2$ - $R_{BCS}(T)=1,510^{-4}\exp(-15/T)/T$ Soit une puissance estimée à $P_1=10\text{mW}$ (resp. $P_2=2\text{W}$)
--	--

Tableau 3-6 : Paramètres de simulation

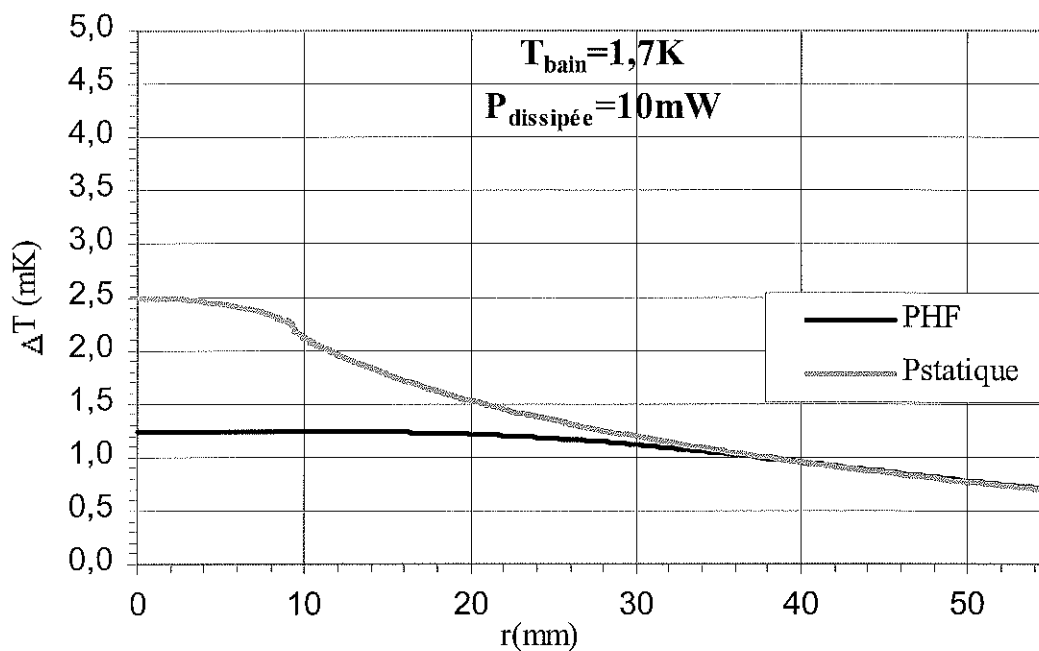


Figure 3-11 : Simulation du profil de température radial (rapporté à T_{bain}) sur un disque (NbTi)N /Cu soumis à une faible puissance de type HF ou statique

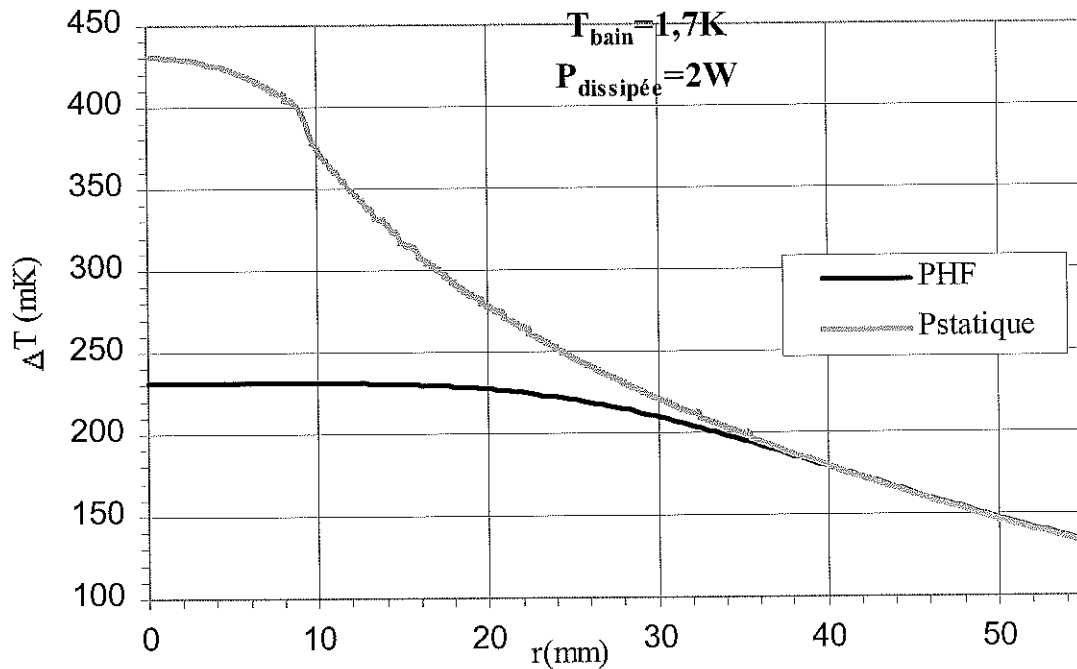


Figure 3-12 : Simulation du profil de température radiale (rapporté à T_{bain}) sur un disque (NbTi)N/Cu soumis à une forte puissance de type HF ou statique

L'analyse des profils de température radiaux à $T = 1,7\text{K}$ obtenus sur des disques Nb/Cu et (NbTi)N/Cu soumis à une puissance donnée suggère plusieurs remarques :

→ Pour les mêmes caractéristiques thermiques, qui n'ont de raison d'être modifiées que si un démontage intervient, le profil simulé de température pour la puissance HF est identique à celui pour une même puissance statique pour un rayon supérieur à 40mm. C'est cette propriété qui est la base de la méthode thermométrique : on calibre la puissance HF dissipée sur l'échantillon au moyen d'une puissance statique mesurable avec une grande précision.

→ Dans tous les exemples, l'augmentation de R_s avec la température a été prise en compte tout le long du profil avec la fonction de type R_{BCS} . Nous avons vérifié que la contribution de R_{BCS} à la dissipation totale (donc aux échauffements résultants et à la forme du profil) est négligeable.

3.2.4.2. à $T = 4,2\text{K}$

A 4,2K, on a déterminé de la même manière les profils de température à faible et forte puissance sur des disques Nb/Cu et (NbTi)N/Cu. A titre d'exemple, la figure 3-13 fournit les profils de températures d'un disque Nb/Cu avec une faible dépendance $R_{\text{res}}(H_s)$. Les paramètres de simulation numériques pris en compte sont répertoriés dans le Tableau 3-7.

Caractéristiques thermiques	Caractéristiques HF
- k_{Cu} linéaire entre 4,2K et 10K tel que :	- $H_{smax}=50$ Oe
$k_{Cu}(4,2K)=1750$ W/m.K	- $R_{res}(H_s)=310^{-7}+0,25 \cdot 10^{-9} H_s^2$
$k_{Cu}(10K)=4000$ W/m.K	- $R_{BCS}(T)=10^{-3} \exp(-18/T)/T$
- $h_k=15600 (T_{Cu}-T_{bain})^{0,69}$ en W /m ² .K	Soit $P=240$ mW
- $e(r<rcav)=2,9$ mm	

Tableau 3-7 : Paramètres de simulation

Pour $r > 40$ mm, on retrouve l'indépendance profil de température vis à vis de la nature de puissance appliquée à l'échantillon, même si le régime d'échange hélium cuivre ainsi que la résistance de surface diffèrent de 1,7K.

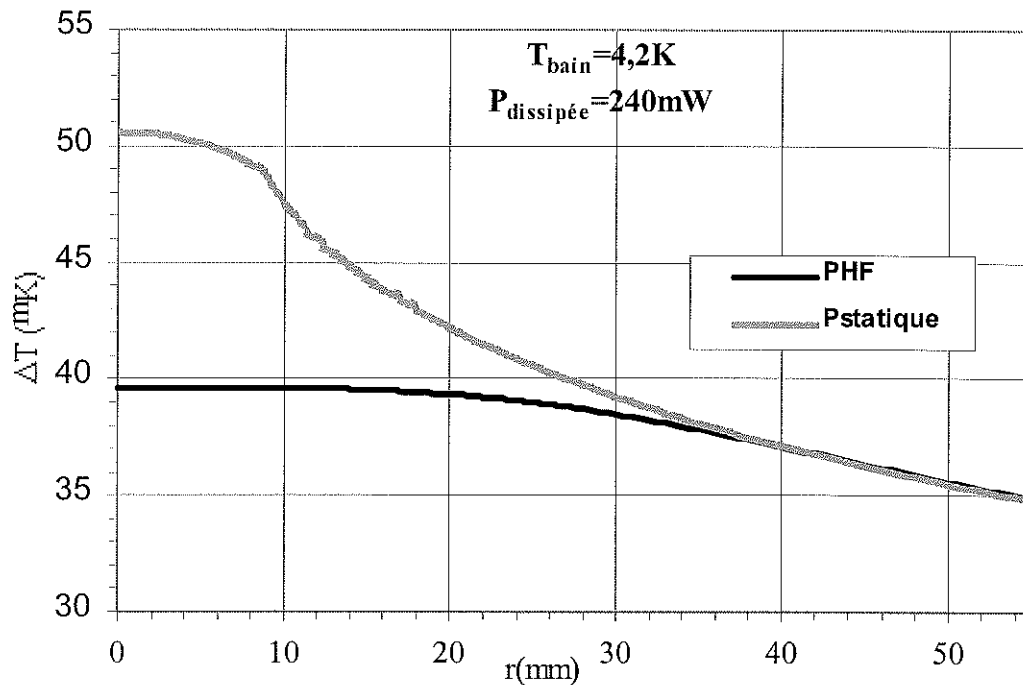


Figure 3-13: Simulation du profil de température radiale (rapporté à T_{bain}) sur un disque Nb /Cu soumis à une faible puissance de type HF ou statique

Cela définit le protocole expérimental à suivre: à partir des échauffements relevés par les thermomètres placés à $r > 40$ mm, on établit une correspondance entre la puissance dissipée sur le couvercle et le champ magnétique H_{smax} mesuré. Il reste alors à déterminer la relation entre ces deux grandeurs pour déduire la dépendance en champ de la résistance de surface R_s .

3.2.5. Interprétation des mesures

3.2.5.1. à T=1,7K

A 1,7K, nous avons vu que pour les couches minces supraconductrices testées la principale source de dissipation était attribuée à la résistance résiduelle. On considère à partir des résultats expérimentaux sur des tels échantillons que la loi de variation de R_{res} en fonction du champ peut être décrite correctement par une fonction polynomiale d'ordre 2:

$$R_{res}(H_s) = R_0 + R_1 H_s + R_2 H_s^2 \quad (E 3-8)$$

La distribution du champ magnétique sur la surface du couvercle à 4 GHz comme à 5,6 GHz peut s'exprimer en fonction de la valeur de champ maximale H_{smax} :

$$H_s(r) = \frac{H_{smax}}{J_1(kr_{max})} J_1\left(\frac{\xi_{01}^1}{r_{cav}} r\right) \quad (E 3-9)$$

$$H_s(r) = \alpha J_1(kr)$$

La puissance RF dissipée sur le disque s'exprime par :

$$P = \frac{1}{2} \iint_S R_s(H_s, T) H_s^2(S) dS \quad (E 3-10)$$

Soit à 1,7K, en développant la relation (E3-10):

$$\begin{aligned} P_{res} &= \frac{1}{2} \int_0^{2\pi} d\theta \int_0^{r_{cav}} R_{res}(H_s(r)) H_s^2(r) r dr \\ P_{res} &= \pi \int_0^{r_{cav}} \left(R_0 + R_1 H_s(r) + R_2 H_s^2(r) \right) H_s^2(r) r dr \\ P_{res} &= \pi R_0 \alpha^2 \int_0^{r_{cav}} J_1^2(kr) r dr + \pi R_1 \alpha^3 \int_0^{r_{cav}} J_1^3(kr) r dr + \pi R_2 \alpha^4 \int_0^{r_{cav}} J_1^4(kr) r dr \end{aligned} \quad (E 3-11)$$

En posant $x = \frac{r}{r_{cav}}$:

$$\begin{aligned} P_{res} &= \pi R_0 \alpha^2 r_{cav}^2 \int_0^1 J_1^2(\xi_{01}^1 x) x dx + \pi R_1 \alpha^3 r_{cav}^2 \int_0^1 J_1^3(\xi_{01}^1 x) x dx + \pi R_2 \alpha^4 r_{cav}^2 \int_0^1 J_1^4(\xi_{01}^1 x) x dx \\ P_{res} &= \pi \alpha^2 r_{cav}^2 (R_0 a_0 + \alpha R_1 a_1 + \alpha^2 R_2 a_2) \end{aligned} \quad (E3-12)$$

Les relations $J_{n+1}(x) = \frac{2n}{x} J_n(x) - J_{n-1}(x)$ et $J_{n+1}'(x) = J_{n-1}'(x) - 2J_n'(x)$ nous permettent

d'écrire en intégrant par partie :

$$\int_0^1 J_1^2(\xi_{01}^1 x) x dx = \frac{J_2^2(\xi_{01}^1)}{2}$$

d'où $a_0=0,08110$.

Les valeurs a_1 et a_2 des intégrales sont calculées numériquement : $a_1=0,03983$ et $a_2=0,02041$

On en déduit la relation entre la puissance dissipée sur le couvercle (en W) et le champ de surface maximum (en Oe):

$$P_{\text{res}} = H_{s \text{ max}}^2 (35,6 R_0 + 3,75 R_1 H_{s \text{ max}} + 0,413 R_2 H_{s \text{ max}}^2) \quad (E 3-13)$$

3.2.5.2. à T=4,2K

A 4,2K, il faut tenir compte de la dépendance en température de R_s :

$$R_{\text{BCS}}(T) = \frac{A}{T} e^{-\frac{B}{T}} \quad (E 3-14)$$

La puissance dissipée sur le disque devient :

$$\begin{aligned} P &= \frac{1}{2} \iint_S R_s(H_s, T) H_s^2(S) dS \\ P &= \frac{1}{2} \iint_S R_{\text{res}}(H_s) H_s^2(S) dS + \frac{1}{2} \iint_S R_{\text{BCS}}(T) H_s^2(S) dS \\ P &= P_{\text{res}} + \pi \int_0^{r_{\text{cav}}} \frac{A}{T(r)} e^{-\frac{B}{T(r)}} H_s^2(r) r dr \\ P &= P_{\text{res}} + P_{\text{BCS}} \end{aligned} \quad (E 3-15)$$

Pour évaluer P_{BCS} , il faut introduire le profil de température $T(r)$. Du fait de l'excellente conductivité thermique du cuivre, on peut supposer en première approximation que ce profil est plat (i.e. $T(r)=cte$). Ceci revient à considérer le terme R_{BCS} comme une constante d'où :

$$P_{\text{BCS}} = H_{s \text{ max}}^2 (35,6 R_{\text{BCS}}) \quad (E 3-16)$$

Ainsi, après avoir déterminé la contribution résiduelle indépendante de la température à 1,7K on peut obtenir le terme R_{BCS} dans le gamme 2,5K-4,2K.

Au regard des profils de température calculés, une bonne approximation de $T(r)$ est obtenue en considérant deux régions :

Pour $r \leq r_c = 20\text{mm}$, un palier $T = T_{\max}$

Pour $r > r_c$, une décroissance linéaire $T(r) = br + c$

On peut alors écrire :

$$P_{BCS} = \pi \int_0^{r_c} \frac{A}{T_0} e^{-\frac{B}{T_0}} H_S^2(r) r dr + \pi \int_{r_c}^{r_{ext}} \frac{A}{br+c} e^{-\frac{B}{br+c}} H_S^2(r) r dr \quad (E 3-17)$$

Nous avons calculé numériquement la valeur de P_{BCS} avec les deux approximations énoncées pour un disque Nb/Cu ($A=10^{-3} \Omega.K$, $B=18K$) et (NbTi)N/Cu ($A=1,510^{-4} \Omega.K$, $B=15K$). Les résultats correspondants sont présentés dans les tableaux 3-8 et 3-9.

$H_{s\max}$ (Oe)	$T_1(r)=T_{\min}$ (K)	$T_2(r)=T_{\max}$ (K)	P_{BCS1} (W) « Profil plat »	P_{BCS2} (W) « Profil plat »	P_{BCS3} (W) « Palier »
60	4,265	4,27	196,1	196,8	196,6
125	4,313	4,332	812,8	824,2	820,5

Tableau 3-8 : P_{BCS} à $T=4,2K$ sur un disque Nb/Cu

$H_{s\max}$ (Oe)	$T_1(r)=T_{\min}$ (K)	$T_2(r)=T_{\max}$ (K)	P_{BCS1} (W) « Profil plat »	P_{BCS2} (W) « Profil plat »	P_{BCS3} (W) « Palier »
60	4,248	4,249	58,8	58,9	58,9
125	4,281	4,29	240,0	241,2	240,8

Tableau 3-9 : P_{BCS} à $T=4,2K$ sur un disque (NbTi)N/Cu

Il ressort que l'erreur commise sur la puissance dissipée sur le disque est toujours inférieure à 1,5% (resp. 0,5%) dans le cas d'un échantillon Nb/Cu (resp.(NbTi)N/Cu). Ces approximations sont donc satisfaisantes.

3.2.6. Bilan

Le principe de détermination de la résistance de surface d'un dépôt supraconducteur par thermométrie sous vide a été déduit lors de simulations numériques à 17,K et à 4,2K. Nous avons modélisé le montage sur la cavité TE_{011} d'un disque refroidi par la tranche. Par l'intermédiaire de thermomètres judicieusement placés sur l'échantillon à tester ($r > 40\text{mm}$) et d'une calibration en flux, on peut déduire la courbe $R_s = f(H_s)$ en régime résiduel comme en

régime BCS ainsi que la courbe $R_s=f(T)$ entre 1,6K et 4,2K. Il est également possible d'accéder à la conductivité thermique du substrat cuivre ainsi qu'à la valeur du coefficient d'échange avec l'hélium.

Le dépouillement impose de se donner une loi de variation $R_s=f(H_s)$. Si la variation de R_s avec le champ n'est pas quadratique, il est nécessaire de modifier les coefficients décrivant la dépendance de la puissance dissipée avec le champ.

Chapitre 4

La thermométrie sous vide : Aspect expérimental

4.1 Dispositif expérimental

- 4.1.1 Chambre à vide
- 4.1.2 Equipement thermométrique
 - 4.1.2.1 Choix des thermomètres
 - 4.1.2.2 Distribution des thermomètres
 - 4.1.2.3 Chauffeferette

4.2 Protocole expérimental

- 4.2.1 Etalonnage des capteurs
 - 4.2.1.1 Dispositif et procédure
 - 4.2.1.2 Caractéristiques des thermomètres
 - 4.2.1.3 Temps de réponse d'un thermomètre
- 4.2.2 Mesures d'échauffements de l'échantillon
 - 4.2.2.1 Séquence de mesure
 - 4.2.2.2 Erreurs de mesure

4.3 Résultats expérimentaux à T=1,7K

- 4.3.1 Validation des échauffements mesurés sous puissance statique
 - 4.3.1.1 Mesure de la conductivité thermique du cuivre
 - 4.3.1.2 Détermination du coefficient d'échange h_k
 - 4.3.1.3 Comparaison des profils de température expérimentaux et simulés
- 4.3.2 Relation $\Delta T=f(P)$
- 4.3.3 Echauffements mesurés sous puissance HF
- 4.3.4 Validation de la méthode calorimétrique
- 4.3.5 Précision de la méthode calorimétrique
 - 4.3.5.1 Erreurs sur la mesure de P
 - 4.3.5.2 Incertitude sur R_s
- 4.3.6 Mesures d'échantillons Nb/Cu

4.4 Résultats expérimentaux à $T=4,2K$

- 4.4.1 Calibration en puissance statique
- 4.4.2 Echauffements mesurés sous puissance HF
- 4.4.3 Validation de la méthode calorimétrique
- 4.4.4 Incertitude sur R_s
- 4.4.5 Mesures d'échantillons Nb/Cu

4.5 Bilan

La thermométrie sous vide associée à la cavité TE_{011} a été développée pour étudier les propriétés HF d'échantillons supraconducteurs. Elle peut permettre de mieux connaître l'influence de différents paramètres (conditions de dépôt, état de surface du substrat...) sur la résistance de surface R_s de films Nb ou (NbTi)N à 1,7K ou 4,2K. On en déduira alors le meilleur procédé de fabrication des cavités accélératrices de technologie « couche mince ».

Nous détaillons d'abord le système thermométrique ainsi que le protocole expérimental. Puis, nous exposons les résultats des mesures d'échauffements en puissance statique et puissance HF à 1,7K et à 4,2K. Nous avons validé la mesure de R_s par thermométrie sous vide à ces deux températures en la confrontant à la méthode HF dans le cas d'échantillon en niobium massif. Nous concluons par la présentation de quelques résultats sur échantillons Nb/Cu.

4.1 Dispositif expérimental

Le système de mesure (cf. Figure 4-1) est composé de deux éléments principaux que nous allons décrire : la chambre à vide et le dispositif thermométrique.

4.1.1 Chambre à vide

La chambre à vide au-dessus du disque test de la cavité TE_{011} assure l'isolation thermique du système thermométrique par rapport au bain d'hélium. Elle est constituée de deux pièces en inox 316LN :

→ un corps cylindrique ($\phi=116\text{mm}$) dont la bride inférieure se positionne sur l'échantillon. L'étanchéité est réalisée par un joint indium et un jeu de contre brides pour la fixation sur la cavité TE_{011} .

→ un couvercle monté sur le cylindre par une bride CF100 et un joint cuivre (cf. Figure 4-2).

Il supporte le dispositif thermométrique par l'intermédiaire de 4 colonnettes ($\phi=10\text{mm}$) en cuivre OFHC. Ces dernières favorisent un bon lien thermique avec la partie froide de la chambre.

L'amagnétisme des pièces a été vérifié : le champ magnétique résiduel détecté à l'aide d'une sonde Förster est inférieur à 5 mGauss.

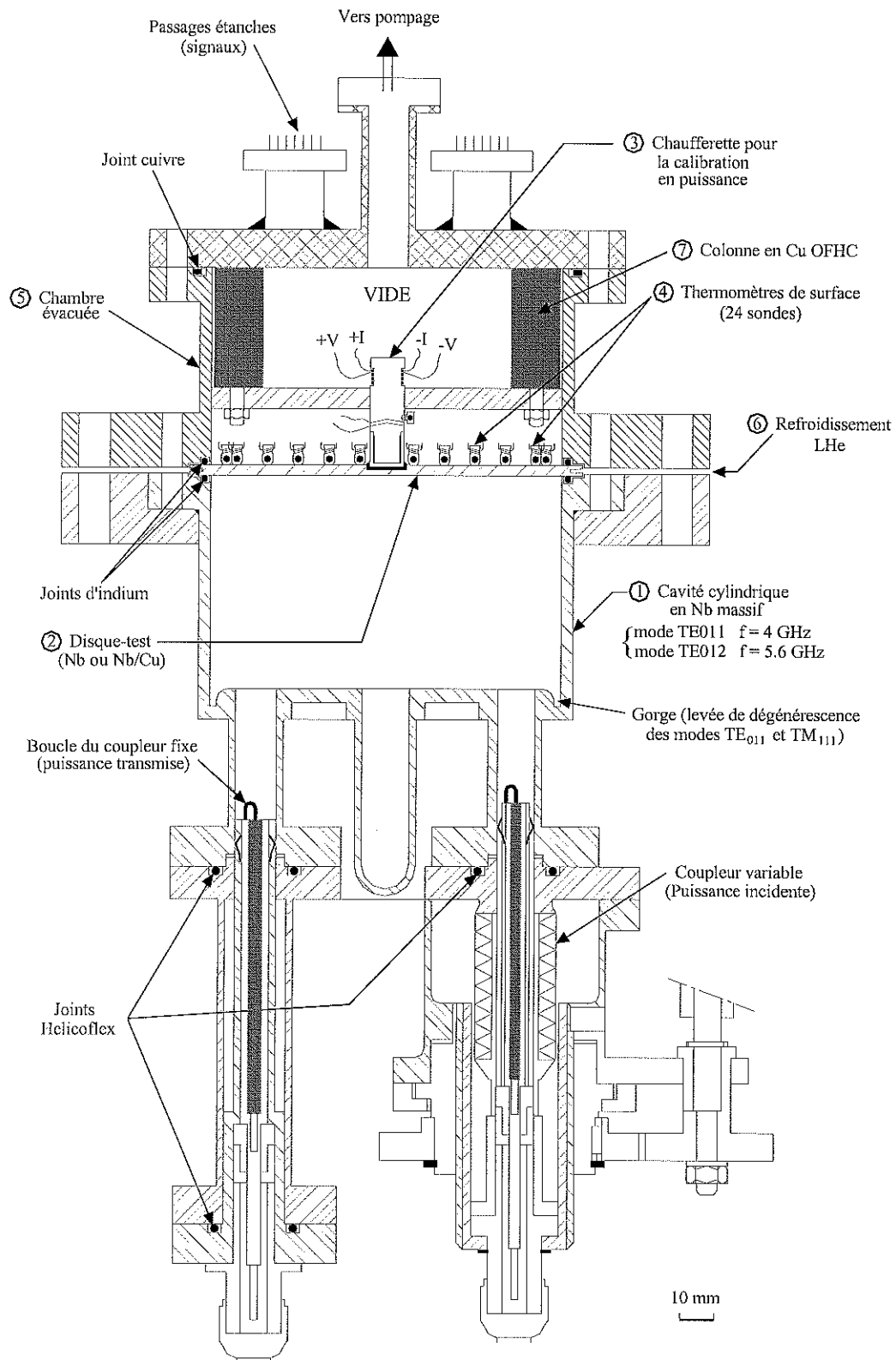


Figure 4-1 : Schéma de la cavité TE_{011} avec l'ensemble thermométrique

Quatre passages étanches en laiton Doloy® à traversées isolées par des perles de verre servent à la connectique des fils d'amenée de courant et de mesure des thermomètres (cf. Figure 4-3). A l'extérieur de la chambre, les fils en manganin émaillé ($\phi=0,2\text{mm}$, $L=40\text{mm}$) sont protégés par une gaine téflon résistant aux basses températures. A l'intérieur de la chambre, des fils identiques sont guidés jusqu'aux thermomètres pour éviter tout contact avec les fils « chauds » de la chaufferette. Le piquage central permet le pompage dans la chambre (10^{-10}mb) et l'alimentation électrique de la chaufferette.

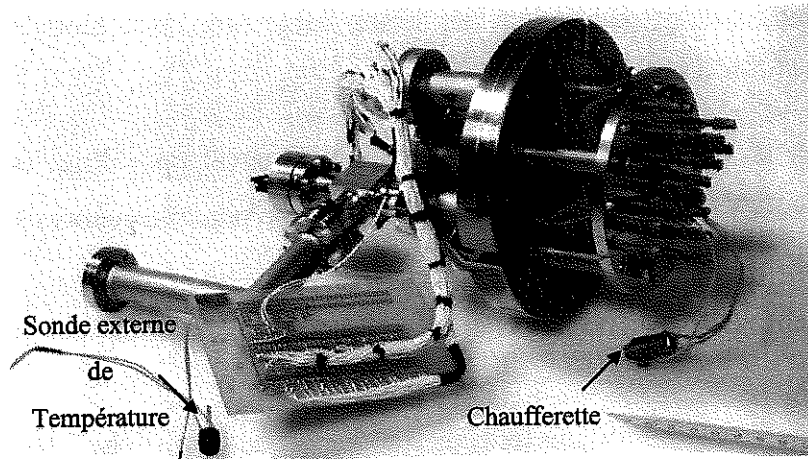


Figure 4-2: Couvercle de la chambre thermométrique

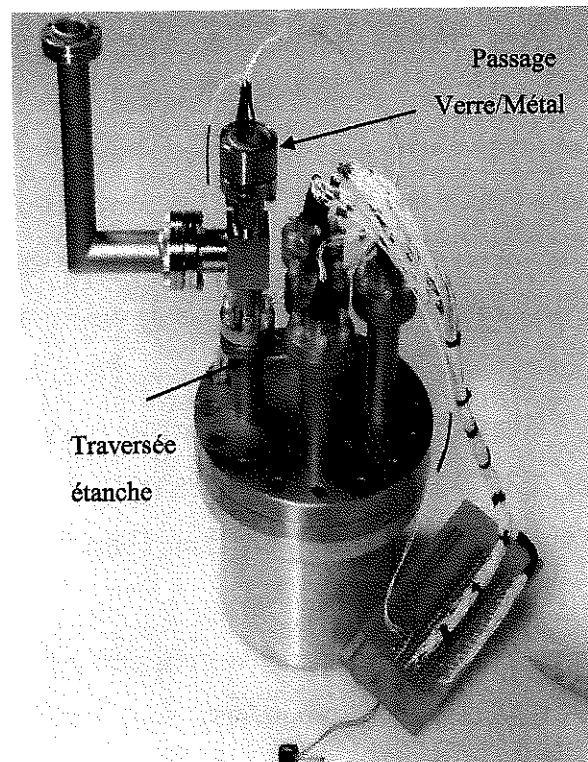


Figure 4-3 : Vue de la connectique

4.1.2 Equipement thermométrique

4.1.2.1 Choix des thermomètres

Un thermomètre cryogénique doit répondre à plusieurs critères : une taille réduite, une bonne sensibilité dans la plage de température étudiée, des fuites thermiques minimales et une grande fiabilité. Sa réalisation doit être relativement facile et peu coûteuse. L'élément thermosensible choisi est une résistance au carbone Allen-Bradley ($R_{AB}=120\Omega$ à 300K, 1/8W) et préférée à une sonde germanium du fait de son faible coût, de sa moindre fragilité et de sa plus faible sensibilité au champ magnétique^[1].

Utilisés pour les premiers essais, des thermomètres enveloppés d'une isolation thermique en résine époxy STYCAST 2850FT^[2] n'ont pas convenu pour plusieurs raisons :

→ leur faible surface de contact entre l'élément thermométrique et le disque test ($S=0,8\text{mm}^2$)

→ leur enrobage conduisant à une forte inertie thermique (diffusivité $\approx 10^5$ inférieure à celle du cuivre) rallongeant notablement le temps de mise en équilibre

En conséquence, nous avons réalisé des thermomètres de conception nouvelle (cf. Figure 4-4). La résistance R_{AB} est logée dans un bloc en cuivre OFHC non enrobé et avec une surface de contact thermomètre/échantillon augmentée ($S=10\text{mm}^2$). Elle est protégée par de la bakélite et collée à l'intérieur du plot en cuivre par de la résine époxy. Ce plot est muni d'une queue pour la thermalisation où les fils du capteur ($r=13,3\Omega/\text{m}$) sont enroulés sur 15 spires, soit une longueur de 15cm, et fixés au moyen de vernis GE7031.

Pour un bon contact thermique avec le disque on applique de la graisse bonne conductrice de chaleur chargée au cuivre (Crycon®) sur la surface de contact.

Le positionnement et la pression de contact entre le thermomètre et l'échantillon sont réalisés au moyen d'un ressort en bronze béryllium Leduc® guidé par une tige en fibre de verre.

Chaque thermomètre est assigné à un rayon avec une précision de $\pm 0,1\text{mm}$, l'axe de la résistance étant tangent au cercle correspondant. Nous vérifions avant chaque montage la position des thermomètres en les superposant sur un masque en plexiglas reproduisant la géométrie souhaitée.

- ① Bloc thermométrique (Cu OFHC)
- ② Fils de mesure (manganin ; ϕ 0,2mm)
- ③ Élément thermosensible (résistance au carbone Allen-Bradley, 100 Ω - 1/8W)
- ④ Graisse Apiezon N
- ⑤ Ressort en bronze béryllium (raideur : 320 N/m)

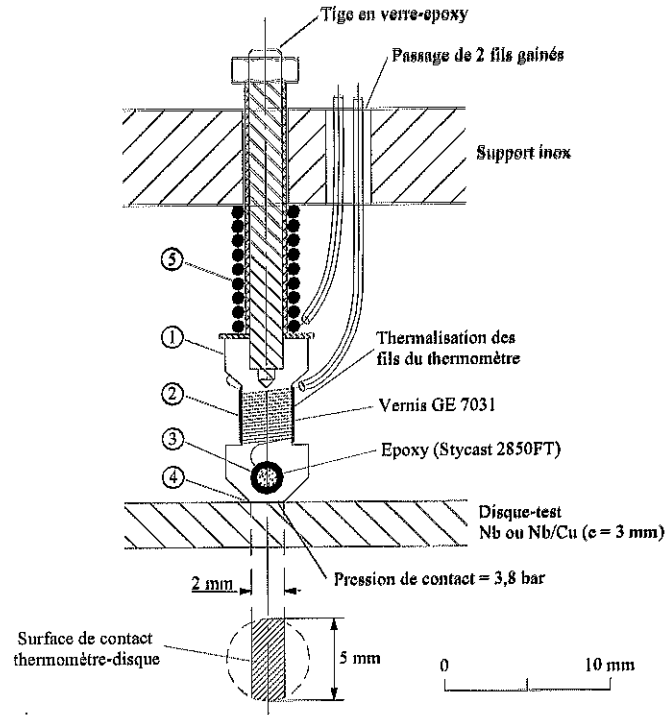


Figure 4-4 : Schéma d'un thermomètre

4.1.2.2 Distribution des thermomètres

Le système thermométrique est constitué de 24 sondes fixes (R_1 et R_{24}) et deux sondes supplémentaires : R_b placée dans le bain d'hélium au plus près de la tranche du disque, et R_{ch} à l'intérieur de la chaufferette.

La distribution des 24 thermomètres s'est modifiée après plusieurs essais. Initialement les thermomètres étaient répartis sur 4 bras à 90° et placés sur des rayons entre 12,4 mm et 47,4 mm avec un pas de 7 mm soit 4 par couronne. En mesurant plusieurs fois la conductivité thermique du cuivre, cela a permis de vérifier les hypothèses de simulation à savoir l'homogénéité du disque et le caractère isotrope de la répartition de flux de chaleur en puissance statique.

Ensuite, nous avons déplacé les thermomètres vers la périphérie du disque (9 sur le rayon extérieur de 47,4 mm et 9 sur le rayon 40,4 mm) pour déterminer plus précisément la résistance de surface du disque et avoir une meilleure connaissance de son homogénéité (cf. Figure 4-5).

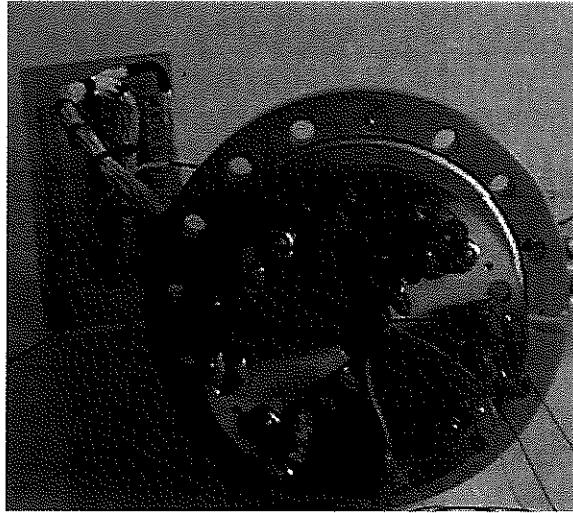


Figure 4-5 : Distribution des thermomètres

4.1.2.3 Chaufferette

La source de puissance statique consiste en un barreau en cuivre ($\phi=9\text{mm}, L=26\text{mm}$) chauffé par un fil de maganin bobiné autour du noyau (cf. Figure 4-6). Elle est vissée sur une virole (en niobium ou cuivre) collée sur l'échantillon avec de la résine époxy.

Pour améliorer le contact thermique entre les 2 pièces, la partie basse de l'élément chauffant est enduite de graisse conductrice chargée au cuivre avant d'être vissée sur l'embase. Au cœur de la chaufferette, dans le trou de dégazage, nous avons placé un thermomètre étalonné (1,5K-60K) pour évaluer les fuites thermiques.

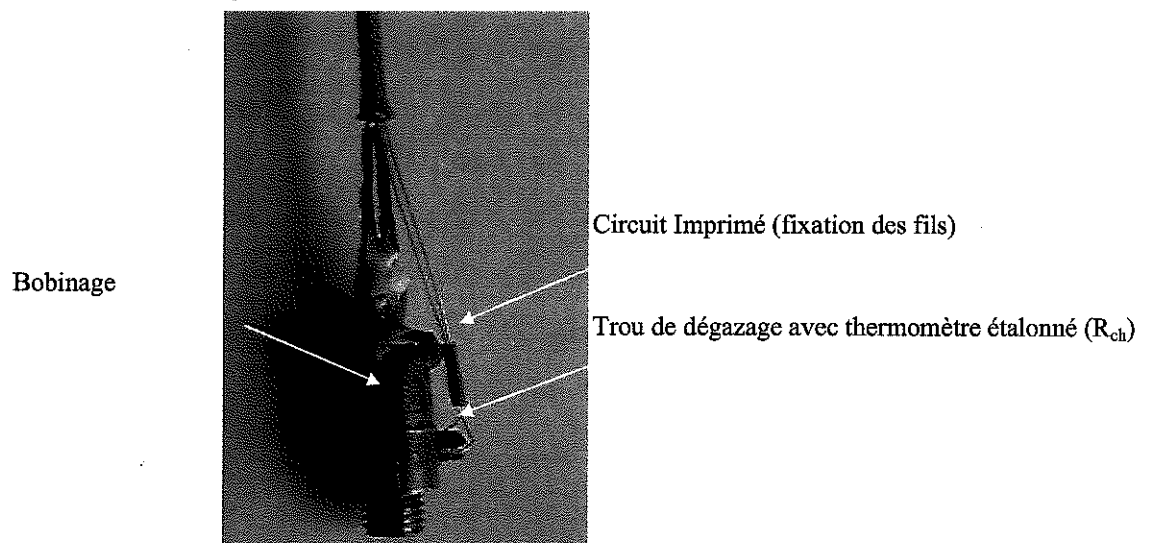


Figure 4-6 : La chaufferette

4.2 Protocole expérimental

La procédure expérimentale relative à la thermométrie sous vide se déroule en trois phases : l'étalonnage des capteurs, la calibration en puissance, les mesures HF.

4.2.1 Etalonnage des capteurs

4.2.1.1 Dispositif et procédure

L'étalonnage d'un thermomètre est destiné à établir une loi qui lie sa grandeur physique (la résistance mesurée) à la température. Nous avons réalisé des paliers de température de 1,6K à 4,5K en contrôlant la stabilité du bain avec une sonde germanium LakeShore de référence. Pour chaque palier, les résistances R_1 à R_{24} , et la température du bain sont mesurées.

La chaîne d'instrumentation comporte principalement (cf. figure 4-7) :

- une source de courant fabriquée au laboratoire de stabilité $\Delta i/i \approx 10^{-4}$
- un multimètre numérique (HP3458) pour la mesure des tensions, sur la gamme 100mV aux bornes des résistances carbonées et sur la gamme 1V aux bornes du shunt
- un multiplexeur à relais 20 voies (HP44705A) et une unité d'acquisition et de contrôle (HP3852).
- un « coffret » LakeShore : source de courant intégrée, conditionnement du signal thermométrique, conversion $R \rightarrow T$ puis acquisition et sortie numérique de la température au mK près, via un câble de liaison GPIB

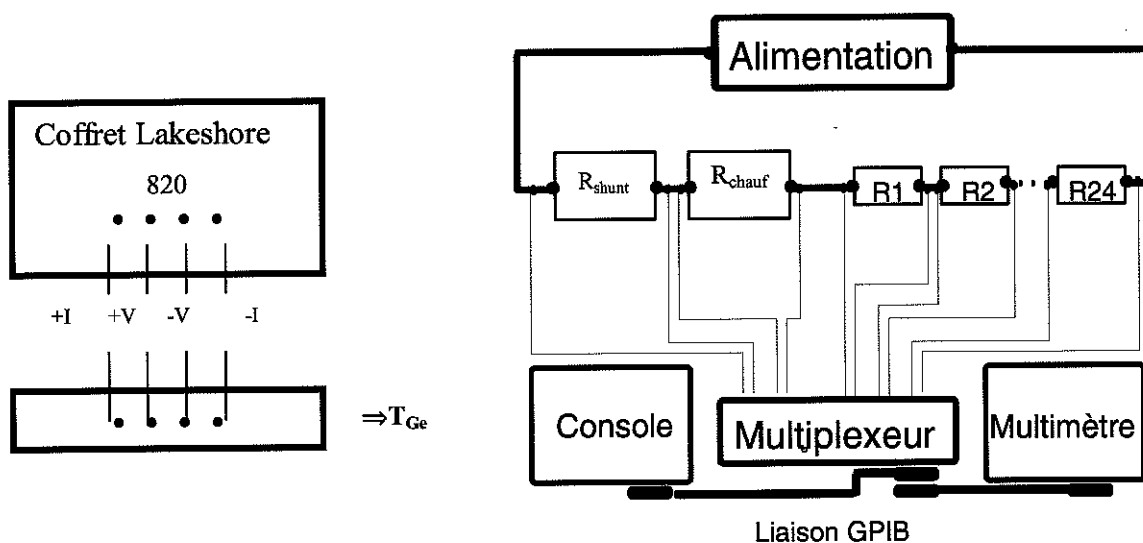


Figure 4-7 : Dispositif de Mesure

Les résistances de carbone utilisées étant susceptibles de dérive dans le temps, l'étalonnage des capteurs est réalisé avant chaque test. A chaque acquisition (cf. Figure 4-8) il faut contrôler :

→ la stabilité du bain pendant la scrutation des résistances (environ 25s)

Les temps d'intégration des mesures de tension des résistances ($\tau_{\text{int}}=200\text{ms}$), du thermomètre LakeShore ($\tau_{\text{LakeShore}}=2\text{s}$) et de la commutation de voies sur scanner ($\tau_{\text{com}}=200\text{ms}$) déterminent le cadencement de l'étalonnage.

