

Thèse

présentée devant

**L'Université Blaise Pascal
Clermont II**

pour l'obtention

du **Diplôme de Doctorat**
(arrêté du 30.03.92)

par

José Miguel JIMENEZ

***ETUDE DE L'EMISSION ELECTRONIQUE PAR EFFET
DE CHAMP EN COURANT CONTINU SUR DES
CATHODES ETENDUES***

Soutenue le 10 mai 1994, devant la Commission d'Examen

*M. Querrou (Président)
N. Hilleret (Rapporteur)
G. Petite (Rapporteur)
B. Bonin
R. Cadoret
G. Jouve
P. Brunet (Invité)*

REMERCIEMENTS

Lorsqu'il y a trois ans, je décidais de m'investir dans un travail de recherche, je ne m'imaginai pas à quel point cet objectif pouvait être truffé d'obstacles, de remises en cause permanentes et surtout qu'il m'apprendrait tant de choses... Parmi les acquis de cette thèse, une sensibilisation à l'humilité aussi vais-je m'empresse de remercier, sans aucun ordre ni classement de ma part juste au fil de ma plume, les personnes sans qui ce travail aurait eu du mal à aboutir.

Je tiens à remercier tout d'abord Bernard BONIN qui m'a apporté une aide précieuse tout au long de cette thèse et Michel QUERROU pour l'encadrement scientifique et administratif qu'il m'a apporté.

Collaborer avec Gérard JOUVE a été un réel plaisir tant son dévouement scientifique et technique étaient sans fin et toujours avec une humeur remarquable. Je lui dis tout simplement : merci.

Comment pourrai-je oublier Richard NOER qui a consacré une année entière dont nombre de samedis à me conseiller et à me soutenir dans mes recherches. Je lui exprime ici toute ma gratitude.

Je profite également de l'occasion pour renouveler mes remerciements à la Section des Enseignements de Physique Nucléaire et d'Etude des Matériaux (SEPEM) de l'Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires (INSTN) de Saclay et en particulier à Jean JODET pour la mise à disposition du microscope électronique à balayage, pièce maîtresse de notre dispositif expérimental.

Avoir pour rapporteurs Noel HILLERET et Guillaume PETITE est pour moi un honneur. Je tiens à les remercier pour le temps qu'ils ont consacré à cet ouvrage ainsi que Robert CADORET et Paul BRUNET qui me font l'honneur de participer au jury.

Enfin, je ne saurais oublier Nathalie, qui malgré nombre de soirées et week-end gâchés, m'a toujours soutenu et encouragé dans mon travail.

A tous, encore merci.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION.....	2
CHAPITRE I.....	6
RAPPELS BIBLIOGRAPHIQUES SUR L'EMISSION ELECTRONIQUE DE CHAMP	
I.1. EMISSION D'UNE ELECTRODE METALLIQUE IDEALE.....	8
I.1.1. Historique	8
I.1.2. Modèle théorique de Fowler et Nordheim.....	9
I.1.3. Ordres de grandeur	11
I.1.4. Dépendance en température.....	11
I.2. EMISSION DES POINTES	12
I.2.1. Limitations du courant par la charge d'espace	12
I.2.2. Influence de la structure de bande	12
I.3. EMISSION D'UNE ELECTRODE ETENDUE : RESULTATS EXPERIMENTAUX	13
I.3.1. Modèle de Fowler-Nordheim "modifié"	13
I.3.2. Effet de la température	13
I.3.3. Effet de la distance inter-électrodes	14
I.3.4. Zones émissives	14
I.3.5. Effet des gaz adsorbés	15
I.4. MODELES THEORIQUES.....	16
I.4.1. Modèle géométrique	16
I.4.1.1. <i>Approche théorique.....</i>	<i>16</i>
I.4.1.2. <i>Constatations expérimentales.....</i>	<i>17</i>
I.4.2. Effet tunnel résonnant.....	18
I.4.3. Autres modèles théoriques.....	18
I.4.3.1. <i>Influence d'une couche superficielle diélectrique</i>	<i>19</i>
I.4.3.2. <i>Modèle des filaments électroformés</i>	<i>20</i>
I.4.3.3. <i>Modèle des bandes - Emission thermoionique d'électrons chauds</i>	<i>21</i>
I.4.3.4. <i>Modèle associant courbure de bande et switching.....</i>	<i>23</i>
I.4.3.5. <i>Modèle d'antenne.....</i>	<i>24</i>

CHAPITRE II 26

DISPOSITIF ET PROCEDURES EXPERIMENTALES

II.1. DISPOSITIF EXPERIMENTAL.....	29
II.1.1. Microscope électronique à balayage (MEB)	29
II.1.1.1. <i>Principe de l'appareil.....</i>	29
II.1.1.2. <i>Modes d'imagerie du MEB.....</i>	32
A - Imagerie en électrons secondaires.....	32
Origine des contrastes	32
Contrastes dus à des phénomènes de charge	34
Contraste de potentiel	35
B - Imagerie en électrons retrodiffusés.....	36
II.1.1.3. <i>Description du MEB utilisé.....</i>	36
II.1.2. Microanalyse.....	38
II.1.3. Système porte-pointes et haute tension	39
II.2 PREPARATION DES ECHANTILLONS.....	40
II.2.1. Choix des échantillons étudiés	40
II.2.2. Polissage des échantillons.....	41
II.2.2.1. <i>Polissage mécanique.....</i>	41
II.2.2.2. <i>Polissage chimique</i>	42
II.2.2.3. <i>Polissage électrolytique</i>	43
II.2.3. Oxydation anodique	44
II.2.3.1. <i>Mode opératoire</i>	44
II.2.3.2. <i>Electrolytes d'oxydation.....</i>	45
II.2.4. Rinçage des échantillons.....	45
II.3. PREPARATION DES POINTES	45
II.3.1. Pointes en tungstène.....	46
II.3.2. Pointes en niobium.....	47
II.4. PROTOCOLE D'IDENTIFICATION ET D'ETUDE D'UN SITE EMETTEUR.....	47
II.4.1. Localisation d'un site émetteur	47
II.4.2. Etude de la morphologie et de la composition chimique élémentaire d'un site émetteur.....	49
II.4.3. Détermination du champ seuil d'émission	49
II.4.4. Caractéristiques courant-tension	50
II.5. VERIFICATION EXPERIMENTALE DU DISPOSITIF	51
II.5.1. Etalonnage de la source de haute tension.....	51
II.5.2. Fiabilité des résistances de protection	52
II.5.3. Fiabilité du picoampèremètre.....	52
II.5.4. Reproductibilité des champs seuils d'émission	52
II.5.5. Conséquences liées à l'absence d'une enceinte ultravide	54

CHAPITRE III 56

RESULTATS EXPERIMENTAUX

III.1. LES SITES EMETTEURS NATURELS58

III.1.1. Définition 58

III.1.2. Résultats 58

III.1.2.1. *Balayages aveugles*..... 58

III.1.2.2. *Balayages localisés destinés à étudier l'émission des singularités d'une surface*..... 60

III.1.3. Discussion 64

III.2. CONTAMINATION SELECTIVE EN PARTICULES66

III.2.1. Nature des particules de contamination..... 66

III.2.1.1. *Les particules isolantes* 67

III.2.1.2. *Les particules conductrices recouvertes d'une couche d'oxyde peu conductrice* 67

III.2.1.3. *Les particules conductrices recouvertes d'une couche d'oxyde ayant de bonnes propriétés conductrices* 68

III.2.1.4. *Les particules conductrices exemptes de couche d'oxyde*..... 68

III.2.2. Protocole de contamination et d'étude des particules 69

III.2.2.1. *Nature des substrats*..... 69

III.2.2.2. *Protocole de contamination* 69

III.2.3. Résultats 70

III.2.3.1. *Particules posées sur un échantillon de niobium* 70

III.2.3.1.1. Emission des particules de formes quelconques70

III.2.3.1.2. Influence de la forme et de la taille des particules.....75

III.2.3.2. *Particules posées sur un échantillon d'or : influence d'une couche naturelle d'oxyde sur l'émission électronique*..... 80

III.2.3.3. *Influence d'une couche épaisse d'oxyde sur l'émission électronique* 80

III.2.4. Caractéristiques courant-tension relevées sur des particules... 88

III.2.5. Effets thermiques sur les particules 88

III.2.6. Discussion 89

III.3. DEFAUTS GEOMETRIQUES.....92

III.3.1. Etude des champs seuils d'émission des défauts dus à des contacts sur un échantillon..... 92

III.3.1.1. *Protocole de fabrication des défauts géométriques*..... 92

III.3.1.2. *Effet des contacts: tungstène sur niobium et tungstène sur or* 94

III.3.1.3. *Effet des contacts: niobium sur niobium*..... 96

III.3.1.4. Effet des contacts:matière plastique sur niobium.....	97
III.3.1.5. Effet des contacts : diamant sur niobium et diamant sur or	97
III.3.1.6. Emission des rayures.....	99
III.3.1.7. Discussion.....	100
III.3.2. Influence de l'état de surface sur l'émission électronique de champ	102
III.3.2.1. Influence de la contamination liée au système de pompage sur les champs seuils d'émission.....	102
III.3.2.2. Influence de la couche naturelle d'oxyde de niobium.....	103
III.3.2.3. Influence d'une couche anodique d'oxyde de niobium.....	105
III.3.2.4. Caractéristiques courant-tension.....	106
III.3.3. Défauts géométriques dus à une attaque chimique	108
III.3.4. Effets thermiques sur les défauts géométriques	109
III.3.5. Discussion	115

III.4. PHENOMENES PHYSIQUES ASSOCIES A L'EMISSION ELECTRONIQUE DE CHAMP	118
III.4.1. Cratères.....	118
III.4.1.1. Origine des cratères.....	119
III.4.1.2. Morphologie des cratères.....	120
III.4.1.3. Influence de la nature de l'échantillon	120
III.4.1.4. Influence d'une couche épaisse d'oxyde.....	121
III.4.1.5. Influence de la nature de la contre électrode.....	121
III.4.1.6. Influence du polissage.....	123
III.4.1.7. Emission des cratères.....	123
III.4.2. Starbursts.....	128
III.4.2.1. Position des starbursts dans les micro-claquages.....	129
III.4.2.2. Morphologie des starbursts.....	129
III.4.2.2.1. En imagerie d'électrons secondaires	130
III.4.2.2.2. En imagerie d'électrons retrodiffusés	130
III.4.2.3. Influence de la mise à l'air	131
III.4.2.4. Etat de la surface.....	132
III.4.2.5. Influence de la nature de l'échantillon	132
III.4.2.6. Influence d'une couche épaisse d'oxyde.....	132
III.4.2.7. Statistiques.....	132
III.4.3. Discussion	134
III.4.3.1. Cratères.....	134
III.4.3.2. Starbursts.....	134

CHAPITRE IV	138
DISCUSSION DES MODELES THEORIQUES	
IV.1. MODELES SUPPOSANTS DES EFFETS DE SURFACE.....	140
IV.2. MODELE GEOMETRIQUE SIMPLE.....	141
IV.3. MODELE DES PROTUBERANCES SUPERPOSEES	142
IV.4. APPLICATIONS AUX CAVITES ACCELERATRICES	145
CONCLUSION.....	148
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	150
LISTE DES FIGURES.....	156
LISTE DES TABLEAUX.....	164



INTRODUCTION

INTRODUCTION

Bien que découvert expérimentalement en 1897 par R.H. WOOD, ce n'est qu'en 1928 que R.H. FOWLER et L. NORDHEIM, en s'appuyant sur le formalisme de la mécanique quantique et en particulier de l'effet tunnel, ont proposé un modèle théorique décrivant l'émission électronique d'une surface soumise à un champ électrique appliqué très intense. Cette théorie, qui correspond assez bien aux résultats expérimentaux dans le cas d'une pointe émissive en regard d'un plan, a été mise en défaut dans le cas des électrodes étendues (ou larges), c'est à dire, des électrodes dont les tailles sont supérieures à la distance inter-électrodes. En effet, alors que la théorie de Fowler-Nordheim prévoit des champs électriques produisant une émission électronique détectable expérimentalement supérieurs à quelques gigavolts par mètre, des champs 100 à 1000 fois plus faibles sont observés expérimentalement sur des électrodes larges.

L'intérêt suscité par ce phénomène dépasse le cadre de la recherche fondamentale en raison des applications ou des conséquences industrielles dont il est responsable. En effet, l'émission électronique de champ présente un intérêt pratique dans le cas des canons à électrons ou des photo-injecteurs des accélérateurs. Mais ce phénomène a surtout des conséquences néfastes car il limite les performances de tous les appareils ou dispositifs utilisant le vide comme diélectrique. En effet, l'émission électronique réduit fortement la tenue en tension des surfaces qui en sont le siège.

Dans le cas particulier des cavités hautes fréquences supraconductrices en niobium, développées dans le Service d'Etude des Accélérateurs (CEA-CE Saclay, DSM/DAPNIA/SEA), les conséquences sont multiples : dissipation de la puissance haute fréquence (H.F.), perturbation du faisceau électronique, échauffement local de la surface dans les régions d'impact des électrons,... L'ampleur des conséquences et des difficultés inhérentes à leur résolution, explique pourquoi tous les Laboratoires de développement de cavités accélératrices se sont à un moment ou à un autre, intéressés à ce phénomène.

Beaucoup de résultats à caractère statistique sur l'émission électronique dans les cavités ont été obtenus mais les méthodes de diagnostic des cavités (variation du coefficient de surtension Q , courant d'antenne, cartographie en rayons X ou en température,...) ne permettent pas d'identifier et d'étudier les zones responsables de l'émission. Pour s'affranchir de cet inconvénient majeur, les études sont réalisées depuis plusieurs années en champ continu. Les avantages sont multiples : faible coût d'utilisation, temps de rotation des échantillons plus faible, localisation précise des sites émetteurs et étude de leurs caractéristiques (forme géométrique, composition chimique,...), géométrie des échantillons utilisés,... ; En outre, aucune étude n'ayant à ce jour montré une différence entre les mécanismes responsables de l'émission électronique de champ en champ H.F. et en champ continu, les résultats obtenus en champ continu peuvent être raisonnablement étendus en régime haute fréquence. Pour toutes ces raisons, nous avons décidé d'étudier ce phénomène en champ continu (ou courant continu).

Nous aborderons dans le premier chapitre des rappels sur le modèle de Fowler-Nordheim qui décrit théoriquement l'émission électronique d'une surface métallique idéale soumise à un champ électrique intense, puis nous rappellerons les principaux résultats obtenus à ce jour et finalement, nous présenterons quelques modèles théoriques qui ont été proposés pour décrire l'émission électronique de champ dans le cas des électrodes larges.

Le chapitre II est consacré à la description du dispositif expérimental qui est composé d'un microscope électronique à balayage (MEB) modifié afin de permettre des études in situ de l'émission électronique de champ et au protocole utilisé au cours de nos expériences. Une attention particulière est accordée aux protocoles de préparation des pointes et des échantillons mais surtout aux protocoles de mesure des champs seuils d'émission et des caractéristiques courant-tension.

Les aspects théoriques et expérimentaux étant à ce stade correctement assimilés, le chapitre III, subdivisé en quatre parties, présentera les résultats expérimentaux. Nous aborderons donc successivement l'étude de l'émission électronique de champ dans le cas d'échantillons : n'ayant subi qu'une contamination naturelle, ayant subi une contamination sélective par des particules, ayant subi des contacts mécaniques qui provoquent des défauts géométriques et des échantillons ayant été le siège de microclaquages, phénomène associé à l'émission électronique de champ. Les différents résultats seront discutés à la fin de chacune des parties.

Enfin, le chapitre IV, est consacré à la discussion des modèles théoriques présentés au chapitre I au regard de nos résultats expérimentaux. Un modèle théorique qui rend compte de tous nos résultats expérimentaux est également proposé et discuté. Nous terminerons enfin par une discussion des conséquences pratiques de nos travaux sur les cavités accélératrices, discussion qui pourra être étendue à tous les dispositifs utilisant le vide comme diélectrique.

CHAPITRE I

RAPPELS BIBLIOGRAPHIQUES SUR L'EMISSION ELECTRONIQUE DE CHAMP

CHAPITRE I

RAPPELS BIBLIOGRAPHIQUES SUR L'EMISSION ELECTRONIQUE DE CHAMP

I.1. EMISSION D'UNE ELECTRODE METALLIQUE IDEALE

I.1.1. HISTORIQUE

Les premiers travaux sur l'émission électronique par effet de champ sont dus à Wood [I.1] qui dès 1897 présentait une description très détaillée de ce phénomène. La première explication qui fut proposée pour décrire l'émission électronique dans le vide faisait appel à l'effet Schottky [I.2]. Toutefois, cette explication ne rend pas entièrement compte des observations expérimentales. En effet, l'abaissement de la barrière de potentiel à la surface du métal par le mécanisme de Schottky nécessiterait dans le cas du tungstène un champ supérieur à 10^{10} V/m (donc un ordre de grandeur plus élevé que les champs provoquant l'émission) afin d'obtenir des niveaux de courant compatibles avec ceux observés expérimentalement. De plus, pour des températures inférieures à 1500 K, l'émission électronique ne varie que faiblement avec la température [I.3] alors que le mécanisme de Schottky prédit une dépendance importante du courant d'émission en fonction de la température.

L'approche précédente ne décrivant pas correctement l'émission électronique par effet de champ d'une surface idéale, une nouvelle théorie a été proposée par

Fowler et Nordheim [I.4]. Deux articles de synthèse [I.5] et [I.6] décrivent explicitement cette théorie ainsi que ses confirmations expérimentales. Nous ne présenterons que les principes généraux ainsi que les fondements théoriques qui sont abordés dans la suite de notre étude.

I.1.2. MODELE THEORIQUE DE FOWLER ET NORDHEIM

En 1928, un modèle théorique décrivant correctement l'émission électronique par effet de champ est proposé par Fowler et Nordheim. Ce modèle a été obtenu en traitant l'émission électronique par effet de champ comme une conséquence de la mécanique quantique et en prenant comme hypothèse la structure de bande d'énergie d'un métal à électrons libres, illustrée sur la Figure I.1. La barrière de potentiel à la surface du métal, caractérisée par son travail de sortie ϕ , est courbée en présence d'un champ électrique E . On a alors une forme triangulaire de la barrière de potentiel, la forme réelle de cette barrière devant tenir compte de la force image, c'est à dire la force que voit un électron lorsqu'il s'approche ou lorsqu'il s'éloigne de la surface du métal. L'introduction de la force image dans le développement théorique sera discuté plus loin.

Un électron du métal de quantité de mouvement p_x (dans la direction du champ et perpendiculaire à la surface métallique) a une probabilité P de franchir par effet tunnel la barrière qui l'enferme dans le métal et de passer dans le vide.

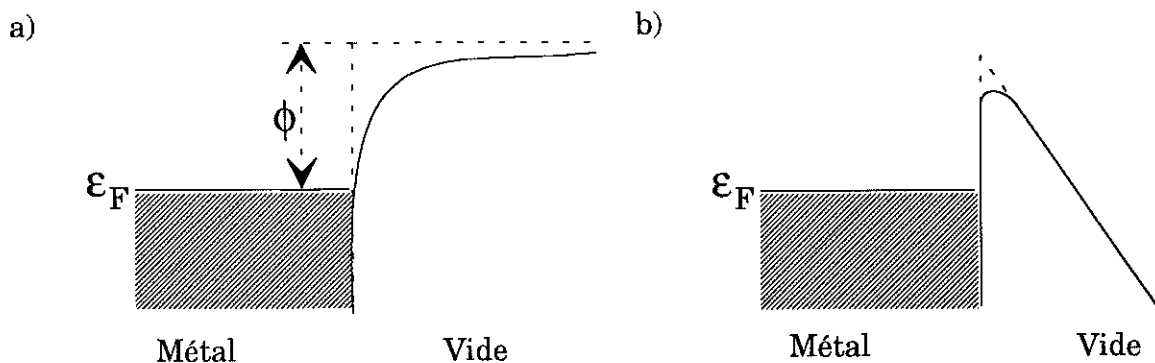


Figure I.1. Interface métal-vide supposé par Fowler et Nordheim. Le niveau de Fermi du métal est noté ϵ_F et le travail de sortie métal-vide est noté ϕ . (a) en l'absence de champ ($E=0$) et (b) en présence d'un champ appliqué ($E>0$). Les traits pointillés montrent la barrière en l'absence de la force image.

Les fonctions intervenant dans l'expression de la densité de courant électronique sont la probabilité $P(k)$ et le flux d'électrons incidents $N(k)$ où k est le vecteur de Bloch de l'électron provenant du métal. Dans le modèle de l'électron libre, les deux fonctions $P(k)$ et $N(k)$ étant à la fois indépendantes de p_y et de p_z , on introduit alors la quantité W_x qui est une quantité analogue à l'énergie des électrons situés dans la bande de conduction lorsqu'on se place dans une situation unidimensionnelle. La quantité W_x aura pour expression :

$$W_x = \frac{P_x^2}{2m} + V(x) \quad (I.1)$$

Le flux d'électrons incidents sur la barrière de potentiel dont les composantes d'énergie sont comprises entre W_x et W_x+dW_x est donné par l'expression $N(W_x)dW_x$. La probabilité $P(W_x)$ qu'à un électron d'énergie W_x de franchir la barrière tunnel, le nombre d'électrons d'énergie comprise entre W_x et W_x+dW_x qui franchiront la barrière tunnel est donné par : $N(W_x)P(W_x)dW_x$. Finalement, le nombre total d'électrons qui franchiront la barrière tunnel sera obtenu par intégration de l'expression précédente sur toutes les énergies. La densité du courant d'émission électronique par effet de champ à $T=0$ K (exprimée en $A.m^{-2}$) sera donnée par :

$$J_{OK} = e \int_0^{\infty} P(W_x)N(W_x)dW_x \quad (I.2)$$

où e est la charge électronique.

L'expression analytique de la densité de courant J , dont on trouvera la résolution détaillée dans la littérature [I.4], est donnée à $T=0$ K par :

$$J_{OK} = \frac{A.E^2}{\phi} \exp\left(-B \frac{\phi^{\frac{3}{2}}}{E}\right) \quad (I.3)$$

avec J en $A.m^{-2}$, E en $V.m^{-1}$ et ϕ en eV. Avec ces unités, les constantes A et B ont pour valeurs respectives : $A=1,54.10^{-6}$ et $B=6,83.10^9$.