Le temps de commutation τ_{shunt} avant la mesure de la tension du shunt a dû être augmenté à 3s par suite d'oscillations après la commutation de mesure.

→ la stabilité du courant d'alimentation des résistances

Le courant est mesuré au début et à la fin de chaque séquence par la chute de tension aux bornes d'une résistance shunt étalon de $R_{\text{shunt}}=100\text{k}\Omega$ à température ambiante ($\Delta R_{\text{shunt}}/R_{\text{shunt}} < 10^{-5}$) et placée en série avec les thermomètres. On en déduit la valeur de la résistance carbone i à la température T_j .

Il n'est pas nécessaire d'inverser le courant afin d'éliminer les effets thermoélectriques (capteur à basse température, voltmètre à température ambiante) car les mesures d'échauffement sont différentielles.

→ la valeur du courant d'alimentation des résistances

La puissance dissipée dans la résistance par auto échauffement doit rester faible et relativement constante sur l'étendue de température utilisée pour ne pas perturber la mesure. En conséquence le courant d'alimentation doit être modifié en fonction de la température de fonctionnement : $i = 2,5\mu\text{A}$ à $T=1,7\text{K}$ jusqu'à $10\mu\text{A}$ à $4,5\text{K}$. Ceci correspond à une puissance dissipée dans le capteur de l'ordre de $10^{-1}\mu\text{W}$.

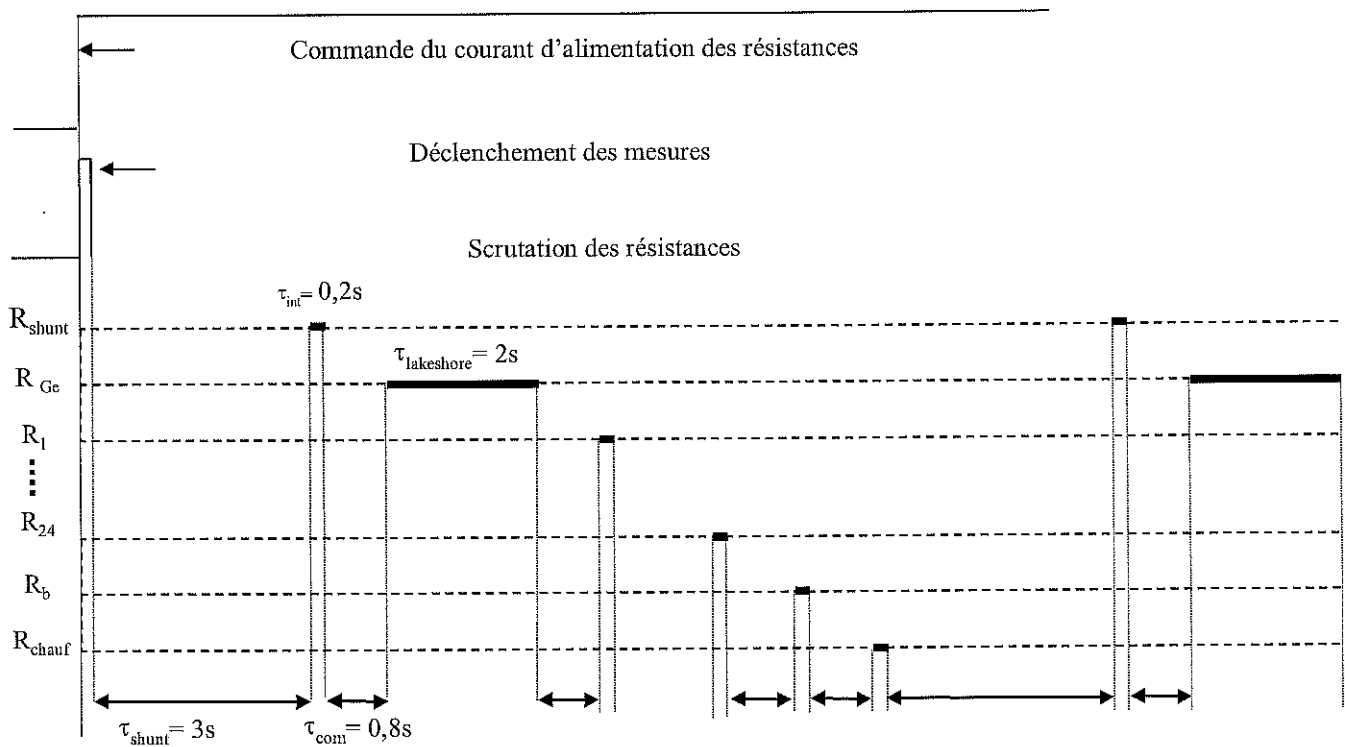


Figure 4-8 : Séquence d'étalonnage des sondes

4.2.1.2 Caractéristiques des thermomètres

Les résistances au carbone varient fortement avec la température entre 1,5K et 4,5K. Cette variation est bien traduite par une loi empirique^[3] de la forme :

$$\frac{1}{T} = A_0 [1 + A_1 \ln(R) + \dots + A_n (\ln(R))^n] \quad (E 4-1)$$

Pour chaque résistance les coefficients A_i sont déterminés en faisant un lissage des points expérimentaux (R, T) par la méthode des moindres carrés. En étalonnant sur dix à quinze valeurs de température, on s'autorise à choisir le meilleur degré pair entre 2 et 6 (généralement l'ordre 4 suffit).

Afin d'apprécier le degré de répétitivité de la calibration nous avons représenté la caractéristique brute $R=f(T)$ obtenue pour une sonde donnée lors de 2 étalonnages successifs à quelques mois d'intervalles (cf. Figure 4-9). La précision du lissage est déterminé par l'écart type moyen sur les N points de mesure dans l'intervalle de température.

A 1,7K l'écart en température est égal à 0,2mK (valeur inférieure à la précision de 1 mK de la sonde Ge) et à 4,2K il vaut environ 2mK.

La sensibilité en fonction de la température d'une telle résistance de carbone est reportée sur la Figure 4-10 : la résistance au carbone s'avère très sensible au flux thermique dans la gamme de température [1,6K, 4,5K].

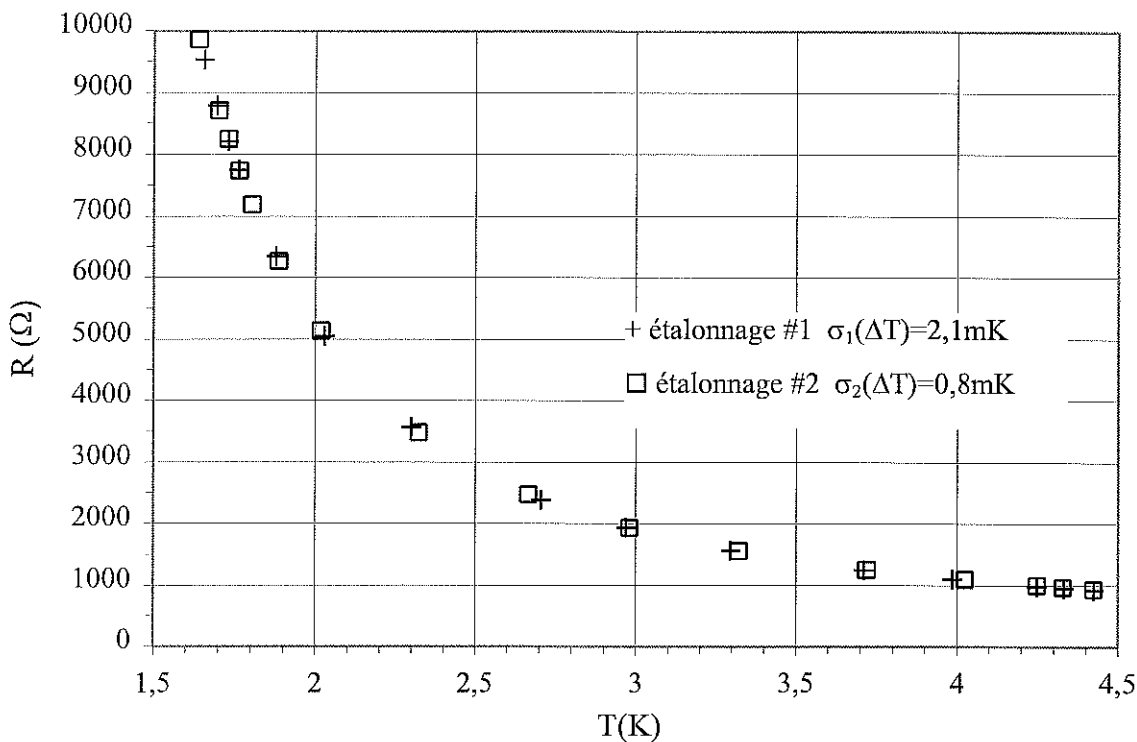


Figure 4-9 : Caractéristique $R=f(T)$ d'une sonde carbone

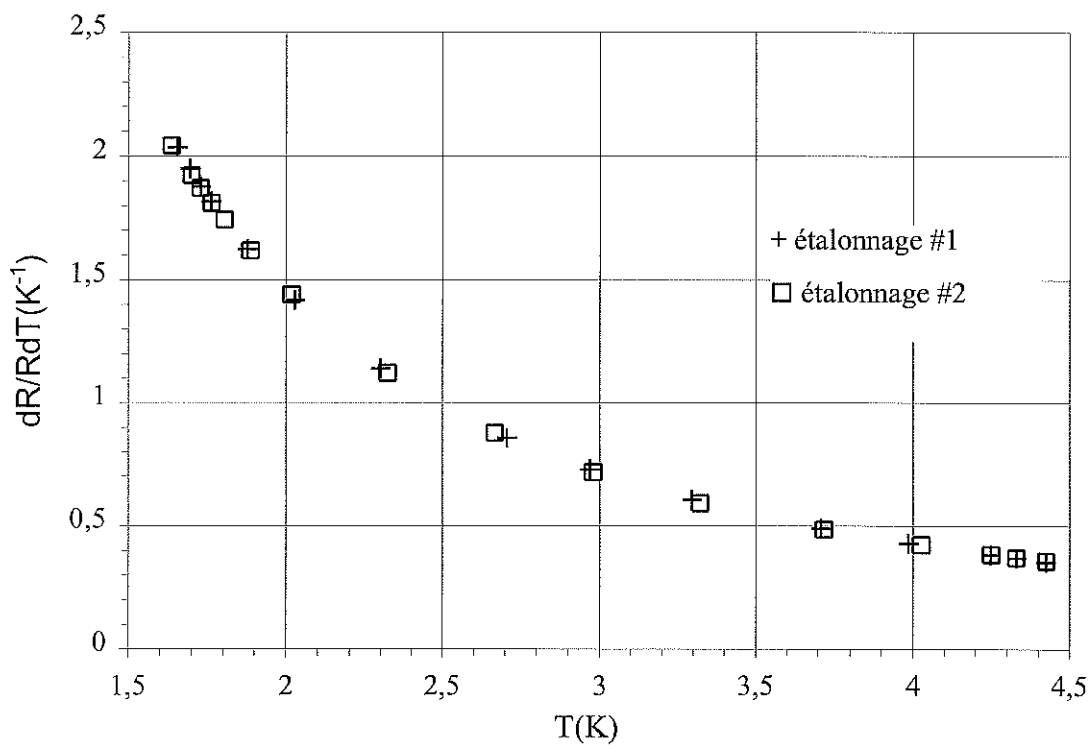


Figure 4-10 : Sensibilité d'une sonde carbone

4.2.1.3 Temps de réponse d'un thermomètre

Un thermomètre possède une certaine capacité calorifique C et n'est pas parfaitement couplé à l'échantillon. Si la température de l'échantillon varie brusquement, le thermomètre va mettre un certain temps avant d'atteindre l'équilibre. Un simple bilan thermique au niveau de l'échantillon permet d'écrire :

$$\Delta T = \Delta T_{\infty} (1 - e^{-\frac{t}{\tau}})$$

avec $\tau = C/k$: constante de temps

Après application d'un échelon de puissance à l'échantillon, on mesure en dynamique l'évolution de la tension aux bornes du capteur à l'aide d'un enregistreur multivoies (SEFRAM 8800) placé en parallèle. Cela permet d'évaluer le temps de réponse τ du thermomètre à environ une seconde (cf. Figure 4-11).

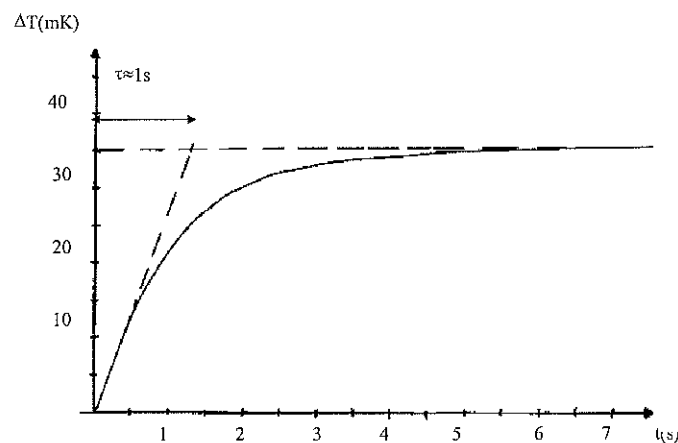


Figure 4-11 : Réponse d'un thermomètre soumis à un échelon de puissance HF
($P_{HF} = 500 \text{ mW}$, $T_{\text{bain}} = 1,7 \text{ K}$)

4.2.2 Mesures d'échauffements de l'échantillon

4.2.2.1 Séquence de mesure

Après l'étalonnage des thermomètres, nous réalisons l'ensemble des acquisitions nécessaires pour déterminer la résistance de surface du disque test en fonction du champ HF. La réponse thermique ΔT des 24 thermomètres après l'application d'une puissance statique puis HF est ainsi mesurée.

La température de référence du bain est donnée par la sonde carbone R_b . Initialement, il était envisagé de mesurer la température du bain avant chaque sonde « i » pour corriger les éventuelles fluctuations du bain de la manière suivante :

$$\Delta T = (T_i(P) - T_i(0)) - (T_{bi}(P) - T_{bi}(0)) \quad (E\ 4-2)$$

Cependant, nous avons observé lors des premiers essais la très grande stabilité du bain (fluctuation inférieure à 1 mK) aussi bien à 1,7K qu'à 4,2K. C'est pourquoi, afin de réduire le temps d'acquisition, nous avons opté pour une correction « minimale » déduite de la mesure du bain avant la première sonde et après la dernière sonde.

4.2.2.2 Erreurs de mesure

L'alimentation en courant continu, le choix des temps de scrutations doivent permettre avec l'instrumentation utilisée d'obtenir une résolution de 1 à 2 μ V sur la mesure de la tension aux bornes de la sonde.

Le voltmètre HP3458 offre sur la gamme 100 mV une sensibilité de 0,1 μ V plus un bruit de 0,2 μ V pour un faible temps d'intégration. Mais, la principale limitation de l'instrumentation vient des multiplexeurs à relais qui génèrent un bruit de $\pm 1\mu$ V.

Déterminons la résolution en température attendue, à partir des relations suivantes :

$$\delta T = \frac{dT}{dR} \delta R = \frac{1}{\frac{dR}{dT}} \left(\frac{\delta R}{R} \right) \quad (E\ 4-3)$$

$$\frac{\partial R}{R} = \frac{dV}{V} + \frac{di}{i}$$

Soit :

$$\delta T = \frac{1}{\frac{dR}{dT}} \left(\frac{dV}{V} + \frac{di}{i} \right) \quad (E\ 4-4)$$

Compte tenu de la sensibilité des sondes (cf. Figure 4-12) et de la stabilité de la source de courant on s'attend à :

$$\delta T (1,7K) = 70\mu K \text{ et } \delta T (4,2K) = 0,5mK$$

En réalisant deux mesures successives de température avec une puissance nulle, on quantifie le bruit réel dû à l'instrumentation :

$$\delta T_{\text{réel}} (1,7K) = 0,1mK \text{ et } \delta T_{\text{réel}} (4,2K) = 0,3mK$$

Nous avons également évalué la perturbation que pourrait engendrer l'onde HF sur les thermomètres en mesurant la variation de leur résistance pour une fréquence légèrement décalée de la fréquence de résonance : cet effet est négligeable. Enfin nous avons vérifié la reproductibilité de la mesure en réalisant des séries de 3 acquisitions successives pour une même puissance : les écarts observés sont égaux dans le bruit de l'instrumentation.

On estime mesurer une valeur correcte à bas champ à partir d'un échauffement de 0,3mK à 1,7K (1mK à 4,2K) en $r=47,4\text{mm}$. Pour les films déposés sur cuivre cela correspond à une puissance minimale exploitable de 8mW à 1,7K (5mW à 4,2K). Pour $H_{\text{smax}}=50$ Oe, cela se traduit par une résistance seuil de 220 n Ω à 1,7K et 130 n Ω à 4,2K. Cette méthode limite donc les mesures à bas champ à 1,7K mais l'on peut généralement extrapoler la courbe $R_s=f(H_s)$. A 1,7K la sensibilité de l'ordre du bruit est de 3 n Ω à 200 Oe. A 4,2K elle est de l'ordre de 7 n Ω à 100 Oe.

4.3 Résultats expérimentaux à $T=1,7\text{K}$

4.3.1 Validation des échauffements mesurés sous puissance statique

4.3.1.1 Mesure de la conductivité thermique du cuivre

Une puissance statique est déposée sur l'échantillon. Les élévations de température relevées en 6 rayons différents sont présentées Figure 4-12.

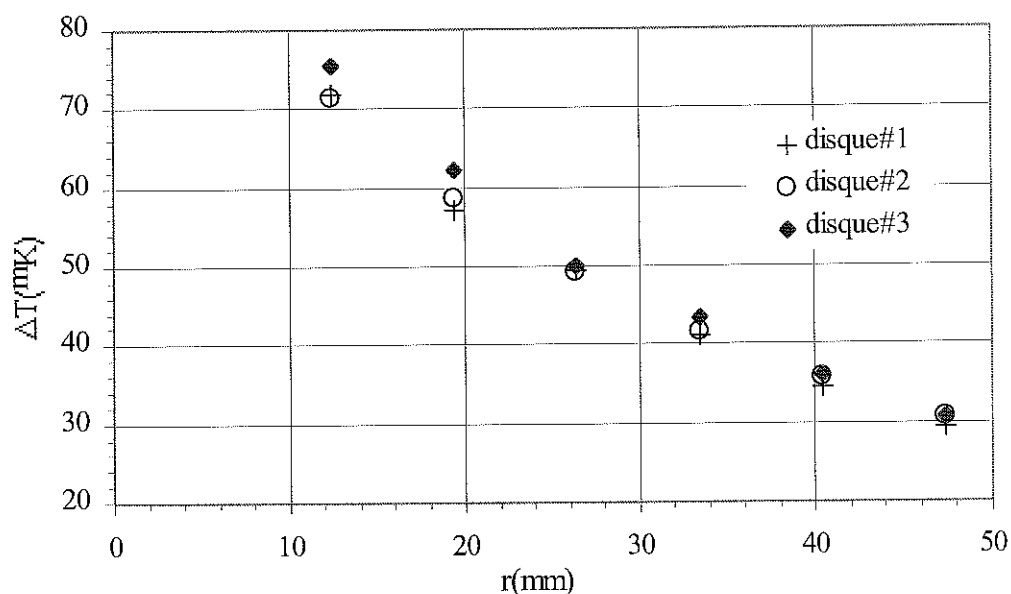


Figure 4-12 : Profil de température radial mesuré ($P_{\text{stat}}=430$ mW, $T_{\text{bain}}=1,7\text{K}$)

La conductivité k du cuivre est déduite du profil de température à partir de la loi de Fourier: $q = -k(T) \frac{dT}{dr}$.

La densité de flux radial q s'exprime simplement en fonction de la puissance statique totale P et de l'épaisseur e du cuivre : $q = \frac{P}{2\pi r e}$

Pour des écarts de températures suffisamment faibles ($\Delta T < 100 \text{ mK}$), on peut assimiler la conductivité thermique moyenne entre les températures T_i (couronne de rayon r_i) et T_{i+1} (couronne de rayon r_{i+1}) à la conductivité thermique arithmétique (i. e. $k(T) = aT + b$).

Il vient :

$$k\left(\frac{T_i + T_{i+1}}{2}\right) = \frac{P}{2\pi e} \frac{\ln(r_{i+1}/r_i)}{T_i - T_{i+1}} \quad (E 4-5)$$

En réalisant la calibration en puissance à plusieurs températures, on obtient la variation de la conductivité du cuivre entre 1,6K et 4,5K que l'on peut considérer comme linéaire (cf. Figure 4-13). La précision de la mesure est estimée à environ 5%.

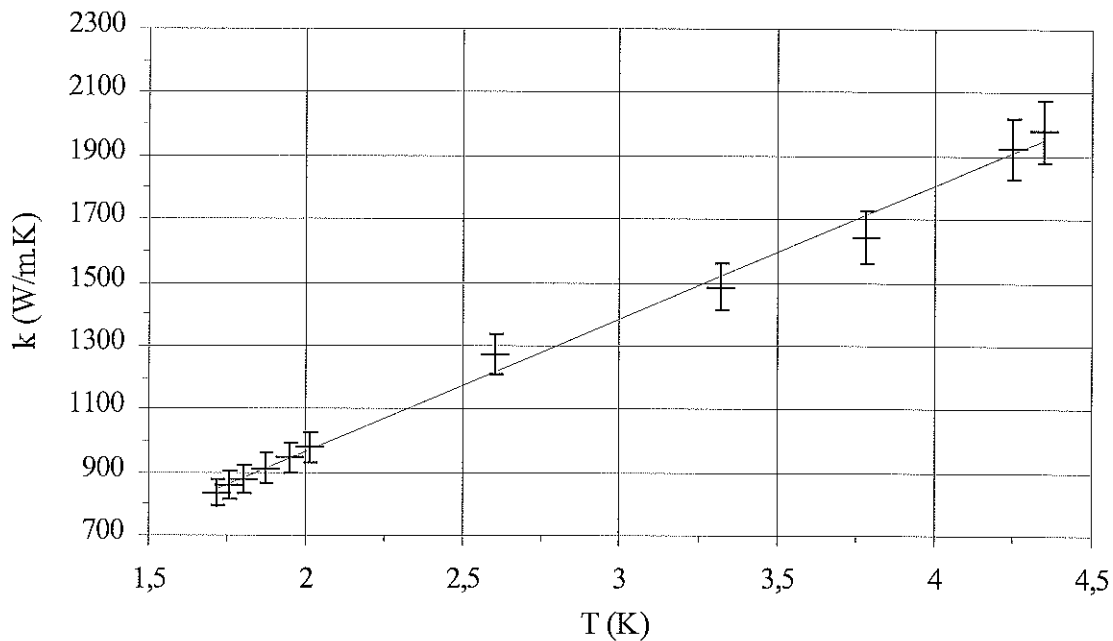


Figure 4-13 : Mesures de la conductivité thermique du cuivre

Or pour les métaux, la conductivité thermique k et la conductivité électrique γ (ou la résistivité ρ) sont reliées par la relation semi-empirique de Wiedemann-Franz :

$$k(T) = \frac{3k_B^2}{e^2} \frac{T}{\rho(T)} \quad (E 4-6)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} k_B : \text{constante de Boltzmann} = 1,3806 \cdot 10^{-23} \text{JK}^{-1} \\ e : \text{charge élémentaire} = 1,602 \cdot 10^{-19} \text{C} \\ T : \text{température absolue (en K)} \end{array} \right.$$

En exprimant cette relation sous une autre forme on obtient une relation entre la conductivité thermique et le RRR:

$$k(T) = \frac{L_o}{\rho_{300K}} \cdot T \cdot \text{RRR} \quad (E 4-7)$$

L_{os} représente le nombre de Lorentz $L_o = \left(\frac{\pi^3}{3}\right) \left(\frac{k_B}{e}\right)^2$ et vaut $2,45 \cdot 10^{-8} \text{W} \cdot \Omega \cdot \text{K}^{-2}$. La résistivité électrique du cuivre à température ambiante ρ_{300} vaut $1,710^{-8} \Omega \cdot \text{m}$

Il est intéressant de comparer la valeur de la conductivité mesurée par la méthode thermique k_{mes} à celle déduite d'une mesure de RRR (notée k_{RRR}).

Ainsi, nous avons évalué le RRR d'un barreau de cuivre provenant de la tôle utilisée pour la fabrication des disques TE₀₁₁. Ce barreau a subi les mêmes étapes de préparation que les échantillons (traitement de surface et dépôt de niobium) avant d'être décapé chimiquement. La mesure de RRR s'effectue selon la méthode « 4 fils » en courant continu, à l'aide d'une source de courant stable ($\Delta i/i < 10^{-4}$) couplé à un microvoltmètre FLÜKE 8842A dont la sensibilité est de $0,1 \mu\text{V}$. On relève les tensions à 295K et à 4,2K pour un courant de 1A inversé afin d'éliminer les effets thermoélectriques :

$$\begin{array}{l|l} U+(295\text{K})=221\mu\text{V} & U-(4,2\text{K})=-0,9\mu\text{V} \\ U-(295\text{K})=221\mu\text{V} & U+(4,2\text{K})=0,6\mu\text{V} \\ \text{soit } R(295\text{K})=221\mu\Omega \pm 0,1 & \text{soit } R(4,2\text{K})=0,75\mu\Omega \pm 0,1 \end{array}$$

On obtient :

$$\text{RRR}_{\text{Cu}} = 295 \pm 40$$

Cela correspond à une erreur d'environ 14% sur la mesure de la conductivité thermique. La confrontation des 2 méthodes de détermination de k à différentes températures est présentée dans le Tableau 4-1.

T (K)	k_{mes} (W/m.K)	k_{RRR} (W/m.K)	$\Delta k/k_{mes}$ (%)
1,7	840	730	13
2	980	850	13
3,3	1480	1410	5
3,8	1640	1620	2
4,2	1920	1810	6

Tableau 4-1 : Conductivité thermique du cuivre mesurée par deux méthodes

Compte tenu des erreurs de mesure de chacune des méthodes, les résultats concordent.

4.3.1.2 Détermination du coefficient d'échange h_k

Les conditions expérimentales ($P_{max}=2W$ et $S_{ech}=4,3cm^2$ donnant $q_{max}=0,05W/cm^2$) correspondent au « régime de Kapitza » (cf. Annexe IV).

Dans ce régime, les valeurs expérimentales de h_k pour le système Cu-HeII peuvent varier d'un ordre de grandeur suivant l'état de surface et le traitement subi par l'échantillon (cf. Figure 4-14).

La région la plus élevée sur la figure se réfère à des surfaces de cuivre dites propres aussi bien chimiquement que mécaniquement. Inversement, les plus faibles valeurs de h_k correspondent à des échantillons présentant un mauvais état de surface. La théorie de Khalatnikov sous estime la valeur de h_k ($h_k^{hal} < 10 h_{k_{min}}^{exp}$) tandis que la théorie de radiation par les phonons donne une valeur de h_k trop élevée ($h_k^{PRL} > 3,5 h_{k_{max}}^{exp}$).

On en déduit une loi approximative de variation de h_k en fonction de la température du bain :

$$h_k=0,9 T^3 \text{ kW/m}^2.K \text{ (surfaces propres) (E 4-8)}$$

$$h_k=0,4 T^3 \text{ kW/m}^2.K \text{ (surfaces sales) (E 4-9)}$$

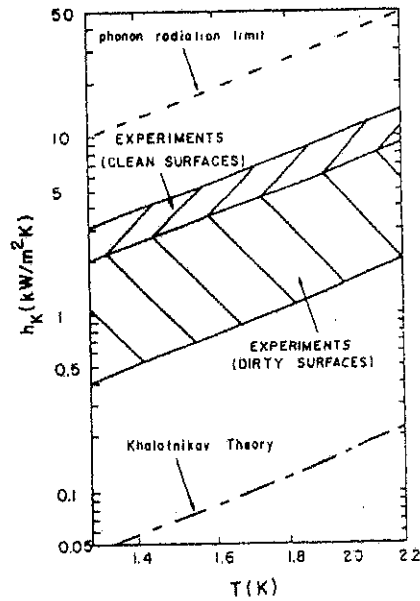


Figure 4-14 : Comparaison des valeurs expérimentales de h_k pour le système Cu-HeII avec les théories de radiation par les phonons et acoustique [4]

Nous avons déterminé la valeur du coefficient d'échange en utilisant conjointement les profils de température mesurés et le code de simulation numérique. La méthode est la suivante : on initialise h_k à une valeur typique de la littérature puis on impose des itérations successives sur ce paramètre jusqu'à ce qu'il converge pour obtenir la valeur de l'échauffement ΔT_{ext} mesurée sur la couronne périphérique ($r=47,4\text{mm}$).

Les résultats sont faiblement dispersés (cf. Tableau 4-2). Cela confirme l'indépendance de h_k vis à vis du flux donc du saut de température à l'interface solide/liquide

$q(\text{W/cm}^2) \times 10^{-2}$	5	17	46
$h_k(\text{W/m}^2\cdot\text{K})$	4030	4040	4040
$T_{\text{Cu}}-T_{\text{HeII}}(\text{mK})$	15,3	49,9	139

Tableau 4-2 : Evaluation du coefficient d'échange h_k pour le système Cu/HeII ($T_{\text{bain}}=1,7\text{K}$)

La valeur obtenue est proche des résultats expérimentaux précités concernant un échantillon de cuivre propre car la relation empirique (E4-8) donne $4400 \text{ W/m}^2\cdot\text{K}$.

4.3.1.3 Comparaison des profils de température expérimentaux et simulés

Le profil mesuré est comparé à celui obtenu par la simulation numérique avec les paramètres thermiques suivants (ajustés à partir des mesures) :

- température du bain T_{bain}
- puissance statique appliquée P
- conductivité thermique du substrat $k(T)$
- coefficient d'échange h_k à l'interface Hélium/Cuivre

Un exemple de profils mesurés et obtenus par simulation numérique à 2 niveaux de puissance très différents est illustré Tableau 4-3. Il montre clairement un très bon accord entre simulation numérique et expérience.

P_{stat} (mW)	type	$\Delta T_{12,4\text{mm}}$ (mK)	$\Delta T_{19,4\text{mm}}$ (mK)	$\Delta T_{26,4\text{mm}}$ (mK)	$\Delta T_{33,4\text{mm}}$ (mK)	$\Delta T_{40,4\text{mm}}$ (mK)	$\Delta T_{47,4\text{mm}}$ (mK)
220	simulation	36,5	29,4	24,4	20,7	17,6	15,1
220	mesure	36,8	29,2	25,3	20,9	17,5	15,1
1990	simulation	320	260,3	218,7	186,6	160,5	138,3
1990	mesure	323	254,6	228,4	187,8	159,2	138,3

Tableau 4-3 : Comparaison de profils de température mesurés et simulés
($T_{\text{bain}}=1,7\text{K}$)

4.3.2 Relation $\Delta T=f(P)$

A la température de travail choisie, on mesure les échauffements sur le disque après l'envoi de puissance statique de 0 à 2W. Les acquisitions sur toute cette plage sont nécessaires pour déterminer une relation entre ΔT et la puissance déposée.

Le coefficient d'échange entre le cuivre et l'hélium superfluide étant constant et indépendant de la puissance appliquée, on s'attend à une réponse thermique linéaire en fonction de la puissance (cf. Figure 4-15).

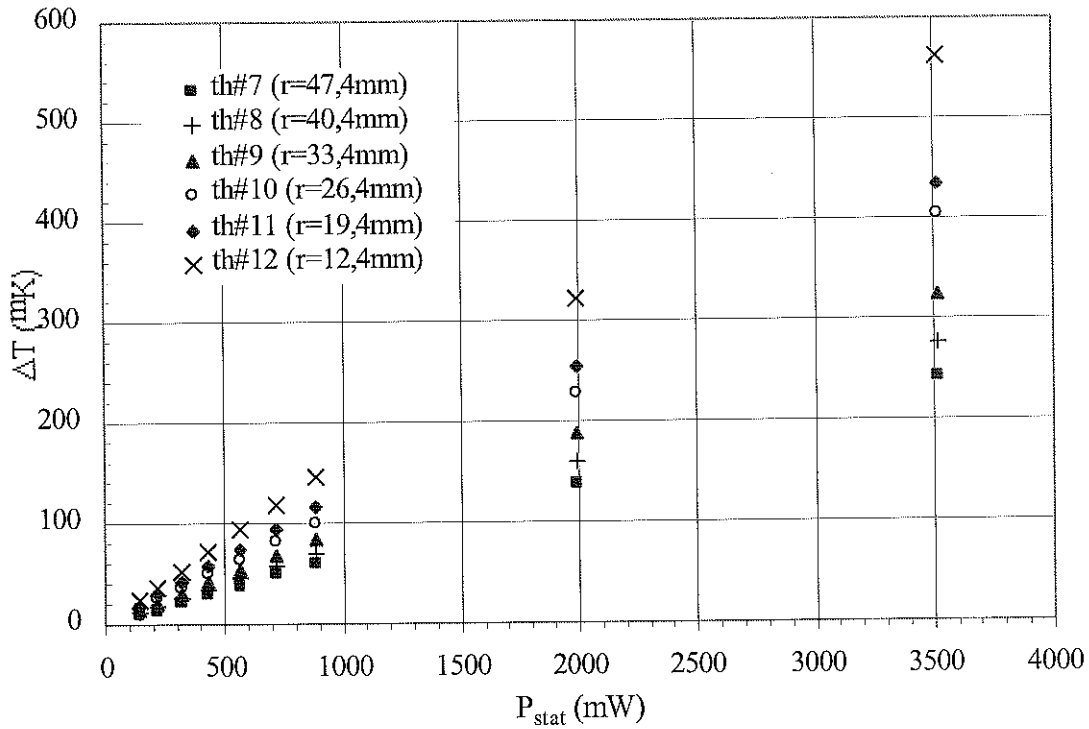


Figure 4-15 : Elévation de température mesurée entre $r=12,4\text{mm}$ et $r=47,4\text{mm}$ en fonction de la puissance déposée sur 1 disque Nb/Cu à $T_{bain}=1,7\text{K}$

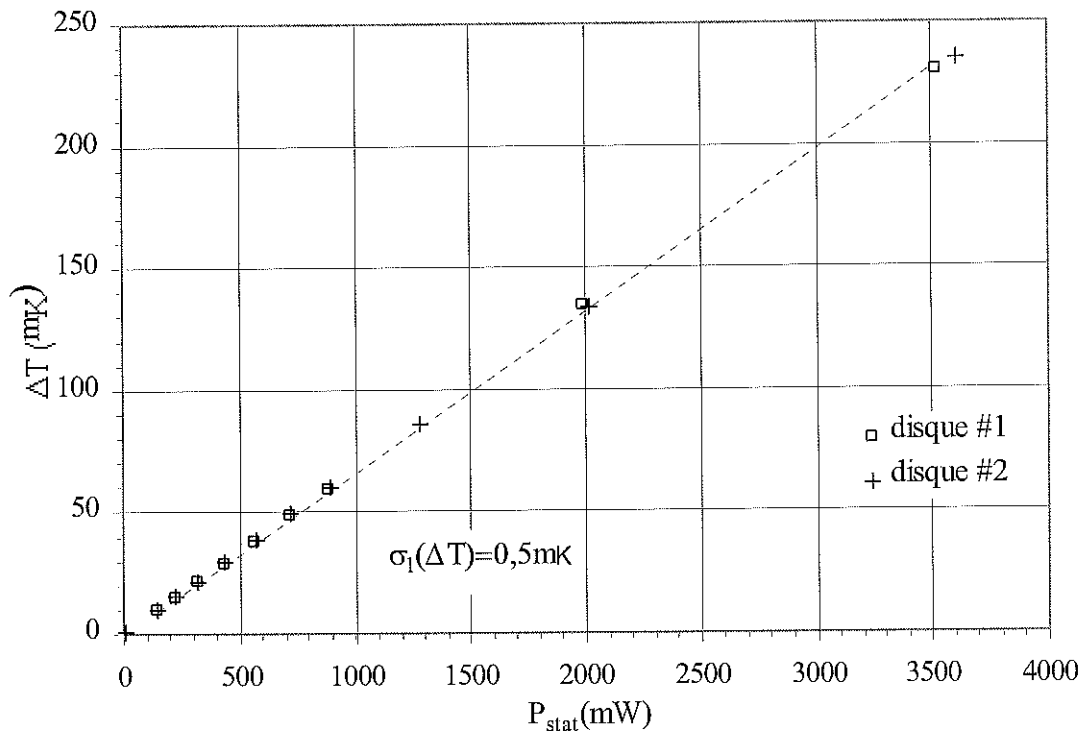


Figure 4-16 : Elévation de température mesurée à $r=47,4\text{mm}$ en fonction de la puissance déposée sur 2 disques Nb/Cu à $T_{bain}=1,7\text{K}$

La droite passe par l'origine (cf. Figure 4-16): les fuites thermiques sont donc très faibles.

Le lissage des points expérimentaux par une droite conduit à un écart quadratique moyen σ voisin de 0,5mK sur tout l'intervalle de puissance. Les variations des réponses entre les 4 thermomètres placés sur le rayon périphérique sont faibles et de l'ordre de 3%.

4.3.3 Échauffements mesurés sous puissance HF

Après la calibration en puissance statique, on mesure les échauffements de température sur le disque après l'envoi de puissance HF. On détermine ainsi une relation entre ΔT et $H_{s\max}^2$.

Les Figures 4-17 et 4-18 illustrent les échauffements mesurés par un thermomètre périphérique pour quelques échantillons testés. La loi de lissage la plus appropriée pour relier ΔT et $H_{s\max}^2$ est un polynôme de second degré.

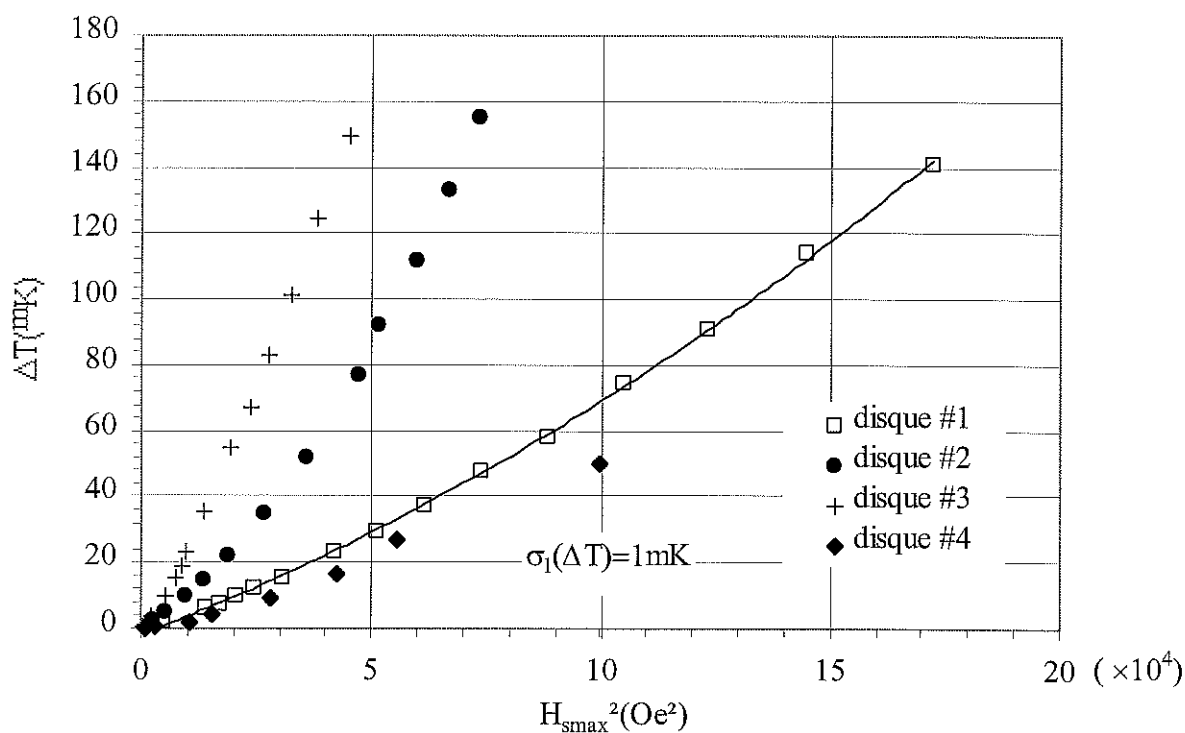


Figure 4-17 : Elévation de température mesurée à $r=47,4$ mm en fonction du champ magnétique sur 4 disques Nb/Cu à $T_{\text{bain}}=1,7$ K et $f=4$ GHz

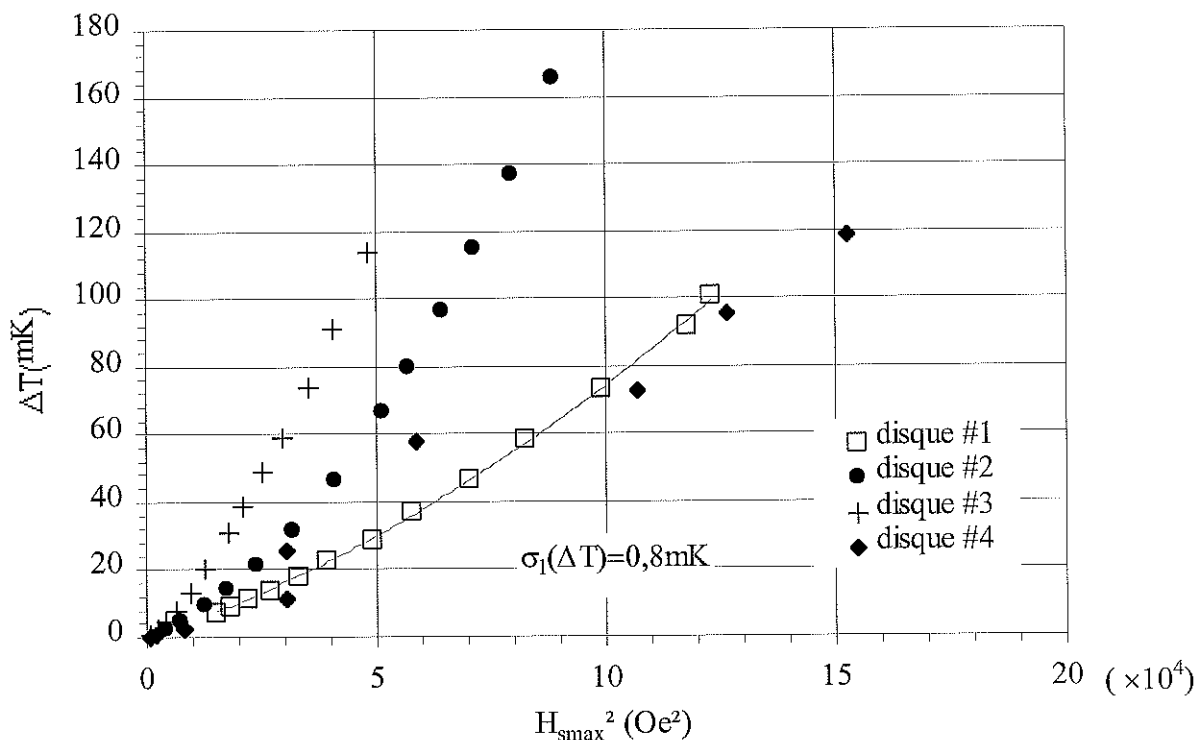


Figure 4-18 : Elévation de température mesurée à $r=47,4mm$ en fonction du champ magnétique sur 4 disques Nb/Cu à $T_{bain}=1,7K$ et $f=5,6 GHz$

Les échauffements observés sur un rayon donné sont généralement uniformes. Les variations des réponses entre les différents thermomètres sont du même ordre ($<7\%$) que celles obtenues lors de l'envoi de puissance statique. ($<5\%$).

Sur les 7 échantillons mesurés, seul le disque #2, a clairement mis en évidence des inhomogénéités de dissipations à 4GHz comme à 5,6GHz, en particulier pour $H_{smax} > 120Oe$ (cf. Figure 4-19).

Il serait intéressant de comparer d'un point de vue microscopique les différentes zones de dissipation. Malheureusement, ce disque de forte rugosité ne permet pas des fines observations de la couche supraconductrice avec le microscope à force atomique.

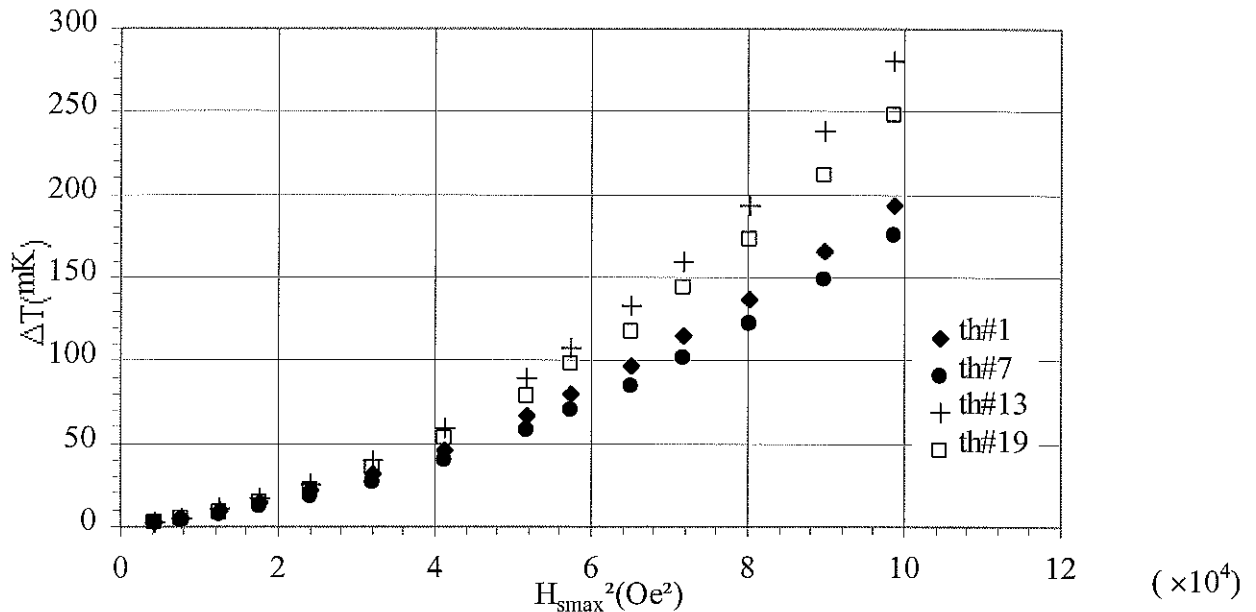


Figure 4-19 : Elévation de température mesurée à $r=47,4\text{mm}$ en fonction du champ magnétique sur le disque #2 Nb/Cu à $T_{bain}=1,7\text{K}$, $f=4\text{ GHz}$

4.3.4 Validation de la méthode calorimétrique

A partir des courbes $\Delta T=f(P)$ et $\Delta T=f(H_{smax}^2)$ de chaque thermomètre placé à un rayon supérieur à 40mm, on associe la puissance totale dissipée sur le disque P et le champ magnétique H_{smax} (cf. chapitre 3). On en déduit la loi de variation de la résistance de surface en fonction du champ en utilisant la relation établie précédemment :

$$P_{res} = H_{smax}^2 (35,6 R_0 + 3,75 R_1 H_{smax} + 0,413 R_2 H_{smax}^2)$$

Pour valider la nouvelle méthode de mesure, nous avons choisi de déterminer la résistance de surface d'un disque en niobium massif de référence par la méthode HF classique et par la thermométrie sous vide. Mais du fait de la faible conductivité thermique du niobium, le refroidissement latéral est insuffisant à trop forte puissance. Par conséquent, la comparaison entre les 2 méthodes ne peut être faite qu'à bas champ. A 4 GHz comme à 5,6 GHz, les valeurs de résistance de surface obtenues avec les 2 méthodes sont proches (cf. Figure 4-20).

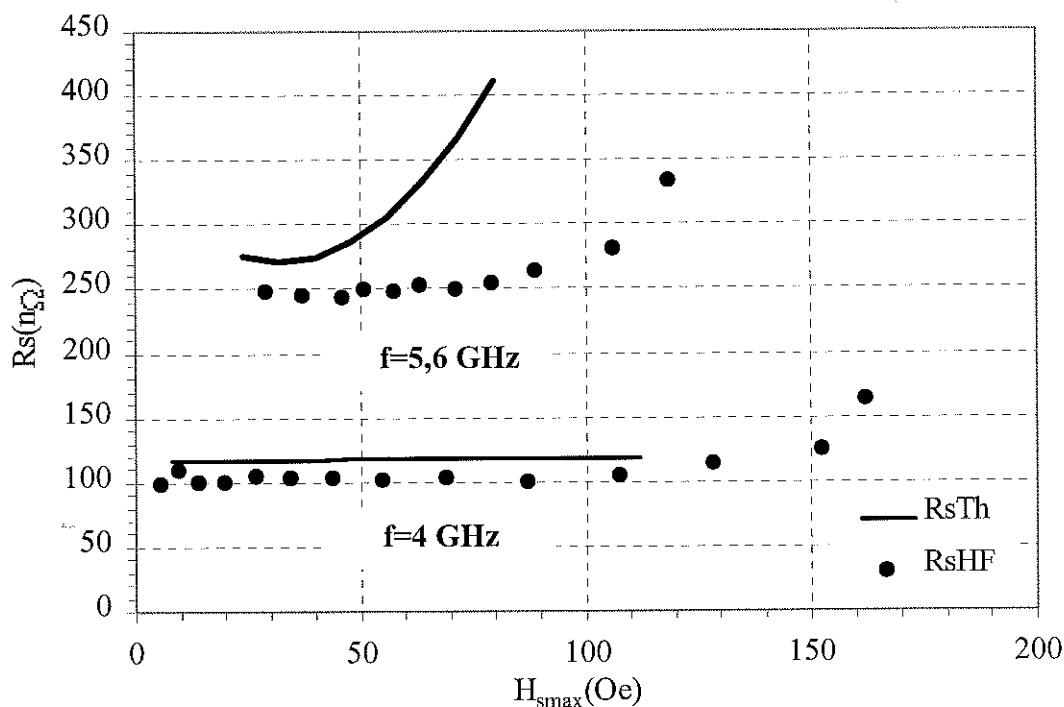


Figure 4-20 : Comparaison de 2 méthodes de mesures de R_s du niobium massif à $T_{bain} = 1,7K$

4.3.5 Précision de la méthode calorimétrique

Déterminons l'erreur commise sur la résistance de surface déterminée par thermométrie sous vide.

4.3.5.1 Erreurs sur la mesure de Pstat

L'erreur expérimentale sur la mesure de la puissance statique se détermine simplement à partir de des erreurs commises sur les mesures de courant et de tension :

$$\frac{\Delta P}{P} = \frac{\Delta I}{I} + \frac{\Delta U}{U} \quad (E 4-10)$$

Dans la gamme de puissance correspondant à nos tests, l'incertitude relative sur la puissance est de inférieure à 1%.

4.3.5.2 Incertitude sur R_s

A 1,7K La puissance RF dissipée sur le disque s'exprime par :

$$P = \frac{1}{2} \iint_S R_{res}(H_s) H_s^2(S) dS \quad (E 4-11)$$

$$\text{et } R_{res}(H_s) = R_0 + R_1 H_s + R_2 H_s^2$$

En tenant compte de la dépendance quadratique en champ de la résistance résiduelle on fait intervenir les coefficients R_0 , R_1 et R_2 et le calcul d'erreur sur la R_s s'avère inextricable.

Cependant, on peut estimer l'erreur sur R_{res} à bas champ en supposant que la résistance de surface est constante dans la gamme de champ choisie. Alors :

$$P = 35,6 R_{res} H_{s \max}^2$$

L'incertitude absolue sur la résistance de surface s'écrit alors:

$$\Delta R_s = R_s \left(\frac{\Delta P}{P} + 2 \frac{\Delta H_{s \max}}{H_{s \max}} \right) \quad (E 4-12)$$

L'erreur sur le champ magnétique de surface est le même que pour la méthode HF (3%). On en déduit l'écart quadratique moyen sur R_s par la méthode thermométrique, toujours valable à bas champ ou, si la dépendance en champ de R_s est faible, sur tout l'intervalle d'étude (cf. Tableau 4-4).

R_s (nΩ)	σ_{R_s} (nΩ)
100	6
200	13
400	25
800	50
1000	65
1500	95

Tableau 4-4 : Ecart quadratique moyen sur R_s à 1,7K

Quelles que soit les performances de l'échantillon supraconducteur, les valeurs de σ_{R_s} pour la thermométrie sous vide sont très inférieures à celles obtenues par les mesures HF.

4.3.6 Mesures d'échantillons Nb/Cu

La Figure 4-21 fournit un exemple de la courbe $R_s=f(H_s)$ d'un disque Nb/Cu obtenue par thermométrie sous vide.

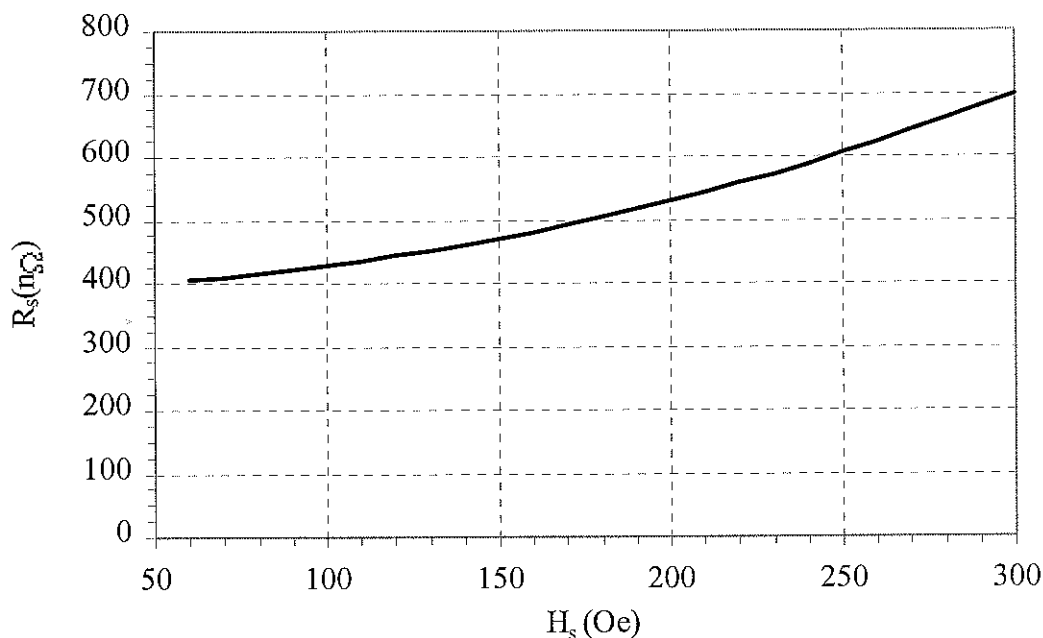


Figure 4-21 : R_s d'un disque Nb/Cu ($T_{\text{bain}}=1,7\text{K}$, $f=4\text{ GHz}$)

Nous avons comparé les valeurs expérimentales de la résistance de surface à 1,7K d'un disque test Nb/Cu déduites par thermométrie R_{sth} et mesurées par la méthode HF R_{sHF} .

Sur les 5 disques Nb/Cu testés, nous avons remarqué sans encore l'expliquer que la méthode calorimétrique donne systématiquement des valeurs de R_s inférieures à celles de la méthode HF. Cet écart observé à 4 GHz comme à 5,6 GHz est d'environ 20%.

4.4 Résultats expérimentaux à $T=4,2\text{K}$

4.4.1 Calibration en puissance statique

Il existe différents régimes de transfert de chaleur entre un solide chauffé en contact avec de l'hélium normal (cf. Annexe IV). Chaque régime est caractérisé par une relation de type puissance entre le flux de chaleur envoyé et l'échauffement.

En représentant la réponse thermique d'un thermomètre en fonction de la puissance P_{stat} appliquée sur le disque, on retrouve logiquement le même type de variation (cf. Figure 4-22).

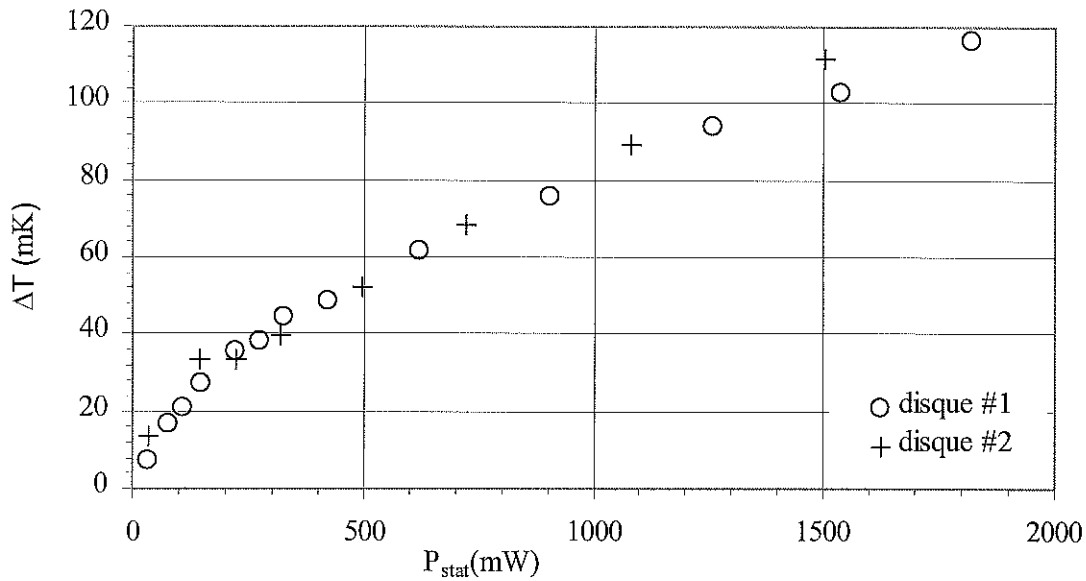


Figure 4-22 : Elévation de température mesurée à $r=47,4\text{mm}$ en fonction de la puissance déposée sur 2 disques Nb/Cu à $T_{bain}=4,2\text{K}$

On peut remarquer sur le graphe expérimental un net changement de courbure à partir de 200 mW environ (soit $4,5\text{ mW/cm}^2$) correspondant à un échauffement proche de 30 mK. Cela marque le changement de régime d'échange c'est à dire le passage du mode de convection naturelle au mode d'ébullition nucléée.

Pour confirmer cette hypothèse, nous avons prêté attention à la réponse dynamique de l'ensemble des thermomètres soumis à une puissance statique. La Figure 4-23 met en évidence la relaxation de l'état de surchauffe : au-delà d'un certain flux, on assiste à la lente transition vers le régime d'ébullition nucléée de meilleure efficacité de transfert donc conduisant à un plus faible échauffement du disque.

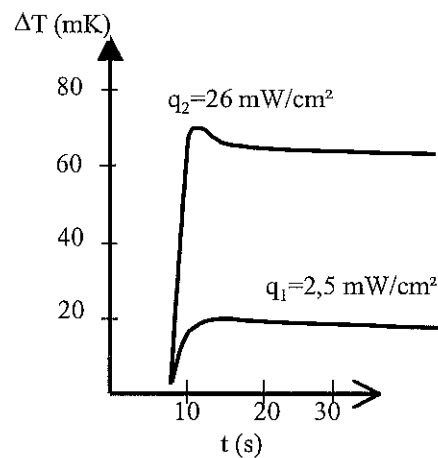


Figure 4-23 : Mise en évidence de la relaxation de l'état de surchauffe d'un disque soumis à une puissance statique à $T_{bain}=4,2\text{K}$

Ce phénomène a été détecté à la périphérie du disque comme en son centre. Cet état de surchauffe intervient dès que le disque est plongé dans de l'hélium normal soit à partir de 2,17K. Notons qu'à 4,2K, on peut dépasser le stade de surchauffe pour un flux supérieur à 30 mW/cm², soit un échauffement en bordure du disque de l'ordre de 80mK.

Nous avons déterminé à 4,2K la variation du coefficient d'échange en fonction de la puissance appliquée par le biais de la simulation numérique et selon la même procédure qu'à 1,7K. En se plaçant dans la zone relative au régime d'ébullition nucléée on obtient : $h_k \propto \Delta T^{0,7}$

4.4.2 Échauffements mesurés sous puissance HF

À 4,2K, on mesure les échauffements de température provoqués par l'application sur le disque de puissance HF en alternance avec l'envoi de puissance statique. Ceci est réalisé dans le sens de flux croissant pour limiter le nombre de changement de régime d'échange. On détermine et on ajuste à nouveau la loi de variation de $\Delta T = f(H_{s\max}^2)$ avec une loi en puissance.

La Figure 4-24 présente un exemple des échauffements relevés via un thermomètre situé sur la couronne périphérique pour 2 échantillons testés. On observe un changement de pente identique à la courbe $\Delta T = f(P_{\text{stat}})$. Comme à 1,7K, on constate l'uniformité des échauffements relevés sur un rayon donné. Les variations des réponses entre les différents thermomètres sont du même ordre que celles obtenues lors de l'application de puissance statique.

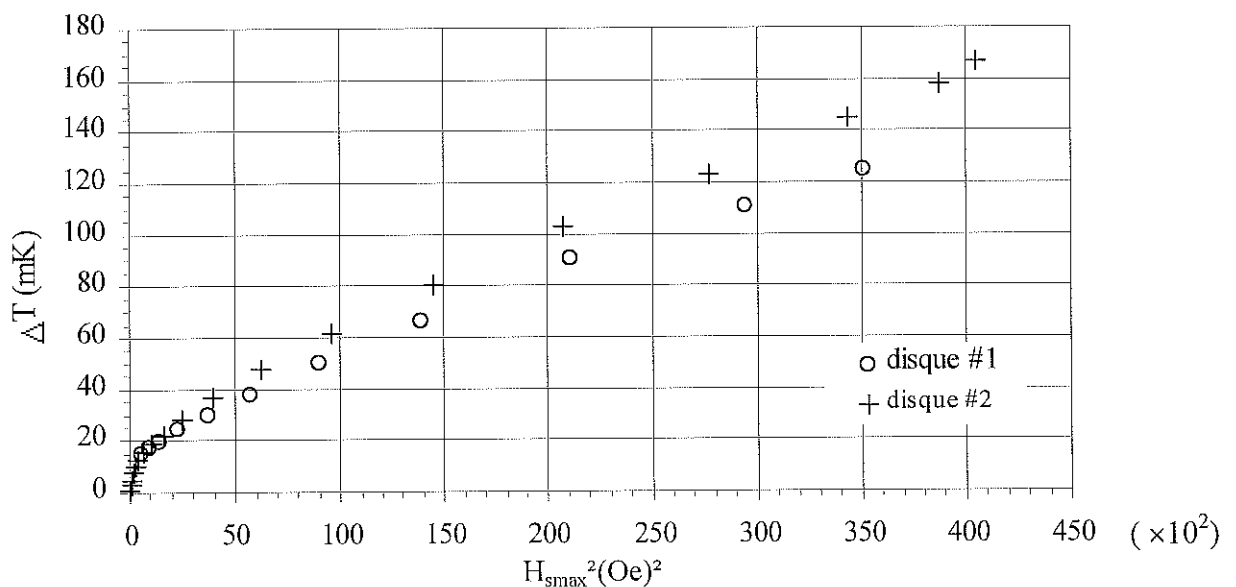


Figure 4-24 : Élévation de température mesurée à $r=47,4\text{mm}$ en fonction du champ magnétique sur 2 disques Nb/Cu à $T_{\text{bain}}=4,2\text{K}$, $f=4\text{GHz}$

La durée de l'état transitoire (constante de temps de la relaxation τ) diminue quand on augmente la puissance, jusqu'à s'annuler lorsque l'ensemble de sites actifs de nucléation sont stabilisés (cf. Figure 4-25). De telles observations sont également présentées par Smidt^[5] (cf. Figure 4-26).

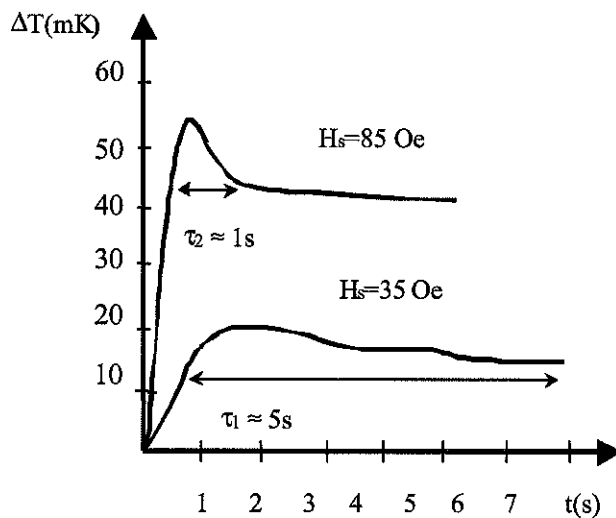


Figure 4-25 : Mise en évidence de la relaxation de l'état de surchauffe d'un disque Nb/Cu soumis à une puissance HF à $T_{\text{bain}}=4,2\text{K}$

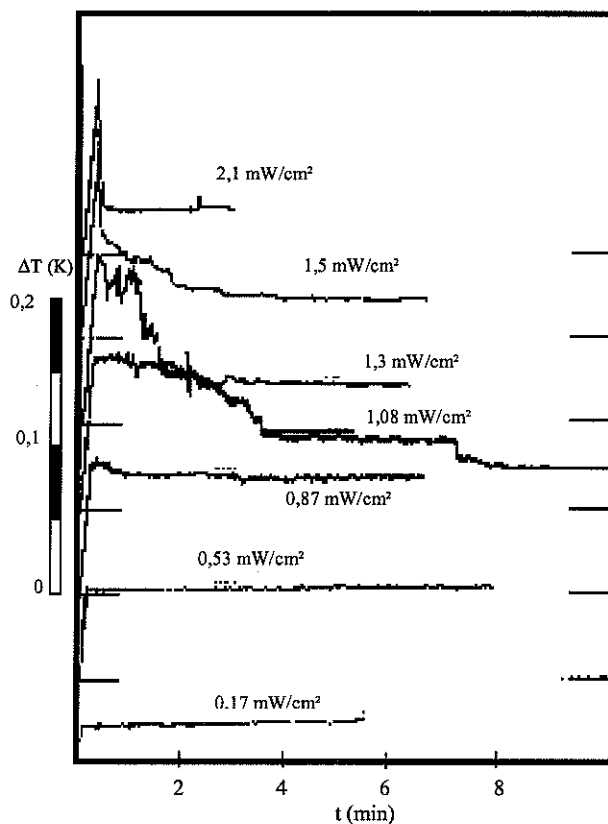


Figure 4-26 : Stabilité et Relaxation de l'état de surchauffe

4.4.3 Validation de la méthode calorimétrique

Le degré de surchauffe dans le mode de conduction naturelle dépend énormément des conditions de surface et de la procédure expérimentale. C'est un état de non équilibre où interviennent des phénomènes complexes. Il en résulte que dans cette région l'interprétation des résultats expérimentaux avec l'hypothèse « iso échauffement -iso puissance » devient délicate. Néanmoins, nous avons constaté que l'effet d'hystérésis s'affaiblit avec l'augmentation du flux de chaleur.

Dans le cas d'un film déposé sur substrat cuivre, l'exploitation des mesures devient possible pour des valeurs de flux de l'ordre 6 mW/cm^2 où la détermination de la puissance n'est pas altérée.

Aussi, à moins de s'affranchir de ces instabilités à bas flux, parler de seuil de détection de la manip à $4,2\text{K}$ en terme de puissance minimale mesurable n'a plus de sens.

Pour valider la méthode de mesure à $4,2\text{K}$, nous procédons de la même manière qu'à $T=1,7\text{K}$ en comparant la résistance de surface d'un disque en niobium massif obtenue à bas champ par méthode HF classique et par thermométrie sous vide (cf. Figure 4-27).

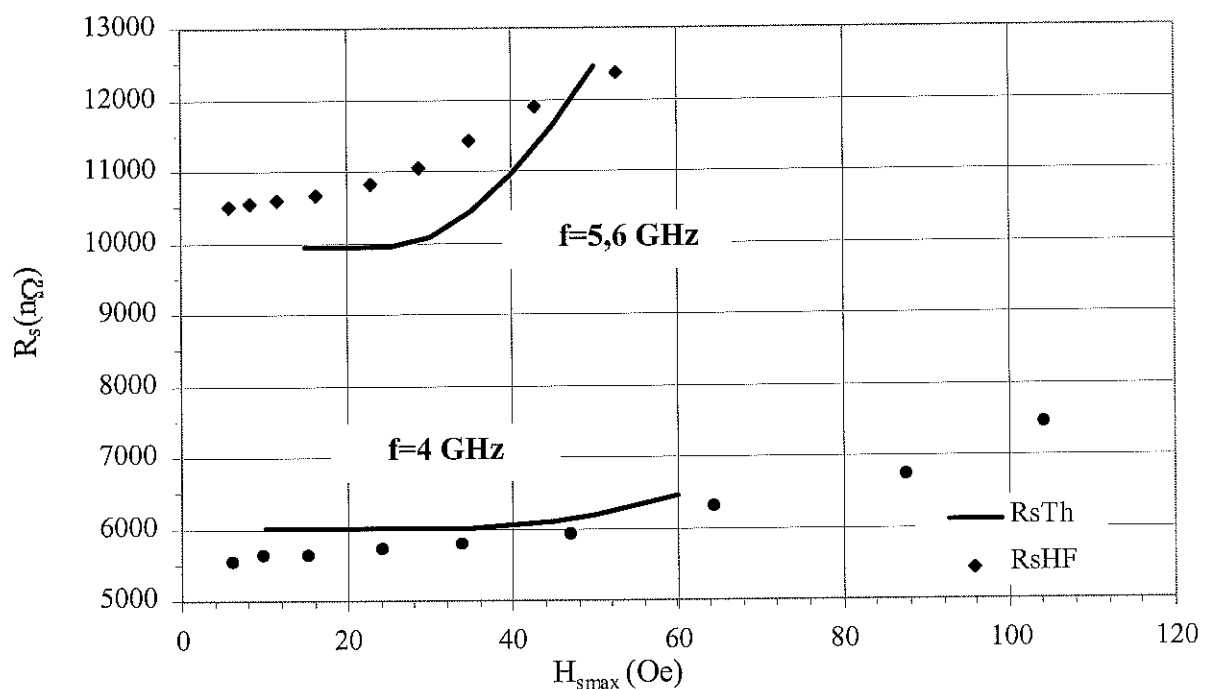


Figure 4-27 : Comparaison de 2 méthodes de mesures de R_s du niobium
à $T_{bain} = 4,2\text{K}$

A 4 GHz comme à 5,6 GHz, les valeurs de résistance de surface obtenues avec les 2 méthodes sont proches. Même si à 4,2 K, la méthode HF est peu sensible ($\Delta R_{S_{Nb}}=600 \text{ n}\Omega$ à 4 GHz) on peut dire que la détermination de R_s par thermométrie sous vide à 4,2K est validée.

Notons que lors des tests des disques en niobium massif, le phénomène de relaxation de l'état de surchauffe, qui dépend aussi de la nature de l'échantillon chauffé, n'est pas survenu.

4.4.4 Incertitude sur R_s

A 4,2K, la puissance RF dissipée sur le disque s'exprime par :

$$P = \frac{1}{2} \iint_S R_{res}(H_s) H_s^2(S) dS + \frac{1}{2} \iint_S R_{BCS}(T) H_s^2(S) dS \quad (E 4-13)$$

$$P = P_{res} + P_{BCS}$$

A 4,2K en supposant que le profil radial de température est égal à une constante (cf. chapitre 3) on peut écrire :

$$P_{BCS} = 35,6 R_s H_{s \max}^2$$

De même, en supposant que la résistance de surface varie peu dans la gamme de champ choisie alors :

$$P_{res} = 35,6 R_s H_{s \max}^2$$

Comme à 1,7K, l'incertitude absolue sur la résistance de surface à 4,2K s'écrit :

$$\Delta R_s = R_s \left(\frac{\Delta P}{P} + 2 \frac{\Delta H_{s \max}}{H_{s \max}} \right) \quad (E 4-14)$$

On en déduit l'écart quadratique moyen sur R_s par la méthode thermométrique (cf. Tableau 4-5).

R_s (n Ω)	σ_{R_s} (n Ω)
3500	220
4000	250
4500	285
5500	350
6000	380

Tableau 4-5 : Ecart quadratique moyen sur R_s à 4,2K

Les valeurs de σ_{R_s} correspondant à la thermométrie sous vide sont très inférieures à celles

4.4.5 Mesures d'échantillons Nb/Cu

Un exemple de la variation de la résistance de surface en fonction du champ à 4,2K et 4GHz pour un disque Nb/Cu est illustré Figure 4-28. Suite aux instabilités à bas flux, la résistance de surface ne peut être déterminée qu'à partir de $H_s=50$ Oe et jusqu'à 120 Oe, soit une plage de champ réduite.

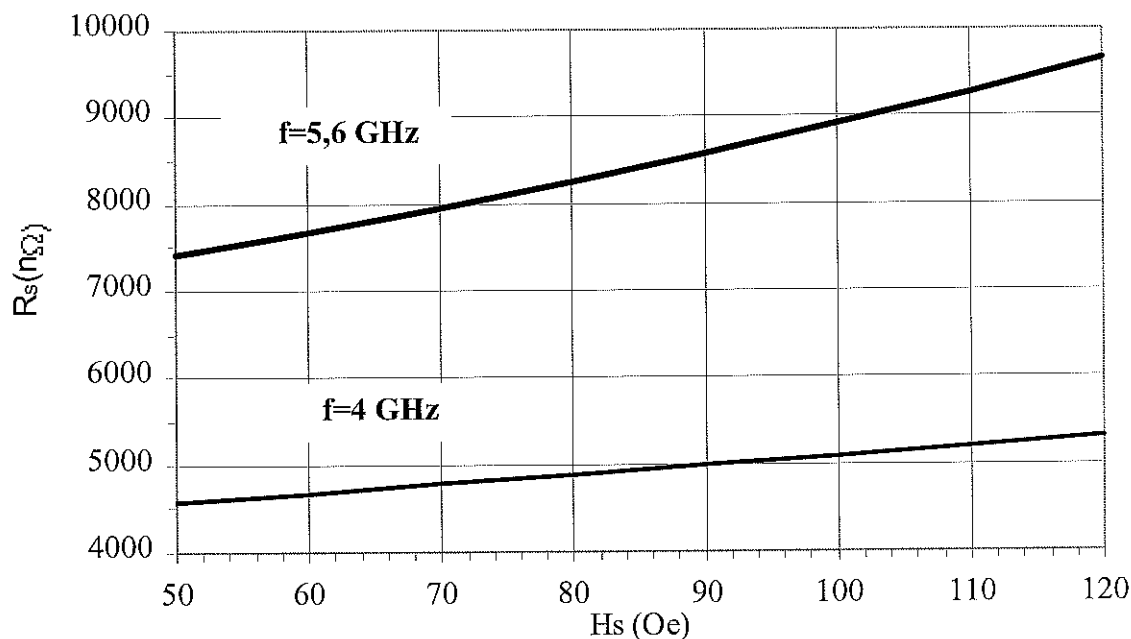


Figure 4-28 : Courbe $R_s=f(H_s)$ d'un disque Nb/Cu à $T_{bain}=4,2K$

En soustrayant la contribution de la résistance résiduelle, on obtient la résistance R_{BCS} à 4,2 K. R_{BCS} est indépendante du champ et vaut typiquement entre 3500 nΩ et 4000 nΩ à 4 GHz et de 5500 à 6000 nΩ à 5,6 GHz. On ne retrouve donc pas la dépendance quadratique en fréquence de R_{BCS} .

4.5 Bilan

La thermométrie sous vide permet de déterminer la résistance de surface à 1,7K comme à 4,2K, avec une meilleure précision que la méthode HF. Nous avons ainsi évalué par cette méthode les dissipations HF d'une série de disque Nb/Cu (cf chapitre 5). Il serait maintenant intéressant de mieux caractériser d'autres supraconducteurs tels que (NbTi)N, Nb₃Al ou Nb₃Sn.

Au dessus de 2,17K, nous avons cependant observé des instabilités de régime d'échange entre le cuivre et l'hélium ce qui limite les mesures à bas champ. Pour s'en affranchir et se situer directement en régime d'ébullition nucléée, nous proposons de modifier le dispositif

expérimental en utilisant notamment une source de puissance statique supplémentaire ou de choisir de nouvelles conditions expérimentales (hélium pressurisé...). De plus, l'excursion en champ à 4,2K est limitée à cause des fortes dissipations intervenant sur le corps cylindrique en niobium massif de RRR 200.

En fonction des objectifs fixés (choix de la fréquence de travail, de la gamme de champ...), on peut envisager de réaliser une cavité en niobium de RRR 300 et de géométrie différente .

Chapitre 5 :

Rugosité du cuivre et résistance de surface des films de niobium

5.1. Préparation du substrat cuivre

5.1.1. Voie chimique

5.1.1.1. Traitement SSCr₂

5.1.1.2. Traitements sulfo-nitrique

5.1.2. Voie électrochimique

5.1.2.1. Principe

5.1.2.2. Dispositif expérimental

5.1.3. Polissage mécanique

5.2. Caractérisation de l'état de surface du cuivre

5.2.1. Micrographies

5.2.2. Mesures de rugosité

5.2.2.1. Profilomètre

5.2.2.2. Résultats

5.3. Effet de la rugosité du cuivre sur les films de niobium

5.3.1. Morphologie

5.3.1.1. Description du MEB

5.3.1.2. Observations

5.3.2. RRR

5.3.3. Teneur en impuretés

5.3.4. Température et champ critique

5.3.4.1. Le magnétomètre

5.3.4.2. Principe des mesures

5.3.4.3. Résultats

5.3.5. Résistance de surface

5.4. Interprétation des résultats

Un substrat de relief contrasté peut altérer la croissance d'une couche mince. La rugosité favorise l'effet d'ombrage et la formation de défauts géométriques lors de la pulvérisation^[1]. Dans son étude sur les performances HF du (NbTi)N, S. Cantacuzène a établi un lien entre le nombre de pics du cuivre par millimètre et la pente de la courbe $R_s=f(H_s)$ ^[2]. Toutefois, ces observations ont été effectuées sur des échantillons réalisés dans des conditions de dépôt différentes.

Pour conforter cette corrélation, nous avons établi un programme de caractérisation HF à l'aide de la thermométrie sous vide couplée à la cavité TE_{011} portant sur une série d'échantillons Nb/Cu. Les couches de niobium ont été élaborées avec les mêmes paramètres opératoires de pulvérisation mais sur des disques en cuivre de rugosité variable, en particulier à l'échelle micrométrique de l'épaisseur du film.

L'analyse de ces résultats a pour but de déterminer le seuil de rugosité acceptable sans altération des propriétés HF de l'échantillon et par extension de perfectionner les méthodes de fabrication des cavités de technologie couche mince 1,3 GHz-1,5 GHz.

En première partie, nous exposerons l'ensemble des procédés développés relatifs à la préparation de la surface du cuivre, ainsi que les méthodes employées pour qualifier cette surface.

En deuxième partie, nous comparerons la qualité des différents dépôts de niobium réalisés à partir de la mesure de certains paramètres caractéristiques.

En dernière partie, nous aborderons l'aspect des « dissipations HF ». Nous déterminerons l'incidence de la rugosité du cuivre sur la croissance des films et sur leur résistance de surface..

5.1. Préparation du substrat cuivre

La préparation du substrat avant le dépôt comprend les opérations de nettoyage, rinçage et séchage de l'échantillon, à réaliser précautionneusement pour éviter les problèmes de pollution de surface et de mauvaise adhérence (cf. Tableau 5-1). Néanmoins, l'étape importante est surtout le polissage de la surface pour obtenir une surface propre, lisse et brillante.

1	Dégraissage (solution alcaline Chauffée avec ultrasons)
2	Premier Rinçage (eau ultrapure à 18 MΩ)
3	Traitement de surface (polissage chimique, électrochimique ou mécanique)
4	Deuxième Rinçage
5	Désoxydation (acide sulfamique HSO_3NH_2 + eau)
6	Rinçage sous ultrasons (eau ultrapure à 18 MΩ)
7	Séchage rapide (air sec filtré)

Tableau 5-1 : Etapes de préparation de surface du cuivre

Les disques en cuivre utilisés proviennent d'une même tôle de cuivre désoxygéné laminé à froid. Après découpage, ils subissent d'abord un premier usinage afin d'ajuster la planéité et d'obtenir un état de surface standard. Ensuite, après dégraissage, il s'agit de choisir le traitement de surface adéquate pour éliminer les rayures profondes (quelques dizaines de micromètres) et autres défauts de surface ou les inclusions.

Trois procédés chimique, électrochimique et mécanique ont été employés pour le traitement de surface du cuivre en vue d'obtenir une large gamme de rugosité.

5.1.1. Voie chimique

Quatre bains d'attaques chimiques conduisant à des états de surface du cuivre très distincts et plus ou moins rugueux ont été mis au point et utilisés pour cette étude^[3].

Pour présenter ces bains, nous allons évoquer la composition chimique et le rôle de chaque espèce intervenante, la durée et la vitesse d'attaque du cuivre ainsi que les principales observations relevées lors du déroulement du polissage (évolution de la température du bain, modification de la surface...). Les photographies réalisées par microscopie optique complètent la description de l'état de surface du cuivre traité.

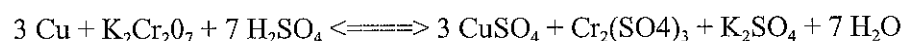
Le protocole expérimental est le suivant : les attaques effectuées en béccher constamment agité (600 trs/min) démarrent à température ambiante et pression atmosphérique. Le disque est suspendu verticalement par un fil en acier inoxydable pour permettre l'évacuation des bulles. La face arrière du disque et la portée de joint sont protégées par de l'adhésif résistant à l'acide qui s'élimine en employant de l'éthanol pur. Nous procédons à des séquences d'observations en cours d'essai toutes les 5 à 10 minutes.

5.1.1.1. Traitement SSCr2

Divers bains de polissage chimique du cuivre par attaque acide sont employés industriellement, essentiellement à partir d'acide nitrique mélangé avec de l'acide sulfurique ou de l'acide orthophosphorique et de l'acide acétique^[4].

Pour s'affranchir du dégagement toxique de vapeurs nitreuses produites par ce type de traitement, nous avons développé un premier bain à base d'acide sulfurique (apport de protons, formation d'un précipité soluble CuSO_4), de sel de dichromate de potassium (oxydation du cuivre par les ions dichromates) et d'acide sulfamique qui modère la cinétique de la réaction. Les caractéristiques de ce bain sont regroupées dans le Tableau 5-2.

L'équation bilan s'écrit :



L'attaque du cuivre par ce bain SSCr2 débute immédiatement mais reste relativement lente. Le bain initialement orangé se trouble sans précipitation ni bulle. A la surface du disque se forme un film visqueux vert dû à la présence des cations chrome (III). Après ce traitement chimique, le disque est rose mat sans piqûres ni rayures mais plutôt avec une fine granularité. Néanmoins, nous observons au microscope optique les plans de cristallisation d'orientations variées avec des arêtes très marquées (cf. Figure 5-3 a et b).