Nordheim [I.7] a ensuite repris cette expression de façon à introduire l'effet de la force image. L'expression finale de la densité de courant devient :

$$J_{OK} = \frac{A.E^2}{\phi.t^2(y)} \exp\left(-B \frac{\phi^{\frac{3}{2}}}{E} v(y)\right) \quad (I.4)$$

La force image a pour effet de modifier la forme triangulaire de la barrière de potentiel. Cette modification se traduit dans l'expression de la densité de courant par l'introduction de deux fonctions $t(y)$ et $v(y)$ dont les variations sont faibles. Ces deux fonctions, dont les valeurs ont été calculées par Good et al [I.5] sont communément appelées les fonctions de Nordheim. Le paramètre y est égal à $\Delta\phi/\phi$ ou $\Delta\phi$ est l'abaissement de la barrière Schottky. On a alors :

$$y = 3,79.10^{-5} \frac{E^2}{\phi} \quad (I.5)$$

Les fonctions de Nordheim peuvent être approchées [I.8] dans la gamme de champ, $3.10^9 \leq E \leq 10^{10} V.m^{-1}$ par : $t^2(y)=1,1$ et $v(y)=0,956-1,062.y^2$.

L'équation (I.4) devient alors :

$$J_{OK} = aE^2 \exp\left(-\frac{b}{E}\right) \quad (I.6)$$

$$\text{avec } a = \frac{A}{1,1 \cdot \phi} \exp\left(\frac{B \cdot 1,53 \cdot 10^{-9}}{\phi^{\frac{1}{2}}}\right)$$

$$\text{et } b = 0,95 \cdot B \cdot \phi^{\frac{3}{2}}$$

Lorsqu'on néglige les corrections dues à la force image, on retrouve l'expression (I.3) donnée par Fowler et Nordheim.

I.1.3. ORDRES DE GRANDEUR

Pour un métal dont le travail de sortie ϕ est de 4,5 eV, des champs électriques appliqués de l'ordre de 10^9 V.m^{-1} sont nécessaires pour obtenir un courant d'émission détectable. Cependant, il est important de souligner que l'exponentielle qui intervient dans la forme analytique de l'expression de la densité de courant peut être à l'origine de variations très brutales. Ainsi, pour une augmentation du champ électrique E d'un facteur 2, passant de 10^9 à $2 \cdot 10^9 \text{ V.m}^{-1}$ et en considérant la valeur du travail de sortie ϕ égale à 4,5 eV, on a une augmentation de la densité de courant de 15 ordres de grandeur passant de 10^{-17} à 10^{-2} A.m^{-2} ! De même, pour un champ appliqué E de 10^9 V.m^{-1} , une variation de la valeur du travail de sortie ϕ passant de 4,5 eV à 4 eV entraîne une augmentation de la densité de courant de 5 ordres de grandeur (de 10^{-17} à $10^{-12} \text{ A.m}^{-2}$).

Il est important d'avoir en tête ces ordres de grandeur au moment de l'exploitation analytique des résultats expérimentaux car les ignorer, pourrait conduire à des interprétations erronés.

I.1.4. DEPENDANCE EN TEMPERATURE

Pour des températures $T > 300 \text{ K}$, de plus en plus d'électrons occupent des niveaux d'énergie supérieurs au niveau de Fermi. De fait, ces électrons verront une barrière tunnel plus faible et par conséquent, la probabilité de franchissement par effet tunnel devient plus grande. En pratique, ceci se traduit par une dépendance modérée du courant d'émission en fonction de la température, dépendance qui n'est pas prise en compte dans la formulation de Fowler et Nordheim. Cet effet sur l'émission électronique a été quantifiée par de nombreux auteurs [I.6][I.8][I.9] et pour des températures $T \leq 1500 \text{ K}$, l'émission électronique thermo-assistée peut être décrite par l'expression analytique :

$$J_T = J_{0K} \frac{\pi p}{\sin \pi p} \quad (I.7)$$

où J_{0K} est l'expression donnée par Fowler et Nordheim à 0 K et où p a pour expression :

$$p \cong 9,3 \cdot 10^{-5} \cdot \phi^{\frac{1}{2}} \cdot \frac{T}{E} \quad (I.8)$$

I.2. EMISSION DES POINTES

La validité du modèle théorique proposé par Fowler et Nordheim a été vérifiée par Haefter [I.10] puis par Dyke [I.6] puis par la suite par de nombreux autres auteurs. Ces études, qui ont toutes été réalisées en utilisant une configuration pointe(émetteur) - plan, dans de l'ultra vide et en prenant soin de nettoyer la surface émettrice, ont montré une bonne correspondance entre les résultats expérimentaux et la théorie pour des champs compris dans la gamme $10^{-9} < E < 6 \cdot 10^{-9} \text{ V.m}^{-1}$.

I.2.1. LIMITATIONS DU COURANT PAR LA CHARGE D'ESPACE

Pour des champs électriques supérieurs à $E > 6 \cdot 10^{-9} \text{ V.m}^{-1}$, correspondant à des densités de courant $J \sim 6 \cdot 10^{11} \text{ A.m}^{-2}$, la courbe expérimentale s'éloigne de la courbe théorique laissant apparaître un mécanisme de limitation du courant d'émission. Des études théoriques et expérimentales réalisées par Dyke et al [I.11] ont montré que cette limitation en courant peut être interprétée par une limitation par la charge d'espace. D'autres études complémentaires réalisées par Chatterton [I.12] ont permis d'estimer le champ d'apparition de cette limitation par la charge d'espace par l'expression : $E_l > 8 \cdot 10^8 \cdot \phi^{3/2}$ en V/m ou ϕ est exprimé en eV. Pour des valeurs habituelles du travail de sortie, par exemple $\phi = 4,5 \text{ eV}$, le champ seuil d'apparition de ce phénomène serait de $5 \cdot 10^9 \text{ V.m}^{-1}$.

I.2.2. INFLUENCE DE LA STRUCTURE DE BANDE

L'hypothèse principale du modèle théorique de Fowler et Nordheim est celle de l'électron libre dans un métal. Aussi, dans la réalité, on s'attend à un effet de la structure de bande du métal sur l'émission électronique. Cette influence a été étudiée expérimentalement en relevant les variations du spectre d'énergie totale des électrons émis par effet de champ sur des échantillons de cuivre possédant différentes orientations cristallines [I.13]. Les variations observées sur les spectres étant faibles, l'auteur conclue que la structure de bande a une influence négligeable sur le courant d'émission.

I.3. EMISSION D'UNE ELECTRODE ETENDUE : RESULTATS EXPERIMENTAUX

Définition d'une électrode large : c'est une électrode dont la taille est supérieure à la distance inter-électrodes.

La théorie de Fowler et Nordheim prévoit des champs seuils (c'est à dire des champs appliqués produisant un courant d'émission électronique détectable expérimentalement) de quelques 10^9 V.m^{-1} alors que des champs de deux ordres de grandeur plus faibles sont obtenus expérimentalement sur des électrodes larges. Aussi plusieurs hypothèses ont-elles été proposées pour expliquer ce décalage entre la théorie et les résultats expérimentaux. Dans cette partie, nous présenterons une synthèse des résultats expérimentaux obtenus sur les électrodes étendues.

I.3.1. MODELE DE FOWLER-NORDHEIM "MODIFIE"

Tout ce passe comme si, dans l'expression de Fowler et Nordheim (I.4), le champ électrique moyen E se trouverait renforcé par un facteur β ($\beta > 1$) à l'apex d'une zone de la surface. Cette zone est habituellement appelée : zone d'émission ou site émetteur. Cette hypothèse se trouve renforcée par des résultats expérimentaux qui ont montré que l'émission électronique par effet de champ provient de zones très localisées de la surface.

La nouvelle expression de la densité de courant d'émission, qui prend en compte le renforcement du champ sur un site émetteur s'exprime sous la forme :

$$J_{OK} = \frac{A \cdot \beta^2 \cdot E^2}{\phi \cdot t^2(y)} \exp\left(-\frac{B \cdot \phi^{\frac{3}{2}}}{\beta \cdot E} v(y)\right) \quad (I.9)$$

Par la suite, nous choisirons d'utiliser l'expression simplifiée de l'équation de Fowler et Nordheim "modifiée" ne tenant pas compte de l'effet de la force image. En effet, les corrections dues à la force image sont faibles, aussi l'hypothèse de la barrière de potentiel triangulaire est-elle une approximation acceptable. L'équation (I.9) devient :

$$J_{OK} = \frac{A \cdot \beta^2 \cdot E^2}{\phi} \exp\left(-\frac{B \cdot \phi^{\frac{3}{2}}}{\beta \cdot E}\right) \quad (I.10)$$

I.3.2. EFFET DE LA TEMPERATURE

L'effet de la température sur le courant d'émission a été étudié par plusieurs auteurs dont les résultats ont été rassemblés par Noer [I.14]. Bien que la conclusion ne fasse pas l'unanimité, il semblerait que l'émission électronique par

effet de champ sur des électrodes étendues respecte la théorie "modifiée" aussi bien pour les variations du courant d'émission en fonction de la tension que pour les dépendances en température. Ces résultats sont obtenus en utilisant des systèmes à ultravide ($P < 10^{-8}$ Pa) et en procédant à un dégazage des électrodes avant l'étude du courant d'émission. En effet, lorsque les expériences sont réalisées dans un vide moyen ($P \sim 10^{-5}$ Pa), on constate une légère variation du courant d'émission avec la température.

I.3.3. EFFET DE LA DISTANCE INTER-ELECTRODES

L'analyse de l'équation de Fowler et Nordheim montre que seul le champ existant au voisinage de la cathode détermine le courant d'émission et non la différence de potentiel entre les électrodes. Dès lors, si la distance inter-électrodes (gap) d est très supérieure à la hauteur maximale h des défauts présents sur la surface, le facteur de renforcement du champ β devrait être indépendant de d , et le seul effet produit par le changement de la distance d serait le changement de la différence de potentiel inter-électrodes afin de maintenir le champ appliqué constant.

Cependant, de nombreuses études réalisées en courant continu et en hautes fréquences [I.14] ont montré dans une majorité de cas, une augmentation faible du facteur de renforcement du champ β lorsque la distance inter-électrodes augmente.

I.3.4. ZONES EMISSIVES

L'émission électronique par effet de champ est observée expérimentalement sur des électrodes étendues, pour des champs appliqués 100 à 1000 fois plus faibles que ceux prévus par la théorie. Ce décalage a été attribué pendant longtemps à la présence sur la surface de petits défauts métalliques dont la géométrie serait à l'origine du renforcement local du champ appliqué. Deux résultats expérimentaux ont renforcé cette hypothèse à savoir d'une part l'indépendance entre l'émission électronique et la température [I.14] et d'autres part l'observation de microstructures présentes sur l'échantillon à l'aide d'un microscope électronique à transmission. Cependant, dans ces études [I.14][I.15][I.16], l'émission électronique ne pouvait être localisée, aussi, il n'est pas certain que ces microstructures soient à l'origine de l'émission électronique par effet de champ observée sur ces échantillons. De plus, depuis plusieurs années, de nombreux efforts ont été consacrés aux méthodes de polissage d'échantillons métalliques de natures variées sans qu'aucune augmentation sensible des champs d'émission n'ait été observée.

L'implantation d'un dispositif permettant la localisation des zones responsables de l'émission dans un microscope électronique à balayage (MEB) a permis d'obtenir des résultats très intéressants [I.17][I.18][I.19]. Tout d'abord, aucune microstructure métallique n'a été observée là où l'émission avait été localisée [I.19]. De plus, l'analyse des sites émetteurs a montré que l'émission

était généralement associée à la présence sur la surface de particules de contamination isolantes ou semi-conductrices ainsi qu'à des fissures ou à des joints de grains. Une analyse X plus précise des sites émetteurs a révélé dans certains cas, la présence d'impuretés de fer, d'aluminium [I.20] ou d'argent [I.21].

En 1978, Allen [I.22] et Latham [I.23] ont publié les premiers résultats d'une expérience intéressante pour la compréhension du ou des mécanismes à l'origine de l'émission électronique de champ. En effet, ces deux auteurs ont mesuré le spectre en énergie des électrons émis par des électrodes métalliques étendues. Les spectres obtenus se sont révélés être différents de ceux attendus pour un métal [I.24]. En effet, ils sont plus larges et sont décalés sous le niveau de Fermi d'environ 0,2 eV. Des spectres multiples ont même été observés. De plus, la largeur à mi-hauteur des spectres ainsi que leur décalage augmentent avec la valeur du champ électrique. Tous ces résultats semblent montrer que le phénomène d'émission par effet de champ ne peut être un phénomène purement métallique mais qu'il est modifié par la présence de matériaux isolants ou semi-conducteurs. Ainsi, pendant le passage à travers les différents matériaux, les électrons vont perdre de l'énergie ce qui explique l'élargissement des spectres obtenus [I.25]. Ces résultats sont cohérents avec les échantillons utilisés car ceux-ci étaient recouvert d'une couche naturelle d'oxyde ou alors présentaient sur leur surface des particules isolantes ou semiconductrices.

La présence de matériaux isolants ou semi-conducteurs associés à l'émission de champ a été rendue probable par les résultats de Hurley [I.26] qui a détectée une émission lumineuse dans le visible associée à l'émission électronique.

Le décalage des champs d'émission expérimentaux par rapports à ceux prévus par la théorie ne peut donc pas être expliqué en totalité par un facteur purement géométrique. Aussi, cette apparente contradiction entre la théorie et l'expérience a conduit de nombreux chercheurs à proposer une grande variété de mécanismes susceptibles de rendre compte des résultats expérimentaux présentés ci-dessus et donc d'expliquer l'origine du facteur de renforcement local du champ β . Aucun modèle ne permettant à ce jour d'expliquer l'ensemble des résultats, nous ne présenterons donc que ceux qui correspondent le mieux à la réalité. Ces modèles étant tous abondamment décrits dans la littérature [I.14][I.27], nous nous limiterons volontairement à une description des fondements théoriques de chaque modèle.

I.3.5. EFFET DES GAZ ADSORBES

Dans une enceinte à vide, la composition du gaz résiduel est différente de celle du gaz d'origine en général de l'air. En effet, elle dépend du mode de pompage et de la pression limite. En l'absence d'étuvage, le gaz résiduel est essentiellement composé de vapeur d'eau, de monoxyde de carbone (CO), d'hydrogène (H₂),... La présence d'un gaz adsorbé sur la surface du site émetteur modifie donc la barrière et par conséquent l'émission électronique de champ.

Les gaz rares agissent sur les sites émissifs par bombardement ionique. L'effet obtenu [I.28][I.29] dépend de la valeur du courant d'ions. Aux faibles courants, il est pratiquement nul alors qu'au dessus d'un certain seuil de courant, l'impact des ions sur le site émetteur élimine les gaz adsorbés, en particulier le CO. La valeur de la constante A du facteur pré-exponentiel de l'équation de Fowler-Nordheim (équation I.4) diminue alors que le facteur β varie peu. La densité de courant reste la même alors que le courant électronique augmente en fonction du temps à champ constant [I.30]. Finalement, au bout d'un temps t , le courant atteint un palier qui correspond au nettoyage complet de la surface émissive. Ce processus est réversible. Si la tension est coupée puis réappliquée, on retrouve la valeur initiale du courant, indiquant une réadsorption de gaz à la surface du site.

Les autres gaz et en particulier l'azote (N_2), le dioxyde de carbone (CO_2) et surtout le monoxyde de carbone (CO), s'adsorbent à la surface des émetteurs, même sous une faible pression partielle, et diminuent le courant total d'émission. Cette fois-ci, le facteur pré-exponentiel A de l'équation de Fowler-Nordheim (équation I.4) augmente alors que β varie peu. Par contre, la densité de courant d'émission peut être renforcée au niveau de la couche de contamination par un facteur variant entre 10^2 et 10^4 à cause de l'effet tunnel résonnant (voir I.4.2).

I.4. MODELES THEORIQUES

I.4.1. MODELE GEOMETRIQUE

Ce modèle, qui suppose un renforcement local du champ appliqué dû à la géométrie du site émetteur, fut le premier à être proposé pour justifier le décalage existant entre la théorie et l'expérience. Les valeurs expérimentales du facteur de renforcement du champ extraites des graphiques de Fowler-Nordheim varient habituellement dans une gamme allant de 10 à 1000. La suite de ce paragraphe sera consacré à la présentation des résultats expérimentaux en faveur et contre ce modèle simple.

I.4.1.1. APPROCHE THEORIQUE

La résolution analytique des équations de Laplace devenant rapidement très délicate, seuls les facteurs de renforcement du champ dus à des géométries simples ont été calculés. La figure I.2 représente une synthèse des calculs analytiques réalisés par Alpert et al [I.16] sur des ellipsoïdes, par Vibrans [I.31] pour des cylindres surmontés d'une sphère et par Niedermann [I.32] pour un cylindre posé sur un plan. Le tableau I.1 est un tableau donnant les valeurs des différents paramètres géométriques (la hauteur h et le rayon de courbure au sommet r) pour quelques valeurs habituelles de β . En première approximation, la valeur du facteur β est proportionnelle au rapport h/r , aussi la taille des sites émetteurs devra être choisie de façon à faire correspondre la surface du sommet du site avec les surfaces émissives mesurées expérimentalement. Il convient de remarquer que les géométries très fines nécessaires pour obtenir les valeurs

souhaitées pour β pourraient échapper à l'observation même avec des microscopes électroniques à balayage très performants.

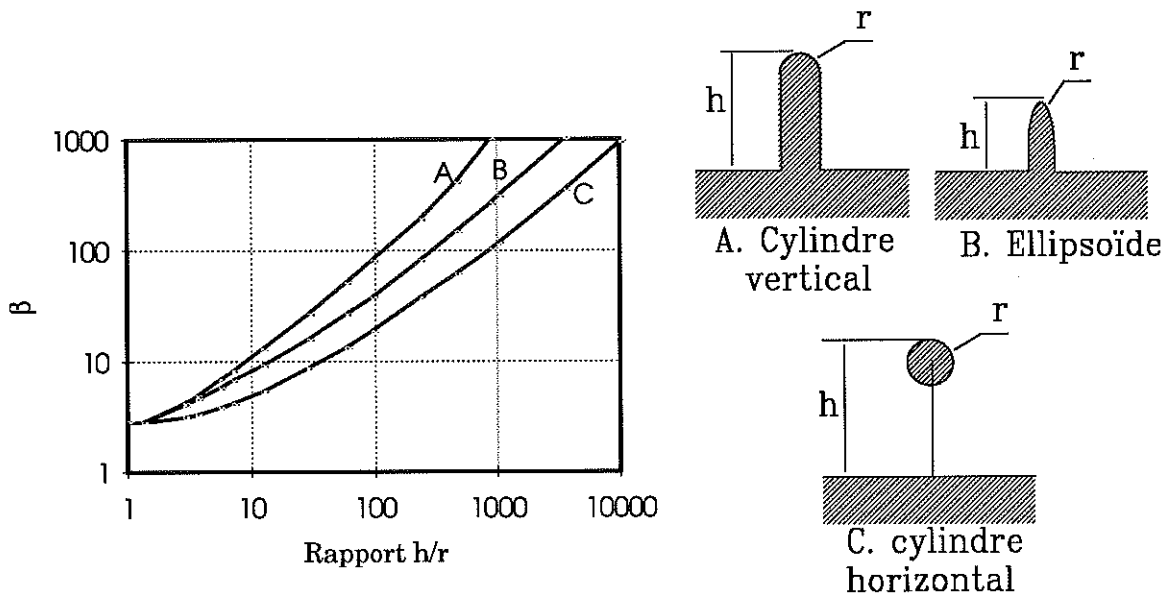


Figure I.2. Variations du facteur de renforcement β en fonction du rapport h/r où h est la hauteur du site et r son rayon de courbure au sommet. (A) Cylindre vertical possédant une extrémité sphérique, (B) ellipsoïde et (C) cylindre horizontal.

β	cylindre vertical	ellipsoïde	cylindre horizontal
10	8	10,3	36
100	98	246	714
1000	998	3820	9870

Tableau I.1. Tableau donnant les valeurs du rapport h/r , où h est la hauteur et r le rayon de courbure au sommet, pour quelques valeurs habituelles de β

I.4.1.2. CONSTATATIONS EXPERIMENTALES

Un excellent travail de synthèse sur l'historique du modèle géométrique (ou de projection) a été réalisé par Noer [I.14] aussi nous ne commenterons dans cette partie que les observations expérimentales en faveur et contre ce modèle.

Beaucoup d'expériences ont été réalisées ces dernières années afin d'étudier la morphologie des sites émetteurs présents sur des surfaces vierges c'est à dire n'ayant pas encore subi des microclaquages. Tout semble indiquer qu'avant les

microclaquages, peu de sites émetteurs naturels peuvent justifier un facteur β supérieur à 10 dû à leur géométrie microscopique. La situation est totalement différente après que l'échantillon ait subi des microclaquages. En effet, Hackam [I.33][I.34][I.35] a montré que la forme géométrique des cratères présents sur la surface après des microclaquages peut dans certains cas justifier des facteurs de renforcement du champ supérieurs à 100.

Mais les résultats expérimentaux des études des spectres en énergie des électrons émis [I.22][I.23][I.24][I.25] et des études de l'émission lumineuse associée à l'émission électronique [I.26], ne peuvent être expliqués de façon simple par ce modèle.

I.4.2. EFFET TUNNEL RESONNANT

L'effet d'une monocouche de gaz adsorbée à la surface d'un métal sur l'émission électronique par effet de champ a été mis en évidence par Duke [I.28] qui a montré que ce phénomène est bien plus complexe que l'hypothèse basée sur une simple modification du travail de sortie comme cela fut proposé. Si l'atome adsorbé sur le métal a des niveaux d'énergie proches ou égaux au niveau de Fermi du métal, des effets de résonance peuvent se produire. L'électron peut alors transiter facilement dans le niveau d'énergie de l'atome adsorbé puis sortir dans le vide. Ce phénomène augmente ainsi la probabilité qu'à un électron du métal de sortir dans le vide.

Cependant, dans le cas de figure qui nous intéresse, à savoir l'émission des électrodes larges, ce mécanisme ne peut expliquer un facteur de renforcement du champ de 10^2 ou 10^3 . Par contre, il peut être à l'origine d'un renforcement du courant d'émission par un facteur variant entre 10^2 et 10^4 .

I.4.3. AUTRES MODELES THEORIQUES

L'étude de l'émission électronique par effet de champ d'électrodes larges a montré que l'émission provient de sites bien localisés sur la surface. Mais ni la forme géométrique des sites, ni la présence de gaz adsorbés sur ces derniers, ne semble pouvoir expliquer les champs seuils d'émission obtenus expérimentalement. En réalité, la situation est plus complexe car les surfaces des électrodes sont recouvertes de particules majoritairement isolantes ou de couches diélectriques (oxyde naturel).

Nous allons présenter les différentes interprétations qui ont été proposées pour expliquer l'émission électronique de champ observée sur des électrodes larges en faisant l'hypothèse selon laquelle la présence d'une particule isolante ou d'une couche diélectrique pourrait expliquer les résultats expérimentaux.

I.4.3.1. INFLUENCE D'UNE COUCHE SUPERFICIELLE DIELECTRIQUE

Dans cette partie, nous nous intéresserons à l'effet d'une couche diélectrique comme par exemple une couche d'oxyde. La figure I.3 montre schématiquement le diagramme d'énergie d'une telle configuration. ϕ' est le travail de sortie métal-oxyde et χ est l'affinité électronique de l'oxyde. L'inclinaison des niveaux d'énergie dans l'isolant est inférieure à celle dans le vide en raison de la constante diélectrique ϵ qui est supérieure à 1 pour les isolants.

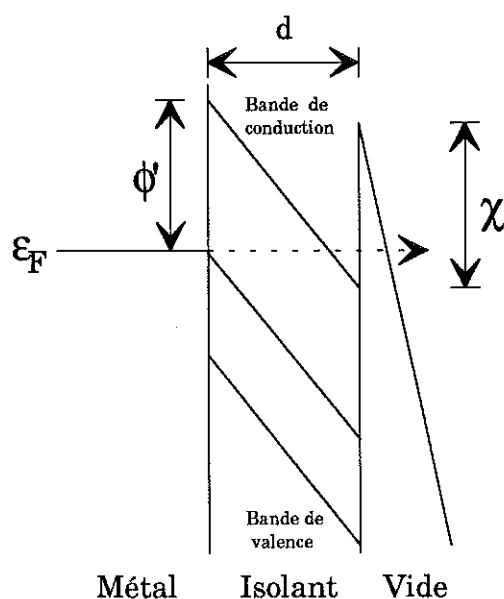


Figure I.3. Diagramme d'énergie d'un système métal-isolant-vide en présence d'un champ $E > 0$. ϵ_F est le niveau de Fermi du métal, ϕ' son travail de sortie métal-oxyde, χ l'affinité électronique de l'isolant et finalement e , l'épaisseur de la couche isolante. Les effets de la force image et de la charge d'espace sont négligés.

Deux cas de figures sont possibles :

1. la couche diélectrique est souvent une couche naturelle d'oxyde de faible épaisseur (quelques nanomètres) et par conséquent, les électrons ont une certaine probabilité de passer directement dans le vide par effet tunnel à travers la barrière de potentiel due à la présence de la couche d'oxyde.
2. la couche diélectrique est épaisse et les électrons ont une probabilité très faible de passer directement dans le vide. Dans ce cas, les électrons vont devoir passer du niveau de Fermi du métal vers le bas de la bande de conduction de la couche diélectrique, puis circuler dans celle-ci jusqu'à l'interface avec le vide où ils verront à nouveau une barrière de potentiel qui est l'affinité électronique de la couche diélectrique.

Les résultats obtenus expérimentalement par de nombreux auteurs [I.14][I.36][I.37] ont montré que ces couches tendent à réduire le courant

d'émission. Des calculs analytiques et numériques [I.38] réalisés récemment ont également montré une réduction du courant d'émission électronique par une couche d'oxyde. Ce modèle, ne peut donc pas expliquer le facteur de renforcement local du champ sur les sites émetteurs.

Mais ce modèle néglige les effets de la force image et de la charge d'espace. En réalité, elles peuvent jouer un rôle important comme le suggèrent les modèles suivants.

1.4.3.2. MODELE DES FILAMENTS ELECTROFORMES

Des résultats expérimentaux obtenus sur des électrodes larges ont montré que l'émission électronique est souvent associée à la présence sur la surface de l'échantillon de particules isolantes. Aussi, Hurley [I.26] a-t-il suggéré un mécanisme reposant sur la présence de filaments électroformés identiques à ceux proposés par Dearnaley [I.39] pour les couches d'oxyde électroformées dans des sandwichs métal-isolant-métal (MIM).

Lorsque des couches épaisses (de l'ordre de quelques microns) de matériaux semiconducteurs ou isolants (par exemple : oxydes, nitrures, fluorures, verres amorphes,...) sont soumis à des champs électriques intenses (10-100 MV/m) par l'intermédiaire d'électrodes planes en contact avec la surface, il peut alors se produire un basculement des propriétés conductrices de la couche qui peut alors passer d'un état non-conducteur "OFF" vers un état conducteur "ON". La conductibilité peut alors être multipliée par un facteur 10^8 ! Ce basculement des propriétés conductrices de la couche est en outre accompagné d'une émission lumineuse [I.40]. Un des mécanismes [I.41] à l'origine du basculement des propriétés de la couche, appelé "switching", est le mécanisme d'avalanche. En effet, les électrons injectés du métal vers l'isolant vont être accélérés par le champ électrique et vont interagir avec les atomes du réseau et libérer d'autres électrons, qui vont eux-mêmes être accélérés et ainsi de suite. Il est donc nécessaire d'avoir une couche d'épaisseur supérieure à 10 nm pour qu'il puisse se produire un phénomène d'avalanche. De plus amples détails sur le comportement des structures MIM sont donnés dans les travaux de Ovshinsky [I.42], de Boer et Ovshinsky [I.43], de Biederman [I.40] et de Dearnaley et al [I.44]. On trouve également dans la littérature, des travaux plus spécifiques au niobium et à son oxyde, comme par exemple les travaux de Hickmott [I.45-I.47] et de Belkacem [I.48].

Le modèle de Hurley repose sur la présence sur la surface des électrodes larges de particules isolantes ou semiconductrices. La forme géométrique des particules va entraîner un renforcement local β du champ. Dès lors, le facteur de renforcement β va compenser la constante diélectrique ϵ_r du matériau composant la particule isolante. En général, on peut supposer $\beta \sim 10$, $\epsilon_r \sim 5 - 10$ et par conséquent, des champs appliqués de 10 MV/m peuvent provoquer un basculement de la couche d'un état "OFF" vers un état "ON". Ce basculement des propriétés de la couche va favoriser l'injection des électrons du niveau de Fermi du métal vers le bas de la bande de conduction des filaments électroformés. Ils

seront ensuite accélérés par le champ électrique existant dans les filaments jusqu'à l'interface isolant-vide, où ils se présenteront avec une énergie qui leur permettra de passer par dessus la barrière qui les enferme dans la couche diélectrique. En outre, la présence d'une charge d'espace qui peut provenir de dépiégeages ou alors de création de paires électron-trou par suite d'interactions entre les électrons accélérés par le champ et la couche diélectrique qu'ils traversent, peut rétrécir la barrière, augmentant ainsi la probabilité de franchissement des électrons par effet tunnel.

I.4.3.3. MODELE DES BANDES - EMISSION THERMOIONIQUE D'ELECTRONS CHAUDS

Dans ce modèle, proposé par Allen [I.20] et Latham [I.23], on suppose également que l'émission provient d'une particule isolante posée sur la surface de la cathode. En réalité, peu d'informations sont disponibles sur la composition exacte des particules. En l'absence de champ électrique appliqué, une représentation idéale des bandes d'énergie d'un tel système est donnée par la figure I.4.a, ϕ est le travail de sortie du métal dans le vide et χ l'affinité électronique de l'isolant. La courbure de bande aux interfaces métal-isolant et isolant-vide est un phénomène bien connu [I.49][I.50] qui découle entre autres de la différence entre les travaux de sortie des différents matériaux.

Lorsqu'on applique un champ électrique intense, il y aura pénétration du champ électrique dans l'isolant (dans les semiconducteurs, la densité importante de porteurs et de défauts de surface va entraîner un écrantage du reste de la couche où le champ sera faible), ce qui aura pour conséquence de modifier fortement le diagramme des bandes (voir figure I.4.b). La courbure de bande dans l'isolant va diminuer la largeur de la barrière de potentiel à l'interface métal-isolant augmentant de fait la probabilité qu'ont les électrons de passer du niveau de Fermi du métal vers le bas de la bande de conduction de l'isolant. Ensuite, ils vont être accélérés ou "chauffés" par le champ électrique et vont se présenter à l'interface isolant-vide avec une énergie qui va leur permettre de passer par dessus la faible barrière de potentiel appelée affinité électronique, qui est usuellement faible chez les isolants. Ce processus d'émission d'électrons "chauds" est proche du processus standard d'émission thermoionique. La loi de Richardson-Dushman qui décrit l'émission thermoionique est donc supposée valable :

$$J = K.T_e^2 \cdot \exp\left(-\frac{e\chi}{kT_e}\right) \quad (I.11)$$

où χ est l'affinité électronique de l'isolant. L'énergie de l'électron est supposée être due uniquement à la différence de potentiel dans l'isolant. Cette énergie peut être représentée par une température dont la valeur est donnée par l'expression : $T_e = 2eV/3k$. En supposant l'absence de charge d'espace dans l'oxyde, la différence de potentiel V est égale à $E.d/\epsilon_r$, où E est le champ appliqué, d

l'épaisseur de la couche isolante et ϵ_r la constante diélectrique de celui-ci. T_e a donc pour expression :

$$T_e = \frac{2ed}{3k\epsilon_r} \cdot E \quad (\text{I.12})$$

En remplaçant T_e dans l'expression (I.11), celle-ci devient:

$$J = K \cdot \left(\frac{2ed}{3k\epsilon_r} \right)^2 \cdot E^2 \cdot \exp\left(-\frac{3\chi\epsilon_r}{2Ed} \right) \quad (\text{I.13})$$

Cette relation conduit également à une linéarité dans un diagramme de Fowler et Nordheim. Par analogie entre les termes exponentiels de l'équation (I.13) et de l'équation de Fowler-Nordheim "modifiée" (I.10), la nouvelle expression du facteur β est donnée par :

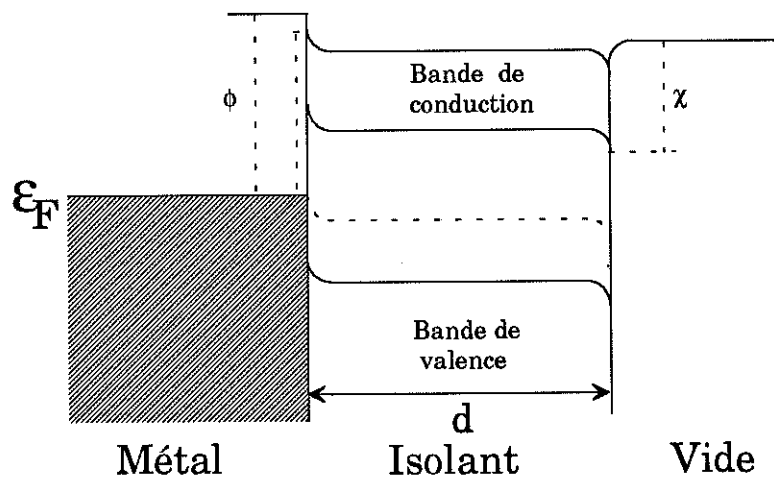
$$\beta = \frac{2 \cdot B \cdot \phi^2 \cdot d^3}{3 \cdot \chi \cdot \epsilon_r} \quad (\text{I.14})$$

où B est la constante de l'équation (I.10)

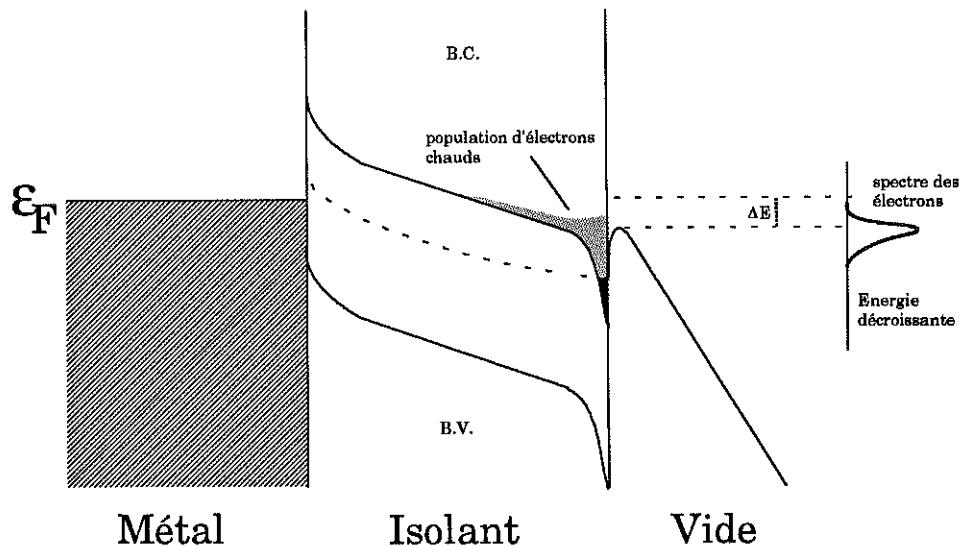
en supposant $\phi=4$ eV (cas du niobium), on a alors :

$$\beta = 3,6 \cdot 10^{10} \cdot \frac{d}{\chi\epsilon_r} \quad (\text{I.15})$$

avec d en mètres et χ en eV. Dès lors, le renforcement local du champ β ne dépend que des caractéristiques de l'isolant et un facteur β de 250 correspond à une épaisseur d de la particule isolante égale à $0,1 \mu\text{m}$, en prenant $\epsilon_r=3$ et $\chi=4$ eV. Mais l'équation (I.15) a une limite de validité à savoir que l'épaisseur de la couche d'oxyde doit être inférieure à une ou deux fois le libre parcours moyen λ des électrons dans l'oxyde car on suppose l'absence d'interactions.



a) pas de champ appliqué



b) en présence d'un champ électrique

Figure I.4. Diagramme des niveaux d'énergie d'un système Métal-Isolant-Vide.

Enfin, le processus d'émission thermoionique d'électrons "chauds" rend compte du décalage en énergie du spectre des électrons émis (voir figure I.4.b). La largeur des spectres dépend des interactions des électrons avec le réseau pendant le transit des électrons dans l'isolant.

I.4.3.4. **MODELE ASSOCIANT COURBURE DE BANDE ET SWITCHING**

Ce modèle qui suppose également la présence sur la surface d'une particule isolante est décrit explicitement dans les articles suivants [I.21][I.27][I.51][I.52]. Il n'est pas nouveau car il reprend plusieurs autres modèles ou interprétations (filaments électroformés, émission thermoionique, pénétration du champ dans l'isolant et courbure de bandes). La complexité de ce modèle traduit la volonté de prendre en compte tous les résultats obtenus expérimentalement.

La raison d'être de ce modèle provient du fait que les modèles classiques n'expliquent qu'une partie des résultats expérimentaux. En effet, le modèle des bandes n'explique pas comment un nombre important d'électrons "chauds" va pouvoir traverser toute la particule isolante (1-10 microns) sans perdre toute leur énergie par interactions électrons-phonons. Le modèle des filaments électroformés n'explique pas quant à lui le décalage sous le niveau de Fermi des spectres en énergie des électrons émis. Enfin, tous les modèles précédents (à l'exception du modèle géométrique simple) restent très vagues sur le mécanisme par lequel les électrons passent du métal vers la particule isolante. Ce modèle, qui est une synthèse des autres répond donc à toutes les questions.

1.4.3.5. MODELE D'ANTENNE

Ce modèle a été proposé par Halbritter [I.53] pour expliquer l'émission de petites particules de carbone graphite, posées sur la surface d'un échantillon de niobium.

Ce modèle suppose que la particule, de faible épaisseur, est isolée de l'échantillon par une fine couche diélectrique (voir figure I.5). Dès lors, cette particule se comporte comme une antenne [I.51][I.54] et est portée à un potentiel différent de celui de l'échantillon. La particule étant supposée conductrice, toute sa surface sera portée au même potentiel, les équipotentielles prennent alors l'allure représentée à la figure I.5.

Si on suppose que le potentiel auquel est portée la particule de hauteur h , est le même que celui à la hauteur h dans un champ uniforme (c'est à dire lorsque la particule est absente), le facteur de renforcement du champ β a pour ordre de grandeur h/d où d est l'épaisseur de la couche isolante située sous la particule. Le champ électrique devenant très intense au niveau de l'interface métal-isolant, les électrons vont être injectés dans l'isolant par effet tunnel. Une fois dans l'oxyde et sous l'effet du champ, les électrons vont acquérir une énergie cinétique leur permettant de franchir la barrière oxyde-particule où ils vont de nouveau être accélérés. Les électrons pourront finalement passer dans le vide par effet tunnel ou alors en passant par dessus la barrière qui les retient dans la particule.

Tous les électrons ne seront pas transmis à travers la fine particule, en effet, certains d'entre eux pourront perdre de l'énergie à cause d'interactions successives et être piégés dans la particule. D'un autre côté, lors des interactions successives, des électrons secondaires pourront être produits dans la particule puis être émis dans le vide. Ces deux phénomènes d'émission vont provoquer un déséquilibre de la charge totale de la particule qui peut entraîner un microclaquage comme on le voit souvent au cours des expériences. Mais l'éventualité d'un déséquilibre de charge est à l'origine d'une des limites de ce modèle. En effet, la particule en se chargeant négativement (cas le plus probable) va entraîner une diminution du champ électrique dans la couche, d'où diminution du courant d'émission.

Finalement, ce modèle simple rend compte d'une part de l'émission de particules de carbone graphite saupoudrées sur la surface mais aussi des observations nécessitant la présence d'une couche diélectrique ou semiconductrice en surface comme par exemple l'émission lumineuse ou alors l'allure des spectres en énergie des électrons émis par effet de champ.

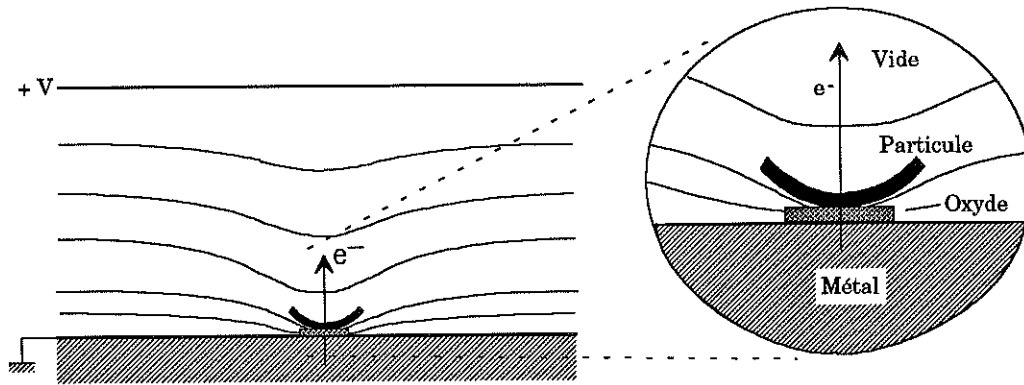


Figure 1.5. *Modèle d'antenne qui suppose la présence d'une fine couche isolante sous la particule. Les lignes représentent schématiquement les équipotentiels du champ appliqué.*

Par contre, il serait injustifié d'attribuer un rôle "d'amplificateur" à la couche naturelle d'oxyde, car les épaisseurs des couches naturelles d'oxydes sont faibles ($e < 5$ nm dans le cas du niobium) et par conséquent, tous les effets liés à la courbure des bandes ou au switching de l'oxyde, sont difficile à imaginer.

CHAPITRE II

DISPOSITIF ET PROCEDURES EXPERIMENTALES

CHAPITRE II

DISPOSITIF ET PROCEDURES EXPERIMENTALES

De nombreux dispositifs expérimentaux ont été mis au point ces dernières années pour étudier l'émission de champ en courant continu (DC). Parmi ces dispositifs, une partie d'entre eux dont celui réalisé par Niedermann [II.1], associent la localisation précise des sites émetteurs à l'étude in situ de leurs morphologies et de leurs compositions chimiques élémentaires. Ce type de dispositif a été repris depuis par d'autres laboratoires [II.2]. Il est constitué d'une enceinte ultra vide dans laquelle on trouve:

- une platine et un dispositif porte-pointes qui permettent un balayage en champ très précis. Les pointes permettent d'appliquer localement le champ et se comportent donc comme une sonde permettant la localisation de l'émission électronique de champ.
- un canon à électrons auquel est associé un détecteur d'électrons secondaires pour l'imagerie du site et un détecteur d'électrons Auger pour l'analyse chimique.

Les atouts principaux de ce dispositif sont constitués par une localisation très précise à l'échelle du micron de l'émission d'un site et par son analyse chimique. De plus, on dispose dans ce dispositif d'un ultra-vide et d'un chauffage in situ à haute température ($T > 2000^{\circ}\text{C}$). Cependant, l'ensemble platine de balayage et porte-pointes sont d'un encombrement important entraînant de facto une distance de travail supérieures à 20 centimètres entre le canon à électrons et l'échantillon. Cette distance de travail importante est à l'origine de la faible résolution des images obtenues avec ce matériel.

Conscients de la difficulté et du compromis inévitable entre une bonne localisation des sites et une résolution la meilleure possible, nous avons choisi une solution technique différente à savoir l'implantation dans un MEB, d'un dispositif permettant la localisation précise des sites émetteurs par balayage de tout l'échantillon. Ce dispositif, auquel on peut reprocher l'absence d'une enceinte ultravide (la pression minimale est de 10^{-5} Pa) permet cependant d'obtenir conjointement une imagerie du site émetteur et l'analyse très précise de sa composition chimique élémentaire.

Nous allons donc décrire plus en détail le dispositif expérimental utilisé et en particulier les possibilités offertes par la microscopie électronique à balayage afin de mieux saisir les avantages d'un dispositif expérimental reposant sur ce type d'appareillage.

II.1. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Les figures II.1.a et II.1.b montrent respectivement une photographie du dispositif expérimental et son schéma détaillé. Il comprend un microscope électronique à balayage (MEB), une alimentation haute tension, deux résistances de protection et un picoampèremètre.

II.1.1. MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE

II.1.1.1. PRINCIPE DE L'APPAREIL

L'idée d'utiliser une sonde électronique pour examiner un objet est ancienne. En effet, dès 1938, Von Ardenne publiait un article sur la construction d'un microscope électronique à balayage [II.3]. Les MEB actuels, bien que plus performants que leurs ancêtres, conservent cependant le principe du balayage de la surface avec une sonde électronique la plus petite possible.