Constituants du bain (hors H_2O)	Molarités (M)	Température Finale (°C)	Durée (min)	Epaisseur dissoute (mm)
H_2SO_4 d=1,827 (10%)	1,8	20	180	0,1
HSO_3NH_2 (sel)	1,15			
$\text{K}_2\text{CR}_2\text{O}_7$ (sel)	0,05			

Tableau 5-2 : Présentation du bain SSCr2

5.1.1.2. Traitements sulfo-nitrique

Les trois autres essais de polissage chimique du cuivre sont basés sur une étude du CERN^[5] relative aux bains sulfo-nitrique (SN) qui contiennent également une faible quantité d'acide chlorhydrique pour éliminer les impuretés ferreuses. A ce mélange, nous avons rajouté des ions cuivriques Cu^{2+} pour garder une composition constante de sel au fil du vieillissement du bain, soit une attaque moins influencée par ce paramètre. Le cuivre est oxydé par les ions nitrates.

L'équation bilan s'écrit :



Les caractéristiques des trois attaques chimiques (SN6, SN2 et SN10) pratiquées sont répertoriées par ordre croissant de rugosité (cf. Tableau 5-3).

Bain	SN6		SN2		SN10	
Constituants (Hors H ₂ O) et Molarités (M)	H ₂ SO ₄	5,8	H ₂ SO ₄	7,7	H ₂ SO ₄	4,8
	HNO ₃	0,87	HNO ₃	1,15	HNO ₃	0,72
	HCl	1,610 ⁻²	HCl	10 ⁻²	HCl	1,310 ⁻²
	CuSO ₄	0,3	CuSO ₄	0,24	CuSO ₄ /EDTA	0,1/0,2
Température Finale (°C)	25		35		23	
Durée (min)	105		40		60	
Épaisseur dissoute (mm)	0,45		0,15		0,05	

Tableau 5-3 : Présentation des mélanges « SN » réalisés

• Le traitement SN6

Le traitement chimique SN6 est employé pour obtenir une surface très accidentée. La fonction acide est faible (12,5 normalités en [H⁺] contre 16,7 pour le SN2) et la durée d'attaque est prolongée jusqu'à l'obtention d'un disque homogène et mat. Les micrographies révèlent un réseau dense de micropiqûres (cf. Figure 5-3 c et d).

• Le traitement SN2

Lors de l'emploi du bain SN2, la réaction est très exothermique et il intervient rapidement un fort dégagement de vapeurs nitreuses rousses. La cinétique d'attaque est élevée (vitesse de dissolution d'environ 3µm/min). Au bout de quelques minutes, des piqûres apparaissent sur le disque puis, peu à peu, les piqûres s'étalent. L'expérience est poursuivie jusqu'à obtenir une surface légèrement brillante mais avec un aspect « peau d'orange ». Les grains du cuivre sont bien révélés et la surface présente un aspect facetté en forme de larges dômes (cf. Figure 5-3 e et f).

• Le traitement SN10

Les traitements SN6 et SN2 aboutissent à une surface de cuivre irrégulière et mat. On souhaite maintenant obtenir une surface plus lisse et brillante.

Un bain hydro organique dénommé SUBU inventé au CERN et utilisé industriellement pour préparer les cavités 350 MHz du LEP conduit à de telles performances. Cependant, nous ne disposons pas des installations nécessaires pour sa mise en œuvre. C'est pourquoi nous avons choisi de d'employer successivement 2 bains chimiques.

Un traitement par le bain SScr2 permet d'attaquer de façon homogène de grandes surfaces de cuivre en éliminant les rayures profondes et défauts initiaux. Ensuite, la démarche consiste à araser les plans d'attaque à l'aide d'un second bain SN10 jusqu'à obtenir une surface polie exempte de résidus chimiques après rinçage et stable après désoxydation. L'ajout d'un complexant organique EDTA (acide éthylène diamine trétraacétique disodique) modère la variation de la cinétique d'attaque et permet l'obtention d'un meilleur état de surface.

Des études paramétriques sont en cours dans le but d'améliorer la compréhension des mécanismes chimiques, le démarrage des attaques ainsi que la qualité du polissage. Nous avons d'ores et déjà remarqué l'importance de l'agitation (homogénéité, vitesse) et du démarrage de l'attaque, difficilement contrôlable. Ces paramètres vont conditionner l'uniformité et la qualité du polissage. Par conséquent, nous avons procédé lors du premier quart d'heure d'attaque, à un traitement par séquences de 30 secondes (le disque est retiré du bain puis replongé avec une orientation différente). Dans un première phase, le disque est mat et se colore en brun par formation d'oxyde cuivrique hydraté $\text{Cu}(\text{OH})_2$. Puis peu à peu, il devient brillant et sans micropiqûres avec un léger voile blanc. Les micrographies confirment l'efficacité de ce bain : la surface est plane et recouverte de microreliefs peu profonds (cf. Figure 5-3 g et h).

5.1.2. Voie électrochimique

5.1.2.1. Principe

Tous les aspects de l'électropolissage ne sont pas totalement compris mais le procédé est reconnu pour inclure à la fois une action de nivellement et de brillantage des surfaces^[6].

Le principe de l'électropolissage consiste à créer, par application d'un courant continu, une différence de potentiel entre une grille en cuivre faisant office de cathode, et l'échantillon à polir jouant le rôle d'anode. L'ensemble est plongé dans une solution d'acide ou électrolyte. La dissolution du cuivre s'effectue à l'anode. A la cathode, se produit un dépôt de cuivre et un dégagement d'hydrogène. La caractéristique théorique courant/tension, divisée en trois domaines, est présentée en Figure 5-1.

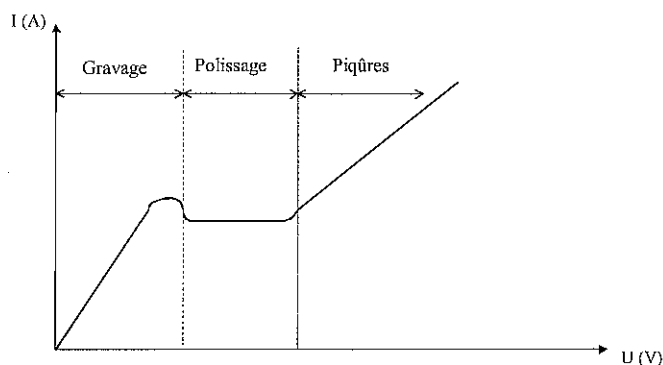


Figure 5-1 : Caractéristique Courant-Tension de l'électropolissage

1) la phase de gravage

Les atomes de surface sont organisés suivant des plans cristallins plus ou moins denses selon l'orientation des grains. Si la densité de courant est faible, chaque type de plan est attaquée à une vitesse différente. Par conséquent, les plans attaqués les plus lentement occupent la plus grande partie de la surface et génèrent un faciès en forme de marche.

2) le palier d'intensité ou phase de polissage

A une certaine valeur du couple courant/tension, une couche visqueuse saturée en ions Cu^{2+} et de densité différente du reste de la solution se forme à la surface de l'échantillon, ralentit la diffusion des ions et par conséquent la vitesse d'érosion. L'attaque chimique adoucie n'est plus préférentielle mais uniforme et multidirectionnelle. Elle gomme plus rapidement les irrégularités de surface de densité de courant plus élevée que les cavités et donne naissance à de larges ondulations.

3) la phase de piqûres

Lorsque le potentiel de l'anode dépasse celui de l'oxydation de l'eau, il y a création de bulles d'oxygène. Ces dernières se placent dans les creux et sur les défauts de surface du cuivre. Aux points de dégagement de ces bulles, l'attaque acide n'est plus homogène. Il en résulte la formation de piqûres suffisamment profondes pour perturber la croissance d'une couche mince de quelques micromètres.

5.1.2.2. Dispositif expérimental

L'électrolyte choisi est de l'acide orthophosphorique (H_3PO_4) dilué à 70% dans de l'eau ultrapure^[2]. Pour optimiser l'efficacité de l'électropolissage, le disque est pré-poli mécaniquement, dégraissé puis rincé. Le montage expérimental est détaillé en Figure 5-2.

La vitesse d'attaque est lente ($v \sim 0,5 \mu\text{m}/\text{min}$). Durant l'électrolyse avec une densité de courant fixée, on note une augmentation de la tension. Cela traduit la formation de la couche visqueuse en surface qui fait office de film résistif d'épaisseur croissante. L'électrochimie terminée, le disque subit de multiples rinçages sous ultrasons, afin d'éliminer la couche visqueuse, particulièrement difficile à dissoudre, et les traces d'acide sur la surface.

Un tel traitement a été choisi pour notre étude car il permet d'aboutir à une surface brillante lisse mais présentant quelques piqûres caractéristiques dont il est intéressant d'étudier l'influence sur la qualité du film déposé (cf. Figure 5-3 i et j).

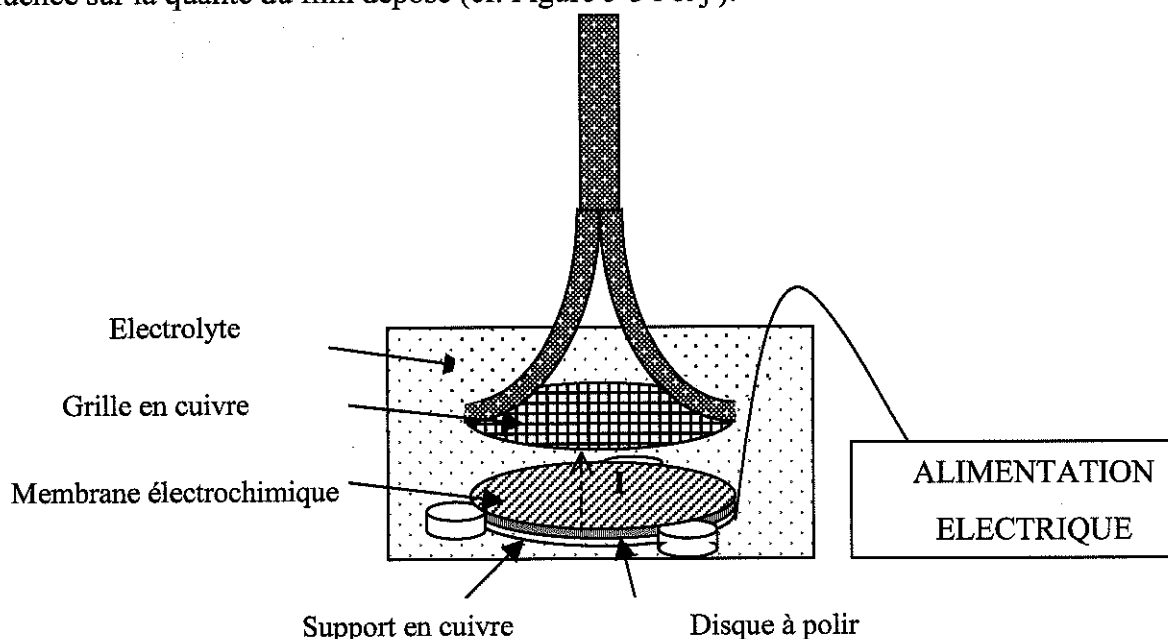


Figure 5-2 : Dispositif expérimental pour l'électropolissage d'un échantillon

5.1.3. Polissage mécanique

Le polissage mécanique est constitué d'une série d'étapes durant lesquelles la matière est enlevée mécaniquement à l'aide de poudre d'abrasifs (carbure de silicium, diamant) de plus en plus fines ($\Phi < 1 \mu\text{m}$). La méthode de préparation dépend des propriétés physiques spécifiques du matériau : la dureté et la ductilité (capacité à se déformer plastiquement ou bien à se fissurer voire subir des arrachement en réaction à l'abrasion mécanique). La séquence choisie est adaptée au caractère mou (80 HV) et ductile du cuivre.

Le polissage mécanique peut être utilisé à titre de référence comparativement aux traitements chimiques. Cette technique permet d'obtenir un poli métallographique de faible rugosité de surface qui ne diffère du poli miroir que par une planéité imparfaite. Néanmoins, elle est délicate à mettre en œuvre surtout pour des pièces à polir de grande superficie.

On peut craindre une déformation de la couche superficielle par les forces exercées, une

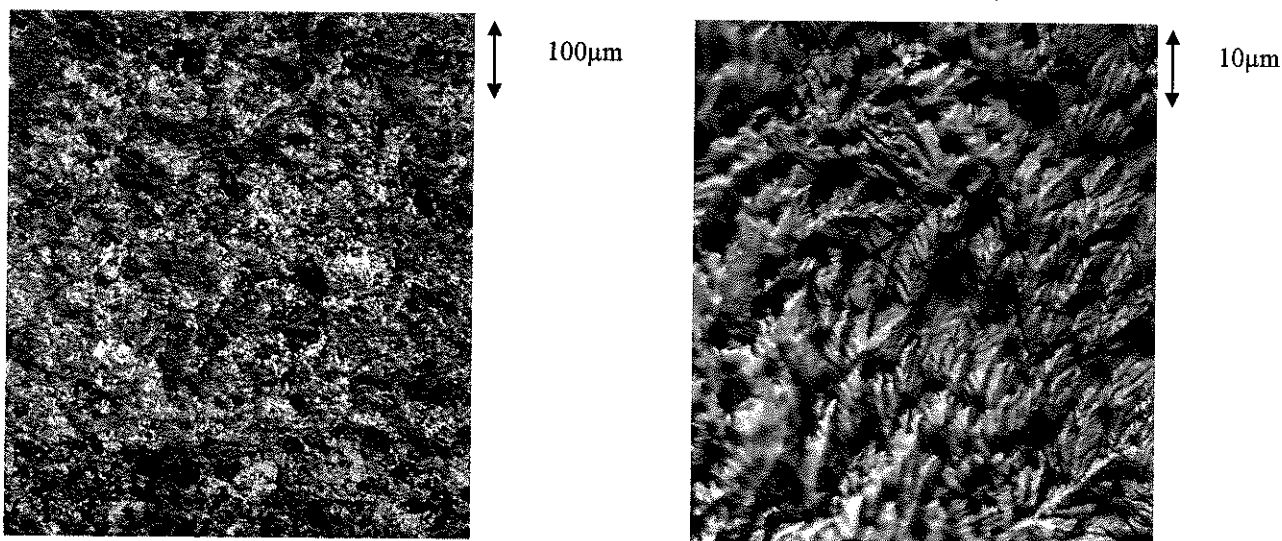
accélération de l'oxydation par effet thermique. Plus grave, elle peut engendrer une contamination de la surface par les particules abrasives, conduisant à des hétérogénéités néfastes pour la croissance de la couche mince déposée. Heureusement, l'observation de la surface par microscopie optique n'a révélé aucun défaut dans les gammes du micromètre au millimètre.

5.2. Caractérisation de l'état de surface du cuivre

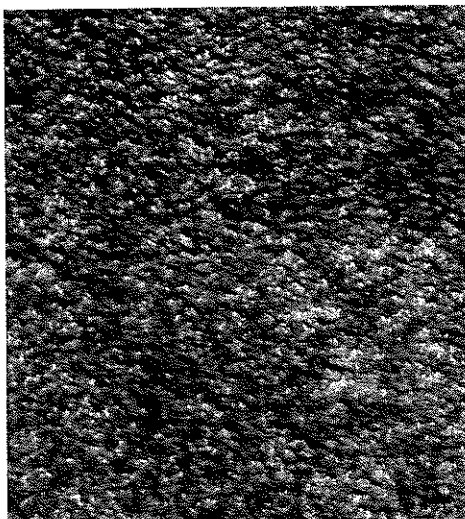
5.2.1. Micrographies

Nous avons regroupé l'ensemble des photographies des disques cuivre ayant subi les traitements chimique et électrochimique (cf. Figure 5-3).

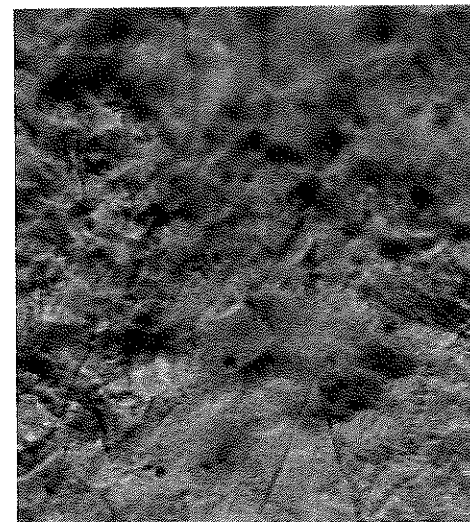
Pour caractériser l'état de surface de chaque échantillon, les clichés sont réalisés par microscopie optique en éclairage à fond clair aux grossissements 100 et 1000 avec un pouvoir séparateur de l'appareil (LEICA DMR) respectivement égal à $10,5\mu\text{m}$ et $0,5\mu\text{m}$.



a) et b) Micrographies du cuivre après attaque chimique (bain SSCr2)

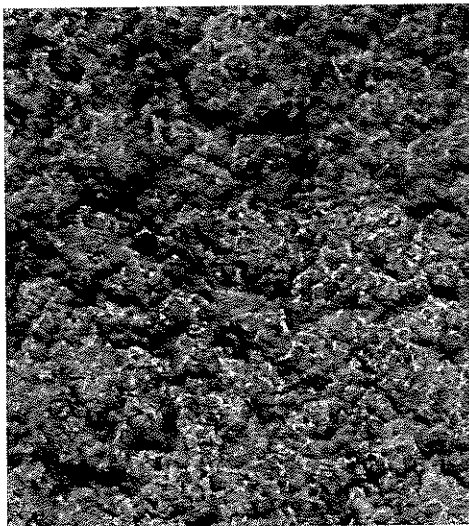


100µm

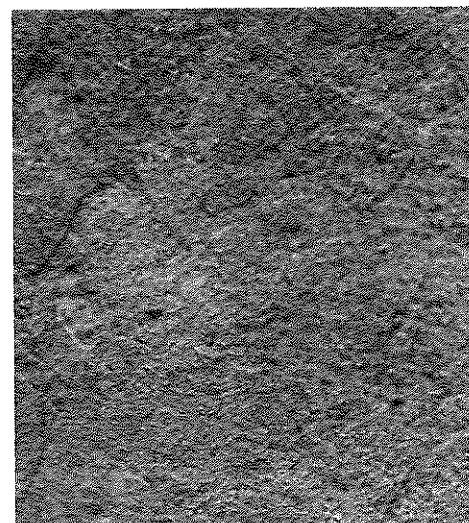
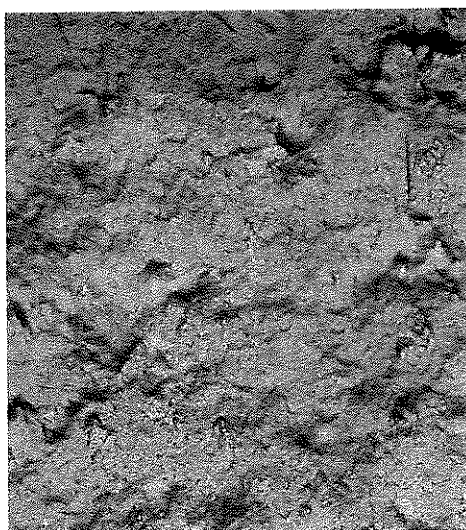


10µm

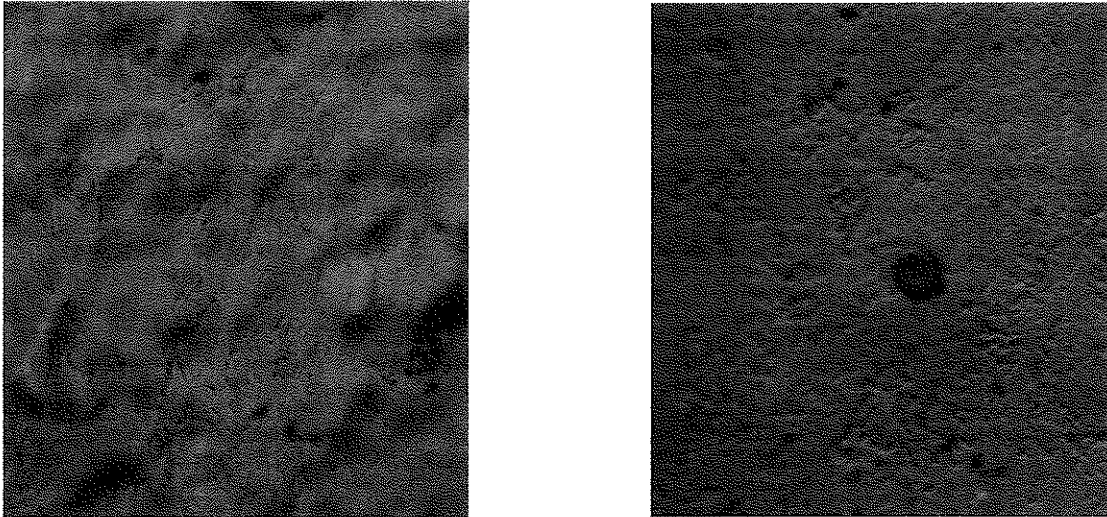
c) et d) Micrographies du cuivre après attaque chimique (bain SN6)



e) et f) Micrographies du cuivre après attaque chimique (bain SN2)



g) et h) Micrographies du cuivre après attaques chimiques (bains SSCr2+SN10)



i) et j) Micrographies du cuivre après électropolissage

Figure 5-3 : Images de la surface du cuivre ayant subi différents traitements

5.2.2. Mesures de rugosité

Les défauts géométriques et les irrégularités de surface interviennent à plusieurs échelles^[7] :

- les écarts de forme (ordre 1) : planéité et circularité,
- les ondulations (ordre 2)
- la rugosité qui se subdivise en deux types de défauts :
 - a) les stries et sillons (ordre 3)
 - b) les marques et piqûres (ordre 4).

5.2.2.1. Profilomètre

Diverses méthodes de caractérisations de l'état de surface existent et permettent de déterminer la taille des défauts de surface. Citons par exemple la rugosimétrie optique (photométrie, ellipsométrie...) et la rugosimétrie tactile. Nous avons utilisé cette deuxième technique qui requiert un appareil doté de palpeurs mobiles : le profilomètre.

Cette méthode permet d'obtenir rapidement et sans endommager l'échantillon, l'allure de la surface pour un large choix de longueurs d'analyse. Le principe de cet instrument consiste à amplifier et enregistrer les déplacements verticaux d'un stylet en contact avec une surface déplacée horizontalement à vitesse constante. Le stylet, qui va s'agrandir ou se rétracter suivant le relief, est couplé mécaniquement au noyau de la bobine d'un transformateur linéaire différentiel. Son mouvement, entraînant le déplacement du noyau, engendre alors des signaux électriques proportionnels à l'amplitude et à la fréquence de déplacement.

Le profilomètre utilisé est un DEKTAK 3030 fourni par le CEA/DRECAM/SRSIM. Il est équipé des éléments suivants :

- une caméra munie d'un zoom (de 35 à 200) et relié à un écran de contrôle
- un porte substrat permettant de balayer en X et Y
- une pointe diamant de rayon de courbure inférieur à 1 μm

La séquence de mesure est programmée à partir de 4 paramètres principaux:

- la longueur de balayage (de 50 μm à 50mm)
- la vitesse de balayage
- l'échelle (de 65kÅ à 1310kÅ)
- la force d'appui du stylet (1 à 40mg)

A vitesse minimale, la résolution horizontale est comprise entre 0,025 μm et 25 μm pour des longueurs respectives de 50 μm à 1mm. L'appareil est régulièrement étalonné pour maintenir une excellente résolution verticale R qui dépend de l'échelle:

$$\begin{aligned} y \in [0,65\text{k}\text{\AA}] & \quad R=1\text{\AA} \\ y \in [0,655\text{k}\text{\AA}] & \quad R=10\text{\AA} \\ y \in [0,1310\text{k}\text{\AA}] & \quad R=20\text{\AA} \end{aligned}$$

Le profilomètre permet également la mesure des fonctions analytiques caractéristiques à l'intérieur de la longueur de base L choisie. Un paramètre important est l'écart moyen arithmétique R_a qui correspond à la moyenne arithmétique des valeurs absolues des écarts de rugosités par rapport à la médiane du profil :

$$R_a = \frac{1}{L} \int_0^L |y| dx \quad (E 5-1)$$

5.2.2.2. Résultats

Pour chacun des 6 substrats de cuivre ayant subi un traitement de surface différent, nous avons réalisé des profils pour les deux longueurs de balayage 500 μm et 50 μm . La Figure 5-4 illustre les résultats obtenus dans le cas d'un échantillon rugueux.

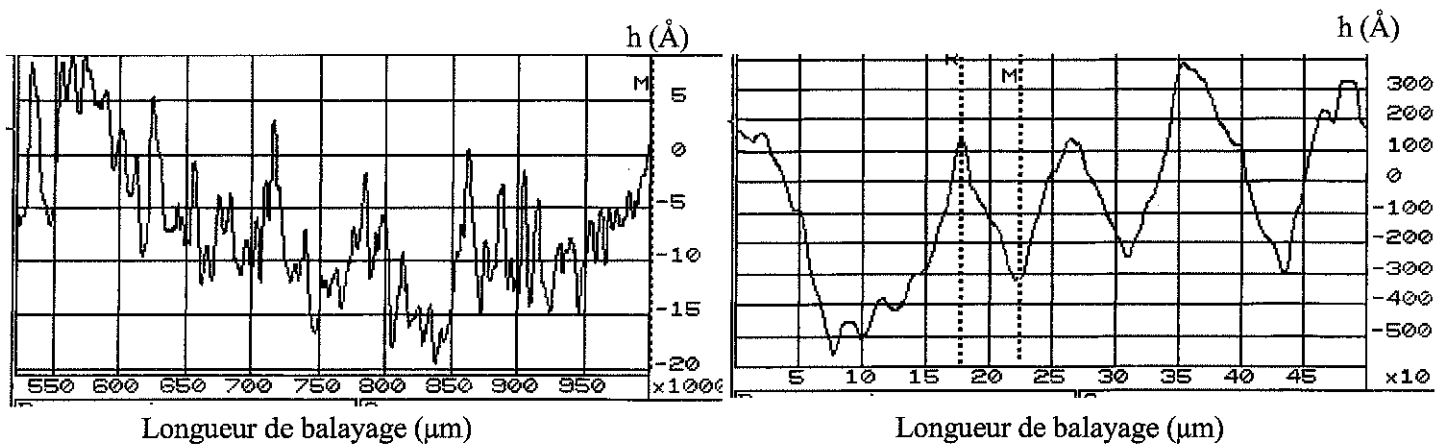


Figure 5-4 : Profils du cuivre après traitement SN6

Nous avons déjà vu que le microscope à force atomique permettait d’obtenir une image à partir d’un relevé des profils de relief d’une surface déterminée faiblement rugueuse (cf. Figure5-5).

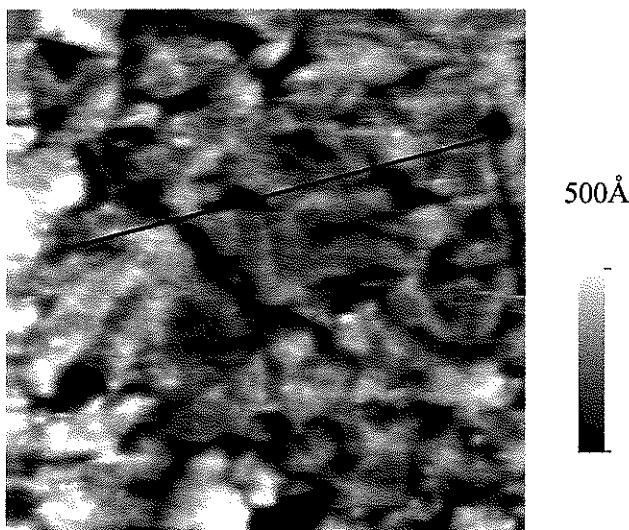


Figure 5-5 : Image AFM (5×5μm) de la surface du cuivre après attaques chimiques (bains SSSCr2 et SN10)

Nous avons ainsi comparé les profils obtenus via l’AFM (cf. Figure 5-6) ou à l’aide du talystep pour un échantillon soumis aux traitements SSSCr2+SN10. Les profils montrent des reliefs de même dimension et les valeurs de R_a sont proches (92Å contre 150Å).

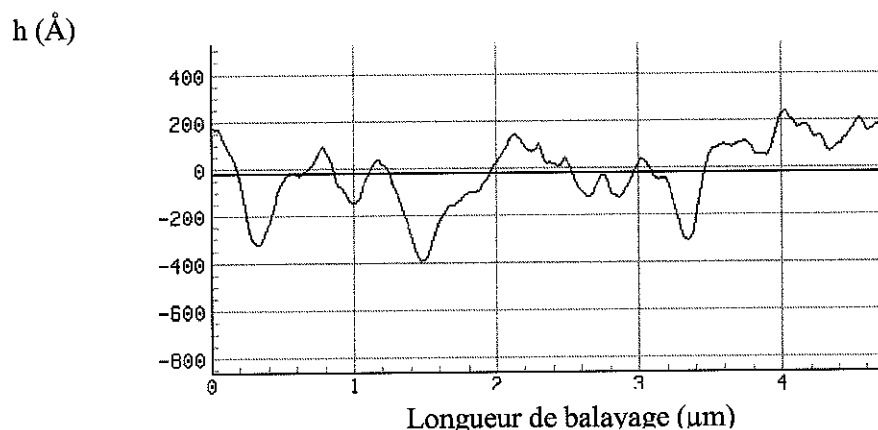


Figure 5-6 : Profil du cuivre par AFM après attaques chimiques (bains SSCr2 et SN10)

Le Tableau 5-4 résume dans l'ordre de brillance croissante l'ensemble des informations recueillies à partir de l'analyse de tous les profils. Pour chaque échantillon, le profil réalisé sur $50\mu\text{m}$ a été agrandi pour permettre de connaître les dimensions caractéristiques des irrégularités de surface à l'échelle du micromètre c'est à dire du film de niobium.

Les traitements SSCr2 et SN6 conduisent à une surface très accidentée quelle que soit l'échelle d'analyse. Le traitement SN2 donne une surface très irrégulière sur une longueur de $500\mu\text{m}$ mais avec des larges défauts très étalés et arrondis sur quelques micromètres. Les traitements par polissage chimique SSCr2+SN10 permettent d'obtenir une surface de fine granularité de très faible amplitude tout comme le polissage électrochimique dont les piqûres se révèlent en majorité peu profondes (hauteur inférieure au micromètre).

L(μm)	Traitement de surface		SSCr2	SN6	SN2	SSCr2&SN10	EL	PM
500	R_a (μm)		0,7	0,5	0,6	0,4	0,2	0,025
	Dimensions des défauts	h (μm)	2-3	1,5	1	0,3	0,5	0,01
		l (μm)	100	300	50	50	50	50
10	R_a (μm)		0,1	0,15	0,025	0,015	0,01	0,003
	Dimensions des défauts	h (μm)	1	1	0,3	0,05	0,05	0,05
		l (μm)	5	10	5	5	5	5

Tableau 5-4 : Observations et mesures de rugosité d'échantillons cuivre de préparation de surface différente (PM=polissage mécanique, EL=électropolissage)

5.3. Effet de la rugosité du cuivre sur les films de niobium

Des films de niobium ont été déposés sur les disques de cuivre décrits précédemment. Les échantillons sont référencés en fonction de la préparation de surface employée pour le cuivre (SN6, SSCr2, SN10, SSCr2+SN10, EL et PM) et de la rugosité mesurée sur 10 μm . Les paramètres opératoires, identiques pour tous les dépôts, ont été choisis à partir des résultats de l'étude sur échantillons Nb/SiO₂ (cf. chapitre 2). Ainsi, la puissance appliquée au magnétron est de 1000W, la pression d'argon de 6 10⁻⁴mb. La durée du dépôt de 1 heure correspond à une épaisseur du film de 2,5 μm .

Le Microscope Electronique à Balayage (MEB) a permis d'observer la morphologie de surface des films. Nous avons également mesuré certains paramètres caractéristiques du film de niobium tels que le rapport de résistivité résiduelle, le champ et la température critique.

5.3.1. Morphologie

5.3.1.1. Description du MEB

Rappelons brièvement le fonctionnement du MEB à partir du schéma de principe^{[8],[9]} (cf. Figure 5-7). L'émission des électrons du filament (en tungstène) est produite par effet thermoélectronique. Ces derniers sont accélérés par application d'une tension de 1 à 30kV entre l'anode et la cathode. Le faisceau est ensuite mis en forme par plusieurs étages de lentilles condenseurs puis focalisé par une lentille électromagnétique à grande distance de travail. Juste avant cette lentille est placé un diaphragme d'une dizaine de milliradians d'ouverture, destiné à réduire les aberrations sphériques de la sonde. On intercale également des bobines électromagnétiques de déflexion afin de balayer l'échantillon. Le signal émis par la cible et recueilli par un détecteur module l'émission d'un tube cathodique dont le balayage est synchronisé avec celui du faisceau électronique. L'intensité lumineuse est directement reliée à l'intensité du signal : l'image est formée sur l'écran.

Il existe plusieurs mode d'imageries dans un MEB fonction de la nature du signal recueilli (électrons secondaires, rétrodiffusés, courant d'échantillon). Le microscope du laboratoire Pierre Sue de la DSM/DRECAM/LPS est un modèle commercial de la société Cambridge (STEREOSCAN 120). Le détecteur installé permet de réaliser des images en électrons secondaires avec une résolution théorique d'une dizaine de nanomètres.

Un porte échantillon de diamètre identique à celui des disques Nb/Cu permet par rotation et translation d'observer les différentes zones du disque. Sur ces échantillons métalliques, le contraste dû à des phénomènes de charges d'une particule isolante (poussière...) est facilement repérable donc peu nuisible aux interprétations.

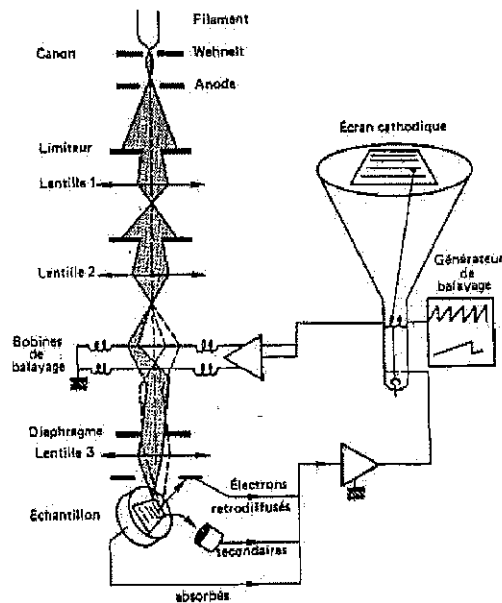


Figure 5-7 : Schéma de principe du MEB

5.3.1.2. Observations

Une forte rugosité fait apparaître le phénomène d'ombrage géométrique du creux des vallées. Les sommets sont les régions les plus exposées au flux d'atomes qui s'y déposent préférentiellement. Une croissance de type colonnaire est ainsi favorisée et les couches sont généralement microporeuses (cf. Figure 5-8).

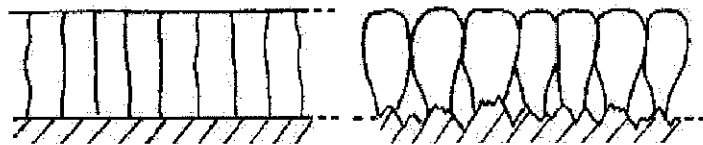
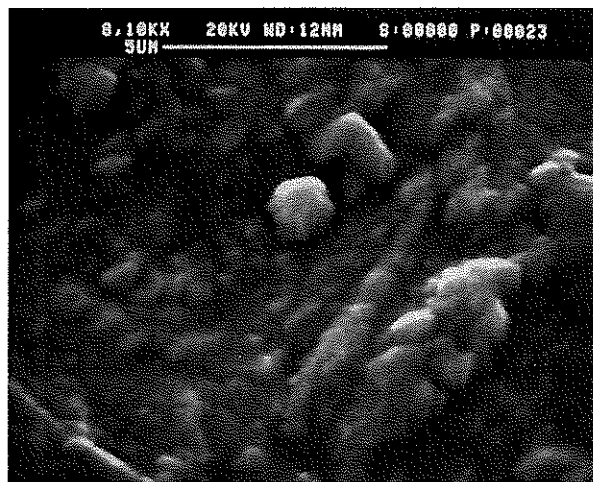
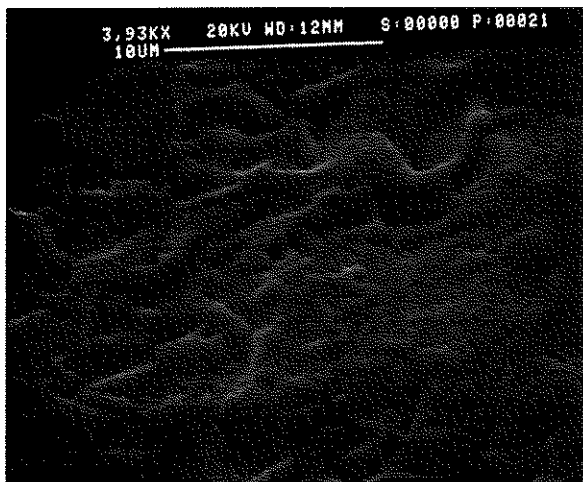
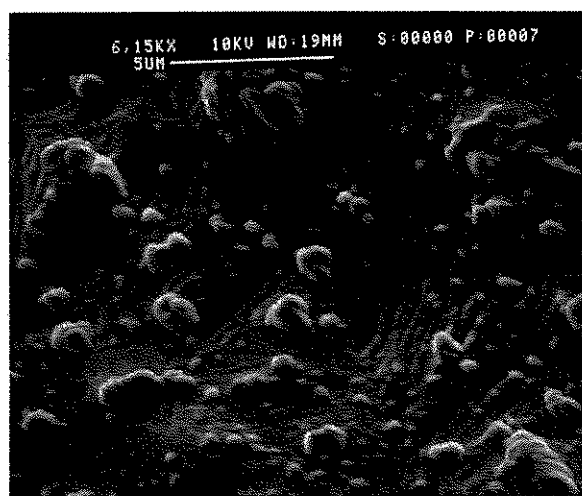
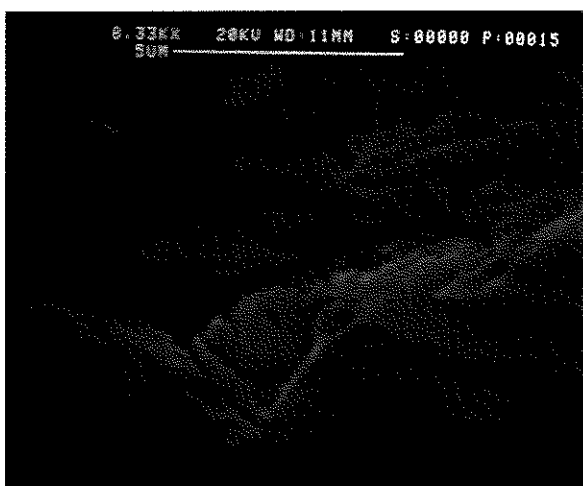


Figure 5-8 : Schéma de croissance d'un dépôt en fonction de la rugosité du substrat

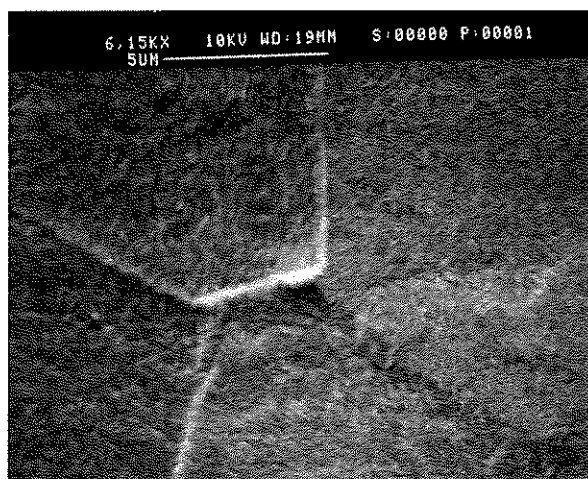
En dessous d'un certain seuil de rugosité la croissance des couches est moins altérée et leur densité est principalement déterminée par les conditions de dépôts. Dans le cas de nos films de niobium déposés dans les mêmes conditions opératoires, les images de la surface ainsi que de l'interface (après dissolution du cuivre) montrent clairement l'influence de la rugosité du substrat cuivre sur la croissance du dépôt (cf. Figure 5-9).



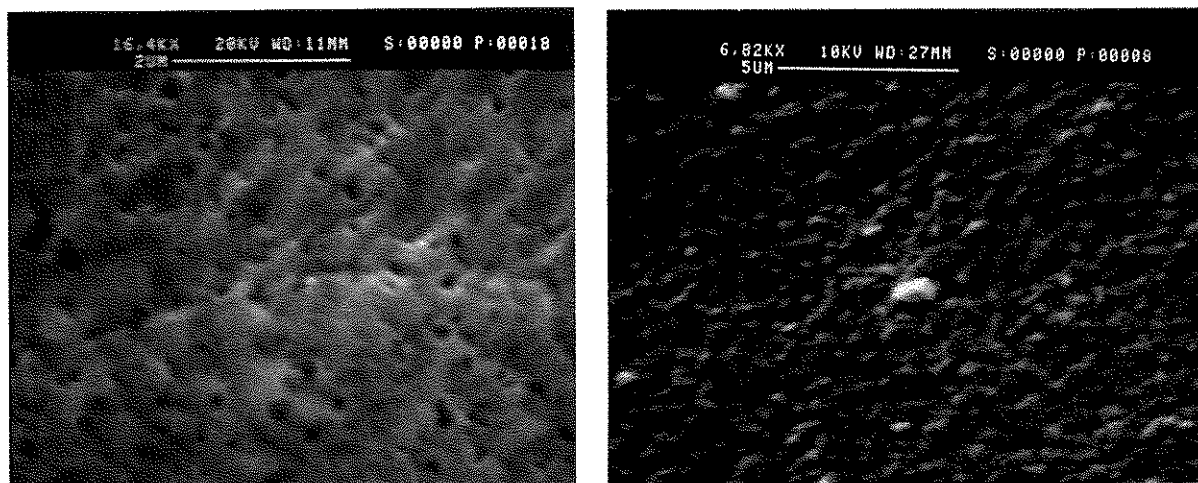
a) Interface et Surface de l'échantillon Nb/Cu SN6 ($R_a=0,15\mu\text{m}$)



b) Interface et Surface de l'échantillon Nb/Cu SScr2 ($R_a=0,1\mu\text{m}$)



c) Interface et Surface de l'échantillon Nb/Cu SN2 ($R_a=0,025\mu\text{m}$)



d) Interface et Surface de l'échantillon Nb/Cu SSCr2+SN10 ($R_a=0,015\mu\text{m}$)

Figure 5-9 : Images MEB en électron secondaires de la surface de films de niobium

Ainsi, la topographie de surface du cuivre est globalement reproduite à la surface des films élaborés sur des substrats peu rugueux (SN2, SSCr2+SN10, EL et PM). Inversement, sur les substrats très rugueux (SSCr2, SN6) apparaît une forte densité de défauts remarquables, en forme de dômes. Ces nodules, déjà observés par fractographie^[10], traversent l'épaisseur du film en s'élargissant vers la surface amplifiant ainsi les défauts du cuivre, et peuvent atteindre plusieurs micromètres de diamètre et de hauteur. Des analyses succinctes par EDX, spectrométrie associée au MEB, indiquent que ces défauts sont en niobium dans le volume d'analyse donné ($1\mu\text{m}^3$ environ).