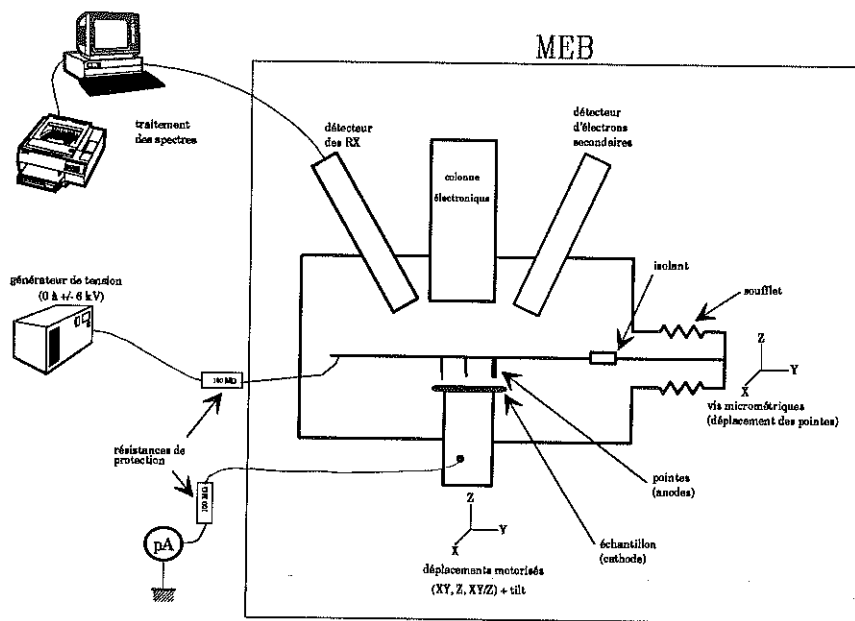
Cette technique étant maintenant bien connue [II.4][II.5], nous nous limiterons à une description des points indispensables à la bonne compréhension des résultats qui ont été obtenus sur cet appareillage.

La Figure II.2 représente le schéma de principe du microscope électronique à balayage. Les électrons, issus dans notre cas de l'émission thermoélectronique d'un filament de tungstène, sont accélérés par une tension comprise entre 1 et 30 kilovolts appliquée entre la cathode et l'anode. Le faisceau d'électrons de faible section ainsi obtenu est mis en forme par plusieurs étages de lentilles condenseurs puis focalisé par une lentille électromagnétique. Ce système de mise en forme et de focalisation permet d'obtenir sur la surface d'un échantillon, une sonde dont la section varie entre 10 et 50 nanomètre et véhiculant un courant électronique compris entre 10^{-10} et 10^{-12} Ampère. La dernière lentille électromagnétique, qui est une lentille à grande distance de travail, augmente les aberrations sphériques de la sonde. Pour les réduire, on intercale juste avant cette lentille, un diaphragme dont l'ouverture varie habituellement autour d'une

dizaine de milliradians. Des ouvertures plus petites sont utilisées lorsqu'on souhaite augmenter la profondeur de champ. Les bobines défectrices électromagnétiques placées avant la dernière lentille permettent le balayage de l'échantillon par la sonde électronique. Un signal émis par la cible, recueilli par des détecteurs appropriés, module l'émission d'un tube cathodique dont le balayage est synchronisé avec celui du faisceau électronique. A chaque point de la cible correspond donc un point de l'écran. L'intensité lumineuse est directement associée à l'intensité du signal. On forme ainsi une image.



a) Photographie du dispositif expérimental



b) Schéma du dispositif expérimental

Figure II.1. Photographie (a) et schéma (b) du dispositif expérimental.

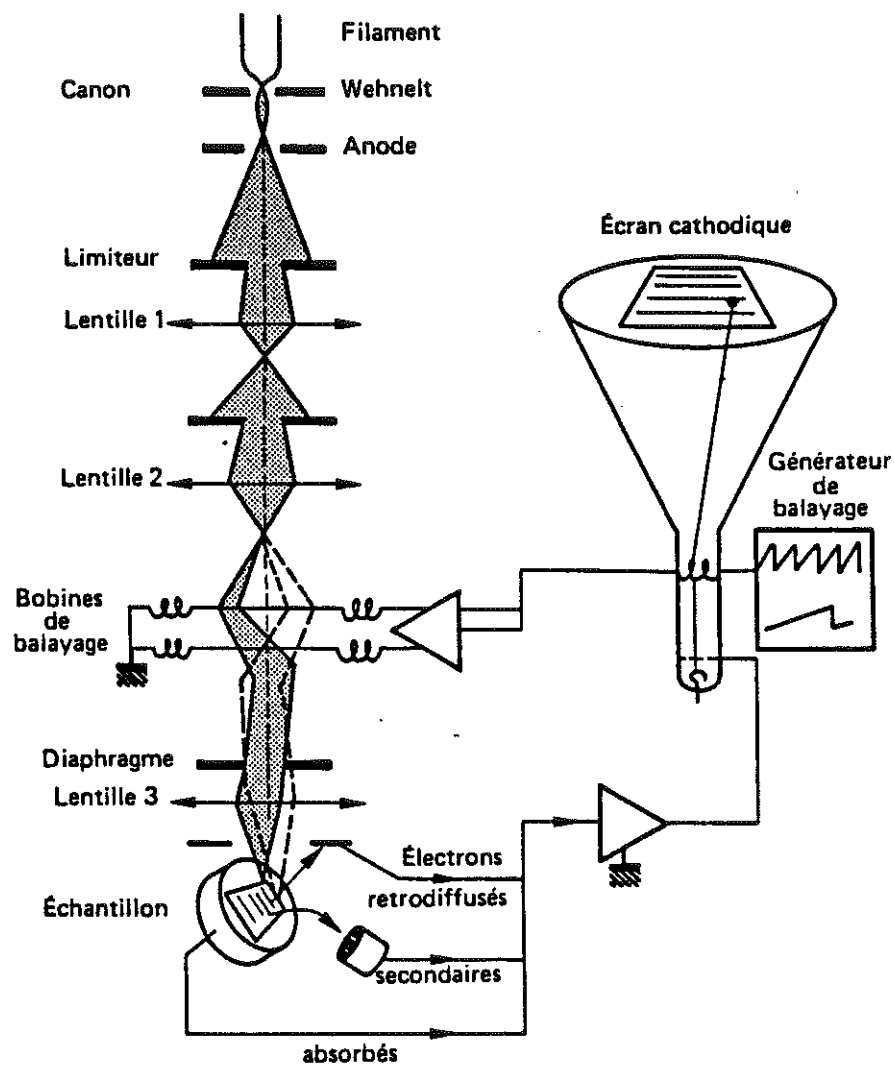


Figure II.2. Schéma de principe du microscope électronique à balayage.

II.1.1.2. MODES D'IMAGERIE DU MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE

L'objectif de cette partie est de présenter de manière aussi simple que possible les processus à l'origine des différents contrastes observés en microscopie électronique à balayage. Environ 90 % de l'utilisation des microscopes électroniques à balayage fait appel aux électrons secondaires, 9 % aux électrons retrodiffusés et 1 % seulement au courant d'échantillon. Plus qu'une incapacité des électrons retrodiffusés à véhiculer une information intéressante, la raison de leur score faible est la difficulté que présente leur collection. En effet, les performances d'un microscope électronique à balayage sont reliées directement à la qualité de la colonne électronique mais aussi à la nature du signal détecté. Ainsi, la résolution d'un microscope électronique à balayage, comme le montre la figure II.3, est largement meilleure en secondaires qu'en retrodiffusés ou même qu'en rayons X. La zone d'émission des secondaires correspond sensiblement à la taille de la sonde alors que les retrodiffusés, qui sont produits plus profondément, ont une zone d'émission beaucoup plus grande que le diamètre de la sonde à cause de la diffusion latérale. L'importance de cette diffusion latérale dépend de la nature du matériau. En effet, plus il sera léger et plus la diffusion latérale sera importante. Les rayons X quant à eux proviennent de toute la poire d'interaction dont la taille est très supérieure au diamètre de la sonde.

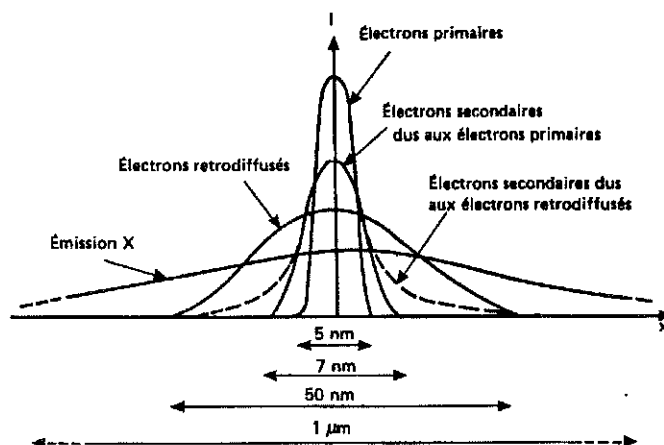


Figure II.3. Dépendance entre la résolution et la nature du signal détecté.

A - IMAGERIE EN ELECTRONES SECONDAIRES

ORIGINE DES CONTRASTES

Les contrastes obtenus sur une surface en imagerie d'électrons secondaires, sont dus aux mécanismes suivants :

1. dépendance du coefficient d'émission secondaire en fonction de l'angle d'incidence du faisceau primaire. Cette dépendance se traduit par un contraste topographique qui reproduit fidèlement les différentes variations d'inclinaison de la surface.

2. dépendance du signal d'émission secondaire en fonction de l'angle d'inclinaison local de la surface et absence de signal d'électrons secondaires provenant des zones situées derrière des protubérances ou dans des trous. Ceci se traduit par des contrastes plus ou moins importants selon les régions considérées.
3. augmentation du signal d'électrons secondaires lorsqu'une plus grande proportion de secondaires dus aux électrons retrodiffusés peut être détectée. Ceci est le cas par exemple des bordures. On a alors un contraste dû à la diffusion des électrons primaires.
4. dépendance avec la nature de l'échantillon qui peut être due à une augmentation du coefficient total d'émission secondaire à cause de l'augmentation du coefficient de retrodiffusion ou alors aux 9 % d'électrons retrodiffusés détectés. On a alors un contraste dû à la nature chimique. Ce contraste est très faible et est souvent noyé par les autres types de contrastes sauf lorsqu'on réussit à tous les minimiser.
5. artefacts de contraste dus à des phénomènes de charge. Ce type de contraste sera étudié ultérieurement.
6. Contrastes dus à des champs magnétiques ou à des potentiels de surface.

Le point fort de l'imagerie en électrons secondaire reste le très bon contraste topographique que l'on peut facilement obtenir. Pour éviter d'avoir une superposition du signal dû aux 9 % d'électrons retrodiffusés et du signal dû aux électrons secondaires, il suffit de travailler en incidence et en émergence oblique ce qui réduit considérablement la proportion du signal due aux électrons retrodiffusés.

La figure II.4 rassemble les différents contrastes (1 à 3) que l'on peut observer et qui sont liés à la topographie de l'échantillon.

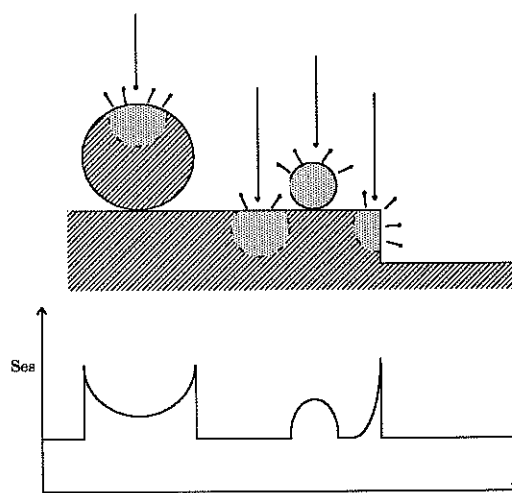


Figure II.4. Origine des différents contrastes liés à la topographie de la surface d'un échantillon. S_{es} est l'intensité du signal d'émission secondaire.

CONTRASTES DUS A DES PHENOMENES DE CHARGE

La charge positive ou négative d'une surface, bombardée par un faisceau d'électrons primaires, ne dépend que du rendement total σ ($\sigma = \eta + \delta$), qui est la somme du rendement d'électrons retrodiffusés η et du rendement d'électrons secondaires δ . Les variations de σ en fonction de l'énergie des électrons incidents mettent en évidence deux énergies critiques E_c pour lesquelles σ est égal à 1 (voir la figure II.5), on n'observe alors aucun phénomène de charge. Nous ne nous intéresserons pas à la zone d'énergie inférieure à E_{c1} en raison de sa faible valeur, de l'ordre de quelques centaines d'eV, qui ne présente pas beaucoup d'intérêt pour nous. Nous ne nous occuperons que de ce qui se passe aux énergies inférieures et supérieures à E_{c2} .

Pour $E < E_{c2}$, on a alors $\sigma > 1$, ce qui signifie que le nombre d'électrons émis (secondaires + retrodiffusés) par unité de temps est supérieur au nombre d'électrons primaires qui frappent l'échantillon. Cet excès d'émission électronique se traduit par une charge positive de la surface de l'échantillon. Pour un potentiel de surface $+U_s$, tous les électrons secondaires dont l'énergie est inférieure à eU_s restent dans l'échantillon. La diminution du nombre de secondaires émis entraîne une diminution du contraste; l'image apparaît alors moins brillante.

Pour $E > E_{c2}$, on a alors $\sigma < 1$, plus d'électrons arrivent sur la surface que ceux qui en sont émis (secondaires + retrodiffusés). On a alors une charge négative de cette région. Dans ce cas, on a une augmentation du contraste; l'image apparaît plus brillante.

La figure II.6 montre un exemple de l'influence sur une micrographie obtenue au MEB d'une particule isolante chargée négativement posée sur un échantillon de niobium. La particule chargée négativement apparaît plus brillante. Mais le contraste observé n'est pas dû en totalité à la charge de la particule car on a une contribution importante du contraste topographique. La charge négative de cette particule entraîne des distorsions dans le champ électrique qui est représenté schématiquement dans la figure II.7 (les électrons se déplacent dans une directions opposée à celle du champ électrique en raison de leur charge négative). La charge négative de la particule entraîne sur la surface l'apparition d'un potentiel de surface positif qui empêche les électrons secondaires de quitter cette zone qui apparaît alors plus sombre.

Ce phénomène que nous utiliserons par la suite dans nos travaux, ne peut être observé que lorsqu'il s'agit d'une particule isolante sur un échantillon métallique ou dans le cas d'une particule métallique isolée électriquement par rapport à l'échantillon. Ce phénomène n'est évidemment pas visible dans le cas d'une particule métallique en bon contact électrique avec un échantillon métallique car on aurait alors décharge de la particule sur l'échantillon.

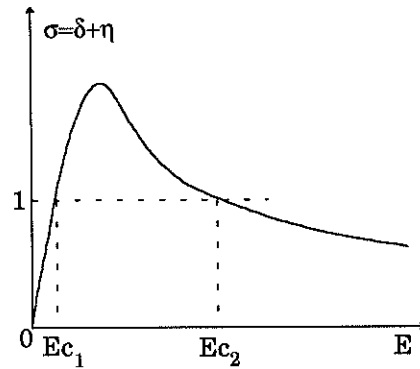


Figure II.5. Variations du rendement total d'émission σ en fonction de l'énergie des électrons incidents.

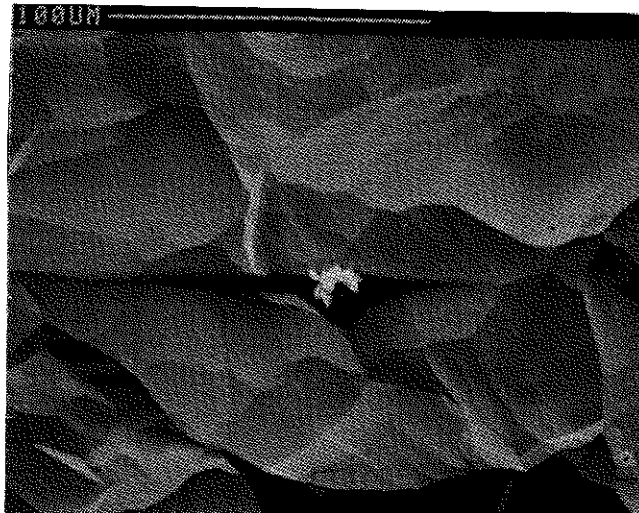


Figure II.6. Influence de la charge négative des particules isolantes sur une micrographie obtenue au MEB. Cette influence se traduit par la présence d'un halo noir autour des particules.

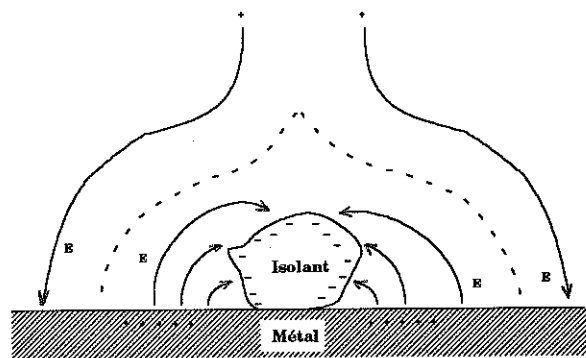


Figure II.7. Distorsions des lignes de champ dues à la charge de la particule.

CONTRASTE DE POTENTIEL

La surface d'un échantillon n'est pas nécessairement équipotentielle; c'est le cas par exemple des microcircuits que l'on peut observer "en fonctionnement". Les électrons secondaires vrais quittent l'échantillon avec une énergie de quelques eV seulement; ils sont dès lors très sensibles au potentiel de surface qui

peut modifier leur trajectoire. Les zones négatives ont peu d'influence alors que les zones positives sont susceptibles de récupérer des électrons secondaires les empêchant d'atteindre le détecteur. Ces zones apparaissent par conséquent plus sombres.

B - IMAGERIE EN ELECTRONS RETRODIFFUSES

L'imagerie en électrons retrodiffusés permet de mettre en évidence des contrastes topographiques (les mécanismes produisant les contrastes topographiques sont les mêmes que ceux décrits pour l'imagerie en électrons secondaires), des contrastes de numéro atomique, des contrastes d'orientation cristalline et des contrastes dus à des phénomènes de canalisation électronique.

Les contrastes topographiques obtenus à faible grossissement et avec un échantillon incliné par rapport au faisceau d'électrons primaires sont excellents. A ce signal, se superpose le signal dû au contraste de numéro atomique qui devient prédominant lorsqu'on travaille en incidence normale du faisceau primaire du MEB avec un angle de sortie le plus grand possible d'où l'utilisation de détecteurs annulaires. On n'obtient alors que du contraste de numéro atomique qui est une des applications principales des électrons retrodiffusés.

Dans certains cas, lorsqu'on balaie la surface polie d'un échantillon policristallin par un faisceau parallèle, on peut également avoir des contrastes dus à des orientations cristallines ou à des phénomènes de canalisation. En effet, le coefficient de retrodiffusion d'un monocristal est très anisotropique en fonction de l'orientation et dépend de l'angle d'incidence entre le faisceau primaire et les plans réticulaires du monocristal. La figure II.8 qui est une micrographie obtenue en imagerie d'électrons retrodiffusés, montre un contraste dû à l'orientation cristalline sur un échantillon de niobium électropoli. Le contraste dû au phénomènes de canalisation est dû à l'absorption anormale du faisceau incident lorsque celui-ci se présente en incidence de Bragg sur les plans réticulaires d'un monocristal.

II.1.1.3. DESCRIPTION DU MEB UTILISE

Le microscope utilisé est issu de la gamme commerciale de la société CAMBRIDGE. Il s'agit du modèle STEREOCAN 120 (voir figure II.1.a) qui dispose d'une chambre de grandes dimensions (voir figure II.9) permettant l'implantation du dispositif d'étude de l'émission de champ. De légères modifications ont été apportées à la chambre afin de permettre l'arrivée de la haute tension mais aussi l'implantation du système porte-pointes qui sera décrit plus loin.

Le balayage en émission se fait par déplacement de la platine porte-échantillon, située en regard d'une pointe fixe. Pour ce faire, la platine, qui est motorisée, est pilotée soit directement par une manette (ou "joystick") soit par l'intermédiaire d'un ordinateur. La vitesse de déplacement de la platine est asservie sur le grossissement affiché par le microscope.

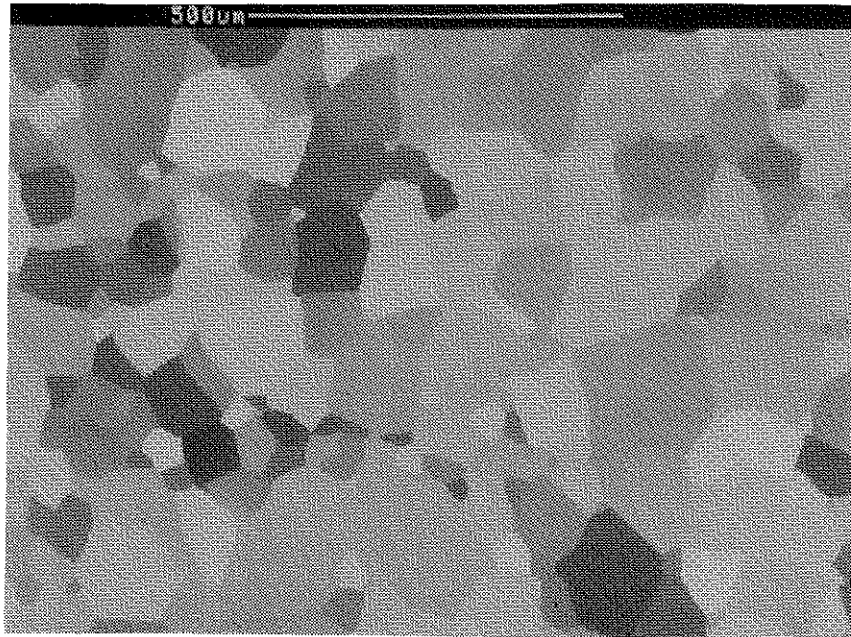


Figure II.8. Micrographie obtenue en imagerie d'électrons retrodiffusés montrant un contraste dû à l'orientation cristalline sur un échantillon de niobium électropoli.

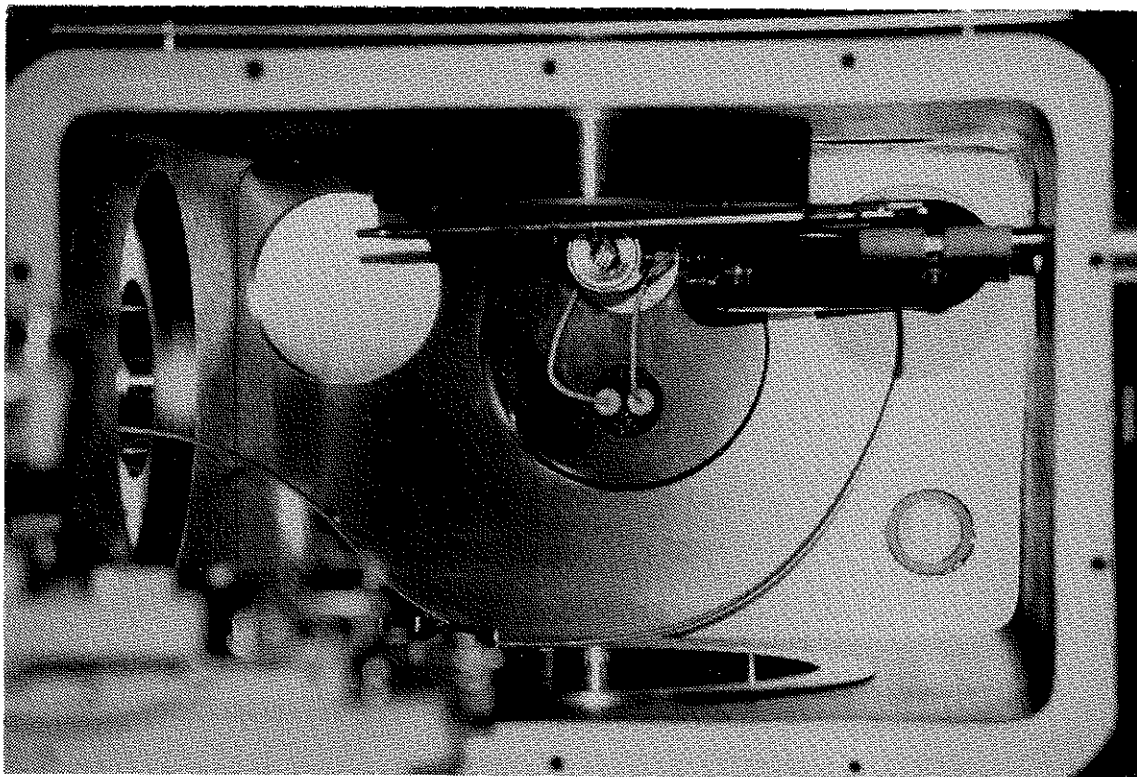


Figure II.9. Photographie de l'intérieur de la chambre du MEB.

Le microscope ne possédant qu'un détecteur d'électrons secondaires, toutes les études nécessitant des électrons retrodiffusés ont été réalisées dans le MEB (modèle LEICA 260) du Laboratoire de Métallurgie Structurale du CNRS à ORSAY (91).

II.1.2. MICROANALYSE

Le MEB permet d'étudier la composition chimique élémentaire d'un échantillon par analyse du spectre de rayons X émis par cet échantillon sous l'effet des électrons primaires du MEB. Le système de microanalyse est composé d'un détecteur à sélection d'énergie : cristal semi-conducteur (SiLi) refroidi par de l'azote liquide afin de réduire les bruits. Ce détecteur, situé derrière un barillet de fenêtres amovibles (Be, Al, sans fenêtre), permet dans la position sans fenêtre, la détection du carbone.

A ce système de détection des rayons X est associé un ordinateur permettant l'acquisition, le traitement, l'identification des pics et le stockage des spectres. Ce dispositif permet également de réaliser une cartographie en rayons X mais aussi des études quantitatives de concentrations chimiques élémentaires. La figure II.10 représente le spectre d'un échantillon de niobium obtenu avec le système d'analyse de la composition chimique élémentaire que nous appellerons par la suite E.D.X. (Energy Dispersive X ray analysis).

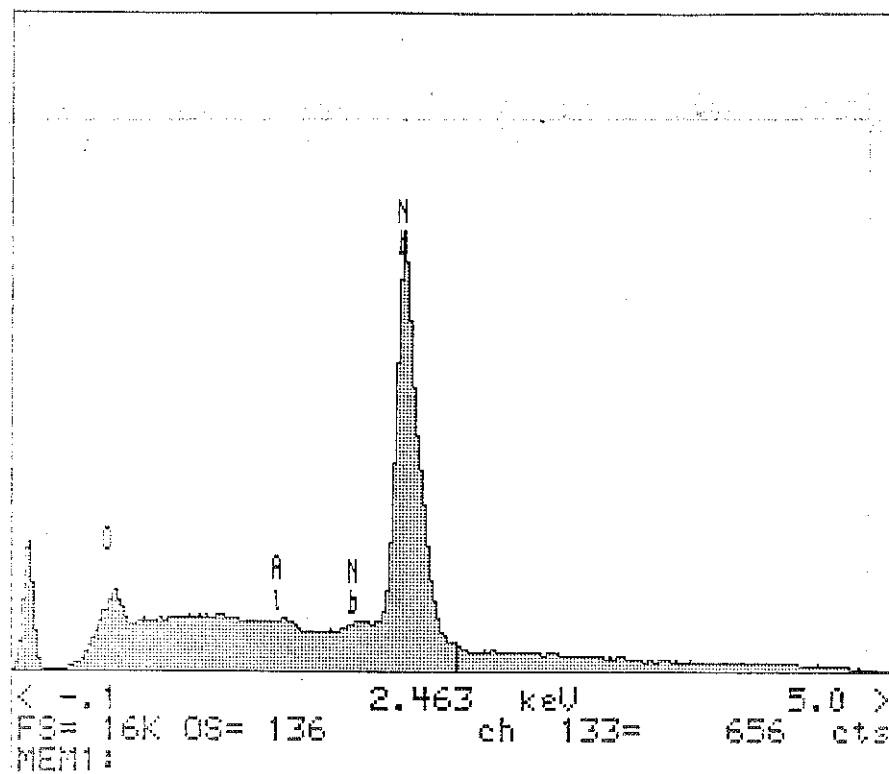


Figure II.10. Spectre d'un échantillon de niobium obtenu avec le système EDX.

II.1.3. SYSTEME PORTE-POINTES ET HAUTE TENSION

Pour mieux comprendre l'architecture du système porte-pointes dont un schéma est présenté sur la figure II.11, il est indispensable d'énumérer les impératifs qu'il doit respecter ainsi que les solutions technologiques retenues :

1. le système porte-pointes doit être compatible avec les exigences du MEB. En effet, l'implantation du système porte-pointes ne doit en aucun cas augmenter considérablement la distance de travail car celle-ci détermine en partie la résolution de l'imagerie en secondaire du MEB. De plus, les pointes qui sont positionnées dans l'axe du faisceau primaire, sont légèrement tiltées (voir figure II.11) de façon à éviter qu'elles ne masquent le faisceau, empêchant par la même toute imagerie simultanée de la pointe et de la zone située sous celle-ci. Finalement, ce dispositif doit être facilement démontable car cet appareil est également destiné à d'autres applications plus classiques.
2. la haute tension doit être amenée sur la pointe tout en protégeant le reste du dispositif. L'isolation électrique a été obtenue en intercalant dans la tige du porte-pointes une céramique de marque MACOR qui protège le MEB d'un éventuel contact électrique avec le porte-pointes.
3. il est impératif de pouvoir imager la même zone que celle soumise au champ appliqué par la pointe. Cette manoeuvre nécessite un déplacement suivant les axes O_x et O_y . La solution technique retenue est celle de deux vis micrométriques autorisant des déplacements suivant les deux axes O_x et O_y .
4. nous devons pouvoir analyser la zone sous la pointe, celle-ci doit donc être escamotable. Pour y arriver, nous procédons à un déplacement de la pointe suivant l'axe O_y .
5. il est important de disposer de plusieurs pointes pour améliorer la résolution du dispositif. A cause des problèmes d'encombrement et de la course maximale permises par les vis micrométriques (maximum : 25mm), nous nous sommes limités à trois pointes qui sont accessibles par translation suivant l'axe O_x . L'espacement entre pointes, de l'ordre de 12,5 mm définit la taille maximale autorisée pour les échantillons. En effet, au delà de cette taille, deux pointes pourront être simultanément en regard de la surface.
6. finalement, on doit pouvoir régler la distance entre le sommet de la pointe et la surface de l'échantillon de façon à définir un champ avec précision. Cette distance est réglée par l'intermédiaire d'une vis micrométrique qui permet un déplacement suivant l'axe O_z . L'encombrement vertical entraîne une distance de travail minimale supérieure à 18 mm. Un encombrement plus important détériore considérablement la résolution de l'imagerie du MEB.

7. la haute tension, de 0 à 6 kilovolts, issue d'un générateur de tension sans régulation en courant est introduite dans le MEB puis appliqué au porte-pointes.

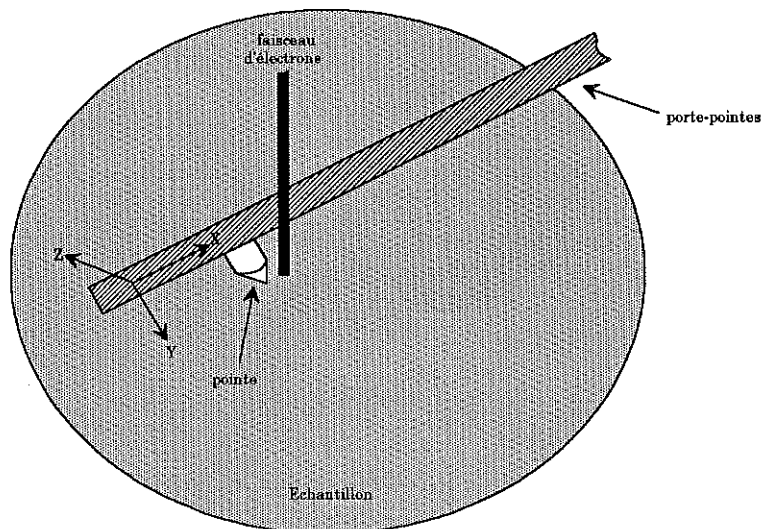


Figure II.11. Schéma fonctionnel du dispositif porte-pointes.

Remarque : lors du balayage en champ de la surface, le faisceau primaire du MEB est éteint et réciproquement, il n'est possible d'imager la surface que lorsque le champ électrique sur la pointe est supprimé.

II.2. PREPARATION DES ECHANTILLONS

II.2.1. CHOIX DES ECHANTILLONS ETUDIÉS

Cinq types d'échantillons ont été étudiés, chacun d'eux l'étant pour ses propriétés physiques intrinsèques ou pour celles de son oxyde. La taille des échantillons, de formes cylindriques ou carrées, n'excède pas 12 millimètres et l'épaisseur est voisine de 1 millimètre.

Le niobium : c'est le substrat le plus utilisé car c'est le matériau de base dans la fabrication des cavités haute fréquence supraconductrices. Le niobium utilisé est de très grande pureté avec une concentrations en éléments extrinsèques de l'ordre de 200 ppm.

L'or : ces échantillons ont été utilisés de façon à nous affranchir d'un éventuel rôle de l'oxyde sur l'émission électronique. En effet sur l'or, on peut s'attendre à n'avoir qu'une faible couche de contamination dont l'épaisseur est de quelques couches atomiques. Ces échantillons proviennent d'une feuille d'or de 1 millimètre d'épaisseur et dont la pureté est supérieure à 99,99 %.

L'aluminium : ce substrat a été utilisé en raison des propriétés très intéressantes d'un point de vue électrique de sa couche d'oxyde. En effet, l'alumine est un très bon isolant. Ces échantillons proviennent d'une feuille d'aluminium de 1 millimètre d'épaisseur et dont la pureté est supérieure à 99,99 %.

Le titane et le tantale : ces deux substrats n'ont été utilisés que pour leurs propriétés et celles de leurs oxydes respectifs voisines de celles du niobium. Ces échantillons proviennent de feuilles de 1 millimètre d'épaisseur et dont la pureté est supérieure à 99,99 %.

II.2.2. POLISSAGE DES ECHANTILLONS

Lorsque cela a été possible, nous avons préférés des échantillons polis électrolytiquement à des échantillons polis mécaniquement. Seule exception, les échantillons en or dont le polissage électrolytique fait appel à des produits chimiques contenant du cyanure.

II.2.2.1. POLISSAGE MECANIQUE

Ce type de polissage a été utilisé comme préliminaire au polissage électrolytique mais aussi en finition pour les échantillons d'or, de titane et de tantale.

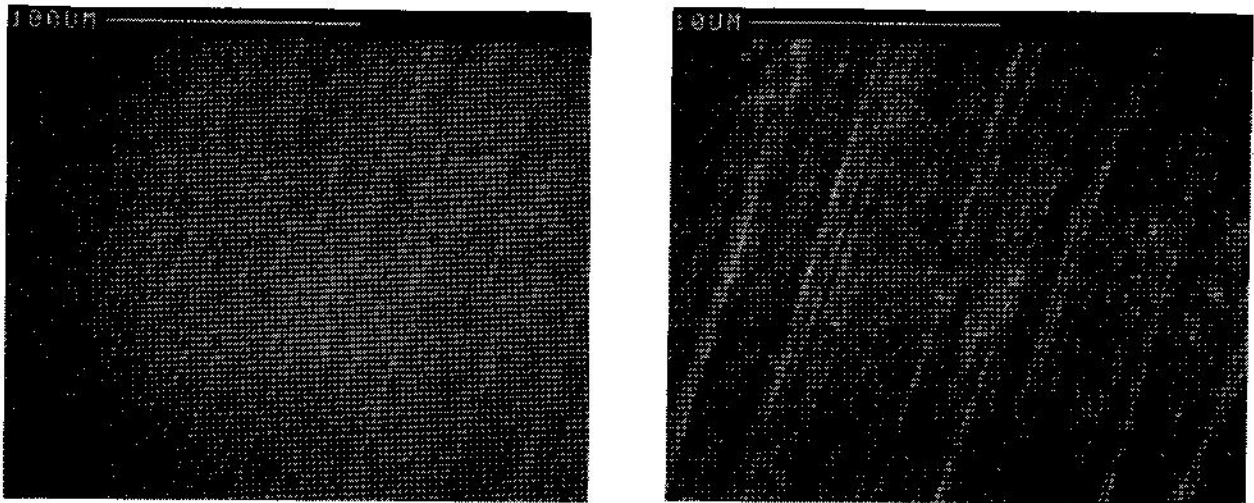


Figure II.12. Surface d'un échantillon d'or poli mécaniquement.

Le polissage mécanique débute par du papier abrasif à base de carbure de silicium (SiC) de grade 180 puis de façon dégressive jusqu'au grade 800. Nous préférons éviter les grades supérieurs (ex : 1200) afin d'éviter l'écrouissage de la surface dont ils sont souvent rendus responsables. Lorsqu'aucun polissage électrolytique n'est envisagé, le polissage mécanique est poursuivi avec de la pâte diamant puis finalement en finition avec de l'alumine dont la taille finale est de 0,3 microns. Nous attirons l'attention sur la nécessité de croiser les polissages à

chaque changement de grade afin d'obtenir une meilleure qualité de la surface. La figure II.12 montre une micrographie obtenue au MEB de la surface d'un échantillon d'or poli mécaniquement.

II.2.2.2. POLISSAGE CHIMIQUE

Cette attaque chimique est utilisée pour le "polissage" des cavités hautes fréquences supraconductrices en niobium. Elle est obtenue par immersion de l'échantillon ou de la cavité en niobium dans un mélange d'acide fluorhydrique (HF), d'acide nitrique (HNO_3) et d'acide orthophosphorique (H_3PO_4) dans des proportions volumiques relatives 1.1.2 respectivement. L'acide fluorhydrique (HF) est utilisé car il dissout l'oxyde de niobium (Nb_2O_5), l'acide nitrique (HNO_3) oxyde le niobium et l'acide orthophosphorique (H_3PO_4) permet de réguler la vitesse d'attaque. Pour nos études, nous avons utilisé le mélange décrit précédemment qui donne une vitesse d'attaque de 1 micron par minute et une rugosité comprise entre 1 et 5 microns. La figure II.13 montre une micrographie obtenue au MEB de l'état de surface d'un échantillon de niobium après ce type d'attaque chimique. Par la suite, nous appellerons ce polissage chimique, le polissage du type "Saclay".

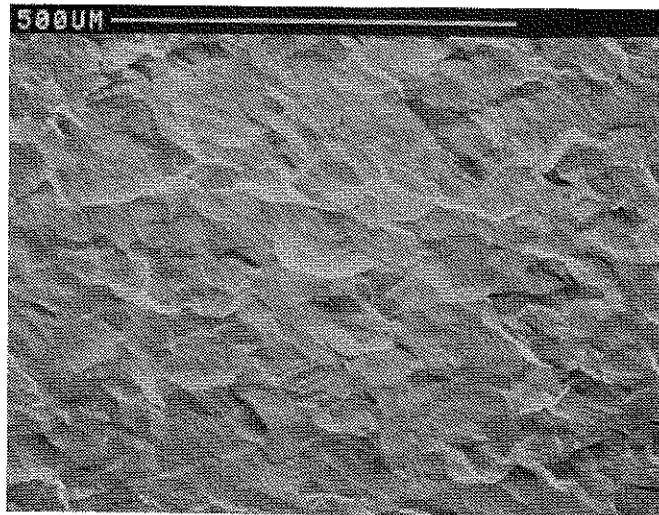


Figure II.13. Surface d'un échantillon de niobium ayant subi un polissage chimique du type "Saclay".

Remarque : Les cavités en niobium sont réalisées par soudure de tôles de niobium obtenues par laminage. Le polissage chimique a deux rôles essentiels, il permet d'éliminer la couche de surface qui a été écrouie par le laminage ou et permet également de nettoyer la surface. En effet, la propreté de la surface et de la couche superficielle de la cavité (face intérieure) est directement corrélée à l'émission électronique de champ et à la résistance de surface. Il est primordial que cette surface soit la plus propre possible.

II.2.2.3. POLISSAGE ELECTROLYTIQUE

- **Cas du niobium** : le polissage est réalisé dans un bain composé du mélange suivant :

- acide sulfurique (H ₂ SO ₄)	d = 1,83 à 96 %	210 cm ³
- acide lactique	d = 1,23 à 99 %	210 cm ³
- acide fluorhydrique (HF)	d = 1,16 à 48 %	80 cm ³

La tension appliquée est de 7 volts, le bain est thermostaté à +40 °C, la durée d'un polissage est de 10 minutes en présence d'une agitation lente. La cathode, de forme cylindrique est en platine. La préparation du bain se fait en milieu réfrigéré (T < 0°C) car il est exothermique. Il est préférable de préparer le bain juste avant son utilisation car son activité décroît assez rapidement dans le temps. On recommande toutefois de laisser le bain reposer pendant une dizaine de minutes après sa préparation. La figure II.14 montre une micrographie obtenue au MEB de la surface d'un échantillon de niobium poli électrolytiquement.

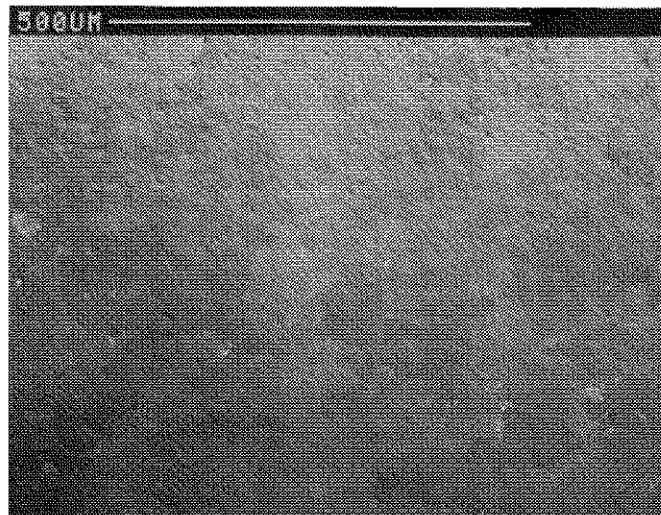


Figure II.14. Surface d'un échantillon de niobium ayant subi un polissage électrolytique.

- **Cas de l'aluminium** : le polissage est réalisé dans un bain composé du mélange suivant :

- acide acétique	275 cm ³
- acide perchlorique	50 cm ³
- Ether monobuthylique de l'éthylène glycol	50 cm ³

La tension appliquée est de 20 volts, la durée d'un polissage est de 5 minutes en présence d'une agitation lente. La cathode, de forme cylindrique, est en platine. Lorsque le polissage s'avère trop rapide, il est conseillé de travailler à la température de la glace fondante ou (et) de

rajouter de l'éthylène glycol. L'état de surface obtenu avec ce polissage est similaire à celui obtenu avec le polissage électrolytique du niobium.

II.2.3. OXYDATION ANODIQUE

L'oxydation anodique est une méthode qui permet de faire croître à la surface d'un métal, une couche d'oxyde d'épaisseur contrôlée.

II.2.3.1. MODE OPERATOIRE

Toutes nos oxydations ont été réalisées en mode galvanostatique dans une cellule d'électrolyse (verre) de forme cylindrique sur des échantillons polis électrolytiquement. La taille et la forme de la cellule sont adaptées à l'étude réalisée.

Avant le polissage électrolytique, un fil, de même nature que l'échantillon et destiné à amener le courant est soudé électriquement à l'échantillon. Ce fil est verni avant immersion. La surface est ainsi parfaitement définie.

La figure II.15 donne le schéma de principe du montage utilisé. Ce montage permet de pré-régler avec précision l'intensité du courant avant l'expérience d'anodisation. Un enregistreur X(t) permet l'obtention des caractéristiques $V=f(t)$ à courant constant. Lors de la mise sous tension, on observe une transitoire de tension correspondant à la chute de potentiel dans l'électrolyte (voir la figure II.16). Cette valeur doit être déduite de la tension totale atteinte, pour obtenir la surtension dans le film proprement dite, seule valeur significative dans le cas de notre étude. L'épaisseur e de la couche anodique qui est directement proportionnelle à la tension réelle appliquée à la couche est donnée par l'expression : $e=\alpha.V$ où e est en Angströms, V en volt et α en Angströms/Volts. Les valeurs du coefficient α sont extraites de la littérature.

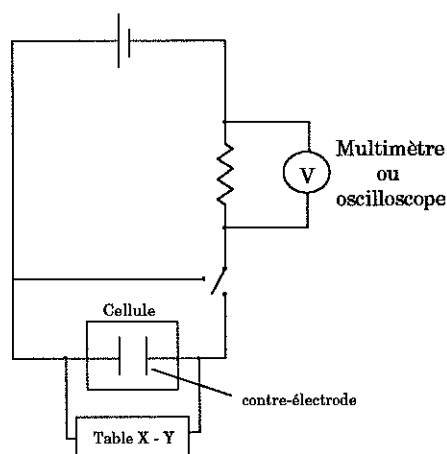


Figure II.15. Schéma de principe du montage utilisé pour le processus d'anodisation.