En marge de défauts présents sur l'échantillon SSCr2 (cf. Figure 5-10), on peut observer les grains allongés de niobium (en moyenne $0,3\mu\text{m} \times 0,08\mu\text{m}$).

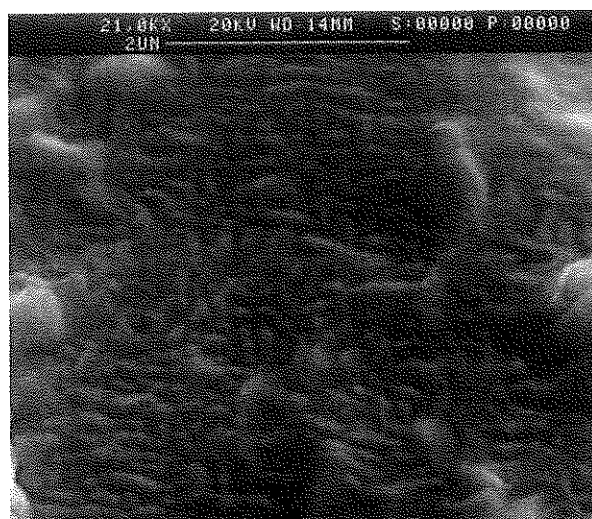


Figure 5-10 : Image MEB de l'échantillon SSCr2 ($R_a=0,1\mu\text{m}$)

La taille des grains est proche de celle d'un échantillon déposé sur un substrat en silice de poli miroir (cf. Figure 5-11 a). Les dimensions d'un grain sont indépendantes de la rugosité du substrat mais semblent plutôt fonction des conditions de dépôt et notamment de la puissance appliquée (cf. Figure 5-11b).

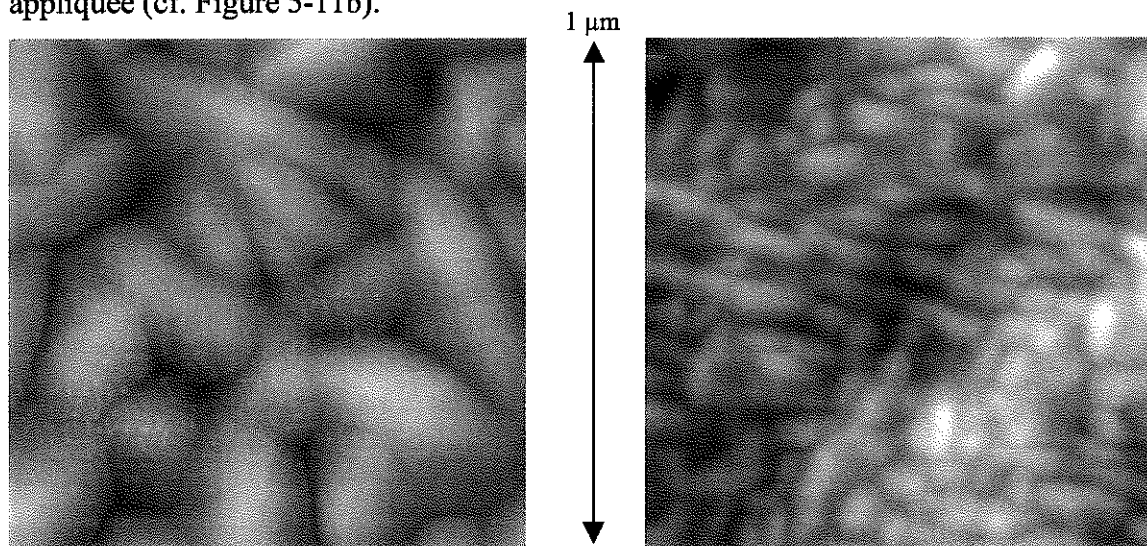
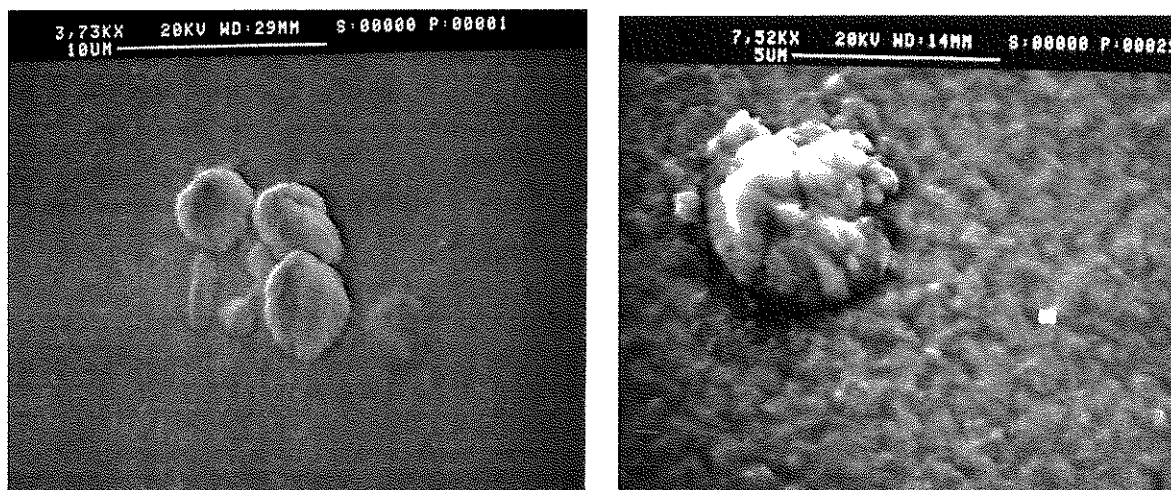


Figure 5-11 : Image AFM des grains de niobium déposés sur silice à 1000W ($R_a < 0,001\mu\text{m}$) et sur cuivre à 600W ($R_a < 0,01\mu\text{m}$)

Une forte rugosité du substrat favorise la formation de défauts de croissance dans les films mais ne semble pas être la seule origine possible de ces nodules. L'examen des échantillons produits sur surfaces lisses révèle également la présence quelques excroissances (cf. Figure 5-12).



a) Echantillon PM ($R_a = 0,003\mu\text{m}$)

b) Echantillon SSCr2+SN10 ($R_a = 0,015\mu\text{m}$)

Figure 5-12 : Image MEB de défauts de films de niobium élaborés sur substrats peu rugueux

De nouveaux échantillons confirment ces observations. Les micrographies MEB de ces films élaborés sur des substrats poli mécaniquement indiquent l'existence de défauts de différentes tailles répartis plus ou moins aléatoirement⁽¹⁾ (cf. Figure 5-13).

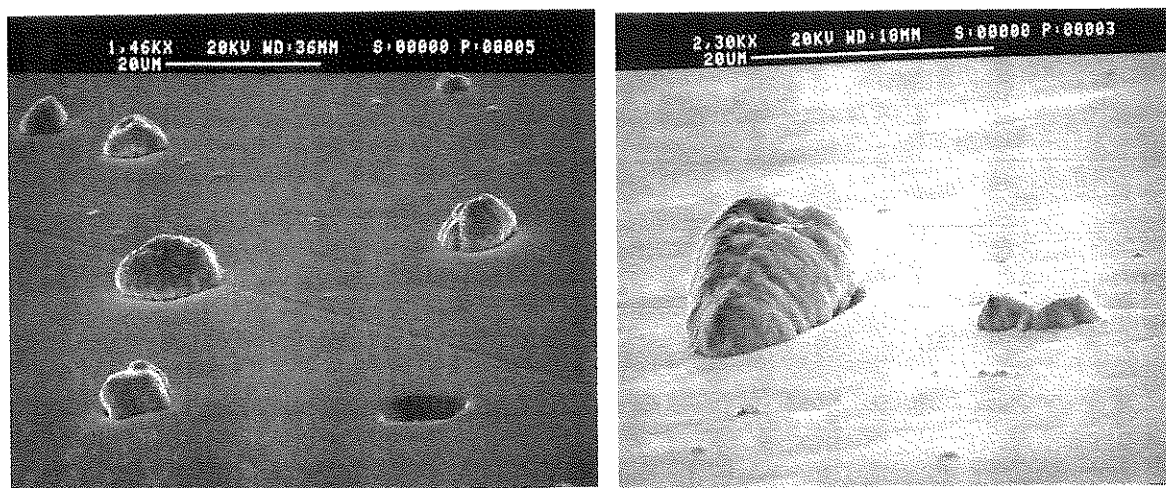


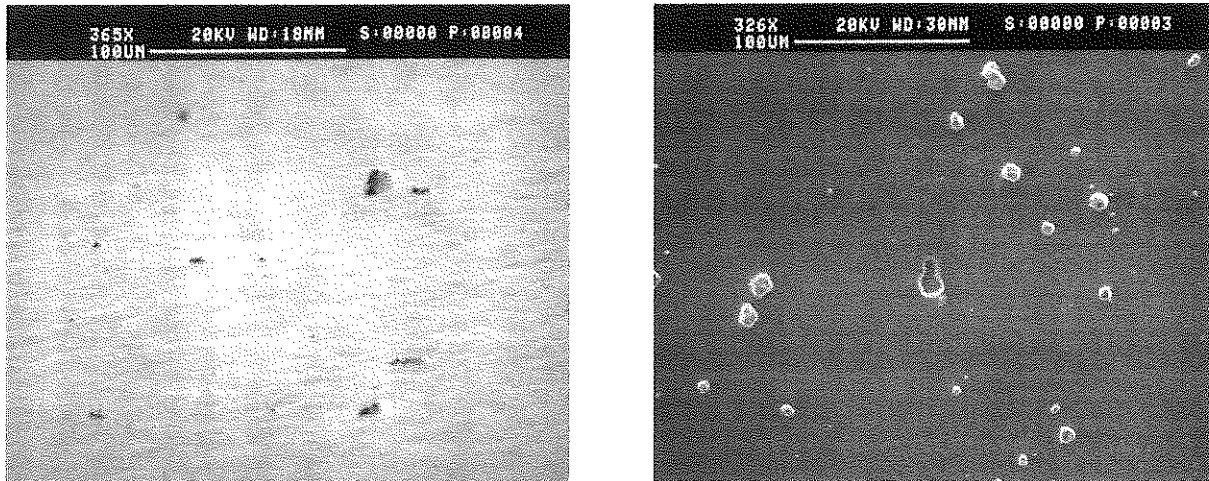
Figure 5-13 : Images MEB de films de Nb déposés sur cuivre poli mécaniquement

Trois origines possibles justifient l'existence de tels défauts sur une surface lisse : des poussières présentes sur le substrat, le manque de propreté de l'enceinte ou des germes induits par le procédé de pulvérisation.

L'origine la plus évidente de ces défauts est la présence des poussières atmosphériques introduites dans l'enceinte pendant le montage du porte échantillon. Nous essayons toutefois de minimiser le nombre de particules déposées sur le substrat ou la cathode en procédant à un décapage ionique du cuivre et à une pré pulvérisation de la cathode dans la partie basse du bâti.

La densité des défauts est naturellement liée à la propreté de l'enceinte : un échantillon réalisé dans une enceinte non nettoyée présente un nombre accru de défauts (cf. Figure 5-14 b). Dans ce dernier cas, les films précédemment déposés sur les parois de l'enceinte se sont probablement écaillés à cause des contraintes du film, de la différence des coefficients de dilatation thermique ou d'une faible adhésion sur les parois. Toutefois, ce risque est diminué lors du nettoyage de l'enceinte avant dépôt et la présence de défauts demeure (cf. Figure 5-14 a).

¹ Les micrographies optiques de la surface du cuivre avant dépôt semblent infirmer l'existence d'inclusions incrustées dans le cuivre pendant le polissage mécanique comme germes de défauts



a) et b) dépôts réalisés dans une enceinte propre (à gauche) ou sale (à droite)

Figure 5-14 : Images MEB de films de Nb déposés sur un cuivre poli mécaniquement

En dernière hypothèse, il est possible que la formation de nodules soit induite par le procédé de fabrication des couches minces, des petites agrégats de matière provenant de la cathode en niobium s'implantant dans la couche pendant le dépôt.

En effet, selon Selwyn et al^[11], une des sources de contamination d'un revêtement est reliée à la portion de surface de la cathode exposée à un plasma de faible densité, la densité du plasma confiné près la surface par le procédé magnétron n'étant pas uniforme. Ainsi, dans cette région de la cible, une redéposition du film de niobium est possible, suivie d'une croissance nodulaire ou en filaments qui une fois chauffés sont susceptibles d'être éjectés dans le plasma et sur le substrat. Des observations par diffusion laser de ces micro contaminations de diverses couches minces (semi-conducteurs ou disques de sauvegarde) indiquent que ce processus semble commun à tous les procédés de pulvérisation.

Notons enfin que les observations par microscopie électronique de la surface de la cathode n'ont pas révélé d'inclusions mais sont à poursuivre.

L'examen et l'analyse des défauts présents dans les couches minces nécessitent une instrumentation complexe et spécifique. Des multicouches destinées à des applications en optique (miroir pour laser...) ont fait l'objet de récentes études répertoriées par C. J. Stolz et al^[12]. Certains travaux se sont basés sur l'utilisation d'un faisceau d'ions focalisés (FIB) qui permet des analyses postérieures au dépôt. Il s'agit dans un premier temps de repérer un défaut (par AFM ...) et de réaliser une coupe transversale de ce dernier. Ensuite, le FIB permet d'examiner les germes du défaut (composition, morphologie, épaisseur ou adhérence..).

Des différentes analyses obtenues par FIB, il ressort quelques enseignements importants :

1) la morphologie du défaut est conditionnée par le type de germe

Le germe influence directement sur le profil de surface du nodule. Les germes lisses induisent des défauts en forme de dômes tandis que ceux de forme complexe génèrent des nodules de forme irrégulière.

2) la morphologie du germe nous renseigne sur son processus de formation

Si le germe est constitué d'une particule fondue dans la cathode et éjectée, le germe est généralement de forme sphérique avec des bords assez lisses. Dans le cas inverse, les germes sont caractérisés par une forme irrégulière et une surface rugueuse.

3) le degré de continuité entre la multicouche et le nodule dépend du processus de dépôt

Les résultats portant sur les dépôts par pulvérisation magnétron montrent qu'indépendamment de la taille du germe, le nodule a tendance à croître continûment avec le film du fait de la grande mobilité des particules pulvérisées.

En transposant ces analyses aux défauts présents dans les couches minces de niobium élaborées sur cuivre poli, nous pouvons en première approche tenter d'identifier l'origine des germes. D'après les micrographies présentées en Figure 5-13, la majorité des défauts est d'aspect irrégulier. Il semble donc que la source de ces défauts provient de particules de forme irrégulière et n'ayant pas fondu. Des analyses supplémentaires sont nécessaires pour identifier la nature des germes (poussières isolantes ou métalliques, écailles ou particules redéposées de niobium...). Il serait notamment intéressant de déterminer la teneur en impuretés de ces défauts par microsonde nucléaire.

Pour tester l'adhésion des nodules, les échantillons précités ont été soumis à un jet d'eau de 30 bars qui n'a eu aucun effet sur la stabilité des défauts. Si la majorité des défauts sont solidaires de la couche, la continuité entre la matrice de niobium et le défaut ne semble pas évidente. Les micrographies permettent d'entrevoir des interstices entre le nodule et la matrice (cf. Figure 5-13).

En somme, certains accidents de surface comme une forte rugosité de cuivre, la présence de poussières ou des germes encore mal identifiés favorisent la formation de nodules macroscopiques a priori en niobium. Hors de ces zones, la croissance des films de niobium est caractéristique du procédé de pulvérisation cathodique.

5.3.2. RRR

Nous avons mesuré le RRR de chaque film de niobium déposé sur les substrats de rugosité différente avec le banc de test du laboratoire (cf. chapitre 2).

Ces mesures nécessitent de désolidariser le film du substrat cuivre très épais et faiblement résistif. Un morceau d'échantillon est prélevé au bord et au centre de chacun des disques. Une couche adhésive de kapton est placée sur la surface de niobium pour une meilleure tenue mécanique du film avant la dissolution du cuivre dans de l'acide nitrique⁽²⁾. On fixe ensuite la couche sur de la silice avec de la colle résistante aux basses températures.

Echantillon	Ra (μm) sur 10 μm	RRR (Centre)	RRR (Bords)
SN6	0,1	25 \pm 3	20 \pm 1
SSCr2	0,15	34 \pm 8	20 \pm 1
SN2	0,025	25 \pm 2,5	18 \pm 1
SSCr2+SN10	0,015	27 \pm 4	20 \pm 1
EL	0,01	21 \pm 1,5	16 \pm 1

Tableau 5-5 : Mesures de RRR d'échantillons prélevés des disques Nb/Cu

Il n'y a pas de corrélation évidente entre la rugosité du cuivre (donc la formation de défauts) et le RRR (cf. Tableau 5-5). Toutefois l'interprétation de ces résultats est délicate, car beaucoup de paramètres interviennent sur la valeur RRR comme la position azimutale sur le disque de l'échantillon extrait, que nous n'avons pas relevée, ou le degré d'usure de la cathode utilisée.

Notons que pour chacun des disques, le RRR est plus élevé au centre de l'échantillon qu'aux bords. Cela vient en partie du fait que le dépôt est plus épais au centre (20% environ par rapport au bords) et peut contenir moins d'impuretés^[13].

5.3.3. Teneur en impuretés

En collaboration avec l'IPN de Lyon^[14], nous avons déterminé par des méthodes d'analyses nucléaires la teneur en impuretés légères (C,O et H) d'un prélèvement de l'échantillon SSCR2+SN10.

² Au préalable, nous avons testé un échantillon déposé sur silice avant et après une immersion de quelques heures dans l'acide. On a trouvé une valeur identique de RRR.

introduite (cf. chapitre 2). Le spectre plat recueilli indique qu'il n'y a pas de pollution significative par ces éléments dans la limite de détection (de l'ordre 0,01% atomique).

Par le biais des réactions nucléaires provoquées (NRS) avec des particules α de haute énergie, nous avons analysé la teneur en oxygène et carbone. Les résultats expérimentaux montrent qu'il n'y a pas de traces d'oxygène ou de carbone en profondeur. La limite de détection est de 0,3% atomique en oxygène et inférieur de 1% en carbone^[15].

Nous avons également recherché la teneur en hydrogène, le gaz étant mal pompé, il peut être piégé sous forme dissocié dans la couche et causer une dégradation de ses propriétés en hyperfréquences^[16]. Le profil de concentration de l'hydrogène est obtenu par la détection des ions de recul (ERD) émis après collision élastique entre des ions ^4He à 2,5MeV et le niobium aux angles avant. Comme le faisceau incident induit également des particules alpha, un filtre électromagnétique $E \times B$ permet de les éliminer^[17].

Malgré la faible limite de détection de cette méthode ERD- $E \times B$ (0,1% atomique), il est impossible de distinguer le pic d'hydrogène du bruit de fond (cf. Figure 5-15). La surface de l'échantillon se situe au canal 700. Elle n'est pas visible sur le spectre car la ligne de base n'est pas horizontale. Cependant, par la forme arrondie du tracé entre les canaux 200 et 700 le spectre révèle quand même la présence d'hydrogène à l'état de traces.

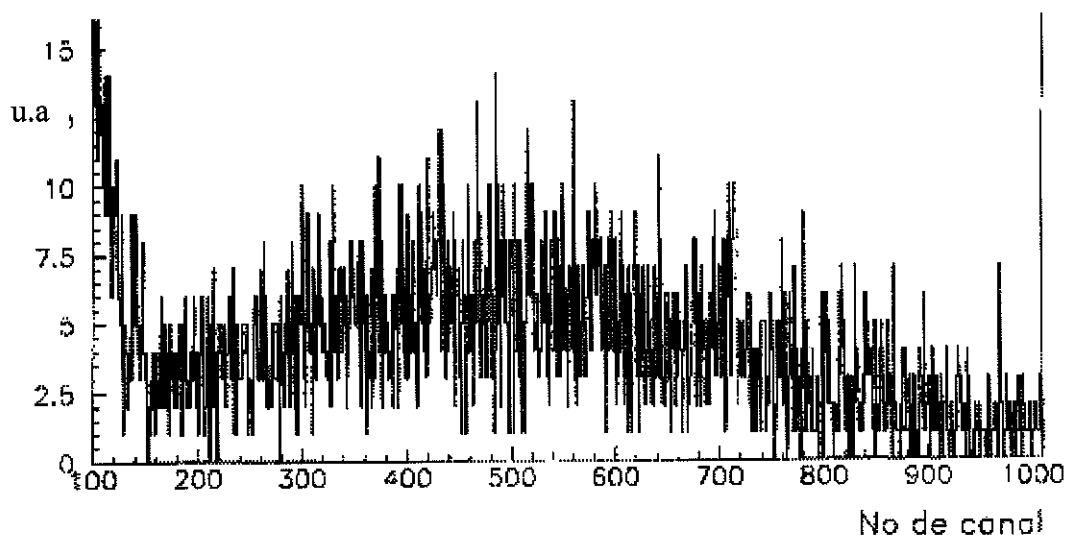


Figure 5-15 : Spectre ERD-ExB de l'échantillon Nb/Cu SSCr2+SN10

5.3.4. Température et champ critique

Pour compléter la caractérisation des dépôts de niobium réalisés, nous avons tenté de déterminer les champs magnétiques H_{c1} et H_{c2} d'échantillons Nb/Cu par des mesures d'aimantation magnétique en fonction du champ et de la température. Nous pouvons également accéder à la valeur de la température critique.

5.3.4.1. Le magnétomètre

L'appareillage du laboratoire de Physique de la Matière Condensée de l'E.N.S. est un magnétomètre dénommé Quantum Design (QD) MPMS (Magnetic Property Measurement System) et couramment utilisé pour caractériser les supraconducteurs sur une large plage de température et de champ magnétique (cf. Figure 5-16). Il intègre 6 systèmes fonctionnels :

1- Le module de contrôle de température qui permet une régulation rapide et précise ($\pm 0,01K$) pour toute la plage de fonctionnement [1,7K-300K].

2- L'aimant supraconducteur qui fournit une induction magnétique B réversible de $\pm 5,5T$ par une technique d'oscillations pour minimiser la dérive immédiate de l'aimant suite au changement de champ magnétique.

3- Le système de détection MPMS SQUID qui inclut un ensemble de bobines, un transformateur supraconducteur de flux avec un écran RFI, et le SQUID lui-même avec son unité de contrôle et d'amplification électronique.

4- Le système de translation de l'échantillon qui permet des calibrations de la position de l'échantillon et un déplacement automatique avec une résolution de $3\mu m$.

5- Le système d'hélium liquide qui fournit une réfrigération à la vitesse de 20K/min du système de détection et de l'aimant supraconducteur.

6- Le système informatique de contrôle intégrant le software MPMS pour les acquisitions.

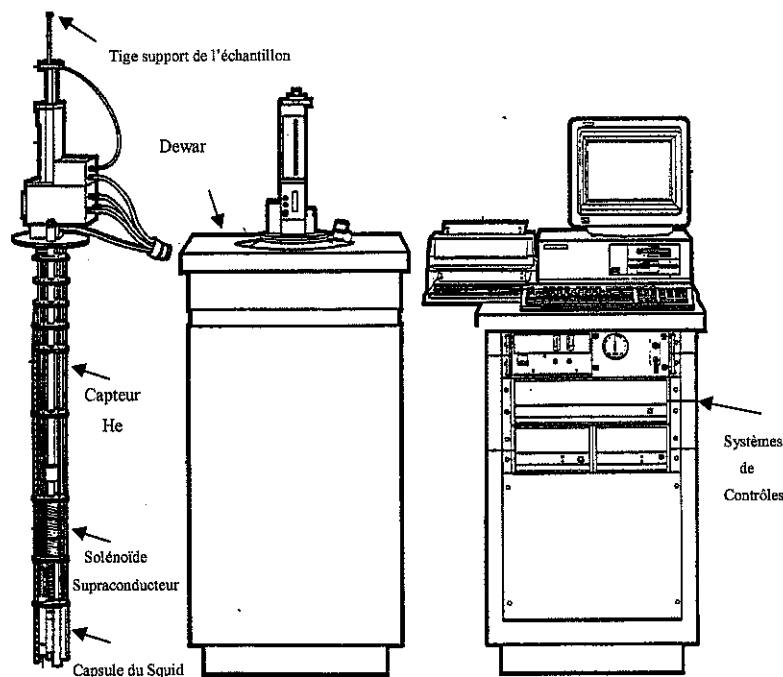


Figure 5-16 : Description des éléments du système MPMS

5.3.4.2. Principe des mesures

La mesure du moment magnétique par le QD MPMS implique la mesure à différentes positions de l'échantillon du courant induit dans un système de 4 bobines à un enroulement et d'aires identiques mais tournées dans un sens opposés deux à deux (cf. Figure 5-17).

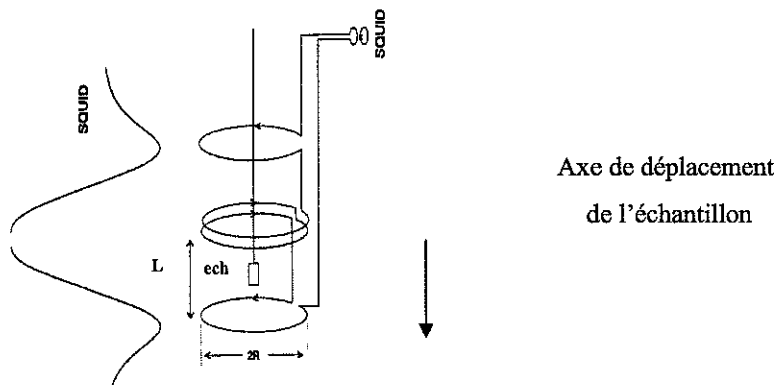


Figure 5-17 : Schéma de la boucle de détection avec SQUID

Ce gradiomètre dit « dérivée seconde » est sensible aux variations d^2Bz/d^2z et rejette tout champ uniforme issu de l'aimant supraconducteur.

Le courant induit est alors déterminé par le flux net émanant du moment magnétique dipolaire des quatre bobines. Ce flux par unité de moment magnétique est donné par:

$$\phi(z) = (\mu_0 R^2/2) \{ -[R^2 + (z+L)^2]^{-3/2} + 2(R^2 + z^2)^{-3/2} - [R^2 + (z-L)^2]^{-3/2} \} \quad (E5-2)$$

$R=0,97\text{cm}$ est le rayon des bobines et $2L=3,038\text{cm}$ est la distance entre les deux enroulements extérieurs. Le premier et troisième terme de l'équation E5-2 correspondent au flux entourant ces 2 tours pour un moment dipolaire unité à la distance z du centre le long de l'axe symétrique. Le second terme de signe opposé est la somme du flux de chacun des enroulements du milieu tourné en sens opposé. La réponse théorique d'un dipôle unité est proportionnelle au flux :

$$V(z) = c\phi(z) \quad (E\ 5-3)$$

c : facteur de calibration de l'instrument

Expérimentalement, on observe un saut constant (a) et une dérive linéaire (bz) dans la réponse du SQUID sur la longueur balayée. La réponse modifiée pour un moment magnétique m s'écrit :

$$V(z) = a + bz + mV(z - z_0) \quad (E\ 5-4)$$

z_0 : correction du décentrage éventuel de l'échantillon

La réponse mesurée du SQUID est ajustée par la méthode des moindres carrés à partir de l'équation E5-4 afin d'obtenir le moment magnétique m . Notons que m est supposé invariant sur toute la longueur de balayage.

5.3.4.3. Résultats

Pour déterminer l'influence de la rugosité sur les champs critiques des films de niobium , nous avons sélectionné deux échantillons Nb/Cu représentatifs. L'échantillon A a été prélevé sur le disque EL de faible rugosité et l'échantillon B sur le disque SN6 très rugueux. Ils sont de forme parallélépipédique ($L=7\text{mm}\times l=5\text{mm}$) et de même épaisseur que le disque ($e_A=2,9\text{ mm}$ et $e_B=2,55\text{mm}$).

Pour minimiser l'effet de démagnétisation introduit par une composante de champ normale à la surface, l'échantillon est maintenu perpendiculaire par ses bords dans la tige amagnétique parallèle au champ magnétique.

• Mesures à 12K

Pour centrer l'échantillon et valider le montage, nous avons mesuré l'évolution du moment magnétique en fonction du champ magnétique à 12K, soit au-dessus de la température critique du niobium. On obtient un moment magnétique négatif et de dépendance linéaire avec le champ magnétique appliqué qui caractérise le diamagnétisme du cuivre pur (cf. Figure 5-18). Le moment magnétique est exprimé en emu équivalant à 1 ergOe^{-1} basé sur le système cgs.

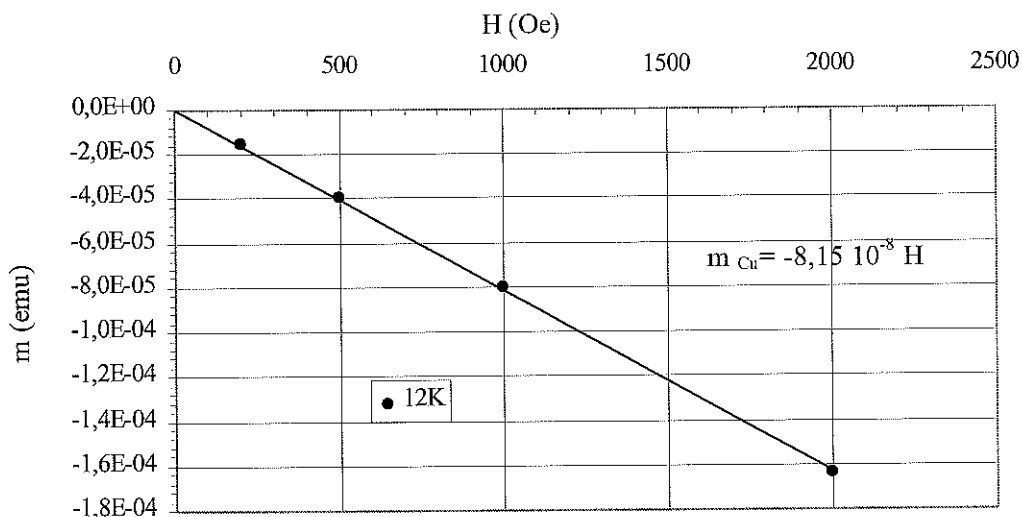


Figure 5-18 : Courbe d'aimantation de l'échantillon Nb/Cu A à 12K

La contribution paramagnétique du film de niobium à l'état normal est négligeable ($m_{\text{Nb}} \approx 10^{-6}$ emu). A partir du volume de l'échantillon on en déduit une valeur approchée de la susceptibilité massique χ_p du cuivre:

$$\chi_{p\text{Cu}} = \frac{m}{\rho_{\text{Cu}} V_{\text{Cu}}} \times \frac{1}{H} \quad (E 5-5)$$

On obtient :

$$\chi_{p\text{Cu}} = -8,9 10^{-8} \text{ cgs/g} \pm 0,5 10^{-8}$$

La valeur expérimentale est proche dans la littérature ($\chi_{p\text{Cu}} = 8 10^{-8}$ cgs/g).

Notons qu'en fin de balayage à champ nul, demeure un moment magnétique résiduel induit par un champ magnétique rémanent de l'ordre de 10 Oe et piégé dans les fils supraconducteurs.

• Mesures à basse températures

Les mesures d'aimantation des 2 échantillons en fonction du champ magnétique appliqué et à différentes températures sont présentées Figure 5-19 et Figure 5-20.

Le diamagnétisme du cuivre est indépendant de la température et la contribution du moment magnétique du cuivre, inférieure à 10^{-4} emu, s'avère donc négligeable par rapport au signal total recueilli (couche supraconductrice +cuivre) de quelques 10^{-3} emu.

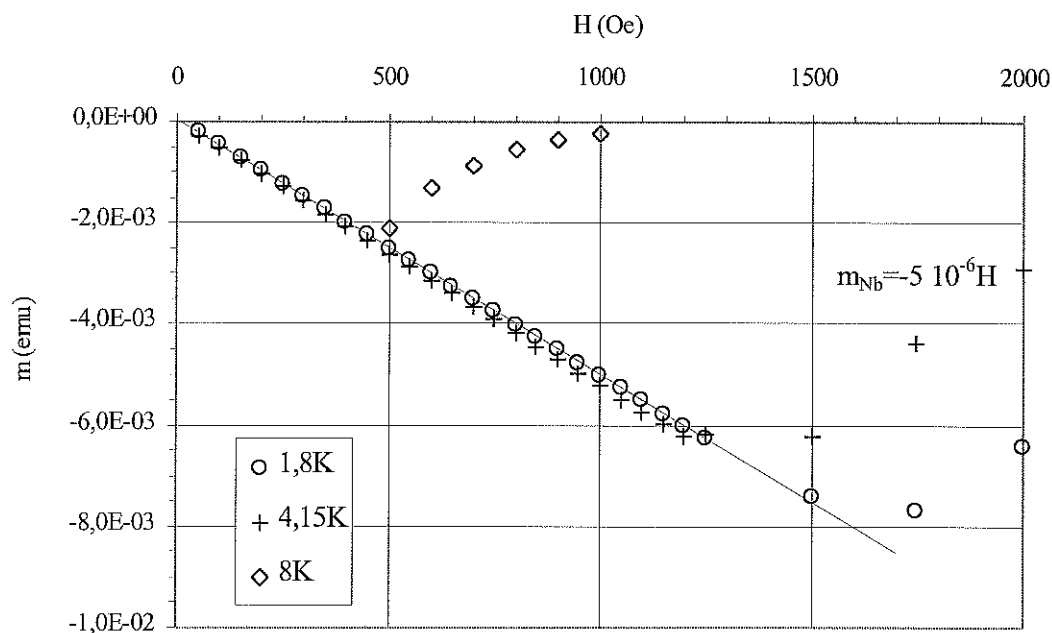


Figure 5-19 : Courbe d'aimantation de l'échantillon A à différentes températures

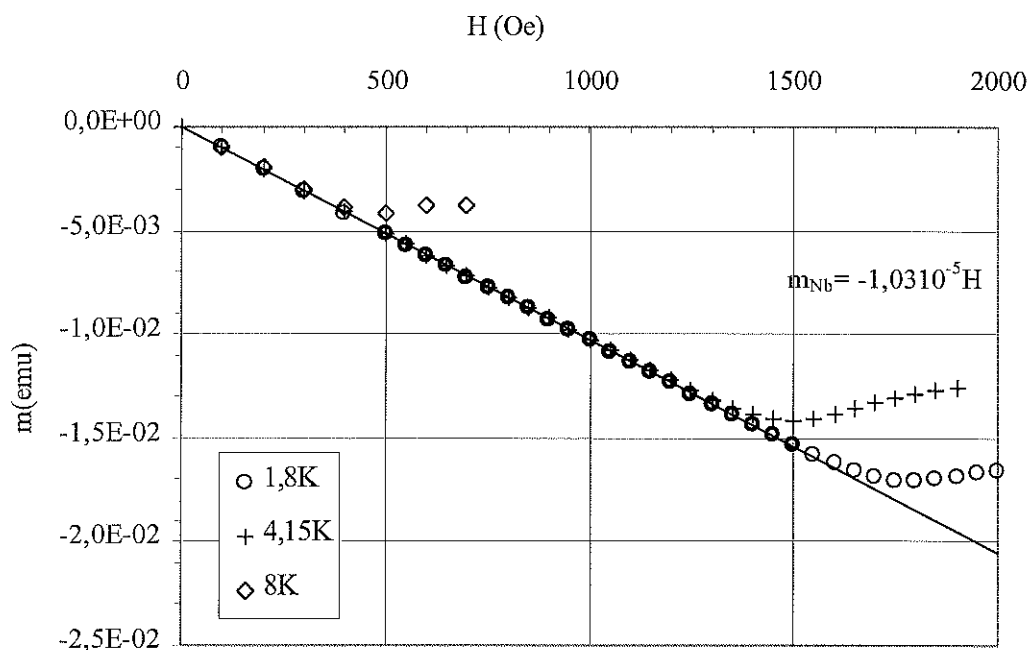


Figure 5-20 : Courbe d'aimantation de l'échantillon B à différentes températures

A bas champ, on retrouve la courbe linéaire caractéristique des supraconducteurs. Dans le système cgs, il s'écrit : $B = H + 4\pi M$. La magnétisation M correspond au moment magnétique par unité de volume.

L'expulsion du flux magnétique dans le niobium se traduit par une induction nulle :

$$m = -\frac{V}{4\pi} H \quad (E 5-6)$$

soit une pente :

$$\chi = -\frac{V}{4\pi}$$

Le volume du film de niobium étant d'environ $7 \cdot 10^{-3} \text{mm}^2$, on s'attend à

$$\chi = -5,1 \cdot 10^{-6} \text{emu Oe}^{-1} \pm 2 \cdot 10^{-6}$$

Expérimentalement on obtient une valeur assez proche : $\chi_{\text{exp}} = -5 \cdot 10^{-6} \text{emu Oe}^{-1}$.

a) détermination de H_{c1} et T_c

La valeur H_{c1} est définie comme le champ minimal correspondant à l'écart à la linéarité de la courbe d'aimantation. L'ensemble des mesures effectuées permettent de vérifier la loi de dépendance du champ critique en fonction de la température (cf. Figure 5-21):

$$H_{c1}(T) = H_{c1}(0) \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right] \quad (E 5-7)$$

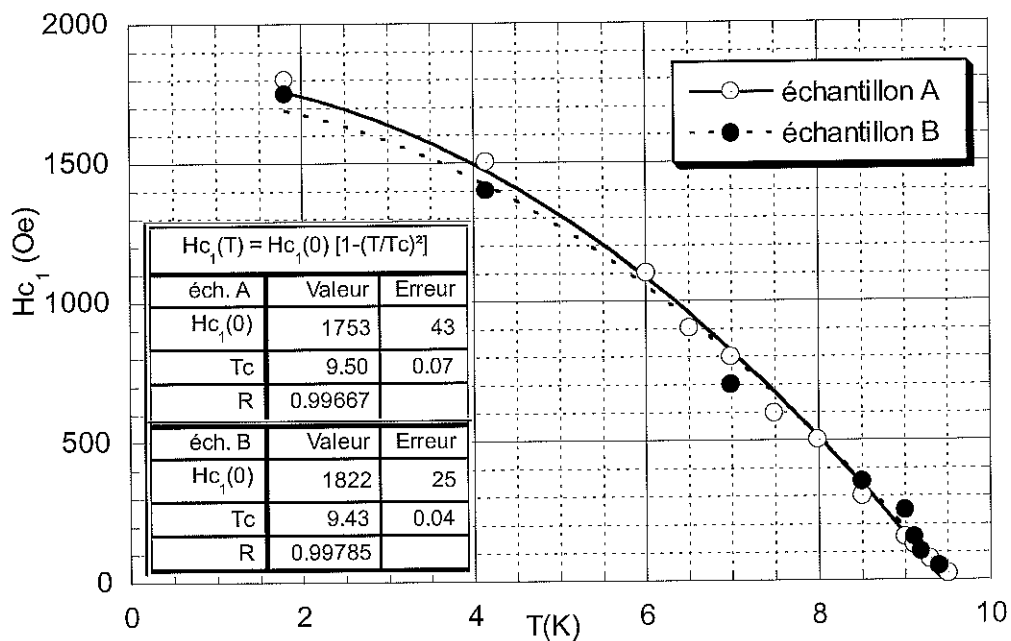


Figure 5-21 : Evolution de H_{c1} en fonction de la température

On obtient des valeurs de H_{c1} très proches pour les deux échantillons ($H_{c1A}(0K)=1750 \text{ Oe}$ et $H_{c1B}(0K)=1820 \text{ Oe}$). Ce paramètre caractéristique de la supraconductivité ne semble pas influencé par la présence d'une forte densité de défauts de croissance.

rugueux et limes

Cependant, les valeurs H_{c1} de nos couches minces de niobium sont plus de 100 fois supérieures aux mesures répertoriées dans la littérature^{[18],[19],[20]} où H_{c1} vaut environ 100 Oe. Cela peut être attribué à la différence de qualité des échantillons ainsi qu'à la différence de configuration expérimentale des mesures.

Notons toutefois que quelques fluxons peuvent être piégés dans la couche à des champs inférieurs à H_{c1} car on constate une légère variation des moments magnétiques mesurés à l'aller (sens du champ croissant) et au retour (sens du champ décroissant).

Des expériences complémentaires sont à effectuer pour distinguer l'influence de deux autres artefacts : le flux piégé par les fils du système de mesure et le flux piégé dans la couche du fait de l'existence d'une composante perpendiculaire du champ magnétique qui favorise la pénétration des vortex à très bas champ (facteur de démagnétisation très important sur une couche).