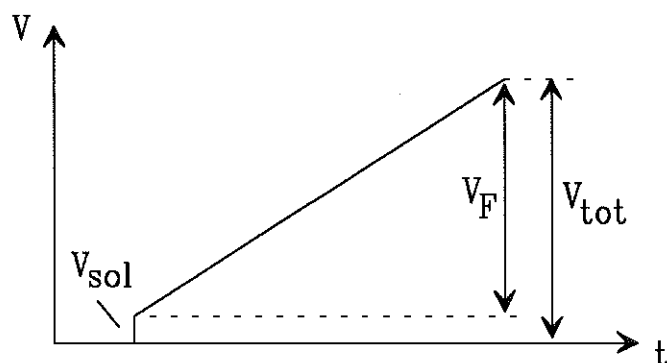


Figure II.16. Schéma de la caractéristique $V = f(t)$ à courant constant obtenue lors de l'anodisation d'un échantillon. V_{tot} est la chute de tension totale aux bornes de la cellule, V_{sol} est la chute de tension dans l'électrolyte et V_F est la chute de tension aux borne du film, dite tension de formation. C'est la seule valeur à prendre en compte pour calculer l'épaisseur des films.

II.2.3.2. ELECTROLYTES D'OXYDATION

Cas du niobium : l'électrolyte utilisé pour l'oxydation anodique a été préparé à partir d'eau bidistillée. Les oxydations ont été réalisées uniquement en milieu basique de soude 0,1 N. Cette soude 0,1 N a été préparé à partir de solutions commerciales pré-titrés afin d'éviter toute carbonatation. Dans le cas du niobium, α a pour valeur 20,5 Angströms/volt pour une densité de courant de 10 mA/cm².

Cas de l'aluminium : L'électrolyte utilisé pour l'oxydation anodique a été préparé par dilution de tartrate de sodium dans les proportions suivantes : 30 grammes/litre ce qui nous donne une solution 2M. Dans le cas de l'aluminium, α vaut 14 Angströms/volt pour une densité de courant de 2 mA/cm².

II.2.4. RINÇAGE DES ECHANTILLONS

Immédiatement après la fin du polissage, qu'il soit mécanique, chimique ou électrolytique, ou de l'oxydation anodique, un rinçage abondant est réalisé avec de l'eau ultra pure (18 M Ω). Les échantillons sont ensuite traités pendant une dizaine de minutes par ultrasons dans un bain d'alcool et d'eau distillée. Il sont finalement rincés à l'alcool puis séchés avec un gaz très pur (azote ou hélium). Avec ce traitement, il ne reste qu'exceptionnellement des traces de contamination liées au polissage ou au rinçage.

II.3. PREPARATION DES POINTES

Au cours de nos études, nous avons utilisé deux natures différentes de pointes en fonction des résultats recherchés : (1) Les pointes destinées à la localisation des sites émetteurs et à l'étude du courant d'émission ont été réalisées en

tungstène à cause de la grande rigidité de ce matériau. (2) Pour d'autres applications sur des échantillons de niobium et excluant des matériaux de nature extrinsèques, nous avons réalisé des pointes en niobium.

II.3.1. POINTES EN TUNGSTENE

Deux méthodes de fabrication ont été utilisées pour réaliser les pointes : des polissages mécaniques et des polissages électrolytiques. Le polissage mécanique a été réservé aux pointes dont la taille excède 100 microns. Celles-ci sont réalisées par polissage mécanique d'un fil de tungstène enrobé. Ces pointes, dont l'extrémité est plane, sont réservées au balayage de la surface. Bien entendu, à cause de leurs tailles, ces pointes ne donnent qu'une faible résolution dans la localisation des sites émetteurs. Pour affiner la localisation, nous utilisons des pointes dont le rayon de courbure au sommet est inférieur à 20 microns. Ces pointes sont obtenues par voie électrolytique à partir de fils de diamètre compris entre 100 et 500 microns. Une tension d'environ vingt volts alternatifs est appliquée au fil placé dans d'un circuit d'électrolyse dont la contre électrode est constituée d'une lame de platine et l'électrolyte d'une solution aqueuse de 1 N de soude. Plus le diamètre du fil est faible et meilleure est la probabilité d'obtenir des pointes de rayon de courbure au sommet inférieur à 5 microns. Pour améliorer les résultats obtenus sur des diamètres de fil de 1mm, nous réalisons une première étape d'amincissement du fil puis la finition de la pointe par immersion de la zone amincie. On arrive par cette technique à fabriquer des pointes dont le rayon de courbure au sommet est inférieur à 5 microns.

Remarque : Il n'est pas nécessaire de réaliser des pointes dont le rayon de courbure au sommet est inférieur à 1 micron. En effet, aucune amélioration de la localisation des sites émetteurs ne peut être obtenue par l'utilisation de plus petites pointes car la résolution est limitée par la précision des moteurs pas à pas pilotant les déplacements de la platine porte-pointes mais aussi par les vibrations résiduelles du microscope.

La géométrie des pointes obtenues par polissage mécanique est plane alors que celle obtenue électrolytiquement est proche d'une géométrie hyperbolique. La figure II.17 représente une pointe plane (a) (de dimensions : 300*100 μm) et une pointe fine de géométrie hyperbolique (b).

Remarque : La géométrie rectangulaire de la pointe réduit la zone d'application du champ sous la pointe et facilite donc la localisation des sites émetteurs.

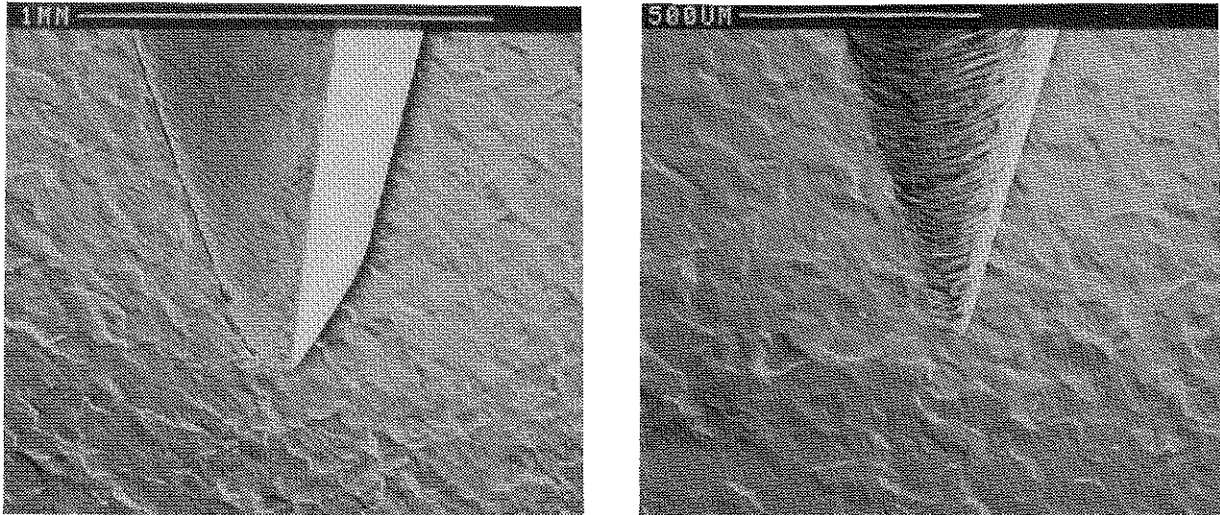


Figure II.17. Micrographies d'une pointe plane (a) et d'une pointe fine de géométrie hyperbolique (b) réalisées à partir de fils de tungstène.

II.3.2. POINTES EN NIOBIUM

Elles ont été réalisées électrolytiquement avec le même dispositif que précédemment mais à partir d'un fil de un millimètre de diamètre. Ce fil est dans un premier temps aminci dans un électrolyte composé de 60 % d'acide nitrique (HNO_3) et de 40 % d'acide fluorhydrique (HF). Une tension d'environ vingt volts alternatifs est appliquée au fil placé en anode d'un circuit d'électrolyse dont la cathode est constituée d'une lame de platine. La finition de la pointe, par immersion de la zone amincie, est réalisée dans les mêmes conditions que celles du polissage électrolytique du niobium jusqu'à ce que le courant dans le circuit devienne nul.

II.4. PROTOCOLE D'IDENTIFICATION ET D'ETUDE D'UN SITE EMETTEUR

II.4.1. LOCALISATION D'UN SITE EMETTEUR

Rappels : un site émetteur est une zone de la surface qui émet des électrons sous l'effet d'un champ électrique appliqué.

L'échantillon dont on va étudier l'émission est connecté à la masse alors que les pointes qui permettent d'appliquer localement le champ sont portées à un potentiel positif (0 - 6 kV). Lorsque la pointe s'approche d'un site émetteur, le champ provoque l'émission d'électrons qui vont être collectés par la pointe. Le circuit étant bouclé sur un picoampèremètre, il est donc possible de mesurer le courant d'émission.

Avant de procéder à la recherche des sites émetteurs présents sur une surface, il convient donc de définir le champ électrique pour lequel nous voulons réaliser

cette recherche. En effet, il existe une corrélation directe entre le nombre de sites émetteurs localisés et le champ appliqué : plus le champ sera élevé et plus le nombre de sites émetteurs sera important et vice versa. Le réglage du champ appliqué est donc le paramètre important dans la recherche des sites émetteurs. Ce réglage se fait en deux étapes:

réglage de la distance entre la pointe et la surface : celui-ci se fait en respectant le protocole suivant : La pointe étant placée à plusieurs centaines de microns de la zone à étudier, l'échantillon (qui est posé sur la platine porte-échantillon) est approché de la pointe (grâce à la motorisation pas à pas de la platine porte-échantillon) jusqu'à ce que les deux surfaces entrent en contact. Ce contact peut être détecté précisément par l'établissement d'un courant visible sur le picoampèremètre si l'on a pris soin d'établir une faible différence de potentiel (quelques volts suffisent) entre la pointe et l'échantillon. La distance pointe/surface peut donc être réglée précisément à l'aide de la vis micrométrique commandant le déplacement vertical du porte-pointes.

affichage de la tension souhaitée : la distance pointe/surface étant déjà réglée, c'est la tension appliquée à la pointe qui définit le champ électrique souhaité pour la recherche des sites émetteurs.

Une fois le champ électrique réglé, deux protocoles sont utilisés selon que l'on effectue un balayage "aveugle" de la surface ou alors que l'on teste l'émission d'une zone dont la morphologie a attiré notre attention.

balayage "aveugle" : la pointe utilisée est une pointe rectangulaire de taille : 300*100µm. Il convient de s'assurer d'un bon recouvrement entre les balayages afin d'éviter d'"oublier" des zones de la surface. Lorsque tous les sites émetteurs, s'il en existe, sont identifiés, il ne reste plus qu'à affiner la localisation de l'émission en utilisant une plus petite pointe de rayon de courbure au sommet inférieur à 5 microns. La zone d'émission correspond au maximum du courant d'émission.

balayage "sélectif" : la procédure consiste à étudier l'émission d'une région que nous avons sélectionnée en raison de certaines singularités : zones perturbées de la surface, particules de nature extrinsèque, cratères,... La taille de la pointe utilisée dépendra de la taille de la surface à étudier.

Remarque:

- 1. Lors d'un balayage dans le voisinage d'un site émetteur et lorsque son courant d'émission devient supérieur à 10 nA, le champ appliqué est réduit (manuellement) par diminution de la tension appliquée à la pointe entraînant alors une diminution du courant d'émission. Cette étape est primordiale car des courants d'émission supérieurs à plusieurs dizaines de nanoampères peuvent entraîner la modification voire même la destruction du site émetteur.*
- 2. Le maximum d'émission est recherché en déplaçant la pointe (petite ou grosse) dans un plan parallèle à la surface.*

3. Dans les deux cas de figure, la mise sous tension de la pointe suppose que l'on ait tout d'abord coupé le faisceau électronique du microscope. On n'a alors plus d'image de la surface.

II.4.2. ETUDE DE LA MORPHOLOGIE ET DE LA COMPOSITION CHIMIQUE ELEMENTAIRE D'UN SITE EMETTEUR

Une fois obtenue la localisation exacte de l'émission, le rétablissement du faisceau primaire du MEB permet d'imager la zone sous la pointe. La morphologie du site émetteur peut alors être étudiée avec une bonne précision, dans le plan de la surface mais aussi de profil par inclinaison (tilt) de l'échantillon jusqu'à une incidence presque rasante du faisceau primaire du MEB. Le système de microanalyse (EDX) permet d'analyser la composition chimique élémentaire du site émetteur et donc d'en déduire son origine.

II.4.3. DETERMINATION DU CHAMP SEUIL D'EMISSION

La distance pointe/surface étant réglée conformément au protocole défini au paragraphe II.4.1 (habituellement 50 μ m), des balayages sont réalisés dans un plan parallèle à la surface jusqu'à ce que, pour un champ électrique donné, un courant d'émission soit observé. Nous considérons être en présence d'un courant d'émission lorsque celui-ci est 100 fois supérieur à la valeur moyenne affichée par le picoampèremètre sur le reste de l'échantillon. Lorsqu'aucune émission n'est observée, des balayages supplémentaires sont réalisés à des champs électriques plus élevés.

Le site émetteur étant localisé, la tension appliquée est réduite tout en positionnant la pointe (par déplacement dans un plan parallèle à la surface) de façon à maximiser le courant d'émission en s'assurant de ne pas laisser la valeur du courant passer sous le niveau préétabli. Le champ électrique minimal pour lequel un courant significatif (quelques dizaines de picoampères ou 10 fois le bruit du picoampèremètre) peut être observé est défini comme étant le champ seuil d'émission.

Remarque : Une vérification rapide du bien fondé de la valeur obtenue pour le champ seuil d'émission consiste à s'assurer à l'aide de l'imagerie du microscope que le site émetteur est bien positionné sous la pointe. Dans le cas contraire, il est préférable de vérifier que cette zone correspond bien au site émetteur recherché.

En général, le bruit du picoampèremètre est inférieur à 1 pA et le champ seuil d'émission correspond au champ appliqué pour lequel le courant d'émission est égal à 10 pA. De plus, nous conserverons dans la suite de nos études, la distance pointe/surface constante afin de nous affranchir des variations existant entre le courant d'émission et la distance pointe/surface (voir chapitre I, paragraphe I.2.4).

II.4.4. CARACTERISTIQUES COURANT-TENSION

En plus de la morphologie d'un site émetteur, de sa composition chimique élémentaire et de son champ seuil d'émission, le dispositif permet de relever des caractéristiques courant-tension ($I=f(V)$). En effet, les variations du courant d'émission I en fonction de la tension appliquée (donc du champ E lorsqu'on connaît la distance pointe/surface) permettent lorsqu'elles sont portées dans un diagramme de Fowler et Nordheim (I/E en abscisse et $\text{Ln}[I/E^2]$ en ordonnée) d'obtenir les valeurs des paramètres β et S où β est le facteur de renforcement local du champ électrique sur le site et S sa surface émissive. Pour la gamme de champ que nous étudions (entre 10 et 120 MV/m) et comme déjà démontré dans le chapitre I, nous ne commettons pas d'erreur significative en prenant pour expression du courant d'émission, l'équation (I.10) du chapitre I, qui est la formulation simplifiée de l'équation de Fowler et Nordheim.

Cependant, dans notre cas concret, pour les courants supérieurs au microampère, nous corrigeons de la valeur de la tension appliquée, la valeur de la chute de potentiel dans les deux résistances de protection.

$$I = \frac{A.S}{\phi} (\beta.E)^2 \cdot \exp\left(-\frac{B.\phi^{\frac{3}{2}}}{\beta.E}\right) \quad (\text{II.1})$$

$$\text{Ln}\left(\frac{I}{E^2}\right) = \text{Ln}\left(\frac{A.S.\beta^2}{\phi}\right) - \frac{B.\phi^{\frac{3}{2}}}{\beta.E} \quad (\text{II.2})$$

$$\text{Ln}\left(\frac{I}{E^2}\right) = a.\frac{1}{E} + b \quad (\text{II.3})$$

Le rapprochement des expressions (2) et (3) donne:

$$a = -\frac{B.\phi^{\frac{3}{2}}}{\beta} \quad \text{et} \quad b = \text{Ln}\left(\frac{A.S.\beta^2}{\phi}\right) \quad (\text{II.4})$$

$$\text{d'où} \quad \beta = -\frac{B.\phi^{\frac{3}{2}}}{a} \quad \text{et} \quad S = \frac{\phi.\exp(b)}{A.\beta^2} \quad (\text{II.5})$$

Le courant est exprimé en ampères et le champ en volts par mètre, le travail de sortie ϕ en eV. Avec ces unités, les constantes A et B ont pour valeurs respectives: $A=1,54.10^{-6}$, $B=6,83.10^9$. Le travail de sortie ϕ du niobium est habituellement pris égal à : $\phi=4$ eV.

Remarque:

1. A cause de la fonction exponentielle intervenant dans l'expression de Fowler et Nordheim, on peut dans certains cas obtenir une bonne linéarité dans les

coordonnées $\ln(I/E^2)$ en fonction de $1/E$, sans que l'on soit pour cela en présence d'un phénomène d'émission de champ.

2. Incertitudes sur les mesures des coefficients β et S . L'erreur réalisée sur le facteur β est la même que celle réalisée sur la mesure de la pente du diagramme de Fowler et Nordheim. L'erreur réalisée sur la surface émissive S est plus difficile à estimer car elle dépend à la fois des erreurs réalisées sur la pente et sur l'ordonnée à l'origine. A titre d'exemple, une variation de 10 % de la valeur de la pente ou de la valeur de l'ordonnée à l'origine entraîne une erreur d'un ordre de grandeur si l'on prend pour référence $\beta = 200$ et $S = 10^{-16} \text{ m}^2$.

II.5. VERIFICATION EXPERIMENTALE DU DISPOSITIF

Avant de commencer nos études, il nous a paru indispensable de vérifier la fiabilité de cet équipement ainsi que la reproductibilité de nos résultats. Nous avons donc, dans l'ordre, procédé au contrôle de l'alimentation haute tension, de la stabilité des résistances de protection, de la stabilité du picoampèremètre permettant la mesure du courant d'émission puis de l'étude de la reproductibilité du protocole permettant d'obtenir les champs seuils d'émission. Finalement, nous n'oublierons pas d'évaluer l'effet d'un vide moyen dans l'enceinte du microscope sur les mesures des courants d'émission.

II.5.1. ETALONNAGE DE LA SOURCE DE HAUTE TENSION

La figure II.18 montre la bonne fiabilité de notre source de haute tension. En effet, la droite de régression obtenue à partir des valeurs théoriquement appliquées et des valeurs expérimentalement relevées donne les coefficients suivants : pente $a_x = 1,02$, ordonnée à l'origine $b = 0,009$ et $r = 99,9998 \%$. Ces résultats correspondent à une erreur relative faible, de l'ordre de 2% sur la tension appliquée.

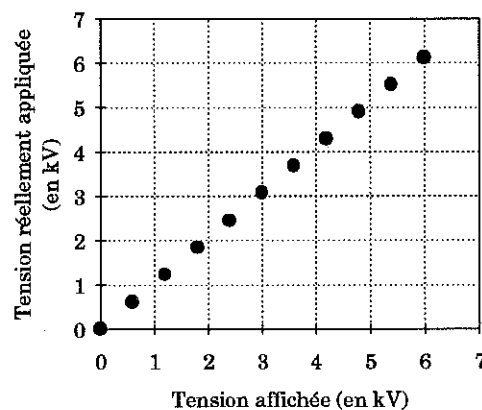


Figure II.18. Graphique montrant en abscisse la tension affichée sur le générateur de tension et en ordonnée la tension réellement appliquée.

II.5.2. FIABILITE DES RESISTANCES DE PROTECTION

La valeur des résistances devant être prise en compte pour corriger les valeurs de la tension appliquée entre la pointe et l'échantillon lorsque le courant d'émission devient supérieur au microampère, il nous a paru important de vérifier leur stabilité à la haute tension. La figure II.19 montre l'évolution du courant mesuré dans le circuit en fonction de la tension appliquée. La droite de régression est satisfaisante ($r=99,9998\%$) et la résistance totale (calculée à partir de la valeur de la pente) égale à : $1,98.10^8$ Ohms, est très proche de la valeur attendue : 2.10^8 Ohms (moins de 1% d'erreur).

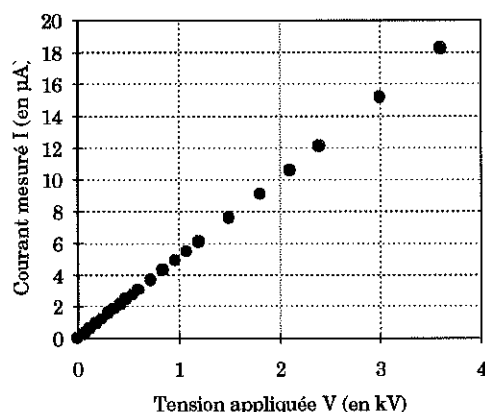


Figure II.19. Evolution du courant dans les résistances de protection en fonction de la tension appliquée aux bornes de celles-ci.

II.5.3. FIABILITE DU PICOAMPEREMETRE

Le picoampèremètre utilisé pour mesurer le courant d'émission est un appareil de marque Keithley modèle 485. En cas de court circuit entre l'anode et la cathode, il est protégé par deux résistances (voir la figure II.1.b) de 100 mégohms chacune destinées à limiter la tension appliquée aux bornes du picoampèremètre.

Le choix de résistances de très bonne qualité ainsi que l'utilisation de câbles coaxiaux à faible niveau de bruit permet d'obtenir un bruit résiduel en courant très faible. De plus, la réduction maximale de la longueur des fils ainsi que la mise en place de blindages connectés tous à la même masse nous permet d'avoir un courant de bruit inférieur à 0,3 pA. La bonne régulation en température du local où est installé le MEB (climatisation permanente) contribue à la stabilité du picoampèremètre.

II.5.4. REPRODUCTIBILITE DES CHAMPS SEUILS D'EMISSION

La mesure des champs seuils d'émission est le principal avantage de ce dispositif, aussi avons nous accordé une attention très particulière à cette étape. Tout d'abord nous présentons les résultats montrant la reproductibilité du

système permettant de régler la distance pointe/surface puis la reproductibilité de la mesure du champ seuil d'émission.

Le système de réglage de la distance pointe/surface par l'intermédiaire d'une vis micrométrique permet d'obtenir une mesure entachée d'une erreur relative sur le réglage pointe/surface inférieure à 10%. Les figures II.20 et II.21 montrent respectivement la reproductibilité du réglage de la distance pointe/surface et celle de la mesure du champ seuil d'émission obtenue sur un site émetteur particulièrement stable. Cependant, ces deux paramètres étant liés l'un à l'autre, il est nécessaire de les analyser simultanément.