D'après l'équation E5-7, nous pouvons déduire la température critique des films de niobium. On obtient $T_{cA} = 9,5K$ et $T_{cB} = 9,4K$. Les contraintes générées dans le film de niobium par la différence des coefficients de dilatation thermique entre le substrat et le film conduisent à des valeurs de T_c supérieures à la valeur 9,25K du niobium massif.

b) détermination de H_{c2}

Dans la gamme de champ où réside le champ magnétique critique supérieur H_{c2} , les mesures du moment magnétique sont malheureusement faussées à cause de l'inhomogénéité du champ appliqué.

Les valeurs de H_{c2} pour un film de niobium trouvés dans la littérature sont assez dispersés mais systématiquement supérieures à celle du niobium massif (2-3kOe). Des mesures à 4,2K sur des prélèvements de cavités effectués par une équipe du CERN avant et après dissolution du substrat cuivre donnent respectivement 15 kOe-26 kOe et 8-8,4 kOe^[21]. Egalement après immersion dans l'acide nitrique d'autres mesures inductives à l'université de Wuppertal donnent 4,5 kOe $<H_{c2}(4,2K) < 8,5$ kOe.

5.3.5. Résistance de surface

La mesure de la résistance de surface R_s des films de niobium élaborés sur les disques de cuivre présentant différentes rugosités a été effectuée par thermométrie sous vide, technique de mesure décrite dans le chapitre 3. Nous nous intéresserons essentiellement aux mesures réalisées à 1,7K c'est à dire dans la gamme de température (et de fréquence) où R_s est largement dominée par la résistance de surface résiduelle R_{res} .

Les courbes $R_{res}=f(H_s)$ aux fréquences de 4 GHz et 5,6 GHz sont présentées respectivement en Figures 5-22 et 5-23. Les mesures entre 0 et 50 Oe correspondant à un échauffement très faible ne sont pas représentées (cf. chapitre 4).

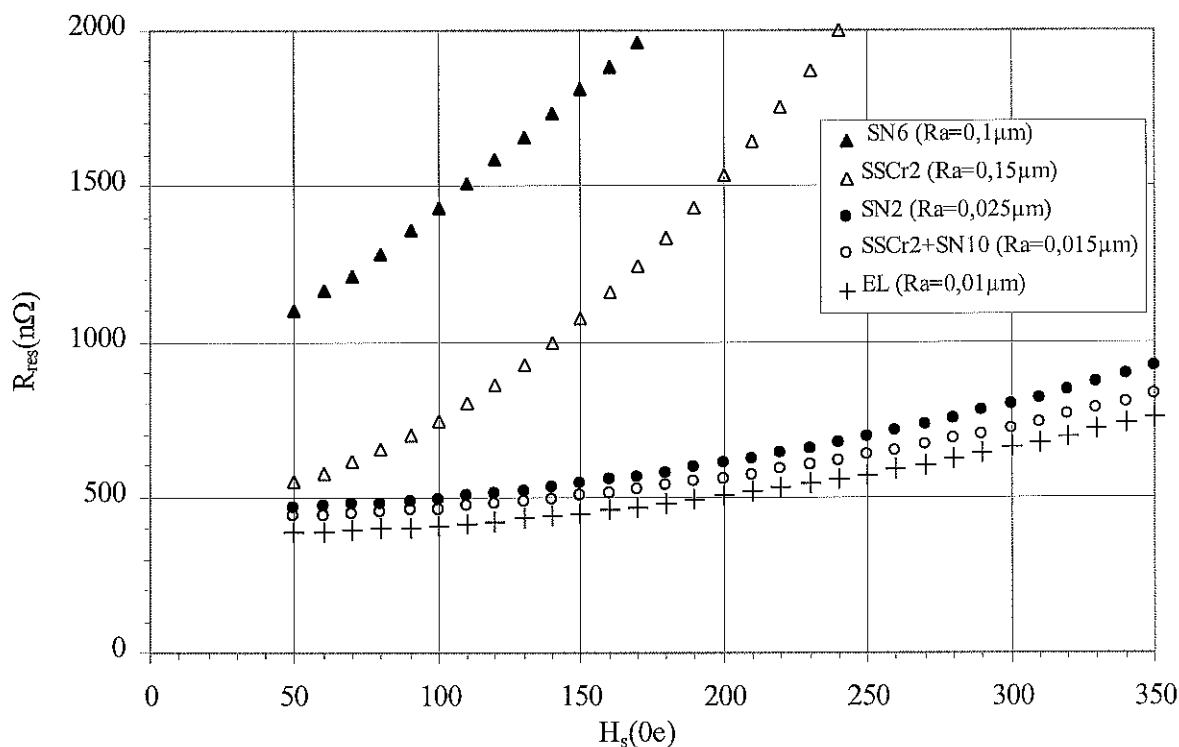


Figure 5-22 : Variation de la résistance de surface en fonction du champ magnétique pour des échantillons Nb/Cu $T=1,7K$, $f=4\text{ GHz}$

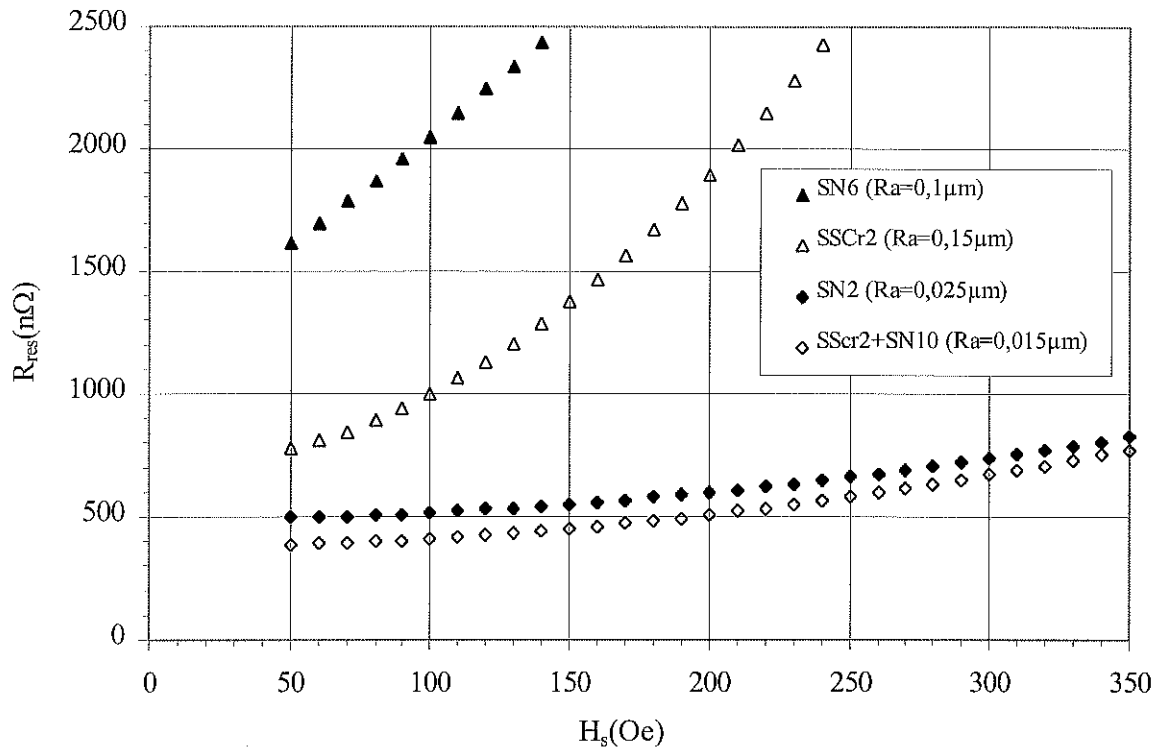


Figure 5-23 : Variation de la résistance de surface en fonction du champ magnétique pour des échantillons Nb/Cu $T=1,7K$, $f= 5,6 GHz$

5.4. Interprétation des résultats

Les résultats expérimentaux montrent clairement l'incidence de la rugosité du substrat cuivre avant dépôt sur les performances en hyperfréquence des films de niobium⁽³⁾. Les valeurs à bas champ de la résistance résiduelle de surface et de la pente de $R_{res}=f(H_s)$ sont plus élevées pour les films de niobium pulvérisés sur un substrat dont la surface est accidentée c'est à dire dont le paramètre de rugosité R_a est élevé. De plus, la résistance résiduelle des échantillons Nb/Cu varie plutôt linéairement avec la fréquence et non quadratiquement comme pour le niobium massif.

Les micrographies MEB de la surface des couches de niobium nous permettent d'établir une corrélation entre la densité de nodules (défauts de croissance du film sur les aspérités du cuivre) et la dégradation de la résistance de surface.

³ Le test HF du film de niobium déposé sur le substrat poli mécaniquement n'est pas exploitable (fuites d'hélium)

Plus généralement, le rôle de défauts de croissance qui ne sont pas attribués à la rugosité du cuivre semble confirmé par les tests à 50GHz^[22] de deux échantillons Nb/Cu réalisés sur des substrats au poli optique (cf. 5.2.6.2). Le premier échantillon élaboré dans une enceinte sale (plusieurs dépôts successifs) contient une forte densité de nodules micrométriques et présente de mauvaises performances HF. Inversement, le second échantillon élaboré dans une enceinte nettoyée contient peu de défauts et ses performances HF sont meilleures.

Ainsi, la majeure contribution de la résistance de surface résiduelle ne semble associée à la granularité intrinsèque des couches minces polycristallines (cf. Annexe I) mais plutôt à ces défauts de croissance formés sur les « accidents » de surface. Le lien observé entre la forte densité de défauts de croissance et la dégradation de la résistance de surface n'est pas encore expliqué. En effet, établir un modèle de dissipation HF de ces défauts implique de connaître la densité et la répartition de ces défauts ainsi leurs propriétés supraconductrices (T_c , H_c , j_c , λ et Δ) grandeurs difficilement mesurables du fait de leurs tailles micrométriques.

Les défauts sont encore mal caractérisés. Les premières observations semblent indiquer qu'il contiennent une plus forte densité de défauts cristallins et autres porosités que de la matrice de niobium. S'ils sont poreux, ces défauts peuvent être une source de rétention d'eau (les échantillons étant rincés avant tout test HF pour éliminer les poussières et tester l'adhérence du film). Par ailleurs, on peut supposer qu'ils possèdent des propriétés supraconductrices affaiblies par rapport à celles de la matrice.

Ainsi, ces défauts peuvent en partie transiter vers l'état mixte (ou l'état normal) si le champ magnétique appliqué dépasse la valeur de leur propre champ critique H_{c1} (ou H_{c2}). Quelques auteurs expliquent de cette façon l'incidence des défauts présents dans les couches de niobium sur les propriétés HF.

W. Weingartein^[23] considère ainsi que tout défaut de surface (de taille supposée inférieure à λ) possède une valeur de H_{c1} inférieure à celle du film. En calculant l'évolution de l'induction magnétique d'un défaut d'abord supraconducteur puis à l'état normal pendant un cycle RF, il fait alors apparaître l'existence d'un travail magnétique.

Selon N.I. Balalykin et al^[19] la pénétration des fluxons perpendiculairement au champ appliqué est favorisée dans le cœur des défauts de croissance transverses du film de niobium. Le libre mouvement des fluxons, de temps de pénétration supposée très inférieure à la période RF, cause alors des dissipations HF.

On peut enfin considérer que certains défauts, en particulier ceux qui se sont formés sur un germe différent d'une aspérité du cuivre, sont mal refroidis et s'échauffent au-delà de leur température critique. La densité de ces régions de « micro Qswitch » augmente alors avec le champ appliqué et conduit à un accroissement quasi continue de la résistance de surface.

Si la résistance de surface résiduelle du film de niobium semble affectée par l'existence de nodules, nous avons vu que le RRR (donc le libre parcours moyen électronique l), le champ et la température critique n'évoluaient pas d'un échantillon à l'autre. De même, le terme R_{BCS} qui est relié à λ , Δ et au RRR de surface du film, est très proche pour tous les échantillons. Déterminé à bas champ à l'aide de la thermométrie sous vide, $R_{BCS}(4,2K)$ vaut typiquement entre 3500 n Ω et 4000 n Ω à 4 GHz et 5500 à 6000 n Ω à 5,6 GHz.

On assimile le film de niobium à une matrice aux propriétés homogènes induites par les conditions de pulvérisation contenant des défauts de croissance localisés essentiellement formés sur des aspérités du cuivre. Ces défauts interfèrent sur le terme résiduel de la résistance de surface tandis que le terme R_{BCS} ainsi que les principaux paramètres caractéristiques de la couche sont donnés par la matrice.

Toutefois, la présence de nodules liés à la rugosité du cuivre n'est pas la seule origine de la résistance de surface résiduelle. Les échantillons de faible rugosité (EL, SSCr2+SN10) possèdent une résistance de surface encore élevée (environ 400n Ω à 4GHz) par rapport à celle du niobium massif (de l'ordre de 70 n Ω à 4GHz). La résistance de surface de 2 nouveaux échantillons SSCr2+SN10 est plus proche de celle du niobium massif (140n Ω à 4GHz)⁽⁴⁾. La dispersion des résultats n'est pas encore comprise.

⁴ Malheureusement, le phénomène de « Qswitch » est intervenu à 50 Oe, de petites régions du film de 0,1mm² environ étant décollées du substrat et engendrant des pertes supplémentaires

La non reproductibilité des résultats HF obtenu sur des échantillons à priori identiques pose problème. D'une part, cela montre que les facteurs influant la résistance de surface résiduelle ne sont pas encore totalement identifiés. D'autre part, cela peut résulter du fait qu'il est difficile de réitérer le même protocole de réalisation d'un échantillon disque. En effet, il s'agit d'un système ouvert qui implique un montage à l'air libre de cet échantillon dans l'enceinte de pulvérisation. Ce dernier point constitue l'une des limites des études sur échantillons. Cela nous engage à réaliser les prochaines études sur les cavités accélératrices 1,5GHz.

Chapitre 6 :

Préparation et Tests HF de cavités accélératrices Nb/Cu

6.1. Fabrication et préparation de surface de la cavité cuivre

- 6.1.1. Fabrication d'une cavité accélératrice en cuivre
- 6.1.2. Polissage
- 6.1.3. Rinçages

6.2. Le dépôt de niobium

6.3. Tests HF

- 6.3.1. Résultats
- 6.3.2. Cas de la cavité S1-10-A
- 6.3.3. Effet de l'étuvage de la cavité

6.4. Bilan et Perspectives

Les études menées sur échantillons trouvent évidemment leur application dans l'amélioration des procédés de fabrication des cavités Nb/Cu afin d'obtenir des performances meilleures et reproductibles notamment à haut gradient accélérateur.

Après une présentation rapide des étapes de fabrication des cavités 1,5GHz Nb/Cu répertoriées Tableau 6-1, nous présenterons les 5 résultats des mesures HF de 3 cavités préparées et testées dans notre laboratoire^[1].

1	Dégraissage et Desoxydation
2	Polissage chimique
3	Desoxydation
4	Rinçage sous ultrasons à l'eau ultrapure
5	Rinçage à 85 bars à l'eau ultrapure
6	Séchage en salle blanche (classe 100)
7	Transport et montage selon un protocole d'ultra propreté sur le bâti de pulvérisation
8	Dépôt de niobium
9	Rinçage à 30 ou 85 bars à l'eau ultrapure
10	Transport et assemblage selon un protocole d'ultra propreté sur l'insert de test RF
11	Stripage de la couche par voie chimique (pour les cavités utilisées plusieurs fois)

Tableau 6-1 : Les principales étapes de préparation des cavités Nb/Cu

6.1. Fabrication et préparation de surface de la cavité cuivre

6.1.1. Fabrication d'une cavité accélératrice en cuivre

Les trois cavités 1,5GHz en cuivre ont été hydroformées au CERN^[2]. La liaison entre les brides en acier inoxydable et le cuivre est faite par brasure pour la cavité S1-08 et par soudure au faisceau d'électrons pour les deux autres (S1-11 et S1-10). Nous avons choisi d'utiliser ces deux techniques afin d'apprécier la tenue de ces deux liaisons inox-cuivre aussi bien à haute température pendant le dépôt qu'à très basse température pendant le test HF.

6.1.2. Polissage

Le polissage de la surface interne du cuivre constitue la première étape de préparation de surface des cavités. Au cours d'études antérieures, des essais de polissage mécanique par tonnelage, par vibrations ou par introduction d'un jet de pâte abrasive ont conduit à des résultats médiocres (déformations, inhomogénéités...). L'électropolissage dans le mélange

H_3PO_4/H_2O a posé d'autres problèmes : le montage nécessaire est complexe du fait de la forme particulière de la cavité et le rinçage de la cavité pour éliminer l'acide est difficile favorisant une oxydation ultérieure du cuivre et le décollement de la couche.

Nous avons choisi la voie chimique, technique aisément transposable au polissage de grandes superficies ($S_{cavité} \sim 3200 \text{ cm}^2$). Après un dégraissage et une première désoxydation du cuivre avec de l'acide sulfamique, les cavités sont plongées successivement dans les bains SSCr2 et SN10, qui avaient donné sur échantillons un bon état de surface (cf. Figure 6-1).

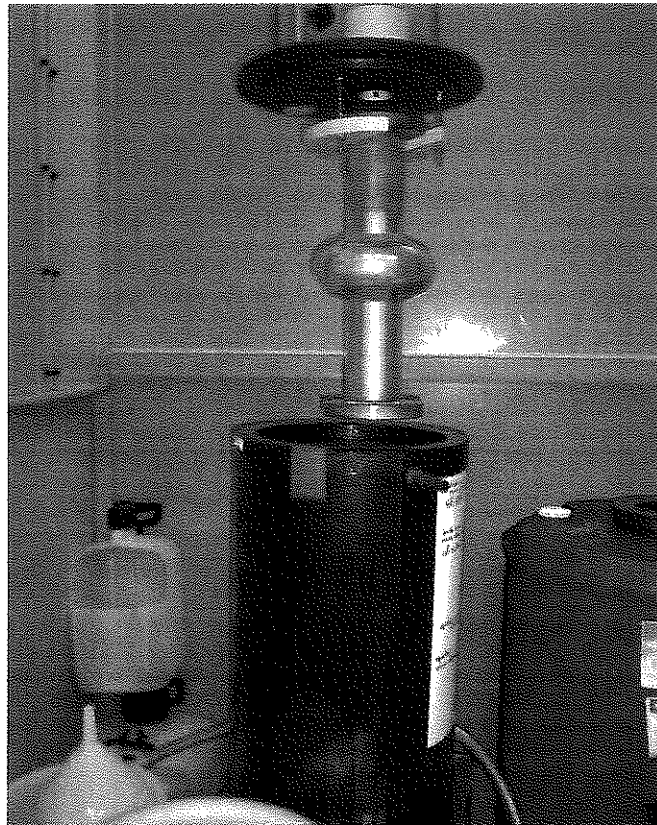


Figure 6-1 : Polissage d'une cavité 1,5GHz

6.1.3. Rinçages

La cavité à nouveau désoxydée avec de l'acide sulfamique, subit plusieurs rinçages à l'eau ultrapure et sous ultrasons avant d'être transportée en salle blanche (classe 100) pour un rinçage de 85 bars. Le rinçage haute pression a pour but d'éliminer toute trace de particules (jusqu'à $0,1\mu\text{m}$) et de résidus chimiques sur les parois internes des cavités grâce à l'écoulement à très grande vitesse que produit le jet d'eau au voisinage de l'impact (cf. Figure 6-2).

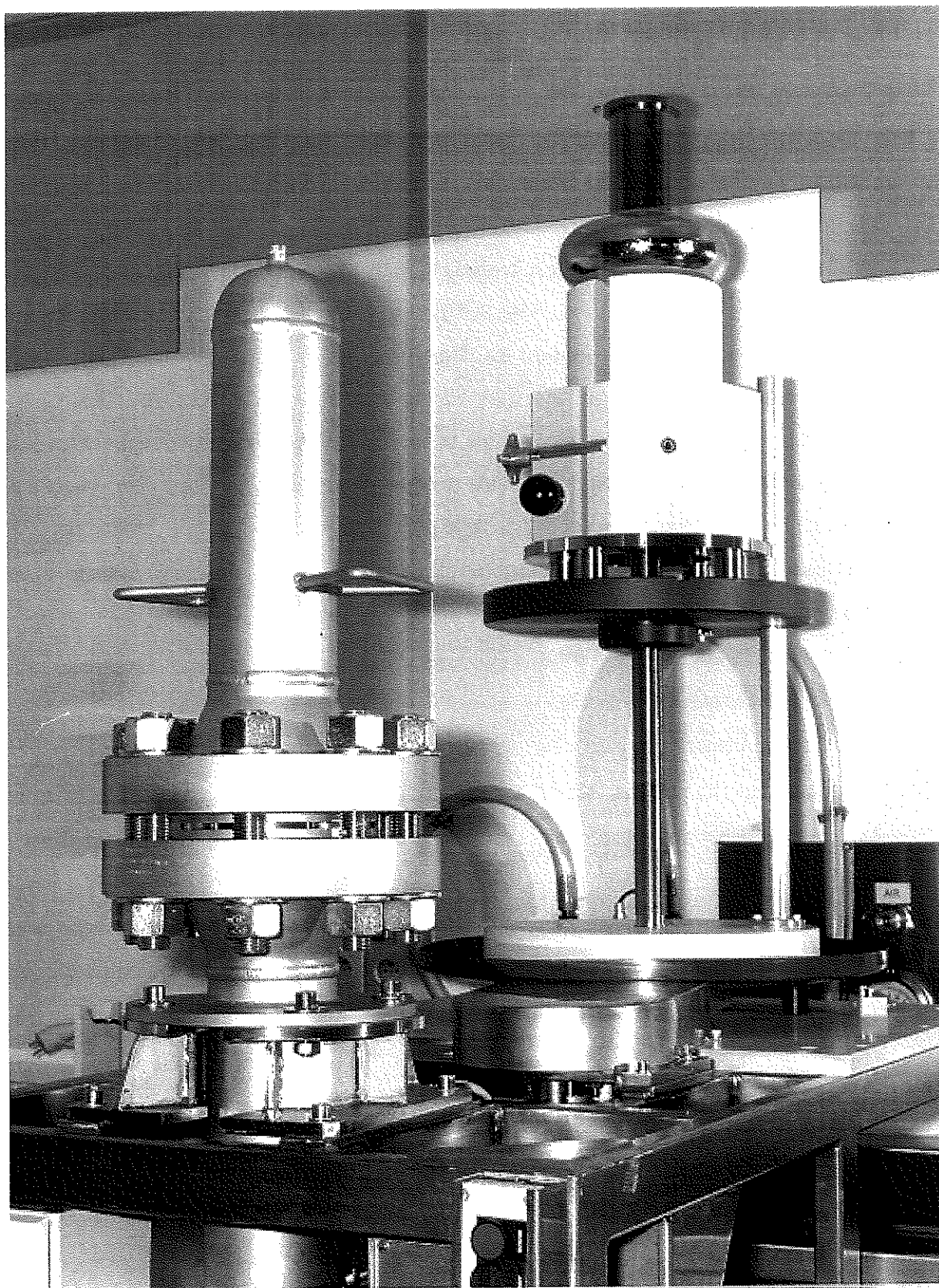


Figure 6-2 : Dispositif pour rinçage à haute pression

6.2. Le dépôt de niobium

Après un séchage sous le flux laminaire en salle blanche pendant 3 heures, la cavité est fermée puis transportée jusqu'au bâti de pulvérisation. La connexion se fait sous un flux laminaire d'air filtré pour limiter la pollution par les poussières (cf. Figure 6-3).

Parallèlement, le volume de l'enceinte est pompé jusqu'à obtenir un vide de 10^{-3} mb des deux côtés de la vanne séparant la cavité de la chambre de la cathode. Le vide atteint permet d'ouvrir la vanne sous créer de turbulences risquant de transporter des poussières dans la cavité. L'efficacité de cette procédure est démontrée par l'absence de « Qswitch » lors des tests des cavités Nb/Cu.

L'ensemble bâti + cavité est alors pompé et étuvé à 200°C grâce au nouveau dispositif de chauffage ce qui permet d'atteindre un vide résiduel de quelques 10^{-10} mb. On procède alors au dépôt de niobium dans les tubes d'extrémité puis dans la cellule.

Les cinq dépôts (S1-08-C, S1-10-A, S1-10B, S1-11A, S1-11B) ont été réalisés dans les mêmes conditions expérimentales :

- Pression résiduelle $\approx 10^{-10}$ mbar
- Pression d'argon : 10^{-3} mbar
- Puissance magnétron fixée: 1kW
- Température du substrat : 400°C à 500°C
- Durée du dépôt au niveau de la cellule : 60min (soit une épaisseur de $2\mu\text{m}$ environ)

Après la pulvérisation les cavités sont transportées fermées jusqu'en salle blanche pour un nouveau rinçage HPR à 30 bars (à l'exception d'un essai à 85 bars) qui a permis d'éviter le phénomène d'émission de champ pour l'ensemble des cavités testées.

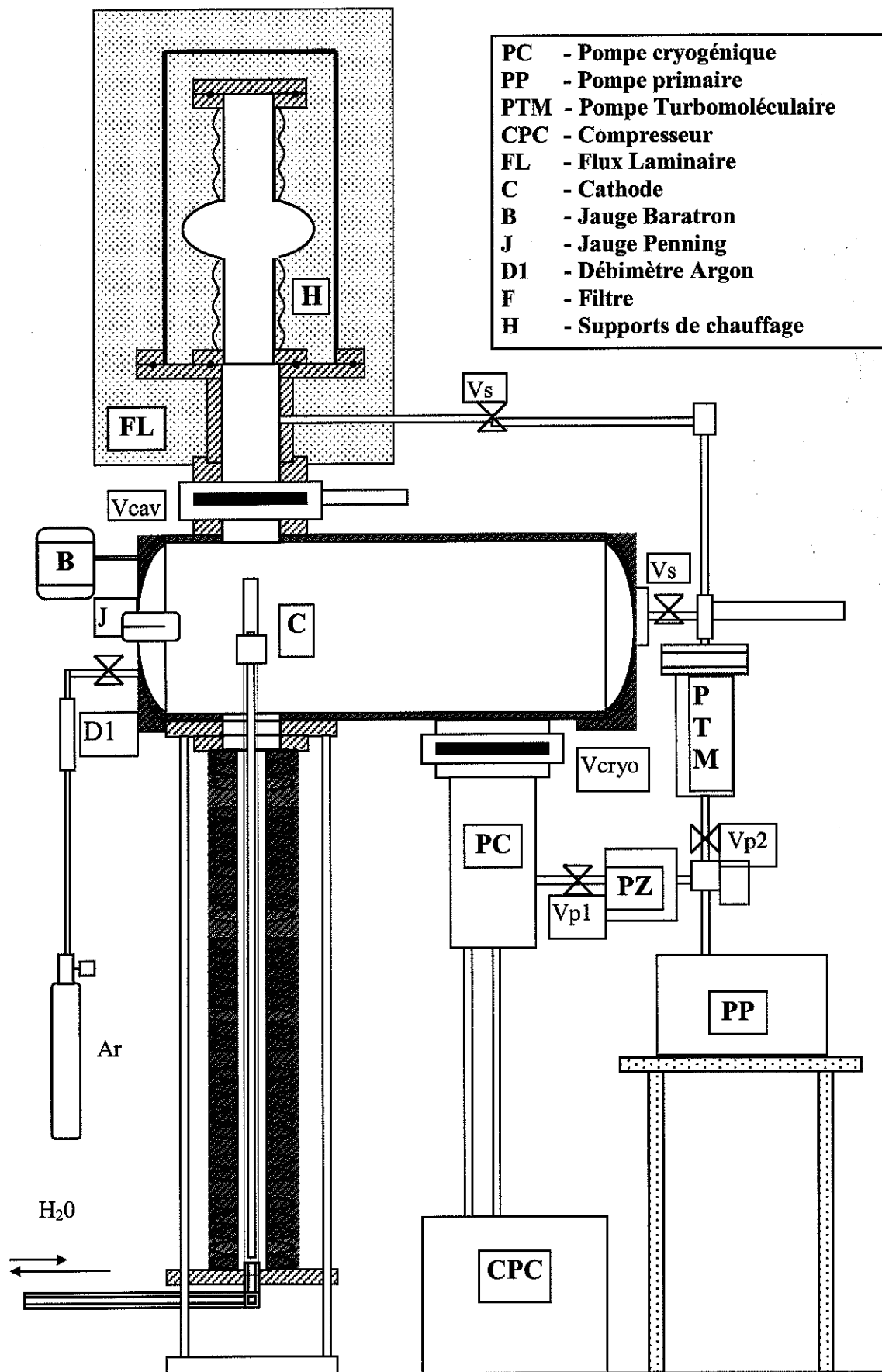


Figure 6-3 : Bâti de pulvérisation pour cavités

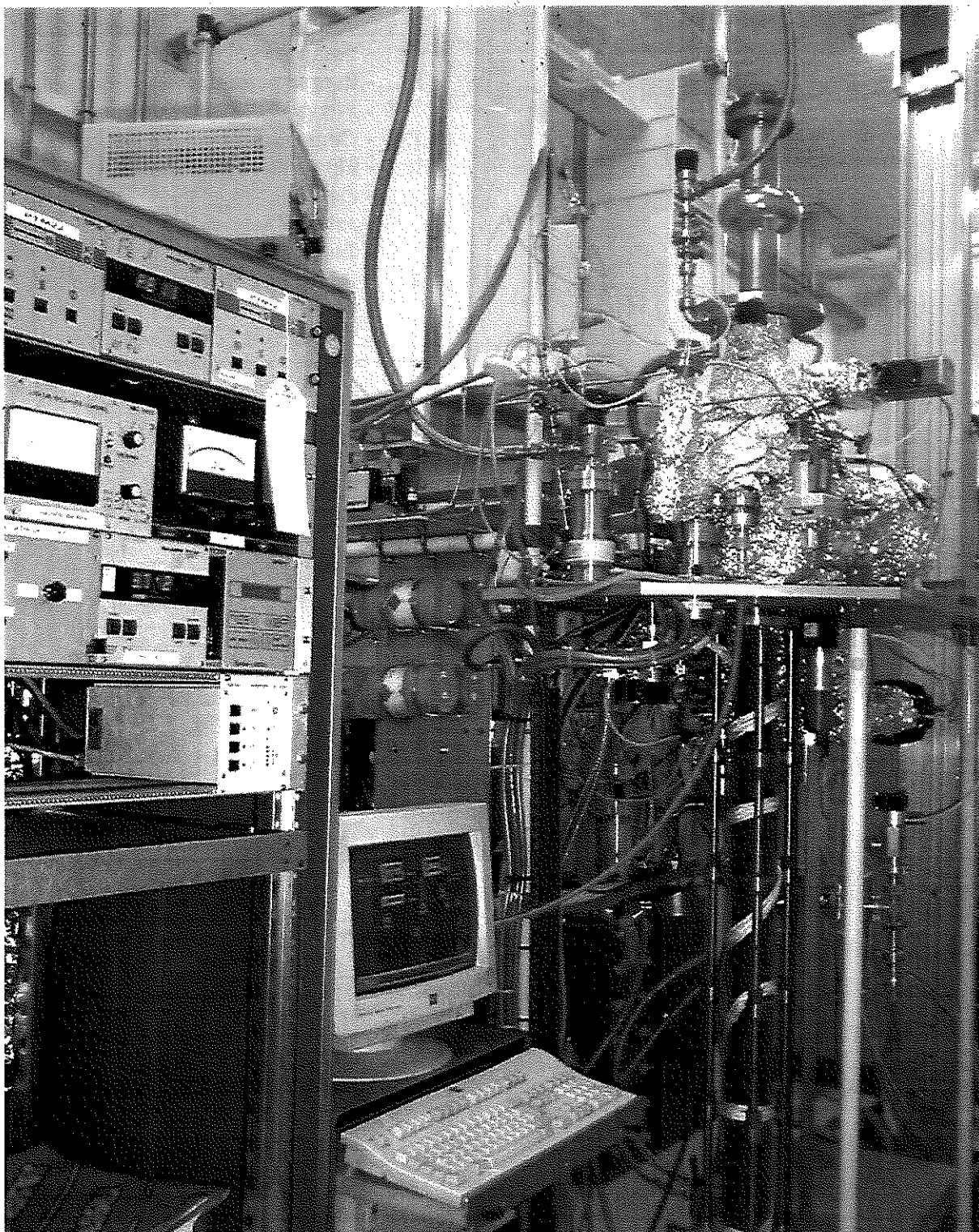


Figure 6-4 : Bâti de pulvérisation pour cavités

6.3. Tests HF

Les caractéristiques RF des cavités sont présentées en référence [3]. Pour le mode fondamental TM_{010} à 1,5 GHz, les facteurs géométriques sont $R/Q=82\Omega$ et $G=295\Omega$.

Les rapports entre champs sont $E_{\max}/E_{\text{acc}}=1,95$ et $H_{\text{smax}}(\text{Oe})/E_{\text{acc}}(\text{MV/m})=45,5$.

6.3.1. Résultats

Les 5 tests HF réalisés à 1,7K sont présentés en Figure 6-5. Le champ maximum atteint est limité par la puissance de l'amplificateur utilisé.

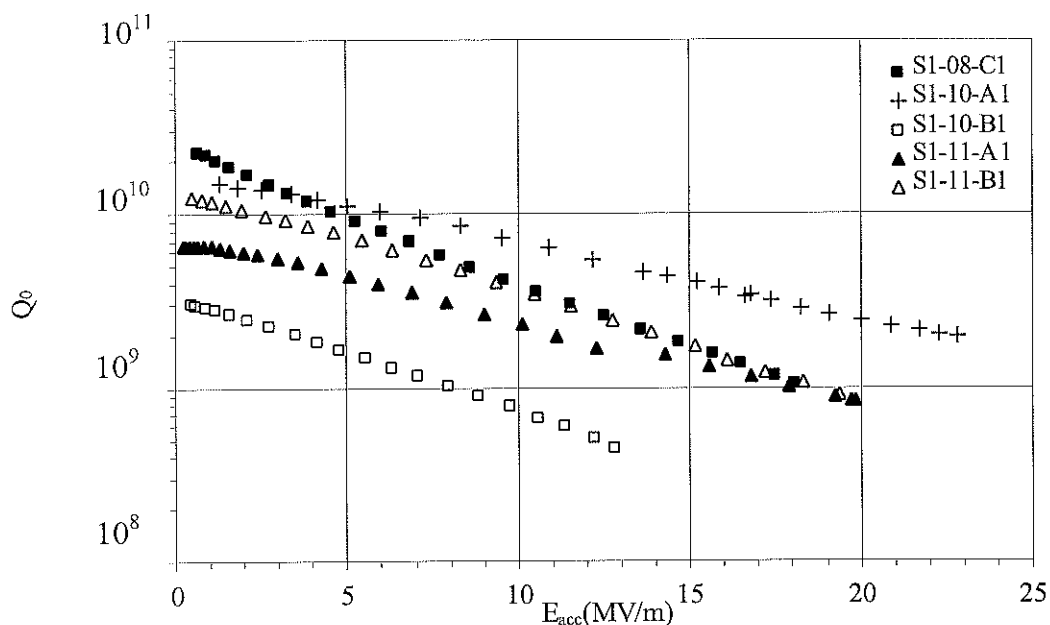


Figure 6-5 : $Q_0=f(E_{\text{acc}})$ à 1,7K de cavités Nb/Cu après HPR à 30 Bars

Pour l'ensemble des cavités, le facteur de qualité décroît exponentiellement avec le champ accélérateur. Les performances HF de la cavité S1-10-A1 (A=numéro de dépôt et 1=numéro du test) sont proches des spécifications initiales du projet TTF : $Q_0=1,710^{10}$ à bas champ et $E_{\text{acc}}=23\text{MV/m}$ avec $Q_0=1,510^9$.

Mais la dispersion des résultats obtenus entre les différents tests montre le degré de non reproductibilité des performances des cavités Nb/Cu. Ceci est probablement lié au polissage chimique du cuivre avant le dépôt. En effet, l'efficacité de ce traitement est conditionnée par le démarrage de la réaction qui est encore mal maîtrisé et nous avons bien observé sur échantillons l'influence de la rugosité du cuivre sur la résistance de surface du film déposé.

Pour conclure sur les performances des cavités Nb/Cu, nous retraçons quelques comportements particuliers de cavités ainsi que les tests supplémentaires réalisés.

6.3.2. Cas de la cavité S1-10-A

Lors du premier test de la cavité S1-10 la courbe initiale a été limitée par une émission brutale d'électrons accompagné de rayonnement X, survenu à $E_{acc}=20,5$ MV/m et $Q_o=4,5 \cdot 10^9$ (cf. Figure 6-6).

Après cette dégradation, la courbe finale est devenue stable (pas de différence après une deuxième montée en champ). Nous avons essayé sans succès de supprimer ce défaut à l'aide d'un rinçage HPR à 85 bars : la seconde courbe reproduit sensiblement les mêmes résultats. Notons que le champ accélérateur maximum est supérieur du fait du meilleur couplage avec une antenne incidente plus longue que celle du précédent test.

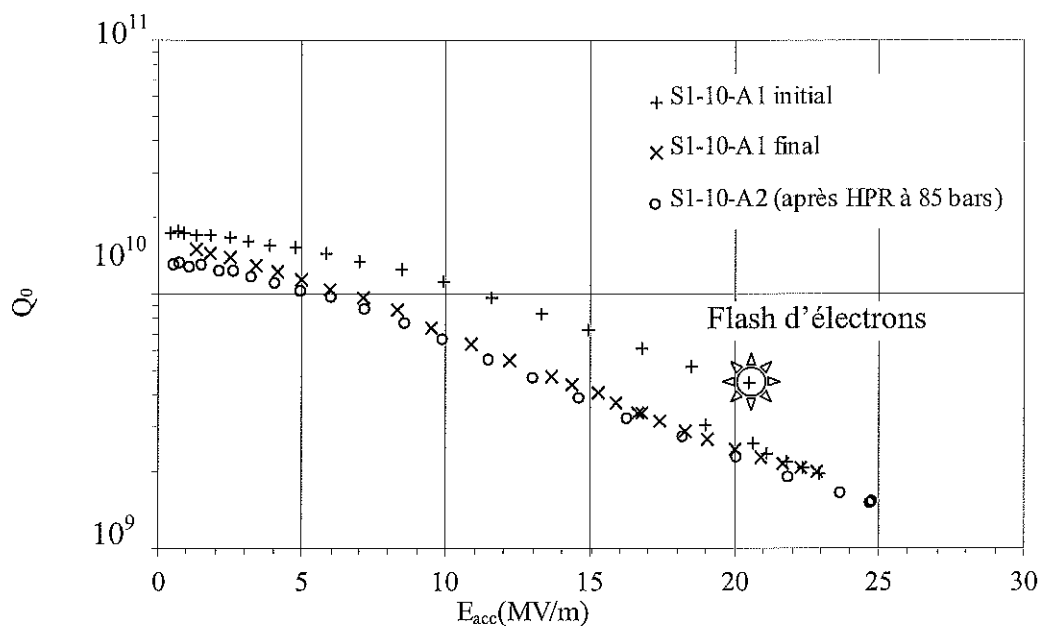


Figure 6-6 : $Q_o = f(E_{acc})$ à 1,7K de la cavité S1-10-A après HPR à 30 bars et 85 bars

Après inspection de l'intérieur de la cavité à l'aide d'un endoscope nous n'avons pas identifié de défaut millimétriques à la surface du film de niobium. Nous pouvons cependant suspecter la création d'un défaut local ou d'une pollution de la cavité par vaporisation d'un défaut sur une partie de la cellule.

6.3.3. Effet de l'étuvage de la cavité

La méthode décrite en référence [4] visant à réduire la pente $Q_o = f(E_{acc})$ à forts gradients de cavités en niobium massif a été appliquée aux cavités S1-08-C et S1-11-B. Après le premier test HF, ces cavités ont été maintenues sous vide et chauffées à 90°C pendant 20 heures puis à nouveau testées. Cette opération s'est révélée sans effet pour la cavité S1-08C. Inversement le résultat de la cavité S1-11-B est intéressant (cf. Figure 6-7).

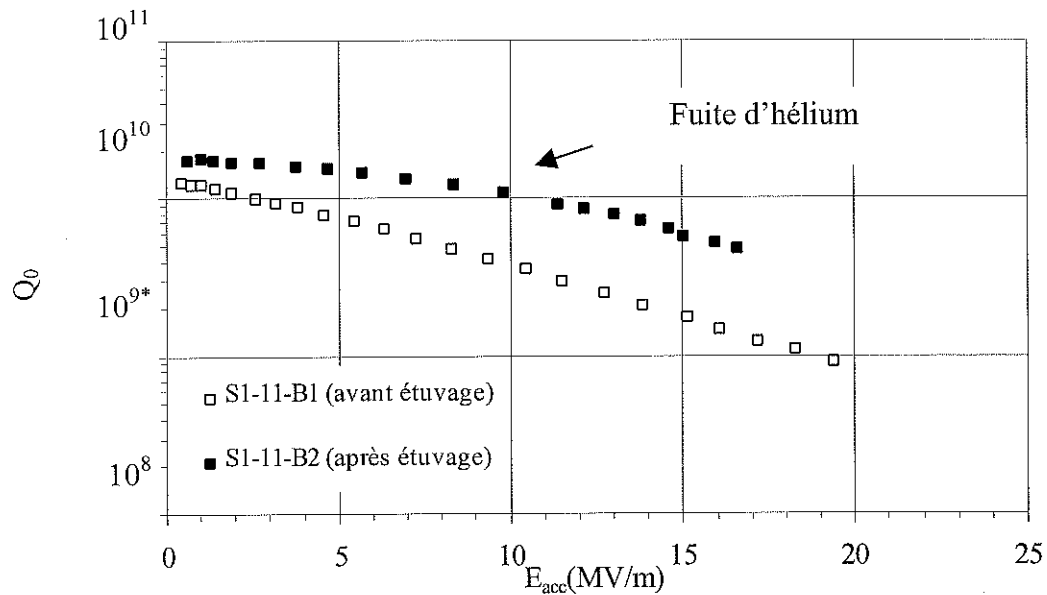


Figure 6-7 : $Q_0 = f(E_{acc})$ à 1,7K de la cavité S1-08-C avant et après étuvage à 90°C

Nous avons observé une nette augmentation du Q_0 accompagnée d'une forte réduction de la pente $Q_0 = f(E_{acc})$. Malheureusement une fuite d'hélium est intervenue au cours du test, limitant les mesures à 16,5 MV/m.