La figure II.20 représente les variations des tensions appliquées en fonction de la distance pointe/surface à courant d'émission constant. Elle contient de nombreuses informations importantes. En effet, l'intersection de la droite de régression avec l'axe des abscisses permet de déduire la hauteur du site émetteur. D'où, connaissant la vraie hauteur (obtenue avec le MEB par inclinaison de l'échantillon) de ce site, on peut en déduire l'erreur faite sur le réglage de la distance pointe/surface à partir de plusieurs mesures du même type. De plus, comme on peut le voir sur cette figure, le fait de prendre des repères en courant différents (10 pA et 1 nA) ne semble pas changer les résultats obtenus. La valeur du coefficient de corrélation ($r_{10pA}=99,88\%$, $r_{1\mu A}=99,78\%$) traduit deux faits importants :

- les déplacements relatifs sont obtenus avec une précision de l'ordre du micron,
- la mesure des champs seuils, dont la stabilité ne dépend pas de la valeur du courant d'émission choisi, montre une bonne reproductibilité de notre protocole de mesure.

La figure II.21 confirme les deux résultats précédents. En effet, elle montre en abscisse la mesure des champs seuils d'émission (pour un courant de 10 pA) de plusieurs sites émetteurs et en ordonnée une seconde mesure des champs seuils d'émission des mêmes sites émetteurs après que l'échantillon ait été sorti puis réintroduit dans notre dispositif expérimental. Les bons paramètres de la droite de régression ($a_x=0.9729$, $b=2.2058$ et $r=99,59\%$) confirment les deux résultats précédents à savoir : la bonne reproductibilité du réglage de la distance pointe/surface et celle de la mesure des champs seuils d'émission.

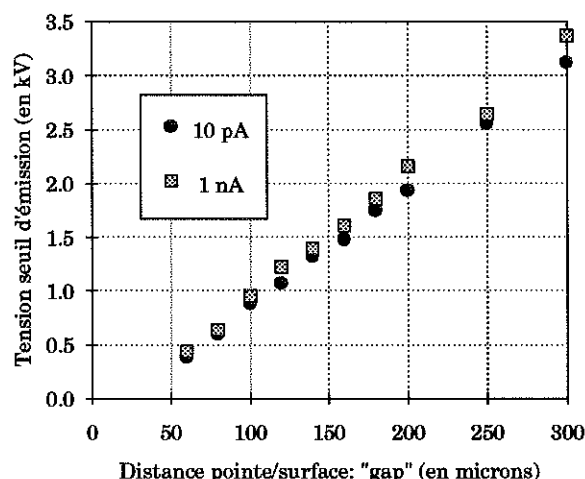


Figure II.20. Evolution des tensions appliquées en fonction de la distance pointe/surface à courant d'émission constant.

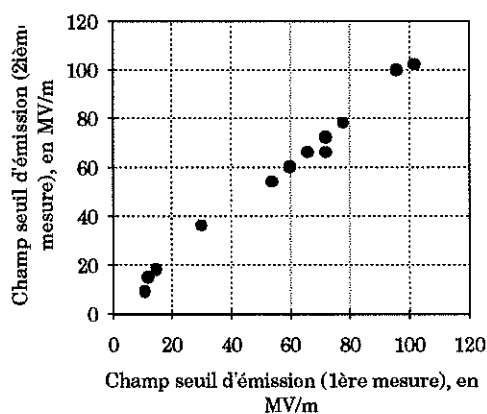


Figure II.21. Comparaison des champs seuils d'émission d'une série de défauts géométriques réalisés sur un échantillon en or, avant et après que l'échantillon ait été sorti puis réintroduit dans le MEB.

II.5.5. CONSEQUENCES LIEES A L'ABSENCE D'UNE ENCEINTE ULTRAVIDE

Le vide dans le MEB, dont la pression est de l'ordre de 10^{-5} Pa, est obtenu à l'aide d'une turbopompe installée juste sous la chambre et d'une pompe primaire montée en sortie de celle-ci. Ce vide ne peut être amélioré de façon simple à cause du système d'étanchéité utilisé (joints toriques). Nous avons donc décidé d'évaluer l'impact d'une variation de pression entre 7.10^{-3} et 10^{-5} Pa sur la mesure du courant d'émission et sur les valeurs des champ seuil d'émission. Pour cela, nous avons réalisé deux types d'expériences :

- Le suivi de l'évolution du courant d'émission en fonction de la pression dans la chambre du MEB n'a montré aucune variation importante du

courant d'émission en fonction de la pression dans la gamme de pression allant de 7.10^{-3} à 10^{-5} Pa. Pour réaliser cette expérience, une fois la pression dans la chambre du MEB de l'ordre de 10^{-5} Pa, nous nous sommes placé sur un site émetteur que nous avons fait émettre (courant d'émission de l'ordre d'une centaine de nanoampères). La mise de la chambre du MEB sous vide statique permet d'observer l'effet d'une remontée lente de la pression dans celle-ci. Aucun effet, ni sur les champs seuils d'émission, ni sur le courant d'émission n'a été observé pendant les montées ou les descentes en pression dans la gamme de pression précitée.

- Les champs seuils d'émission et les courbes courant-tension relevées sur plusieurs sites émetteurs n'ont montré aucun effet dû à des distances pointe/surface différentes (ex : les valeurs relevées pour une distance pointe/surface de 50 μm sont les mêmes que celles relevées pour une distance de 100 μm). Cette observation prouve que la qualité du vide résiduel sous la pointe ne varie pas beaucoup dans une gamme de distances pointe/surface allant de 40 à 100 microns.

Les caractéristiques de l'émission électronique de champ sont indépendantes de la pression dans la chambre et nos résultats semblent donc indiquer que dans la gamme de champ que nous étudions et pour les variations de pression que nous observons, nos mesures semblent être reproductibles. Ceci, ne signifie en aucun cas que la qualité du vide ne joue aucun rôle dans l'émission de champ mais tout simplement que lorsque nous nous situons dans une gamme de pression comprise entre 10^{-4} et 10^{-5} Pa, nous nous plaçons dans des conditions expérimentales reproductibles et que par conséquent les comparaisons que nous serons amenés à établir seront parfaitement fondées.

CHAPITRE III

RESULTATS EXPERIMENTAUX

III.1. LES SITES EMETTEURS NATURELS

**III.2. CONTAMINATION SELECTIVE EN
PARTICULES**

III.3. DEFAUTS GEOMETRIQUES

**III.4. PHENOMENES PHYSIQUES
ASSOCIES A L'EMISSION
ELECTRONIQUE DE CHAMP**

III.1. LES SITES EMETTEURS NATURELS

III.1.1. DEFINITION

Un site émetteur naturel est défini comme étant un site :

- qui n'a pas été introduit ou fabriqué intentionnellement sur la surface,
- qui émet un courant supérieur à 10 pico-ampères ou 10 fois supérieur au bruit.

III.1.2. RESULTATS

Les études réalisées sur l'émission électronique par effet de champ mesurée des électrodes planes et en courant continu ou dans des cavités hautes fréquences ont montré que l'émission des électrons provenait de zones très localisées de la surface. Cependant, à ce jour, aucune relation n'a pu être établie entre les caractéristiques intrinsèques des sites émetteurs naturels et leur aptitude à l'émission. Aussi, afin de mieux identifier l'origine et la nature de ces sites émetteurs, avons nous réalisé une campagne d'études sur des échantillons de niobium ayant subi le même processus de préparation (même traitement chimique, même rinçage) que celui réalisé sur les cavités hautes fréquences, à l'exception du séchage en salle blanche qui n'est réalisé que sur les cavités.

Deux approches différentes ont été retenues pour l'étude de ces sites émetteurs naturels :

- des balayages aveugles en champ de plusieurs échantillons,
- des balayages localisés afin d'étudier l'émission de zones présentant des singularités par rapport au reste de la surface.

III.1.2.1. BALAYAGES AVEUGLES

Cette méthode consiste à réaliser des balayages systématiques d'une surface avec un champ électrique prédéterminé. L'application du champ électrique pouvant modifier l'aspect de la surface, celle-ci a été imagée au préalable afin de localiser (par leurs coordonnées (x,y)) toutes les singularités. Après plusieurs balayages successifs, nous avons constaté que tous les sites émetteurs relevés sur la surface correspondent exactement à des zones déjà identifiées en mode "imagerie" comme présentant des singularités par rapport à une surface vierge. Ces résultats confirment que l'émission provient effectivement de sites très

localisés de morphologie différente de celle du reste de la surface. Deux grandes familles de sites émetteurs ont pu être ainsi dégagées : les sites émetteurs géométriques qui ont pour origine des défauts géométriques de la surface et les sites émetteurs dus à des particules de contamination.

Définitions :

Défaut géométrique : Un défaut sera qualifié de géométrique lorsque son analyse chimique élémentaire, avec l'appareil utilisé, ne révélera aucun élément de nature extrinsèque à l'échantillon étudié. L'apparence du défaut géométrique, en général une zone géométriquement très perturbée, contraste fortement avec le reste de la surface. Ces défauts proviennent probablement de chocs ayant entraîné des déformations du niobium ou alors d'attaques chimiques préférentielles (voir figure III.1).

Remarque : Ces sites étant peu nombreux sur les surfaces "naturelles", il n'est donc pas possible de fournir une statistique sur la taille ou les champs seuils d'émission. Cependant, il convient d'insister sur le fait que l'émission de ces sites est à la fois très intense et très stable (émission de plusieurs microampères à $E < 40 \text{ MV/m}$).

Particules de contamination : On les rencontre plus fréquemment sur la surface. Elles peuvent avoir trois origines différentes : l'acide utilisé pour l'attaque chimique, l'eau de rinçage ou l'air (manipulations hors salle blanche). Au cours de nos travaux, seul l'effet global de ces quatre origines différentes de contamination a été étudié. La figure III.2 montre deux exemples de particules dues à une contamination naturelle d'un échantillon de niobium.

Le nombre de défauts géométriques présents sur une surface est très faible (souvent inférieur à un défaut/cm²). La densité de particules de contamination est très variable d'un échantillon à un autre mais son ordre de grandeur se situe autour de 100 particules/cm², pour des particules dont la taille est supérieure à 5 microns. La densité de sites émetteurs pour des valeurs de champs électriques appliqués inférieurs à 40 MV/m se situe aux environs de 5 à 10 émetteurs/cm² dans les cas les plus défavorables c'est à dire pour les échantillons fortement contaminés. Le taux maximal de particules émettrices est donc compris entre 5 et 10 % du nombre total de particules. Mais ces résultats statistiques sont purement indicatifs car de nombreuses variations peuvent être observées d'un échantillon à un autre.

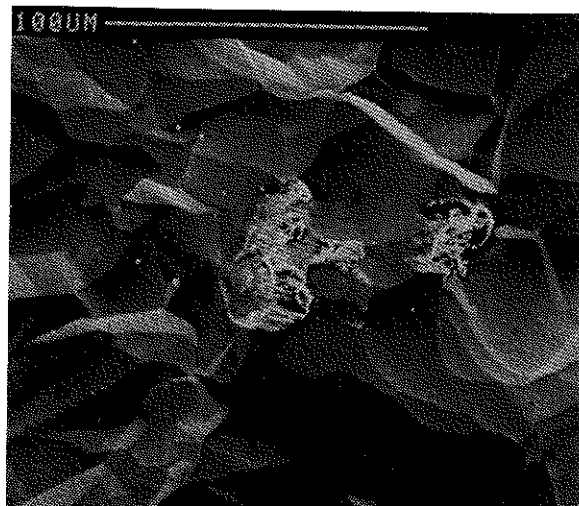
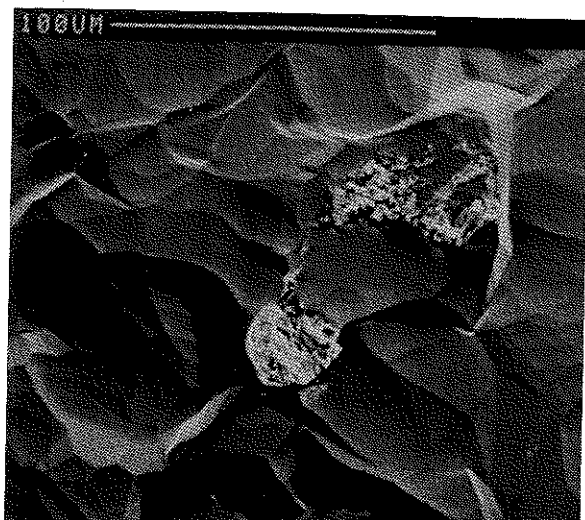


Figure III.1. Micrographie de deux défauts géométriques naturels émettant un courant de plusieurs nanoampères pour des champs appliqués inférieurs à 40 MV/m.

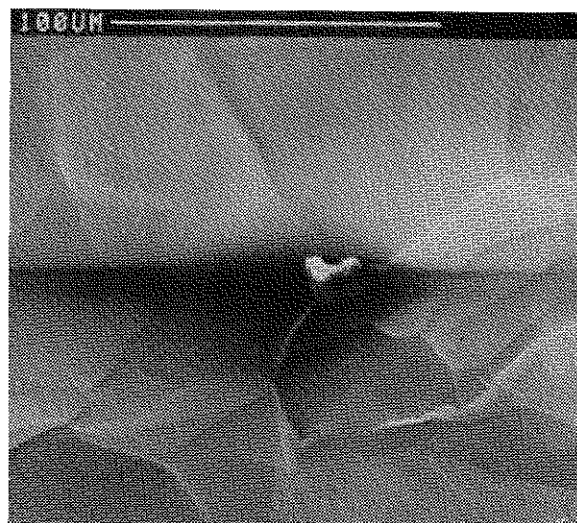
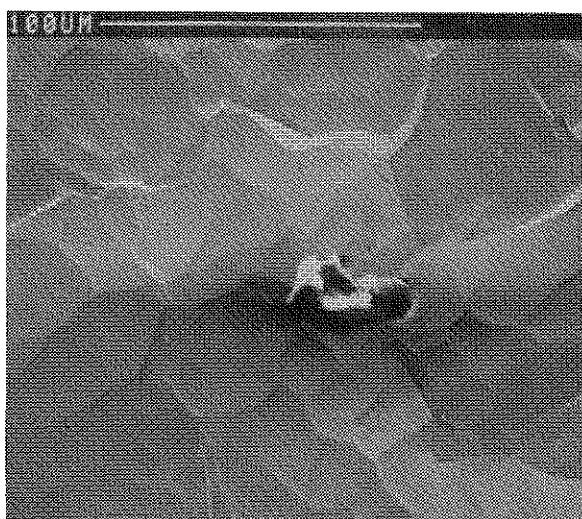


Figure III.2. Micrographies de deux particules provenant de la contamination naturelle d'un échantillon de niobium.

III.1.2.2. BALAYAGES LOCALISES DESTINES A ETUDIER L'EMISSION DES SINGULARITES D'UNE SURFACE

Cette méthode consiste à étudier sélectivement les défauts géométriques et les particules de contamination présentes sur la surface des échantillons testés. Peu de défauts géométriques ont été localisés sur la surface aussi ne présentons nous que des résultats sur l'étude des particules de contamination naturelle. La figure III.3 montre la distribution en composition chimique élémentaire des particules étudiées (environ 100 particules). L'analyse de la composition chimique élémentaire a été obtenue à l'aide du détecteur de rayons X (EDX) installé dans le microscope. La taille de la poire d'interaction étant dans la majorité des cas

supérieure à la taille des particules, il n'est pas surprenant de constater que les constituants les plus fréquents sont le niobium et l'oxygène. Pour plus d'objectivité, nous avons pris soin de ne prendre en considération dans nos statistiques, que les pics significatifs de chaque spectre (hauteur de pic supérieure à 5 % du pic le plus intense), abandonnant volontairement les traces d'autres éléments qui peuvent avoir pour origine de nombreux artefacts.

La distribution en composition traduit l'absence d'éléments prédominants et par conséquent, rend impossible l'identification du type de contamination le plus fréquemment rencontré.

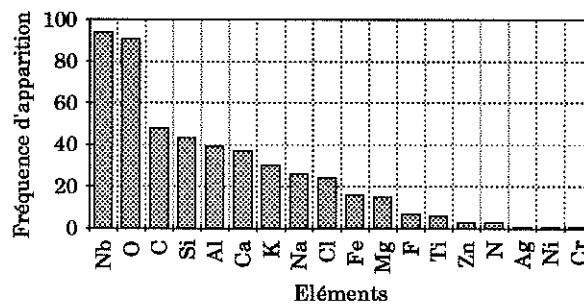


Figure III.3. Fréquence d'apparition des différents éléments dans la composition des particules de contamination.

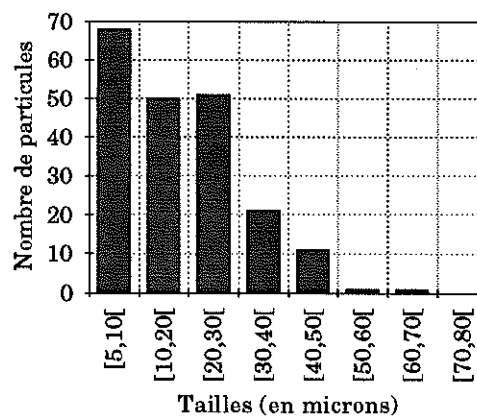


Figure III.4. Tailles des particules de contamination rencontrées sur la surface.

La figure III.4 montre la distribution en taille des 100 particules étudiées. Nos études n'ont porté que sur des particules de taille supérieure à 5 microns. Cette distribution montre que la quantité de particules diminue lorsque leur taille augmente. Cependant, nous avons tout de même trouvé sur la surface, des particules organiques de tailles supérieures à 100 microns et dont l'origine semble être la contamination par mise à l'air ambiant lors du transfert de l'échantillon vers la chambre du microscope.

L'étude de l'émission de ces particules a montré que sur l'ensemble des particules de contamination naturelle testées en émission de champ, seule une

faible proportion de particules se sont avérées être des sites émetteurs. Les figures III.5 et III.6 montrent respectivement la distribution en taille et en champs seuils d'émission des 16 sites émetteurs identifiés dans cette étude.

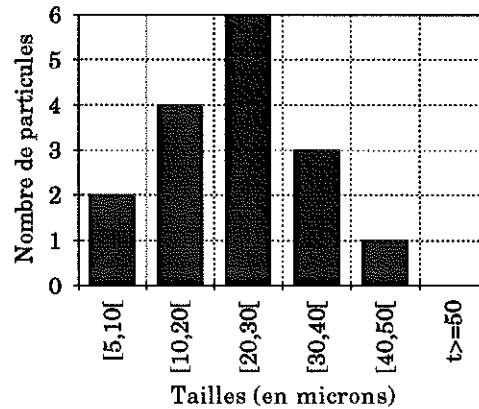


Figure III.5. Taille des 16 particules de contamination émettant pour des champs inférieurs à 100 MV/m

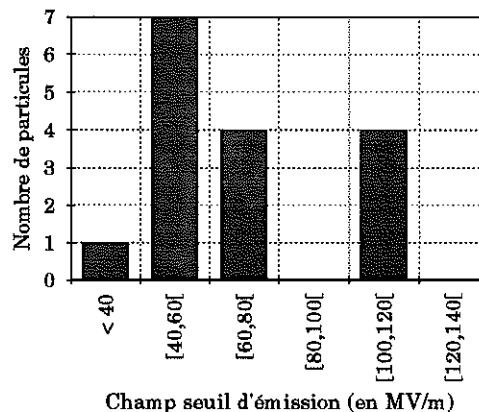


Figure III.6. Champs seuils d'émission des 16 particules de contamination émettant pour des champs inférieurs à 100 MV/m

La distribution en taille montre une émission importante des particules dont la taille est voisine de 20 microns. Par contre, la distribution en champ ne montre aucun champ seuil d'émission préférentiel. Ceci traduit l'absence de corrélation entre le champ seuil d'émission des particules et leurs tailles respectives.

L'ensemble des caractéristiques des 16 sites émetteurs est récapitulé dans le tableau III.1 qui représente une compilation de la composition chimique élémentaire, de la taille, du caractère conducteur ou isolant de la particule, du contact avec la surface et finalement du champ seuil d'émission, ceci pour les 16 particules émettrices identifiées au cours de cette étude.

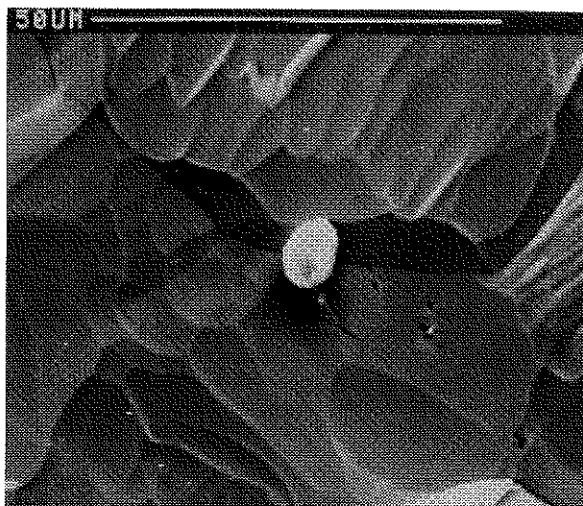
Remarque : la charge d'une particule sous le faisceau primaire traduit le caractère conducteur ou isolant de celle-ci (voir chapitre sur le contraste de potentiel en imagerie de secondaire au MEB).

C	O	F	Na	Mg	Al	Si	Nb	Cl	K	Ca	Ti	Fe	Taille (µm)	Charge	Posée/ Incluse	Champ seuil (MV/m)
	X				X	X	X						30	m	P	40
	X					X	X						20	N	P	40
	X				X	X	X						16	O	P	40
	X				X	X	X				X		16	N	P	40
	X		X	X	X	X	X		X	X			9	N	P	40
	X	X			X	X	X		X	X			7	N	P	100
	X		X		X	X	X		X	X			40	m	P	70
	X				X	X	X	X	X	X			10	m	P	76
	X				X	X	X	X				X	20	N	P	20
	X						X			X			20	N	P	56
	X				X	X	X	X	X				30	m	P	74
X	X						X			X			20	m	P	100
	X		X				X	X					10	m	P	100
	X			X	X	X	X		X	X		X	20	N	P	100
	X				X	X	X		X	X		X	30	N	P	48
	X		X				X	X					20	m	P	72

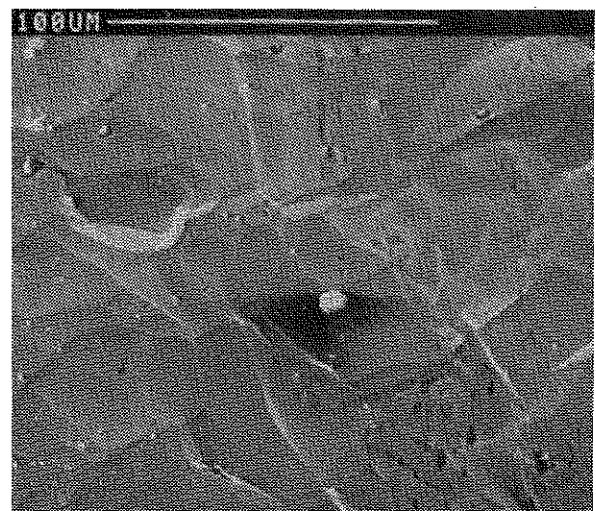
Tableau III.1. Récapitulatif de la composition chimique élémentaire, de la taille, de la charge, du contact particule/surface et du champ seuil d'émission des 16 particules émettrices. La particule se charge (O), ne se charge pas (N) ou se charge un peu (m).