L'amélioration des performances HF par étuvage est attribuée à des phénomènes de surface qui peuvent être liés à la désorption d'une partie de la couche H_2O surfacique avec l'étuvage ou à l'évolution des oxydes de surface (NbO_x).

Cependant, l'inefficacité de l'étuvage de la cavité S1-08-C reste à expliquer et montre que les performances HF des cavités sont limitées par des causes multiples.

On explique le comportement HF de la cavité S1-08-C par l'historique de la préparation du cuivre. En effet, la cavité a été poli mécaniquement par tonnelage lors d'essais antérieurs de traitement de surface qui ont causé une dégradation profonde de la surface. Cet état de surface a été partiellement amélioré avec l'emploi des bains chimiques SScr2 et SN10 mais l'épaisseur enlevée s'est révélée trop faible après coup.

6.4. Bilan et Perspectives

Les performances HF des cavités Nb/Cu de Saclay comme du CERN sont en constant progrès ce qui permettrait d'envisager des applications à haut gradients. L'obtention de résultats HF reproductibles est le prochain objectif.

D'un point de vue pratique, il convient de perfectionner le procédé d'élaboration des cavités Nb/Cu et en particulier d'optimiser la préparation de la cavité avant le dépôt.

De nouvelles cavités en cuivre ont été élaborées par hydroformage à partir d'un tube usiné forgé de cuivre ayant de bonnes propriétés métallurgiques. Cette méthode de fabrication permet réduire les porosités et les incrustations dans le cuivre. L'enjeu principal est maintenant de maîtriser l'efficacité du traitement de surface du cuivre de façon à garantir une surface propre et peu rugueuse propice à la croissance homogène, uniforme et sans défauts du film de niobium.

L'ensemble des études et mesures effectuées permettent d'aiguiller les travaux de recherche visant à diminuer la pente de la courbe $Q_0 = f(E_{acc})$.

Sur la base des observations et des test HF sur échantillons disques Nb/Cu, il est important de mieux comprendre les mécanismes de formation de défauts de croissance des films qui semblent nuire aux propriétés HF. A partir d'analyses physico chimiques et de fractographies, il serait intéressant de caractériser les défauts du film de niobium produits sur cavités, en fonction de la taille et de la nature des germes de croissance et de leur densité.

La deuxième piste de recherche concerne l'influence des phénomènes de surface sur les performances HF des cavités Nb/Cu. En effet, les premiers essais d'étuvage de cavités Nb/Cu laissent espérer une possibilité réduction de la dépendance en champ de la résistance de surface des films.

Dans un premier temps, la caractérisation de l'extrême surface du film de niobium s'avère nécessaire pour évaluer les dissipations HF à l'intérieur de ce volume. Et une mesure systématique de la profondeur de pénétration pourra nous permettre de déterminer l'évolution du RRR de la surface qui voit l'onde HF en fonction la température et de temps d'étuvage.

De cette étude peut également découler une modification des conditions de rinçage (rinçage HPR, à l'alcool...) et de séchage de la cavité (par chauffage, par pompage sous air filtré ou sous azote...).

CONCLUSION

CONCLUSION

Le travail effectué est une contribution à l'amélioration des performances des cavités « couches minces » Nb/Cu élaborées par pulvérisation magnétron. Les études ont été essentiellement menées sur échantillons, cinq cavités Nb/Cu 1,5 GHz ont été préparées.

Dans un premier temps, nous avons montré qu'il était possible de chauffer le substrat en cuivre pendant le dépôt afin de favoriser la diffusion de surface des atomes pulvérisés et d'améliorer la croissance du film de niobium et son adhérence. Des analyses par méthodes nucléaires d'échantillons recuits jusqu'à 800°C ou élaborés à 400°C ont indiqué qu'il n'y avait pas de pollution significative du niobium par diffusion du cuivre dans les joints de grains. Par ailleurs, les revêtements déposés à haute température conservent une excellente pureté : la valeur du RRR dépasse 30.

Ensuite, l'effort le plus important a porté sur le développement d'une nouvelle méthode de détermination de la résistance de surface R_s , par thermométrie sous vide.

En effet, la méthode de mesure de R_s par substitution employée jusque là au laboratoire nécessite le test d'un échantillon de référence. Et, cette méthode assez lourde et prenant du temps présente l'inconvénient de perdre toute sensibilité lorsque la résistance de surface de l'échantillon est inférieure à égale celle du niobium massif, ce qui est le cas à 4,2K.

En réutilisant la cavité TE_{011} résonant à 4 GHz et 5,6 GHz, nous avons conçu un ensemble thermométrique maintenu sous vide placé sur l'échantillon avec une chaufferette de calibration en flux. La détermination de R_s , par cette méthode est ainsi basée sur la mesure directe des échauffements liés à la puissance dissipée dans l'échantillon.

Nous avons d'abord validé la thermométrie sous vide en comparant les résultats obtenus par cette méthode avec les mesures HF d'échantillons en niobium massif à 1,7K. Ensuite, les résultats à 4,2K sur échantillons Nb/Cu ont confirmé la meilleure sensibilité de la thermométrie sous vide par rapport à la méthode HF à cette température. Cependant, nous avons mis en évidence un changement de régime d'échange entre l'hélium normal ($T > 2,1K$) et le cuivre. Intervenant à bas champ, cette transition d'un régime de convection à un régime d'ébullition nucléée engendre des phénomènes complexes d'hystérésis qui ne permettent pas d'exploiter les mesures dans ce domaine.

Nous avons appliqué la thermométrie sous vide à l'étude de l'influence de la rugosité du substrat cuivre sur la résistance de surface résiduelle de couches de niobium. Pour obtenir une large gamme de rugosité, trois méthodes de préparation du cuivre ont été choisies : les traitements chimiques, l'électropolissage et le polissage mécanique. Le dépôt de niobium sur ces différentes surfaces a été réalisé dans les mêmes conditions opératoires.

Les tests HF de ces échantillons Nb/Cu ont clairement mis en évidence l'augmentation de la résistance de surface avec la rugosité du cuivre. La valeur de la résistance de surface semble corrélée avec la densité de défauts de croissance du niobium observés en particulier sur les échantillons réalisés sur substrat rugueux. Alors que d'une manière générale la couche forme une réplique de la surface du cuivre, certains défauts du cuivre semblent amplifiés et génèrent localement des excroissances macroscopiques de niobium.

Cependant, nous avons également remarqué des défauts géométriques similaires sur des substrats dont la surface a été polie optiquement. Ceci laisse supposer que l'origine de ces nodules n'est pas seulement rattachée à la présence d'aspérités à la surface du cuivre. Ainsi, leur croissance peut être attribuée à la présence de germes tels que de très fines poussières déjà présentes sur le substrat ou des particules en provenance de la cathode magnétron pendant le dépôt et sur la base desquels ils se développent. Des analyses physico chimiques (porosité, impuretés,..) et des fractographies doivent contribuer à mieux caractériser ces défauts et à identifier leurs origines.

La corrélation entre la dégradation de la résistance de surface et une grande densité de ces défauts a été simplement observée. Nous n'avons pas établi de modèle de dissipation HF pour expliquer ce lien. Une telle démarche nécessite de connaître les propriétés supraconductrices de ces défauts (température critique, champ critique...) dont les mesures s'avèrent délicates en vue de leur taille micrométrique, ainsi que leur densité et leur répartition spatiale sur tout l'échantillon.

Tenant compte des résultats sur échantillons, nous avons mis en place un nouveau protocole de fabrication des cavités. D'un part, l'emploi d'un nouveau traitement chimique validé sur échantillons pour la préparation de surface des cavités s'est traduit par une nette amélioration de la qualité du polissage du cuivre par rapport aux techniques antérieures utilisées au SEA (tonnelage, électropolissage,...). D'autre part, le choix de nouveaux paramètres opératoires de pulvérisation résultant d'une étude sur échantillons a conduit à des dépôts de RRR plus élevés.

Par ailleurs, l'emploi d'un jet d'eau ultrapure sous haute pression (HPR) destiné à améliorer la propreté de la surface interne de la cavité après le dépôt a permis de repousser la limitation en champ par le phénomène d'émission électronique.

Ces évolutions ont contribué à l'amélioration des performances HF des cavités Nb/Cu. Toutefois, les bons résultats obtenus ($Q_0 = 210^{10}$ à bas champ, $E_{acc} = 25$ MV/m) ne sont pas encore reproduits systématiquement et la dépendance en champ de R_s demeure le principal facteur limitant l'emploi de ces cavités pour les projets à haut gradients.

Nous avons remarqué cependant qu'un étuvage de la cavité à 90°C pendant 24H pouvait réduire fortement la pente de la caractéristique $Q_0 = f(E_{acc})$. Ce premier résultat encourageant ouvre une nouvelle voie de recherche sur les phénomènes de surface qui interviennent et leur incidence sur les performances HF.

Parallèlement à ces études sur les mécanismes limitatifs des couches minces, les améliorations d'ordre technologique du procédé de fabrication des cavités doivent être poursuivies. L'obtention de résultats reproductibles passe en particulier par une meilleure maîtrise des 3 principales étapes de préparation de la cavité avant le dépôt : fabrication, polissage et nettoyage des surfaces.

Dans cette optique, les prochaines cavités utilisées ont été hydroformées selon un nouveau procédé qui permet réduire les porosités et les incrustations dans le cuivre.

Le dispositif et la procédure de traitement chimique des cavités sont en cours de modification afin d'obtenir un état de surface uniforme et peu rugueux, ne favorisant pas la formation de défauts de croissance. Il s'agit notamment de mieux contrôler les paramètres qui interviennent sur la qualité du polissage tels que l'agitation, la composition chimique ou la température du bain.

Selon une même logique, un nouveau protocole du montage de la cavité sur l'enceinte de pulvérisation est destiné à s'affranchir de toute contamination de la surface avant le dépôt.

Tout en aiguillant essentiellement les travaux de développement sur l'optimisation du substrat cuivre et des conditions de propreté, il serait intéressant de faire évoluer les conditions d'élaboration des films de niobium en testant d'autres gaz de décharge comme le krypton ou le xénon.

ANNEXES

Annexe I :

Effet Josephson

Introduction à la supraconductivité granulaire

1.1 Introduction

Une jonction Josephson est formée de deux matériaux supraconducteurs séparés par une barrière isolante très fine (cf. Figure 1-1) et est susceptible de laisser passer un courant de paires de Cooper par effet Tunnel.

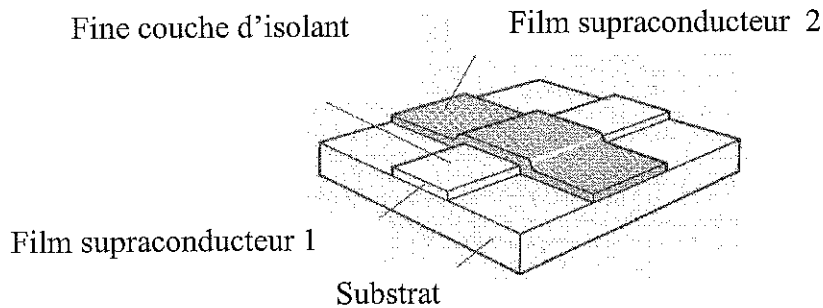


Figure 1-1 : Jonction Josephson (SIS)

- Pour des courants suffisamment faibles, la jonction se comporte comme un supraconducteur avec absence de tension à ses bornes : c'est l'effet Josephson continu.
- Pour des courants supérieurs aux courants critiques I_c , la barrière est alors résistive et devient le siège de courant d'électrons normaux. Une tension apparaît ainsi aux bornes de la jonction (cf. Figure 1-2).

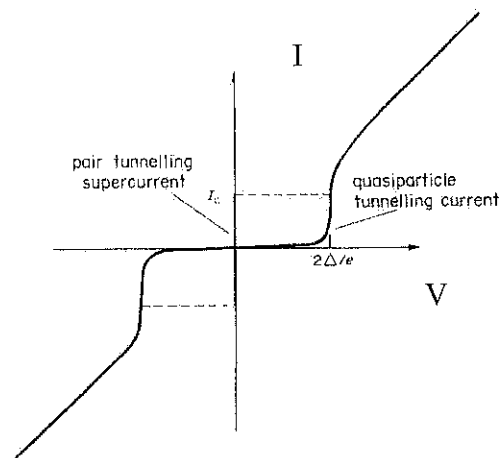


Figure 1-2 : Courbe $I=f(V)$ d'une jonction Josephson (supraconducteurs identiques)

1.2 Origine du courant Josephson

Dans un supraconducteur isolé, les électrons appariés sont caractérisés par la fonction d'onde :

$$\Psi(\vec{r}, t) = \left| \Psi(\vec{r}, t) \right| e^{i\varphi(\vec{r}, t)}$$

Contrairement à l'état normal où chaque électron a une fonction d'onde différente, toutes les paires de Cooper ont la même phase φ . En revanche deux matériaux supraconducteurs même identiques n'ont pas la même phase. Rapprochés l'un de l'autre, c'est justement cette différence de phase qui sera la cause de la mise en mouvement des paires de Cooper. En se déplaçant, ces dernières chercheront à ajuster la phase entre les deux supraconducteurs pour que le système tende vers un état d'énergie plus stable.

L'expression du courant Josephson se déduit des équations de Schrödinger couplées qui décrivent le comportement des fonctions d'ondes de chaque partie supraconductrice de la jonction :

$$I_J = I_c \sin(\varphi_2 - \varphi_1).$$

1.3 Application au modèle supragranulaire

Plusieurs travaux suggèrent que la nature polycristalline des HTC (oxydes supraconducteurs...) et des films de niobium pulvérisés est responsable de la dégradation des performances HF^{[1],[2],[3]}. Le matériau polycristallin est modélisé par un réseau d'îlots supraconducteurs (les grains) couplés les uns aux autres par des liens de type Josephson (les joints de grains).

Selon le modèle RSJ (Resistive Shunted Junction), la jonction Josephson est apparentée à une résistance pure placée en parallèle avec une inductance^{[4],[5]}. Par analogie avec ce circuit électrique équivalent, les joints de grains sont imaginés comme une inductance, traduisant l'existence d'un courant non dissipatif des paires de Cooper, en parallèle avec une résistance associée au passage des électrons normaux. Les grains quant à eux sont représentés par une inductance pure où l'on suppose que tous les électrons sont appariés. (cf. Figure 1-3).

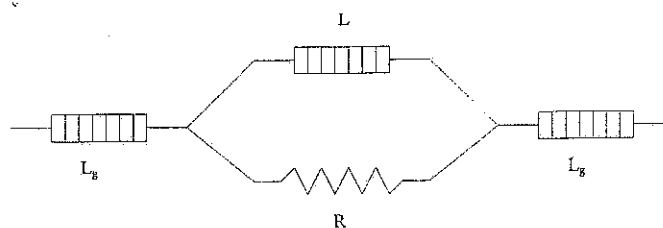


Figure 1-3 : Circuit équivalent Grain-Joint de grain-Grain

• Faible champ RF :

En régime bas courant ($J \ll J_c$): la plupart des électrons sont appariés, la dissipation engendrée par le réseau de joints de grains est donc faible ($R \gg L\omega$). Les grains sont couplés. Dans ce cas, Hylton et al^[6] ainsi que Vendik et al^[7] obtiennent l'expression générale suivante pour la résistance de surface due aux joints de grains:

$$R_{s1} = \frac{\omega\mu_0}{2} \frac{\hbar\omega}{2\Delta} \frac{\hbar/2eaI_c\mu_0}{\sqrt{\lambda_{eff}^2 + \hbar/2eaI_c\mu_0}} F(I) \quad (E 1-1)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} a^2 \text{ et } I_c : \text{ surface et courant critique du joint de grain} \\ F(I) = (1 - I/I_c)^2 \end{array} \right.$$

• Fort champ RF

Si $J \gg J_c$ le modèle n'est plus valable. Les joints de grains se comportent comme un réseau de résistance à l'état normal : les grains sont découplés. Les pertes HF sont très importantes. Bonin et al. proposent la résistance de surface suivante :

$$R_{s2} = \frac{G}{a\lambda_j} \quad (E 1-2)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} G : \text{ résistance spécifique d'un joint de grain } (G_{Nb} = 2 \cdot 10^{-16} \Omega \cdot m^{-1}) \\ \lambda_j : \text{ profondeur de pénétration dans le joint de grain} \end{array} \right.$$

Selon ces auteurs, la transition entre ces deux régimes intervient à partir d'un champ seuil :

$$B_s = \mu_0 J_c \lambda_j$$

Dans le cas du niobium en couche mince, on obtient :

$$R_{s2} = 20 \text{ m}\Omega \text{ et } B_s = 19 \text{ T}$$

A première vue, le découplage ne semble donc pas être un facteur limitant. Cependant, en affinant ce modèle, Bonin et al. attribuent une valeur de résistance spécifique et de courant critique spécifique J_c pour chaque joint de grain en fonction de sa nature (concentration en impuretés, ...) et de sa désorientation. Par ce biais, il montre que R_{s2} peut dépendre fortement du champ RF.

En fait, ce modèle de dissipation est surtout intéressant pour expliquer les limitations des performances HF des supraconducteurs à haute température critique.

Dans le cas du niobium (matériau de J_c élevé), une amélioration du modèle est à concevoir notamment en considérant les joints de grains comme des liens faibles mais toujours supraconducteurs.

Annexe II

Généralités sur les résonateurs

Nous avons présenté la cavité TE_{011} employée au SEA pour les tests HF d'échantillons supraconducteurs (cf. chapitre 3). Nous rappelons ici quelques autres techniques de caractérisation HF généralement utilisées pour qualifier un supraconducteur comme les résonateurs diélectriques et les résonateurs coaxiaux ou microbandes.

1.1. Les résonateurs diélectriques

Dans les années 1980, les premiers résonateurs TM_{010} en saphir recouvert d'un film supraconducteur (Pb, Nb) ont permis d'évaluer l'angle de pertes du diélectrique et de mesurer la résistance de surface résiduelle des films déposés ^[1].

En 1994, la nécessité de mesurer rapidement et économiquement la résistance de surface résiduelle d'échantillons Nb/Cu ou NbTiN/Cu a motivé le développement d'un résonateur diélectrique au SEA ^{[2],[3]}.

Il s'agissait de construire un résonateur simple dans sa conception et son utilisation. Les objectifs étaient d'avoir une faible taille pour faciliter la réalisation d'échantillons et limiter la consommation d'hélium et une fréquence de résonance assez basse pour se rapprocher des applications des supraconducteurs ($f < 3$ GHz).

La structure mis en place est un résonateur diélectrique ouvert de type plan parallèle (cf. Figure 1-1).

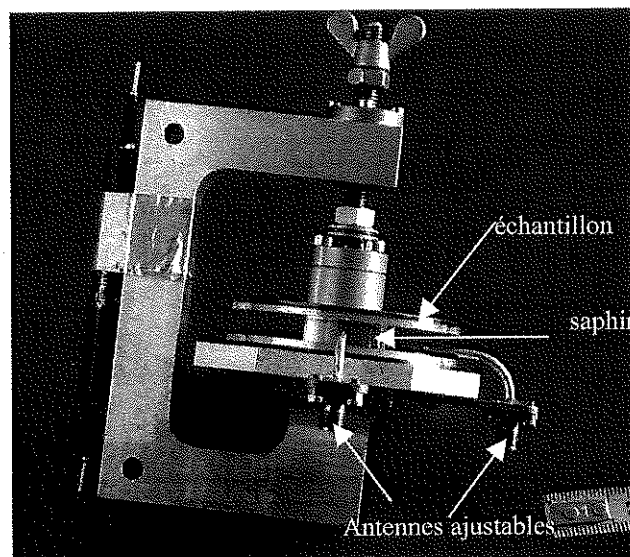


Figure 1-1 : Le résonateur diélectrique

Il est composé des éléments suivants :

→ un corps principal en aluminium

Il comporte une plate-forme supportant deux antennes (boucles de couplage) ajustables pour envoyer la puissance HF et recueillir la puissance transmise par la structure résonnante.

→ les disques à tester ($\phi = 60\text{mm}$, $e = 3\text{mm}$)

→ un diélectrique cylindrique épais ($\phi = 21\text{mm}$, $e = 6\text{mm}$)

Le saphir employé (Al_2O_3) de permittivité d'environ 10 est d'une grande pureté et de grande qualité cristalline. Ses dimensions permettent de produire une basse fréquence de résonance en minimisant les pertes diélectriques. Un système de serrage en laiton sert à plaquer le saphir entre les deux supraconducteurs. L'ensemble est totalement immergé pendant les tests.

La structure du résonateur permet l'excitation de modes TE_{011} ($f = 9,52\text{ GHz}$) et TE_{012} ($f = 12,26\text{ GHz}$) car le champ électrique est nul à l'interface plaque/saphir. Cela évite que les mesures soient perturbées par la présence d'un fort courant latéral. Le résonateur permet d'obtenir la courbe $R_s = f(T)$. Cependant, l'importance des pertes extérieures à l'échantillon (pertes dans le saphir, dans l'hélium...) ne permet pas de déterminer correctement la résistance de surface de films supraconducteurs destinés aux cavités accélératrices.

Désormais, les résonateurs diélectriques sont essentiellement utilisés pour caractériser notamment les couches minces supraconductrices à haute température critique^{[4],[5],[6]}.

C'est le cas par exemple du résonateur diélectrique construit à Wuppertal^[7].

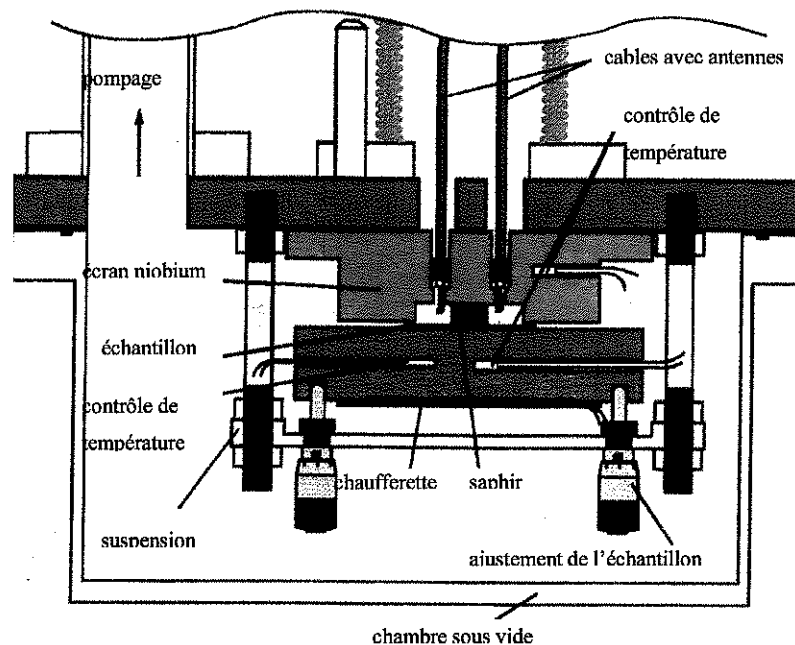


Figure 1-2 : Schéma du résonateur diélectrique de Wuppertal .[8]

Il est principalement constitué des éléments suivants (cf. Figure 1-2) :

- le diélectrique qui consiste en un barreau cylindrique en saphir ($\Phi 7$, $h=2,5\text{mm}$) à faibles pertes ($\tan\delta < 3 \cdot 10^{-8}$ à $T=4,2\text{K}$)
- une cavité « écran » en niobium massif dont la face supérieure est collée au saphir
- l'échantillon, disque de diamètre Φ ($25\text{mm} \leq \Phi \leq 80\text{mm}$) thermiquement isolé de la cavité et fixé sur un support en cuivre OFHC muni d'une régulation thermique^{[8],[9]}
- deux antennes de couplage variable ($Q_{ext}^{inc} = 10^5$ à 10^9 et $Q_{ext}^{trans} = 10^4$ à 10^7)

Cet ensemble est placé dans une enceinte évacuée l'isolant thermiquement du bain, à l'exclusion de la cavité écran fixée sur la bride supérieure de l'enceinte.

Le dispositif permet de caractériser des échantillons à 19 GHz (mode TE_{011}) entre 1,8K et 77K et en régime pulsé ($t=20 \mu\text{s}$, $f=1\text{Hz}$) afin d'éviter un échauffement trop important de l'échantillon. Les résultats obtenus sont les suivants:

- le champ magnétique maximal atteint 320 Oe à $P_{HF}=10\text{W}$ avec un facteur de qualité de 10^6 et une précision de mesure de l'ordre de 20% à fort champ
- la précision sur la mesure de R_s est de 5% à bas champ ($H_s < 32 \text{ Oe}$) contre 10% à fort champ ($H_s < 320 \text{ Oe}$)
- la résolution en terme de R_s est de $20 \mu\Omega$ à 19 GHz et 1,8K.

Il existe également des résonateurs annulaires fendus ou « split ring ». notamment développés par D.A. Bonn et al^[10] (cf. Figure 1-3).

L'élément central sous forme de tube surmonté d'une partie tronconique. Usiné dans la masse (cuivre OFHC ou revêtement de Pb et Sn sur du cuivre), il comporte une fente latérale qui permet l'accord en fréquence dans une large bande (0,3 GHz-5 GHz). L'échantillon test est une pastille fixée sur un barreau cylindrique mobile en saphir ($\phi=6 \text{ mm}$, $h=30 \text{ mm}$) parallèle à la face supérieure du résonateur.

La température du résonateur est maintenue à 1,2K ou 4,2K tandis que celle de l'échantillon (films ou cristaux hauts T_c) est réglable de 4,2K à 120K.

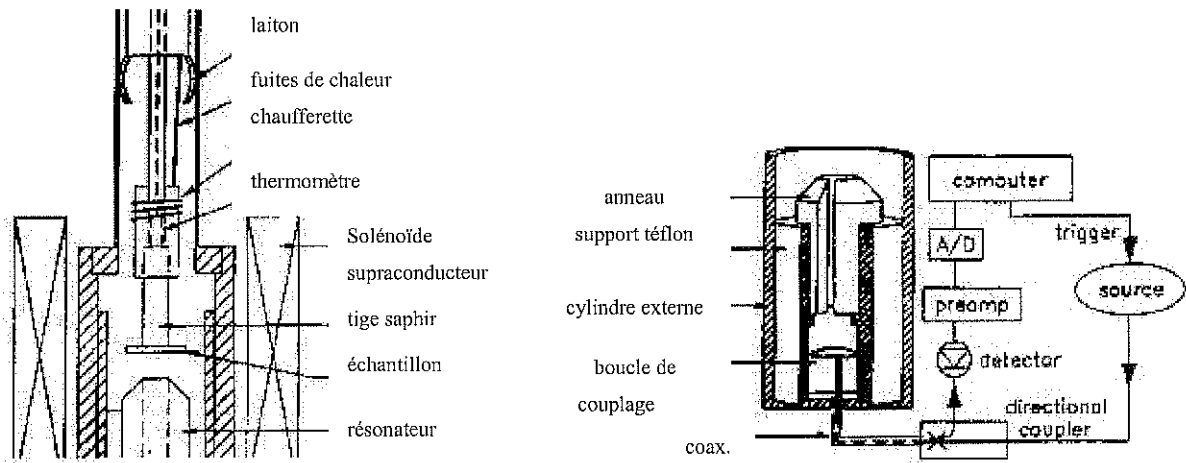


Figure 1-3 : Dispositif expérimental (à gauche) et du circuit de mesures (à droite)

La technique de mesure du facteur de qualité global est basée sur la méthode de perturbation. S'agissant d'une mesure relative, l'obtention de la valeur de R_s de l'échantillon nécessite l'emploi d'un échantillon étalon. Le résonateur supraconducteur présente un facteur de qualité $Q_0=1,2 \cdot 10^6$ à 1,78 GHz et 4,2K soit une résolution de quelque $3 \mu\Omega$.

1.2. Les résonateurs coaxiaux et microbandes

Pour l'étude expérimentale des propriétés HF d'échantillons, on a également recours à des résonateurs demi-longueurs d'onde, ou lignes coaxiales, excitées dans des modes transverses électromagnétiques (TEM). Ces résonateurs possèdent plusieurs atouts:

- les dimensions transverses peuvent être réduites
- on peut obtenir des champs magnétiques de surface très élevés avec de faibles puissances incidentes, ce qui conduit à une très bonne sensibilité
- il n'est pas nécessaire que l'écran ou conducteur externe soit supraconducteur
- l'échantillon, qui constitue l'âme centrale du coaxial, peut être refroidie directement à l'hélium ou à l'azote liquide, ce qui offre une forte puissance de réfrigération autorisant ainsi de fortes dissipations (forts champs) dans l'échantillon

Delayen et al^[11] ont réalisé une cavité TEM $\lambda/4$ opérant à 0,82 GHz. L'échantillon ($\phi=24\text{mm}$) est placé à la jointure du conducteur externe et du couvercle (zone de champ magnétique maximale).

La mesure de sa résistance de surface à 4,2K est réalisée jusqu'à 300Oe par la méthode de

perturbation. Cependant, la position de l'échantillon rompt la symétrie cylindrique si bien que le facteur géométrique de l'échantillon ne peut être calculé correctement par URMEL ou SUPERFISH ; cela nécessite de recourir à une calibration avec un échantillon de référence, introduisant une source d'erreur supplémentaire. D'autre part, des pertes additionnelles sont généralement générées à l'interface substrat film du fait la circulation d'un courant dans l'échantillon.

Des résonateurs microrubans^{[12],[13]} sont également employés pour étudier l'impédance de surface de petits échantillons supraconducteurs métalliques (Nb, Nb₃Sn, (NbTi)N, V₃Si)^[14] et de la famille des YBaCuO^[15]. Il est possible de connaître la variation de R_s et X_s en fonction du champ magnétique (jusqu'à 96 Oe pour les supraconducteurs classiques et 560Oe pour les hauts T_c), en fonction de la température ($4,2K < T < T_c$) ou de la fréquence sur des modes de résonance d'ordres supérieurs ($1 \text{ GHz} < f < 10 \text{ GHz}$).

Le résonateur est formé d'un couple de films identiques séparés par une fine couche de saphir ($h=125 \text{ }\mu\text{m}$) ou téflon ($h=12 \text{ }\mu\text{m}$). Le film de la face supérieure est imprimé par un procédé standard de photolithographie ce qui peut causer une dégradation de l'échantillon. C'est la principale limite de cette technique qui présente certains des avantages des résonateurs coaxiaux (taille réduite, obtention de champ magnétiques élevés).

Annexe III

Principe des Mesures HF avec la cavité TE_{011}

Le banc de mesure associé à la cavité TE_{011} à couvercle démontable permet de déterminer l'évolution de la résistance de surface R_s d'un échantillon supraconducteur en fonction du champ magnétique de surface H_{smax} .

Après une rapide description du banc expérimental, nous allons rappeler le principe des mesures et déterminer les erreurs liées à l'appareillage commises sur les grandeurs mesurées.

1.1. Le banc de mesure

La cavité TE_{011} possède une bande passante étroite de l'ordre du Hz et est très sensible à toutes les vibrations microphoniques et fluctuations de pression du bain d'hélium. La fréquence de l'onde excitatrice est donc asservie à la fréquence de résonance de la cavité (4 GHz sur le mode TE_{011} ou 5,6 GHz sur le mode TE_{012}) par une boucle de verrouillage en phase (cf. Figure 1-1).

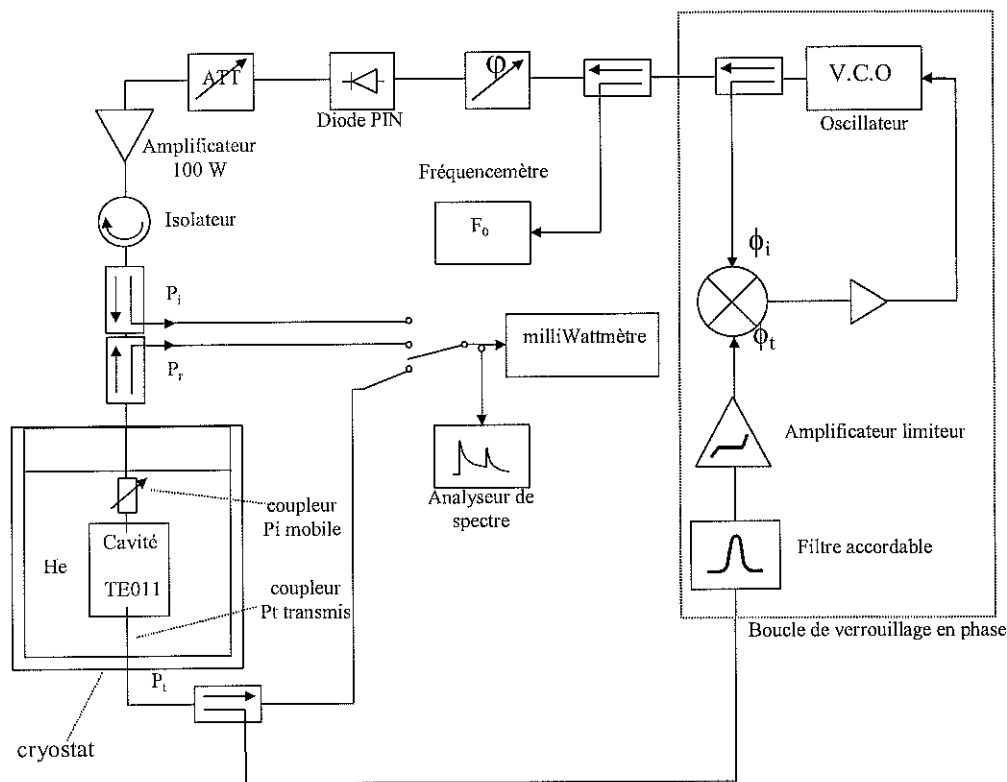


Figure 1-1 : Schéma de principe du banc de mesure

Un mélangeur compare les phases HF à l'entrée et à la sortie de la cavité. On utilise un déphaseur manuel pour un ajustement fin de la fréquence en boucle ouverte en optimisant le signal de puissance transmise. Le signal en sortie du mixer, après amplification, commande un oscillateur VCO qui va délivrer à chaque instant une fréquence calée sur celle de la cavité. Un filtre accordable au milliwattmètre (BOOTON 4300) diminue les fréquences parasites générées par la boucle

En sortie de l'oscillateur, le signal est amplifié par un TPO (HUGHES 8100) délivrant une puissance de 100W. Une diode PIN permet l'application et la coupure de puissance HF incidente sur la cavité; un atténuateur variable (HP11713) module la puissance HF alimentant la cavité. Un isolateur protège l'amplificateur de la puissance réfléchie par la cavité lors des applications et coupures de puissance HF. Ce dernier limite également les perturbations engendrées sur les coupleurs directionnels à l'entrée de la cavité par l'établissement d'ondes stationnaires. Ces coupleurs de mesure de P_i et P_r de couplage 20dB ont été choisis par leur très bonne directivité (37dB).

Le coupleur de puissance incidente est mobile et constitué d'une boucle se déplaçant dans un tube à la coupure (cf. chapitre 3). La plage de variation est telle qu'on peut effectuer les tests HF de différents supraconducteurs avec un couplage critique à 4,2K comme à 1,7K. Le coupleur de puissance transmise est fixe et ajusté de façon à ce que la puissance transmise soit très faible par rapport à la puissance incidente.

1.2. Principe des mesures

Une opération de calibration précède le test HF de l'échantillon supraconducteur. On détermine Q_0 et R_s pour une faible valeur de champ et la constante caractéristique Q_T . Ensuite, on effectue la mesure des points « courants » en faisant varier la puissance HF incidente pour obtenir la courbe $R_s=f(H_{smax})$.

1.2.1. Formulaire

Précisons les notations que nous allons utiliser.

a) à l'entrée de la cavité

P_i : Puissance incidente

P_r : Puissance réfléchie

P_e : Puissance émise côté coupleur incident (accessible à la mesure après coupure de P_i)

Q_i : Facteur de qualité extérieur incident

β_i : Coefficient de couplage incident

b) à la sortie de la cavité

P_T : Puissance transmise

Q_T : Facteur de qualité extérieur transmis

β_T : Coefficient de couplage transmis

c) autres paramètres

W_s : Energie électromagnétique stockée (J)

P_{cav} : Puissance dissipée dans les parois de la cavité (W)

Q_o : Facteur de qualité intrinsèque de la cavité non chargée

ω_o : Pulsation de la résonance

R_s : Résistance de surface (Ω)

G : Facteur géométrique (Ω)

Q_L : Facteur de qualité en charge de la cavité

d) définitions et relations

Les facteurs de qualité sont définis par :

$$Q_o = \omega_o \frac{W_s}{P_{cav}} \quad Q_i = \omega_o \frac{W_s}{P_e} \quad Q_T = \omega_o \frac{W_s}{P_T} \quad E 1-1$$

et

$$\frac{1}{Q_L} = \frac{1}{Q_o} + \frac{1}{Q_i} + \frac{1}{Q_T}$$

De plus : $R_s = \frac{G}{Q_o}$

Le bilan de puissance indique : $P_{cav} = P_i - P_r - P_t$

Les coefficients de couplage sont donnés en fonction des puissances par :

$$\beta_i = \frac{P_T}{P_{cav}} \quad \beta_i = \frac{(\sqrt{P_i} \pm \sqrt{P_r})^2}{P_{cav}}$$

Pour lever l'indétermination sur le signe dans la formule de β_i , il faut savoir s'il y a sous couplage ($\beta_i < 1$) ou sur couplage ($\beta_i > 1$).

Il vient :

$$Q_T = \frac{Q_o}{\beta_T} \quad Q_i = \frac{Q_o}{\beta_i} \quad \text{E 1-2}$$

$$\text{et } Q_o = Q_L(1 + \beta_i + \beta_T) \quad \text{E 1-3}$$

Pour un coupleur de position donnée Q_T est constant quels que soient la température et le facteur de qualité intrinsèque :

$$Q_T P_T = Q_o P_{cav} \quad \text{E 1-4}$$

Le champ magnétique maximum de surface est obtenu par la relation :

$$H_{smax} = \alpha \sqrt{Q_T P_T} \quad \text{E 1-5}$$

α est fonction de la distribution du champ dans la cavité

1.2.2. Calibration du banc de mesure

La calibration est basée sur l'observation en dynamique des puissances transmises et réfléchies après coupure d'impulsions de puissance incidente commandées par la diode PIN. Les formes de P_r , P_e et P_T , visualisées sur l'écran d'un analyseur de spectre, sont fonction du couplage incident (cf. Figure 1-2).

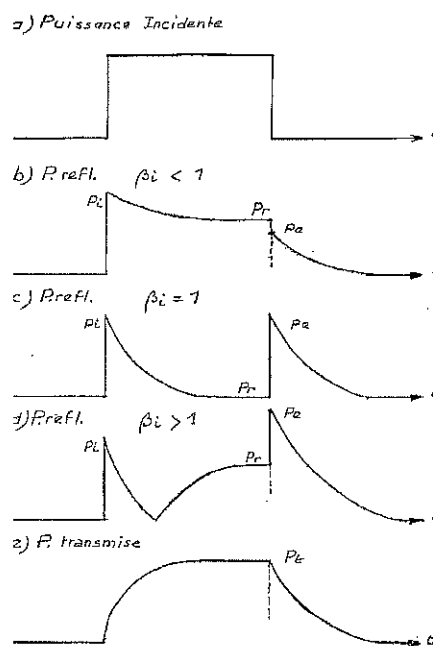


Figure 1-2 : Formes d'impulsions H.F.

Le facteur de qualité Q_o est obtenu par la méthode du décroissement. Pour une mesure correcte, il faut se placer dans une plage de champ où le facteur de qualité est constant ce qui est le cas à bas champ ($H_{smax} < 20$ Oe).

On relève le temps de décroissance τ_v correspondant à une tension seuil émise divisée par 2 (1,8V) en utilisant un dispositif automatique à horloge (cf. Figure 1-3).

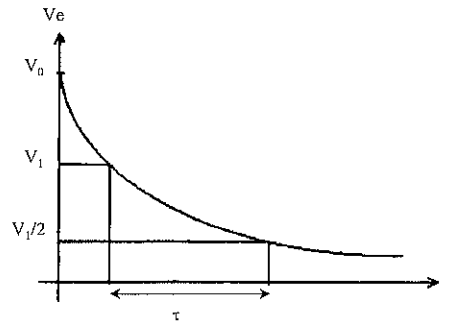


Figure 1-3 : Décharge d'une cavité

Tout comme un circuit oscillant la cavité se décharge suivant la loi :

$$V(t) = V(o) e^{-\omega_o \frac{t}{2Q_L}}$$

Il vient :

$$Q_L = \omega_o \frac{\tau_v}{2 \ln 2} \quad \text{E 1-6}$$

On ajuste le coupleur variable pour annuler la puissance réfléchie ($P_e = P_i$). Comme $P_T \ll P_i$, (réglage type du coupleur fixe de puissance transmise $Q_T = 710^{11}$), on est ainsi pratiquement au couplage critique. Ce réglage permet d'une part d'annuler les erreurs dues au taux d'ondes stationnaires (TOS) dans la ligne entre l'entrée de la cavité et le coupleur de mesure et d'autre part d'obtenir β_i avec une meilleure précision.

Pour le même niveau de puissance incidente, on opère cette fois en continu. De la mesure de P_i et P_T , on déduit β_i et β_T . A partir des relations E1-3 et E1-5, on accède à Q_o donc à R_s puis à la constante de calibration Q_T et finalement à H_{smax} .

• Erreurs de mesure commises lors de la calibration

On rappelle que pour une grandeur $X = a \cdot b$ (variables a et b supposées indépendantes) on définit l'écart quadratique moyen relatif par :

$$\frac{\sigma_X}{X} = \sqrt{\left(\frac{\Delta a}{a}\right)^2 + \left(\frac{\Delta b}{b}\right)^2}$$

Sur le facteur de qualité en charge

Q_L est entaché de la même erreur que le temps de décroissance. Il y a deux sources d'erreur sur τ .

La première est liée à la résolution de l'horloge (0,1 μ s). Suivant les propriétés HF des échantillons testés, τ varie entre 30 et 300ms à 1,7K et entre 1 et 5ms à 4,2K. D'où :

$$\frac{\Delta\tau_1}{\tau}(1,7K) \approx 10^{-7} \text{ et } \frac{\Delta\tau_1}{\tau}(4,2K) \approx 10^{-5}$$

La deuxième est l'erreur sur les seuils de tensions détectés (hystérésis de $\pm 500\mu$ V). ce qui rapporté en temps revient à :

$$\frac{\Delta\tau_2}{\tau} \approx 5,7 \cdot 10^{-3}$$

Il vient :

$$\frac{\sigma_{Q_L}}{Q_L} \approx 5,7 \cdot 10^{-3}$$

Sur les puissances

L'incertitude sur la mesure de puissance vient de celle générée par le milliwattmètre de 2,8% (appareil+sonde) et de l'incertitude sur les valeurs des affaiblissements des câbles de liaison et sur les couplages. On a ajusté les atténuations par une série de mesures de Q_0 à bas champ et à 1,7K sur la cavité avec un disque en niobium massif. à différents couplages incidents. Dans ces conditions, on peut estimer les incertitudes sur l'ensemble couplage et atténuation à 0,1dB ce qui donne une erreur sur chacune des puissances mesurées de 2,3%.

Il vient :

$$\frac{\sigma_P}{P} \approx 3,6 \%$$

Sur les coefficients de couplage

Evaluons l'erreur sur β_i lorsqu'on règle la puissance réfléchie P_r à 0 à l'analyseur de spectre. On estime que l'erreur de réglage (assimilée à ΔP_r) est de l'ordre de 10^{-2} tout comme

$\frac{P_r}{P_i}$. L'incertitude s'écrit :

$$\Delta\beta_i = 2 \sqrt{\Delta P_r \frac{P_r}{P_i}}$$

On obtient :

$$\underline{\sigma_{\beta}(1,7K) \approx 2\%}$$

L'erreur sur le coefficient de couplage transmis est donnée par :

$$\Delta\beta_T = \beta_T \left(\frac{\Delta P_T}{P_T} + \frac{\Delta P_i}{P_i} \right)$$

$\frac{P_T}{P_i}$ vaut typiquement $5 \cdot 10^{-3}$ à 1,7K et 10^{-4} à 4,2K. D'où :

$$\underline{\sigma_{\beta}(1,7K) = 2,6 \cdot 10^{-4}} \quad \text{et} \quad \underline{\sigma_{\beta}(4,2K) = 5,2 \cdot 10^{-6}}$$

Sur le facteur de qualité intrinsèque

L'équation E1-3 donne :

$$\frac{\Delta Q_0}{Q_0} = \frac{\Delta Q_L}{Q_L} + \frac{\Delta\beta_i}{2} + \frac{\Delta\beta_T}{2}$$

d'où :

$$\underline{\frac{\sigma_{Q_0}}{Q_0} \approx 1,2\%}$$

L'erreur commise sur R_s est identique

Sur la constante caractéristique Q_T

L'équation E1-2 donne :

$$\frac{\Delta Q_T}{Q_T} = \frac{\Delta Q_o}{Q_{L,o}} + \frac{\Delta\beta_t}{\beta_t}$$

d'où :

$$\underline{\frac{\sigma_{Q_T}}{Q_T} \approx 5,3\%}$$

Sur le champ magnétique de surface

L'équation E1-5 donne :

$$\frac{\Delta H_{s \max}}{H_{s \max}} = \frac{1}{2} \left(\frac{\Delta Q_T}{Q_T} + \frac{\Delta P_T}{P_T} \right)$$

d'où :

$$\frac{\sigma_{H_{s \max}}}{H_{s \max}} \approx 3,2 \%$$

1.2.3. Mesures des points courants

On peut procéder de deux façons pour déterminer les relations $Q_o=f(H_{s \max})$ et $R_s=f(H_{s \max})$. Une première méthode consiste à se placer au couplage critique à chaque point i . Q_o est alors donné par la relation :

$$Q_o(i) = \beta_T(i) \times Q_T \quad \text{E 1-7}$$

L'écart quadratique moyen sur $Q_o(i)$ vaut :

$$\frac{\sigma_{Q_o(i)}}{Q_o(i)} \approx 7,4 \% \quad \text{E 1-8}$$

Cette méthode est contraignante, elle implique pour chaque point d'ajuster coupleur de puissance et phase de la boucle.

La procédure utilisée consiste à maintenir le coupleur de puissance fixe après la calibration. Dans ces conditions, la puissance réfléchie n'est plus nulle ($\beta_i \neq 1$) et la mesure de P_i et P_r est affectée par l'établissement d'ondes stationnaires si la directivité des coupleurs de mesures est insuffisante. On effectue seulement une correction moyenne de cette directivité. L'erreur sur P_i et P_r qui en découle dépend des niveaux de puissances et des phases respectives de P_i et P_r . Difficile à chiffrer, on l'estime pour simplifier à 2%. D'où :

$$\frac{\sigma_{P(i)}}{P(i)} \approx 4,2 \%$$

P_T reste très faible par rapport à P_i . L'incertitude relative sur $\beta_T(i)$ s'écrit :

$$\frac{\Delta \beta_T}{\beta_T} \approx \frac{\Delta P_T}{P_T} + \frac{(\Delta P_i - \Delta P_r)}{P_i - P_r}$$

$$\frac{\Delta \beta_T}{\beta_T} \approx \frac{\Delta P_T}{P_T} + \frac{\Delta P(i)}{P(i)} \frac{1 + \left(\frac{P_r}{P_i}\right)}{1 - \frac{P_r}{P_i}} \approx \frac{\Delta P_T}{P_T} + A(i) \frac{\Delta P(i)}{P(i)}$$

Le terme $\frac{P_r}{P_i}$ dépend de l'amplitude de P_i et P_r . A $T=1,7K$, il varie entre 1 et 5 % à bas champ et à fort champ de 10 jusqu'à 50% si les propriétés HF de l'échantillon testé sont médiocres. Par conséquent, le terme $A(i)$ vaut de 1 jusqu'à 4. A $T=4,2K$, $A(i)$ reste proche de

1 car l'excursion en champ est réduite. D'où :

$$\underline{5,6 \% \leq \frac{\sigma_{\beta_T(i)}}{\beta_T(i)} \leq 9,2 \%}$$

D'après l'équation E1-6, on en déduit l'écart quadratique moyen sur $Q_o(i)$:

$$\underline{7,7 \% \leq \frac{\sigma_{Q_o(i)}}{Q_o(i)} \leq 10,6 \%}$$

Dans les deux cas, le champ magnétique de surface est déterminé par la relation E1-5 déjà utilisée lors de la calibration. L'écart quadratique moyen sur H_{smax} demeure égal à 3 %.

Annexe IV:

Les transferts thermiques Solide/He

1.1. Les régimes d'échanges Solide -Hélium superfluide

L'étude des caractéristiques du transfert de chaleur de la surface d'un solide vers un bain d'hélium superfluide a fait l'objet de nombreuses publications^{[1],[2],[3]}. Les principales expériences portent sur la résistance thermique qui apparaît à la frontière solide liquide et se traduit par une discontinuité de température de part et d'autre de cet interface (cf. Figure 1-1).

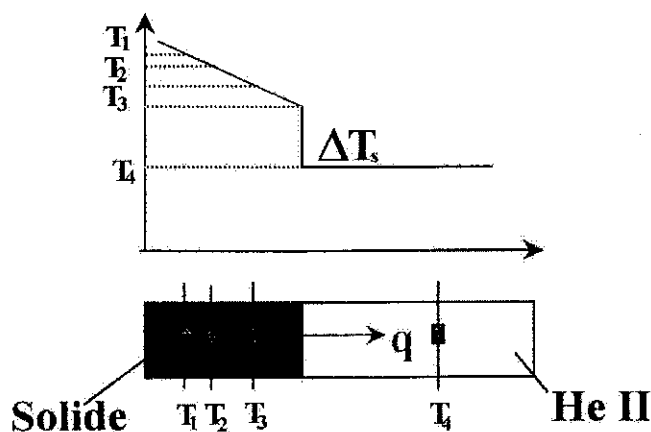


Figure 1-1 : Saut de température ΔT_s à l'interface solide -hélium II lors du passage d'un flux de chaleur

Pour des faibles flux de chaleur surfacique (typiquement jusqu'à $0,1\text{W}/\text{cm}^2$), le saut de température observé $T_4 - T_3$ reste faible par rapport à la température du bain. La relation entre le flux et l'écart de température s'écrit alors :

$$q = h_k (T_4 - T_3)$$

h_k est appelé conductance thermique de Kapitza ($R_k = 1/h_k$ est la résistance de Kapitza).

L'échange thermique à l'interface solide-He superfluide se fait par un couplage entre les excitations élémentaires transportant la chaleur dans les deux milieux. Mais, du fait des différences de propriétés élastiques entre le solide et le fluide, il apparaît une limitation au transfert d'énergie : seulement une fraction des phonons thermiques disponibles est transmise. Ce phénomène est d'autant plus marqué dans le cas de l'hélium superfluide qui possède une forte conductivité thermique

Historiquement, une première théorie dite de radiation par les phonons a été élaborée pour caractériser h_k ^[4]. Khalatnikov^[5] a ensuite développé une théorie expliquant l'existence de h_k par analogie avec la diffusion optique à la frontière de deux milieux. Dans ce modèle de désaccord d'impédance acoustique, h_k est calculée en effectuant un bilan d'énergie et d'impulsions des phonons à l'interface solide He_{II}.

Selon la théorie de Debye, la chaleur spécifique de la plupart des solides varie comme T^3 et par conséquent la densité d'énergie des phonons est proportionnelle à T^4 . A partir de cette relation, Khalatnikov montre que h_k dépend assez fortement de la température du bain ($h_k \propto T^3$) mais dépend également de plusieurs autres paramètres : le rapport de la vitesse longitudinale à la vitesse transversale des phonons dans le solide, la température de Debye du solide, le nombre d'atomes par unité de volume dans le solide

L'interprétation physique de cette théorie est considérée comme correcte. Elle conduit à la bonne dépendance en température, en particulier dans le cas de faibles flux correspondant au « régime Kapitza » ($\Delta T \ll T_{\text{bain}}$) où l'on voit que h_k est indépendant du gap de température. Toutefois, elle ne tient pas compte de certains facteurs incluant :

- les propriétés physico chimiques de la surface du solide et son état de surface (impuretés, présence d'une couche d'adsorption, type de rugosités...)
- la contribution des électrons de conduction du solide métallique au transfert de chaleur

1.2. Les régimes d'échange solide/ hélium normal

A $T > 2,17\text{K}$, l'hélium n'est plus superfluide et se comporte comme un liquide classique. Dans ces conditions, on arrive à prédire les mécanismes régissant les transferts de chaleur entre la surface plane d'un solide chauffé mouillé et l'hélium normal.

Pour caractériser ces échanges thermiques, on représente traditionnellement sur un diagramme en coordonnées logarithmiques l'évolution de la densité de flux q en fonction de l'écart de température ΔT entre le solide et le bain . Il s'agit de la courbe caractéristique de transfert, qui traduit l'existence de différents régimes tels que la convection naturelle (I), l'ébullition nucléée (II) ou l'ébullition en film (III) (cf. Figure 1-2).

Précisons que chacun de ces régimes correspond à un segment de droite sur la courbe d'échange et que la transition d'un régime à l'autre se traduit par un changement brusque de la pente de la courbe de transfert. Nous allons décrire brièvement chacune de ces régions en insistant sur les phénomènes physiques intervenant dans les deux premières, les seules susceptibles d'intervenir dans notre cas, étant donné la configuration expérimentale.

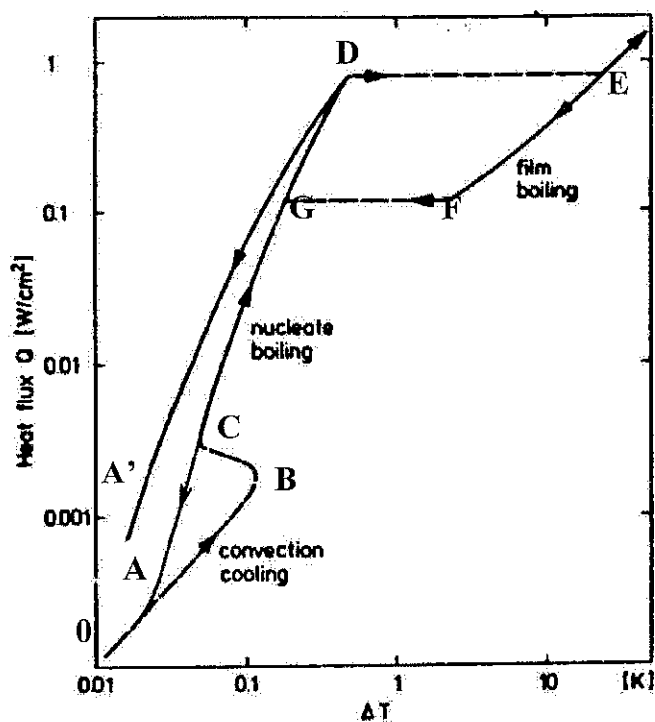


Figure 1-2 : Description générale du transfert de chaleur Solide-Hélium, dans la configuration d'ébullition en réservoir

- Zone I : Convection naturelle

La première portion de la courbe d'échange (segment 0A) est le siège de transferts convectifs au voisinage de la surface libre chauffée. L'hélium est mis en mouvement sous le seul effet des différences de températures qui entraînent des différences de masse volumique dans un champ de forces gravitationnelles (poussée d'Archimède).

En réalité, au sein de cette région dite de convection naturelle, il existe plusieurs régimes d'écoulement. A très faibles flux, la chaleur est transférée par conduction pure mais, du fait de la faible conductivité thermique de l'hélium normal, il intervient rapidement une transition vers le régime de convection en régime laminaire puis en régime turbulent.

Le coefficient d'échange thermique par convection h dépend des conditions expérimentales et tout particulièrement :

- de la configuration d'écoulement (orientation de la surface d'échange)
- de l'état de surface de la paroi solide (rugosité...)
- de l'interaction solide-fluide (mouillabilité, angle de contact...)
- des propriétés thermophysiques de l'hélium qui varient en fonction de la température (masse volumique, viscosité, chaleur spécifique...)
- de l'hydrodynamique de l'écoulement de l'hélium (vitesse, type de régime...)
- de la température dite de film $T_f = (T_{\text{solide}} + T_{\text{He}})/2$

Pour caractériser le transfert thermique en convection naturelle, introduisons les nombres dimensionnels Nu , Gr et Pr .

Le nombre de Nusselt Nu représente le rapport de la quantité de chaleur effectivement échangée par convection naturelle à une quantité de chaleur qui serait échangée uniquement par conduction pour une même différence de température solide-fluide ΔT :

$$Nu = \frac{hS\Delta T}{k_{\text{he}}S \frac{\Delta T}{L_s}} = \frac{hL_s}{k_{\text{he}}} \quad (E 1-1)$$

- L_s : dimension caractéristique de la paroi chaude (m)
- k_{he} : conductivité thermique de l'hélium I (W/m.K)
- h : coefficient d'échange solide fluide (W/m².K)

Le nombre de Grashof Gr désigne le rapport du produit des forces ascensionnelles par les forces d'inerties divisées au carré des forces de viscosité :

$$Gr = \frac{g\rho_{\text{he}}^2 \beta_{\text{he}} \Delta T^* L_s^3}{\mu_{\text{he}}^2} = \frac{g\beta_{\text{he}} \Delta T^* L_{\text{he}}^3}{\nu_{\text{he}}^2} \quad (E 1-2)$$

- g : intensité de la pesanteur (ms⁻²)
- β_{he} : coef. de dilatation thermique volumique de l'hélium I à pression constante (en K⁻¹)
- ρ_{he} : masse volumique de l'hélium I (en kg/m³)
- μ_{he} viscosité dynamique de l'hélium I (kg/m.s) et $\nu = \mu/\rho$

Le nombre de Prandtl Pr correspond au rapport de la diffusivité de matière à la diffusivité thermique et caractérise la distribution de vitesse vis à vis de la distribution de température au sein du fluide :

$$\text{Pr} = \frac{\mu_{he} C_{p_{he}}}{\lambda_{he}} \quad (E 1-3)$$

avec $C_{p_{he}}$: chaleur spécifique de l'hélium à pression constante (J/(Kg.K))

En appliquant la méthode de l'analyse dimensionnelle au régime de convection libre- le mouvement du liquide n'est dû qu'à des effets thermiques- on peut relier toutes les grandeurs physiques du phénomène de transfert :

$$\text{Nu} = C(\text{Gr.Pr})^n \quad (E 1-4)$$

On obtient :

$$h = C' \Delta T^n \quad \Leftrightarrow \quad q = C'' \Delta T^{1+n}$$

En somme, les corrélations régissant le transfert de chaleur en convection naturelle sont des lois puissances. Le coefficient C'' est déterminé empiriquement et varie suivant les configurations expérimentales^[6]. L'exposant n dépend de la géométrie et de l'interaction fluide paroi. Dans le cas de la conduction pure, le flux de chaleur est proportionnel à l'écart de température comme pour un solide plongé dans l'hélium superfluide : $q = C_1 \Delta T$. n devient égal à 5/4 à 4/3 suivant que le régime est laminaire ou turbulent.

- Zone II : Ebullition nucléée (E.N.)

En augmentant le flux de chaleur au delà du point A, la couche d'hélium adjacente à la surface du solide est en état de surchauffe. Ce film se trouve ainsi à une température supérieure T_s à la température du bain T_{bain} . Connaissant la conductivité thermique de l'hélium k_{he} , on peut estimer son épaisseur δ . Pour T proche de 4,2K, δ mesure quelques microns.

Il se forme alors des bulles de vapeur dans les cavités de la surface solide. Ces imperfections locales sont des régions préférentielles de nucléation car elles autorisent la formation des bulles pour minimiser la tension de surface avec un rayon de courbure

initialement négatif.

Dans le cœur du liquide la naissance de bulles est quasiment exclue car énergétiquement défavorable : la nucléation est essentiellement hétérogène. Notons de plus que l'hélium I présente une excellente mouillabilité (angle de contact nul) et ne contient pas d'impuretés (molécules dissoutes de gaz inertes. ..) qui pourraient se piéger dans les micro rugosités du solide.

Le phénomène de surchauffe qui prolonge le mode de convection naturelle (ligne pointillée AB sur la caractéristique d'échange) représente un état métastable et avec un hystérésis résultant de l'activation ou de la désactivation des sites actifs.

Si le flux de chaleur augmente, la température chute brusquement : c'est le déclenchement de l'ébullition nucléée (passage de B à C). A ce moment, la surface devient « conditionnée » car les premiers sites favorables à la nucléation sont stables. Au-delà, l'apport de chaleur contribue uniquement à la croissance des bulles individuelles et indépendantes et à l'augmentation de fréquence de leur détachement du solide, une fois leurs tailles critiques atteintes. En quittant la surface solide, les bulles entraînent une portion de liquide surchauffé et sont remplacées par de l'hélium plus froid. Il en résulte une amélioration du transfert de chaleur à l'interface solide liquide, qui se traduit par une plus forte pente dq/dT (segment CH). Ces phénomènes transitoires créent des turbulences macroscopiques.

Le processus d'ébullition nucléée va dépendre des propriétés thermodynamiques et de transport de l'hélium ainsi que des caractéristiques physico-chimiques du solide. Il dépend aussi de l'historique du système pression-température-flux donc du choix du protocole expérimental (montée croissante du flux, délais entre acquisitions...). De nombreuses études ont été réalisées pour déterminer les effets de certains de ces paramètres sur l'ébullition nucléée. Avec du cuivre de différentes rugosités, Bald et al^[7] ont mis en évidence l'influence de l'état de surface. Si la surface est lisse, il y a moins de sites potentiels de nucléation, la surchauffe à l'ébullition naissante est importante (le point B est déplacé vers la droite) et la pente de la courbe $q=f(\Delta T)$ est plus faible (cf Figure 1-3).

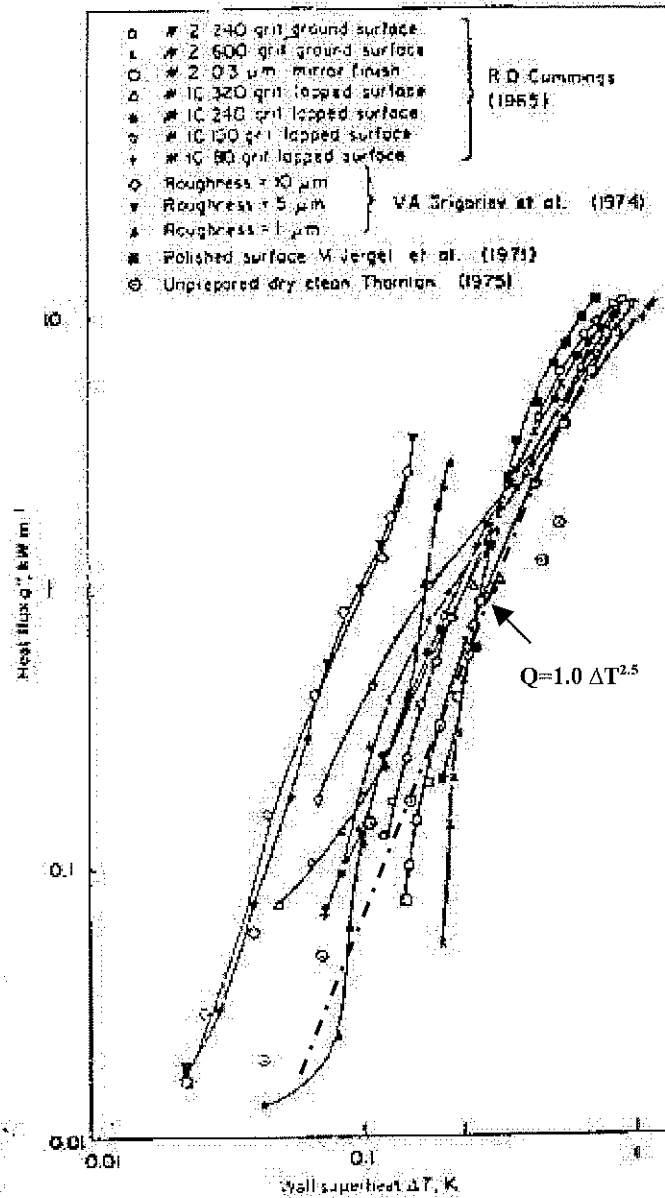


Figure 1-3 : Effet de l'état de surface du cuivre chauffé dans un bain d'hélium normal sur la caractéristique $q=f(\Delta T)$ [8]

L'E.N. est sensible à l'orientation de la surface solide : les coefficients d'échange mesurés sur une surface horizontale dans la configuration flux descendant sont supérieurs à ceux obtenus en flux ascendant : les bulles grossissent davantage avant de quitter la surface.

La meilleure corrélation utilisée pour décrire le régime E.N. est proposée par Kuteladze^[9]. La relation $q=f(\Delta T)$ demeure une loi puissance et s'écrit :

$$q = A\Delta T^{2.5} \quad (E 1-5)$$

A partir du lissage des points expérimentaux, Schmidt obtient la même valeur de l'exposant n. Dans la littérature, l'exposant oscille entre les valeurs 1 et 2 et dépend

notamment de la distribution de taille des cavités.

Le terme A est difficile à évaluer car il dépend fortement des conditions expérimentales et de l'état de surface du solide^[10]. Il est de l'ordre de $1 \text{ W/cm}^2 \text{ K}^{-2.5}$.

- Zone III :Ebullition en film

Si on augmente encore le flux, la vitesse de formation des bulles est si importante que des colonnes continues de vapeur apparaissent. Ces colonnes s'élargissent peu à peu, ce qui restreint l'écoulement du liquide vers la surface solide. Au delà d'un flux de chaleur critique, elles coalescent en un film continu de gaz thermiquement isolant. Il en résulte une nette augmentation de ΔT (passage de D à E).

Si le flux de chaleur est abaissé, ce régime d'ébullition en film persiste jusqu'à un flux minimum où le régime d'ébullition nucléée est rétabli (passage de F à G). Le flux maximal d'ébullition nucléée dépend d'un grand nombre de variables dont la température et la pression du bain, la gravité, des propriétés thermiques et géométriques de la surface.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Chapitre 1

- [1] H. Kamerlingh Onnes, Akad Van Wetenschappen (Amsterdam) Vol 14, n°113, p818, 1911
- [2] Y. Brunet, « Supraconducteurs », Techniques de l'ingénieur, K724, 1993
- [3] A.C. Rose-Innes, E.H Rhoderick, « Introduction to the superconductivity », Pergamon Press, 1978
- [4] J. Bardeen, L.N. Cooper, J.R. Schrieffer, Phys Rev 108(5), p 1175, décembre 1957
- [5] Frölich, Phys. Rev. 79, p845, 1950
- [6] J.P. Burger, « La supraconductivité des métaux alliages et des films minces », Ed. Masson, Paris, 1974
- [7] V.L Ginzburg et L.D. Landau, Soviet phys JTEP 20 (1950), p1064
- [8] D. Saint James, E.D. Thomas et G. Sarma, « Type II Superconductivity », Pergamon, 1969
- [9] B.B. Goodman, Rep. Prog. Phys. 29, p445, 1966
- [10] A.B. Pippard, Proc. Roy. Soc., A216, p547, 1953
- [11] E. A. Lynton, Superconductivity, Ed. John Wiley & Sons, New York, 2nd edition, 1964
- [12] C. Vallet, Thèse de doctorat, Université Lyon I, 1994
- [13] Abrikosov et al., Quantum Field Theoretical Methods In Statical Physics, Ed. Pergamon Press p315, 1965
- [14] Hasan Padamsee, Jens Knobloch, Tom Hays, « RF superconductivity for accelerators », Wiley series in beam physics and accelerator technology, Wiley, New York, 1998
- [15] H. Piel, "Fundamental features of superconducting cavities for high energy accelerators", Seminar for the CERN Accelerator School, Oxford, England, September 1985
- [16] H. Padamsee, "Superconducting RF", Lecture presented at the 1989/1990 US Particle Accelerator School, Brookhaven Nat. Lab., 1989.
- [17] B. Aune et al, Nuclear Physics News 1 (2), p19, 1990
- [18] P. Bosland, M. Ribeaudeau et al, Proc of. Applied Superconductivity Conf., California, USA, Sept. 1998
- [19] C. Benvenuti et al, 8th Workshop on RF Superconductivity, Ed. V. Palmieri & A. Lombardi, Abano, p1028, Octobre 1997
- [20] G. Muller et al, Proc of 5th EPAC, London, p2085, 1996
- [21] A. Dacca et al, 7th Workshop on RF Superconductivity, Ed. B. Bonin, Gif/Yvette, p1103, 1995
- [22] K. Saito et al., Proc of. Applied Superconductivity Conf., California, USA, Sept. 1998

- [23] J. Tan, H. Safa et al, IVth European Part. Acc. Conf. vol 3, p 2071, 1994
- [24] J.Knobloch et al, 8th Workshop on RF Superconductivity , Ed. V.Palmieri & A.Lombardi, Abano , p994, Octobre 1997
- [25] M.Luong, Thèse de doctorat, Université ParisVI, 1996
- [26] DC Mattis, J.Bardeen, Phys Rev. 11(2), p412, juillet 1958
- [27] A.A Abrikosov, L.P. Gor'kov, I.M. Khalatnikov, Soviet phys. JETP 35(8), p182, Janvier 1959
- [28] JP. Turneure, Appl. Phys. Lett. , Vol.16, n°19, p333, 1970
- [29] J.Halbritter, Z Physics 238, p466, 1970
- [30] B. Bonin, R.W. Röth, vol 40, p59, 1992
- [31] M. Boloré, B. Bonin et al, IVth European Part. Acc. Conf. Vol 3, p 2077, 1994
- [32] G.Arnolds-Mayer et W.Weingarten, IEEE Trans. Magn., MAG-23, p1620, 1987
- [33] P.Darriulat. et al, 7th Workshop on RF Superconductivity, Ed. B.Bonin, Gif/Yvette, p467, 1995
- [34] Ph. Bernard, W. Weingarten, P. Bosland et al, Proc of VIth Workshop on RF Superconductivity, CEBAF, Newport News, p739, 1993
- [35] V. Palmieri et al, 7th Workshop on RF Superconductivity, Ed. B.Bonin, Gif/Yvette, p595, 1995
- [36] T.L Hylton et al, Appl. Phys. Lett. 53, p1343, 1988
- [37] O.G.Vendik et al, Sov. Phys. Techn. Phys. 34, p62, 1989
- [38] J. Halbritter, J. Supercond. 5, 331, 1992
- [39] B. Bonin, H. Safa, Supercond. Sci. Technol., Vol4, p257, 1991.
- [40] C.Attanasio et al, IEEE Trans. Mag., Vol 27, n°2, 1991.
- [41] M.A.Hein,, 7th Workshop on RF Superconductivity, Ed. B.Bonin, Gif/Yvette, p267, 1995
- [42] J.Halbritter, J.Appl. Phys. 42, p82, 1971
- [43] F.L. Palmer, IEEE Trans. Mag., Vol 23, n°2, 1987
- [44] B. Visentin et Al, Proc. of the European Particle Accelerator Conference (EPAC), Stockolm, p1885, Juin 1998
- [45] K.Schirm et al, 7th Workshop on RF Superconductivity , Ed. B.Bonin, Gif/Yvette , p461, 1995
- [46] C.Benvenuti et al, 7th Workshop on RF Superconductivity , Ed. B.Bonin, Gif/Yvette, p491, 1995

- [47] M.El Bouanani, Thèse de doctorat, Université Lyon I, 1990
- [48] C.Benvenuti et al, 7th Workshop on RF Superconductivity , Ed. B.Bonin, Gif/Yvette, p473,1995

Chapitre 2

- [1] JL Vossel et W Kern (Editeurs), « Thin Film process », Academic Press, New York, 1978
- [2] J.M Bessot, Techniques de l'ingénieur, M1657, 1991
- [3] Y Pauleau, « Advanced Techniques for Surface Engineering », Ed. GL Glisser et H.A. Jehn, Kluwer Academic publishers, 1992
- [4] B.Chapman, « Glow Discharge Processes, Sputtering and Plasma Etching », Ed. Wiley Interscience, New York,1980
- [5] S.Cantacuzène, Thèse de Doctorat, Université Paris VI, Juin 1995
- [6] J.A.Thornton et al., J. Vac. Sci. Techn., Vol 17 (1), p380, Jan/Feb 1980
- [7] C.Benvenuti et al,7th Workshop on RF Superconductivity, Ed. B.Bonin, Gif/Yvette, p473, 1995
- [8] C.Benvenuti et al,7th Workshop on RF Superconductivity, Ed. B.Bonin, Gif/Yvette, p479, 1995
- [9] C.Benvenuti et al, 8th Workshop on RF Superconductivity, Ed. V.Palmieri & A.Lombardi, Abano, p1057, Octobre 1997
- [10] P. Bosland, Thèse de doctorat, INPG, 1988
- [11] R.Russo et S.Sgobba, 8th Workshop on RF Superconductivity, Ed. V.Palmieri & A.Lombardi, Abano, p890, Octobre 1997
- [12] S. Isagawa, J. Appl Phys., Vol. 51,N°8, p4460, 1980
- [13] E. Kay et G. Heim, J.Appl. Phys. Vol 49, n°9,1978
- [14] A.F. Mayadas et M.Shatzkes, Phys. Rev. B, Vol 1,n°4, 1970
- [15] G. Reiss, J. Vancea et H.Hoffmann, Phys. Rev. Letters, Vol 56, n°19, 1986
- [16] D.Vion, Thèse de doctorat,INSA,Lyon,1993
- [17] J.A. Thornton, Ann. Rev. Mater. Sci., Vol 7, p 239, 1977
- [18] B. A. Movchan et A. V. Demchishin, Phys. Met. Metallogr 28, p83,1969
- [19] K.L. Westra, Thin Solid Films, Vol 257, p15, 1995
- [20] Ph. Bernard, W. Weingarten, P. Bosland et al, Proc. VIth Workshop on RF Superconductivity, CEBAF, USA, 1993.

- [21] I. Inderjeet, Fundamentals of Grain and Interphase boundary Diffusion, Wiley Ed.
- [22] P. Guiradenlq, Techniques de l'Ingénieur, M56, 1995
- [23] G. Martin, B. Perrailon, "La diffusion intergranulaire", Journal de Physique, C4 tome 36, p165, Oct.1975
- [24] J. C. Fisher, J. Appl. Physics (USA) 22, p74, 1951
- [25] R.T.P. Whipple, Philisophical Mag. 45,p1225,1954
- [26] T. Suzuoka, Trans. Japan Inst. Metals2, n°1, p25, 1961
- [27] M.Yoshitake, Surface and Interface analysis, Vol 18, p.509, 1992
- [28] M Okuda, These (en japonais), The graduate University for Advances Studies, Kobe 1995
- [29] Olivier Guise, Paul Trouve, Rapport IPNL, 1996

Chapitre 3

- [1] A.M. Portis et al, Journal of Supercond., Vol 3, n°3, pp297-303, 1990
- [2] V Palmieri et al, Proc.8th Workshop on RF Supracond., Abano Terme,Italy, p941, 1997
- [3] C. Thomas et al, Proc.8th Workshop on RF Supracond., Abano Terme,Italy, p966, 1997
- [4] A.B.Pipard, Proc. R. Soc. (London), A216, 547, 1953
- [5] N.T Viet, Ann. Phys. 2,pp225-240,Ed. Masson,1967
- [6] J.P. Turneure et al, J.Appl. Phys. 39(9), pp4417-4427, Août 1968
- [7] D.L Rubin et al, Phys. Rev. B38,6538,1988
- [8] L.D.Chang et al, Appl. Phys. Lett. 55 (13),pp1357-1359,1989
- [9] J.M. Laurent, H. Padamsee, CERN/EF/RF 83-2, February 1983
- [10] M. Juillard, B. Aune, B. Bonin, L. Wartski, Proc. of the European Particle Accelerator Conference (EPAC), pp 1106, Juin 1990.
- [11] Serban Cantacuzène, Thèse de Doctorat, Université Paris VI, juin 1995
- [12] M. Fouaidy, M. Juillard et al., Rapports Internes IPN0 n°90-09 et 93-03, Orsay
- [13] F. Guémas, Thèse de doctorat, Université Paris XI-Orsay, 1992.
- [14] C.Liang et al., Rev Sci. Instrum. 64, n°7, Juillet 1993
- [15] E. Haebel et al, Proc. of the European Particle Accelerator Conference (EPAC), Stockolm, p1852 et p1855, Juin 1998
- [16] S Chel, DAPNIA/SEA 94-04, Rapport interne, 1994
- [17] M. Fouaidy, Rapport Interne IPN0 n°96-04,Orsay,1996

Chapitre 4

- [1] J.P. Thermeau, Recueil de l'Ecole d'Automne d'Instrumentation Cryogénique, Grenoble, p.7, Octobre 1998
- [2] M. Fouaidy et al., Proc.5th Workshop on RF Supracond., DESY, Hambourg, Août 1991
- [3] G. Defresne et al., Recueil des 2èmes journées de Cryogénie, Grenoble, p.151, Oct 1998
- [4] S. W.Van Sciver, Helium Cryogenics, Plenum Press, 1986
- [5] C. Schmidt, Proc of Workshop Stability of superconductors in Helium I and II, Saclay, p17,Nov 1981

Chapitre 5

- [1] G Arnold Mayer e t Al., CERN rapport interne,1986
- [2] S.Cantacuzène, Thèse de Doctorat, Université Paris VI, juin 1995
- [3] A.Aspart, Communication privé
- [4] W.J. Tegar, "The electrolytic and chemical polishing of metals in research and industry", Pergamon, London, 1959.

- [5] J.D. Adam, J.P. Birabeau et al, "Procédés de préparation de surface de cuivre compatibles avec un dépôt de niobium réalisé par pulvérisation cathodique", Rapport CERN, 1985
- [6] P.Jacquet, « Le polissage électrolytique des surfaces métalliques et ses applications », Ed. Métaux, Saint Germain en Laye,1948
- [7] Techniques de l'ingénieur, « Etats de surface » et « Microgéométries de surface », B 7010 et R 1230, 1990
- [8] Von Ardenne, Zeits.f.Physik 108, p338-352, 1938
- [9] F. Maurice et al., « Microanalyse et microscopie électronique à balayage », les éditions de Physique, Orsay-France, 1978
- [10]D.Vion, Thèse de doctorat,INSA,Lyon,1993
- [11]G.S. Selwyn, « Particle contamination formation and detection in magnetron sputtering processes », International thin films Conference, Sanamanca, Spain, 23-28 Sept 1996
- [12]C. J. Stolz et al, Symposium on Optical Materials for High Power Lasers, Boulder, Colorado, 1995
- [13]F.Guémas, Thèse de doctorat, Université Paris XI-Orsay, 1992.
- [14]F. Verdel, L. de La Brière, A. Chevarier, rapport IPN Lyon, 1999

- [15] M.El Bouanani, Thèse de doctorat, Université Lyon I,1990
- [16] P. Darriulat et al, Physica C en publication
- [17] G. Barbier, Thèse de doctorat, Université Lyon I,1997
- [18] N.I. Balalykin et al., 8th Workshop on RF Superconductivity , Ed. V.Palmieri & A.Lombardi , Abano , Italt, p795, Octobre 1997
- [19] N.I. Balalykin et al., Proc. of the European Particle Accelerator Conference (EPAC), Juin 1998, Stockolm
- [20] C.Durand et al, Proc of Applied Superconductivity Conference, Pittsburgh,Pennsylvania, USA,1996
- [21] S.Calatroni et al., Proc of. Applied Superconductivity Conf.,California,USA, Sept. 1998, (en publication)
- [22] P. Bosland, Communication Privée
- [23] W Weingarten, Part Acc. 57,p97,1997

Chapitre 6

- [1] P. Bosland, M.Ribeau et al., Proc of. Applied Superconductivity Conf.,California,USA, Sept. 1998, (en publication)
- [2] Ph. Bernard, W. Weingarten, P. Bosland et al, Proc of VIth Workshop on RF Superconductivity, CEBAF, Newport News, p739, 1993
- [3] Ph. Bernard, W. Weingarten, P. Bosland et al, Proc of Vth Workshop on RF Superconductivity, DESY, Hambourg, p487, 1991
- [4] B. Visentin et Al, Proc. of the European Particle Accelerator Conference (EPAC), Juin 1998, Stockohlm (en publication)

Annexe I

- [1] C.Attanasio et al, IEEE Trans. Mag., Vol 27, n°2, 1991
- [2] B. Bonin, H. Safa, Supercond. Sci. Technol., Vol4, p257, 1991
- [3] J. Halbritter, J. Supercond. 5, 331, 1992
- [4] D. E. Mc Cumber, Journ. Of Applied Phys.,Vol 39,N°7,1968
- [5] W. C. Stewart,Appl Phys Lett.,Vol 12,N°8, 1968
- [6] T.L Hylton et al, Appl. Phys. Lett. 53,p1343, 1988
- [7] O.G.Vendik et al, Sov. Phys. Techn. Phys. 34, p62, 1989

Annexe II

- [1] V.B. Braginsky, Sov. Tech. Phys. Lett 3, 1,pp23-24, janvier 1977
- [2] Xavier Hanus, Thèse de Doctorat, Université Paris VI, janvier 1994
- [3] D. Moffat et al, Proc.7th Workshop on RF Supracond., Saclay,France,p529, 1995
- [4] N.Klein et al, Journal of Supercond.,Vol 5, n°2, 1992
- [5] Z.Y.Shen et al, IEEE Trans. Microwave Theory and Tech. 40, 12, 1992
- [6] J.Mazierska, Journal of Supercond.,Vol 10, n°2, 1997
- [7] W. Diete et al., App. Supercond. (IOP Publishing Ltd),148,1997
- [8] T .Kaiser, et al, Proc.8th Workshop on RF Supracond., Abano Terme,Italy,p925, 1997
- [9] M.Perpeet et al, Proc.8th Workshop on RF Supracond., Abano Terme,Italy,p934, 1997
- [10]D. A.Bonn et al, Rev. Sci. Inst., pp 1819-1823, July 1991
- [11]J.R. Delayen et al, Rev Sci. Instrum. 61,1990
- [12]F. Guardiol, Traité d'électricité :« Hyperfréquences », Vol XIII, Presses Romandes, 1990
- [13]A.Andreone et al,J. Appl. Phys.82,1736,1997
- [14]A.Andreone et al, Proc.7th Workshop on RF Supracond., Saclay,France,p535, 1995
- [15]A. Cassinese et al., Proc.8th Workshop on RF Supracond., Abano,Italy,p925, 1997

Annexe IV

- [1] K. Mittag, Cryogenics 13, p94, 1973
- [2] K.E. Wilkes, Ph.D. Thesis, Ohio State University, 1978
- [3] A. Boucheffa et al., Proc.7th Workshop on RF Supracond., Saclay,France,p659, 1995
- [4] S. W.Van Sciver, Helium Cryogenics, Plenum Press,p29 ; 1986
- [5] I.M. Khalatnikov, Introduction to the theory of Superfluidity,W.A. Benjamin Inc., 1965
- [6] M. Fouaidy, Thèse de Doctorat, Université Paris VI, Janvier 1989
- [7] Bald et al, Cryogenics 16,p314,1976
- [8] C. Schmidt, Proc of Workshop Stability of superconductors in Helium I and II, Saclay, p17,Nov 1981
- [9] S.S.Kuteladze, Cryogenics 19,p285,1979
- [10]RJ.Donnely, Advances in heat transfer,17,p66,1985