Le tableau III.1 ne montre aucune corrélation entre la composition chimique élémentaire et l'aptitude à émettre ou non des électrons. De plus, toutes les particules émettrices, qui sont de nature extrinsèque, semblent être posées et non incluses dans la surface.

Dans la majorité des cas, les particules émettrices ne se chargent pas ou très peu (15 particules sur 16) ce qui traduit leur caractère de bon conducteur électrique (voir figure III.7). Elles permettent l'écoulement des charges de la particule vers l'échantillon.



(a)



(b)

Figure III.7. Micrographies de deux particules de contamination dont une est un bon émetteur (a) et l'autre non (b). La particule qui n'émet pas est entourée d'un halo noir caractéristique des particules isolantes.

III.1.3. DISCUSSION

Les résultats de l'étude de l'émission des sites émetteurs naturels confirment que les sites sont des zones localisées de la surface et de tailles microniques. De plus, nous avons identifié deux grandes familles de sites émetteurs à savoir : les défauts géométriques et les particules. Bien que les particules de contamination soient les sites émetteurs les plus fréquents, il ne faut en aucun cas négliger les sites émetteurs géométriques dont l'émission électronique est très intense pour des champs seuils d'émission inférieurs à ceux observés sur les particules.

Ces résultats sont en bon accord avec les travaux réalisés ces dernières années [III.1-III.7] dans lesquels les sites émetteurs localisés proviennent majoritairement de la contamination naturelle de la surface.

L'analyse des résultats obtenus sur les particules de contamination naturelle n'a montré aucune composition chimique préférentielle. Aucune étape de notre protocole de préparation ne peut donc être incriminée particulièrement.

Avec l'étude de l'émission des particules, nous avons établi que seule une faible proportion (5%) des particules émet mais aucune corrélation n'a été établie entre la taille des particules et leur aptitude à émettre des électrons. La même constatation a été faite avec la composition chimique élémentaire et l'aptitude à l'émission. Cependant, nous avons pu établir une corrélation entre le caractère conducteur des particules émettrices (elles ne se chargent pas sous le faisceau du MEB) et leur aptitude à l'émission. Ce résultat est très important car il s'agit de la première corrélation qui a pu être établie entre les caractéristiques d'un site et son aptitude à l'émission.

Finalement, il semble certain à présent que tous les sites émetteurs identifiés sur une surface appartiennent à une des deux familles définies précédemment car aucune émission provenant d'une surface vierge n'a été observée au cours de nos multiples expériences et aux valeurs de champs électriques testées ($E < 150$ MV/m).

Afin d'affiner les résultats précédents dont l'analyse statistique souffre énormément du manque de reproductibilité à la fois des défauts géométriques mais également des particules de contamination, il semble indispensable d'étudier ces deux familles de sites émetteurs en maîtrisant d'avantages la morphologie pour des défauts géométriques et la nature, la taille et la forme des particules de contamination.

III.2. CONTAMINATION SELECTIVE EN PARTICULES

Les résultats précédents montrent que les particules de contamination naturelle sont le plus souvent à l'origine de l'émission électronique.

Cependant, ces particules, de formes, de tailles et de compositions chimiques aléatoires ne permettent pas de réaliser des études reproductibles et donc d'obtenir des statistiques satisfaisantes. La contamination sélective des échantillons par des particules dont les paramètres caractéristiques (composition chimique, forme, taille) sont contrôlés, devrait permettre d'améliorer la reproductibilité de nos expériences. De plus, au cours de nos travaux, nous avons également contrôlé la nature de l'échantillon ainsi que la nature du contact entre la particule et l'échantillon.

Des études similaires de contamination sélective ont été réalisés sur des échantillons de niobium contaminés par des particules de natures différentes : graphite amorphe et carbone colloïdal (Aquadag) obtenu par évaporation du solvant [III.8] ; graphite pur, MoS₂ et soufre [III.9] ; des particules d'aluminium [III.10] et diverses particules métalliques [III.4]. Ces différents types de particules se sont avérés être de bon émetteurs puisqu'ils ont donné des courants d'émission de plusieurs nano-ampères pour des champs électriques appliqués de quelques dizaines de méga-volts par mètre.

L'expérience idéale consistant en l'étude de l'émission électronique de particules de nature et de forme microscopique parfaitement maîtrisées n'étant pas envisageable car introuvables, nous avons pris soins de ne comparer que des particules de tailles et de formes très proches afin de réduire les erreurs statistiques.

III.2.1. NATURE DES PARTICULES DE CONTAMINATION

Huit natures différentes de particules ont été sélectionnées en raison de leurs propriétés électriques intrinsèques ou de celles de leur oxyde. En effet, l'étude des particules de contamination naturelle a montré une possible corrélation entre le caractère conducteur de la particule et son aptitude à émettre des électrons sous l'effet d'un champ électrique. Pour cette raison, nous avons choisi des particules appartenant à quatre familles qui se différencient par leurs propriétés électriques ou par celles de leur oxyde.

III.2.1.1. LES PARTICULES ISOLANTES

Particules d'alumine (Al_2O_3):

L'alumine étudiée est de l'alumine fabriquée en laboratoire et destinée à des études sur les composants semi-conducteurs. Sa pureté est donc très élevée, supérieure à 99,99%. Lorsqu'elle n'est pas dopée, l'alumine, est un bon diélectrique dont le gap est égal à 10 eV à température ambiante [III.11].

Particules de silice (SiO_2):

La silice provient elle de deux source différentes, de la poudre commerciale de pureté supérieure à 97% et du Pyrex écrasé. c'est également un bon diélectrique et dans le cas de la poudre commerciale, son gap est compris entre 8 et 9 eV [III.12]. La poudre de Pyrex quant à elle possède une concentration en impureté très grande et est donc par conséquent un moins bon diélectrique.

III.2.1.2. LES PARTICULES CONDUCTRICES RECOUVERTES D'UNE COUCHE D'OXYDE PEU CONDUCTRICE

Particules de niobium (Nb) :

Le niobium utilisé est une poudre commerciale de pureté supérieure à 99,85%. Dans les conditions atmosphériques normales et si le niobium n'a subi aucun traitement thermique ou chimique, il est recouvert d'une fine couche d'oxyde de niobium (Nb_2O_5) qui est un semi-conducteur dont le gap est égal à 3,4 eV pour une densité de défauts de 10^{18} .cm^{-3} et dont l'épaisseur est voisine de 5 nm [III.13][III.14].

Particules de titane (Ti) :

Le titane provient également d'une poudre commerciale dont la pureté est supérieure à 99,5%. Tout comme le niobium, le titane est recouvert d'une couche naturelle d'oxyde (TiO_2), qui est également un semi-conducteur (gap \approx 3,4 eV) [III.15][III.16].

III.2.1.3. LES PARTICULES CONDUCTRICES RECOUVERTES D'UNE COUCHE D'OXYDE AYANT DE BONNES PROPRIETES CONDUCTRICES

Particules de fer (Fe) :

Le fer provient de deux sources commerciales différentes de pureté supérieure à 99,85 %, une poudre ayant des particules de formes quelconques et de taille moyenne 20 microns et une poudre ayant des particules de formes sphériques et de taille moyenne 5 microns. Le fer est recouvert dans son état naturel, d'une fine couche d'oxyde de Fer Fe_2O_3 qui est un semi-conducteur faible gap (gap ≈ 1 eV) [III.17].

Particules de nickel (Ni) :

Le nickel provient également de deux sources commerciales différentes de pureté supérieure à 99,90 %, une poudre ayant des particules de formes quelconques et de taille moyenne 4 microns et une poudre ayant des particules de formes sphériques dont les tailles varient entre 5 et 30 microns. Le Nickel est dans son état naturel, recouvert d'une fine couche d'oxyde de Nickel NiO qui est un semi-conducteur (gap $\approx 3,7$ eV) [III.18] et dont l'épaisseur est voisine de 1 nm [III.19-III.21]. Cependant, cet oxyde se dope rapidement et de vient très conducteur (la résistivité passe de $10^{-13} \Omega \cdot \text{m}^{-1}$ à $10^{-3} \Omega \cdot \text{m}^{-1}$) [III.22].

Particules d'argent (Ag) :

L'argent provient de deux sources différentes, de la poudre obtenue à partir de laque à l'argent et des petits copeaux obtenus sur un lingot d'argent très pur. L'Argent est recouvert dans son état naturel, d'une fine couche d'oxyde d'Argent Ag_2O , qui est un semi-conducteur dont l'épaisseur est voisine de 1,2 nm [III.23]. En présence d'humidité et sous l'action d'hydrogène sulfuré, il se forme une fine couche d' Ag_2S .

III.2.1.4. LES PARTICULES CONDUCTRICES EXEMPTES DE COUCHE D'OXYDE

Particules d'or (Au) :

L'or étudié provient d'une poudre commerciale de pureté supérieure à 99,99% et de petits copeaux obtenus sur un lingot d'or de grande pureté. L'or est dans son état naturel dépourvu d'oxyde, propriété qui est à l'origine de l'intérêt particulier que nous allons lui porter tout au long de nos études.

III.2.2. PROTOCOLES DE CONTAMINATION ET D'ETUDE DES PARTICULES

III.2.2.1. NATURE DES SUBSTRATS

Cinq types différents d'échantillons ont été utilisés : le niobium électropoli et quelques fois anodisé, l'aluminium électropoli et quelques fois anodisé et l'or poli mécaniquement. Les méthodes de préparation de ces échantillons sont décrites dans le paragraphe II.2 du chapitre II.

III.2.2.2. PROTOCOLE DE CONTAMINATION

Comme nous l'avons souligné, les particules ont des origines très diverses. Aussi, dans le souci de réduire les erreurs statistiques, n'avons-nous utilisé que des particules dont la taille est voisine de 20 microns car cette taille est cohérente avec les résultats obtenus sur les particules de contamination naturelle.

Les essais de contamination des échantillons par simple saupoudrage d'une surface propre et sèche se sont révélés des échecs. En effet, dans la presque totalité des cas, la particule étudiée disparaît sous l'effet d'un champ électrique même inférieur à 1 MV/m. Cette disparition peut être attribuée à l'attraction électrostatique de l'anode située dans le voisinage de la particule. Un effet similaire a été observé par Niedermann [III.24] qui a trouvé indispensable de fixer ses particules de MoS₂ sur une surface de niobium par chauffage de l'échantillon jusqu'à 800 °C.

Pour maintenir nos particules en place, nous utilisons une technique différente qui consiste à placer l'échantillon dans la vapeur d'eau provoquée par un becher rempli d'azote liquide jusqu'à ce qu'une fine couche d'humidité (buée) apparaisse clairement sur la surface. Les particules sont ensuite déposées par saupoudrage de cette surface. Lors du réchauffement de l'échantillon, toute trace d'eau visible au MEB disparaît. En effet, bien que le dispositif E.D.X. ne permette pas de détecter la présence d'eau (on ne détecte pas l'hydrogène et le signal dû à l'oxygène est noyé avec l'oxygène de la couche naturelle d'oxyde de niobium), l'eau a tendance à rassembler sur la surface des impuretés et on peut ainsi la localiser indirectement. Avec ce traitement, la grande majorité des particules résiste à un arrachage électrostatique même pour des champs appliqués supérieurs à 120 MV/m.

Pour chacune des particules situées sur l'échantillon, le protocole d'étude est le suivant :

- **Sélection de la particule.** Elle est réalisée conformément à la taille souhaitée (habituellement entre 15 et 25 microns). La séparation entre la particule sélectionnée et ses voisines doit être suffisamment importante pour garantir que l'émission provient de la dite particule et non de ses voisines. La composition est vérifiée en utilisant le système EDX

- **Détermination des caractéristiques de la particule.** La taille et la hauteur de la particule ainsi que le champ seuil d'émission sont mesurés conformément au protocole défini au paragraphe II.4 du chapitre II.

III.2.3. RESULTATS

III.2.3.1. PARTICULES POSEES SUR UN ECHANTILLON DE NIOBIUM

III.2.3.1.1. EMISSION DES PARTICULES DE FORME QUELCONQUE

Particules isolantes :

La figure III.8 montre les résultats obtenus sur les particules d'alumine (a) et de silice (b) toutes de formes quelconques. Hormis deux exceptions dans le cas de l'alumine, aucune émission n'est observée pour des champs appliqués inférieurs à 140 MV/m. Bien que la silice provienne de deux sources différentes dont du Pyrex écrasé ayant par conséquent un taux d'impuretés élevé, il ne semble pas que cela joue un rôle dans l'aptitude à l'émission de ces particules. Les deux exceptions sur l'alumine (champs seuils de 72 et 80 MV/m respectivement) ont été observées lors de la première série de mesures aussi, est-il difficile de dire si elles sont dues à une mauvaise identification de la nature de ces deux particules ou alors si celles-ci sont représentatives d'un faible taux de particules isolantes qui se révèlent être de bon émetteurs.

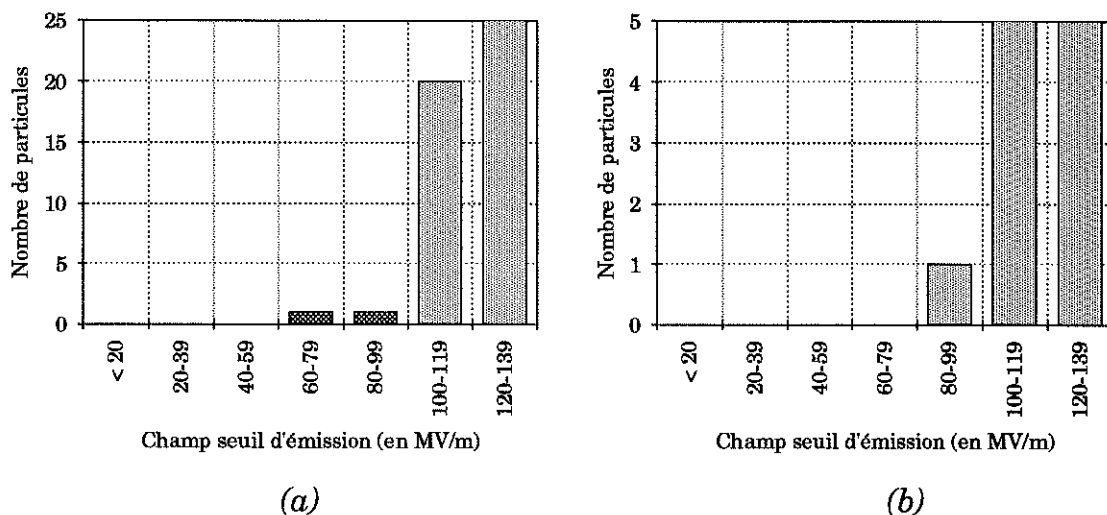
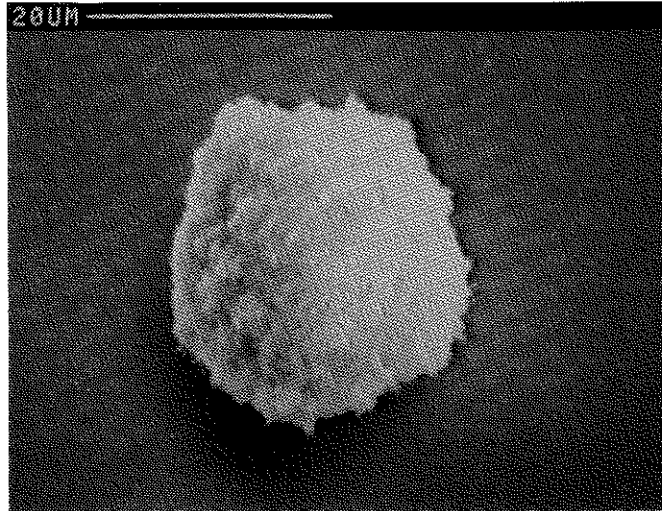


Figure III.8. Emission des particules d'alumine (a) et de silice (b) sur des échantillons de niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.

La figure III.9 montre des micrographies d'une particule d'alumine (a) et de silice (b). On voit sur ces micrographies que le caractère isolant des particules se traduit par une apparence brillante de la particule mais aussi par la présence d'un halo noir autour de celle-ci (voir contrastes dus à des phénomènes de charge en imagerie de secondaires, paragraphe II.1.1.2.A).

a)



b)

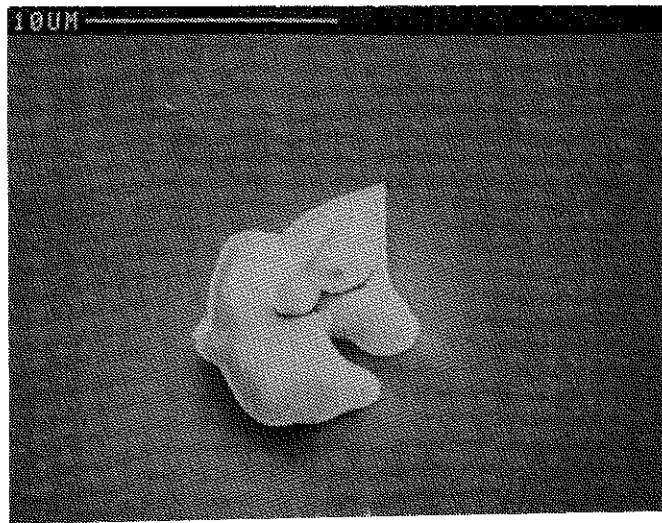


Figure III.9. Micrographie d'une particule d'alumine (a) et de silice (b) de formes quelconques.

Particules conductrices recouvertes d'une couche d'oxyde peu conductrice :

Comme dans le cas des particules de silice et d'alumine, aucune émission n'est observée pour les particules de niobium et de titane (figure III.10.a et III.10.b respectivement), toutes de formes quelconques, pour des champs appliqués inférieurs à 140 MV/m. Les deux exceptions qui sont observées dans le cas du

niobium restent difficiles à expliquer mais l'épaisseur de leur couche naturelle d'oxyde n'est probablement pas étrangère à ce comportement anormal. La figure III.11 montre des micrographies d'une particule de niobium.

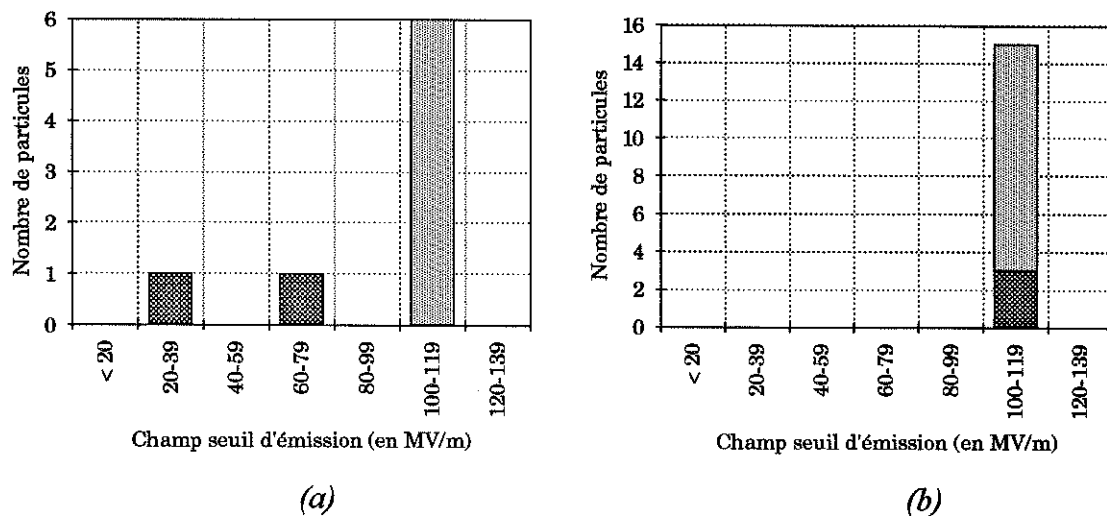


Figure III.10. Emission des particules de niobium (a) et de titane (b) sur des échantillons de niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.

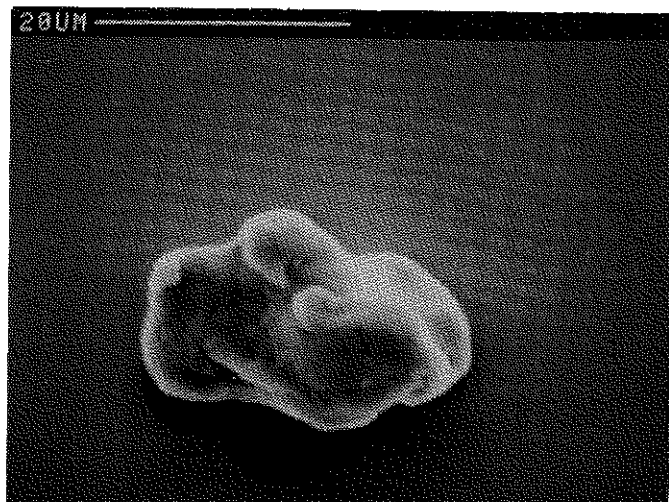


Figure III.11. Micrographie d'une particule de niobium de formes quelconques.

Particules conductrices recouvertes d'une couche d'oxyde avant de bonnes propriétés conductrices :

La figure III.12 montre l'émission des particules de fer (a), de nickel (b) et d'argent (c) de formes quelconques sur des échantillons en niobium. Pour ce type de particules, le taux de particules émettrices même à des champs électriques appliqués faibles, est très important. Les résultats obtenus ne montrent aucune

différence significative entre l'émission de ces trois types de particules. Ceci peut s'expliquer en partie par les variations importantes des formes des particules qui rendent délicates les comparaisons entre des particules de natures différentes. La figure III.13 montre des micrographies des particules de fer (a), de nickel (b) et d'argent (c).

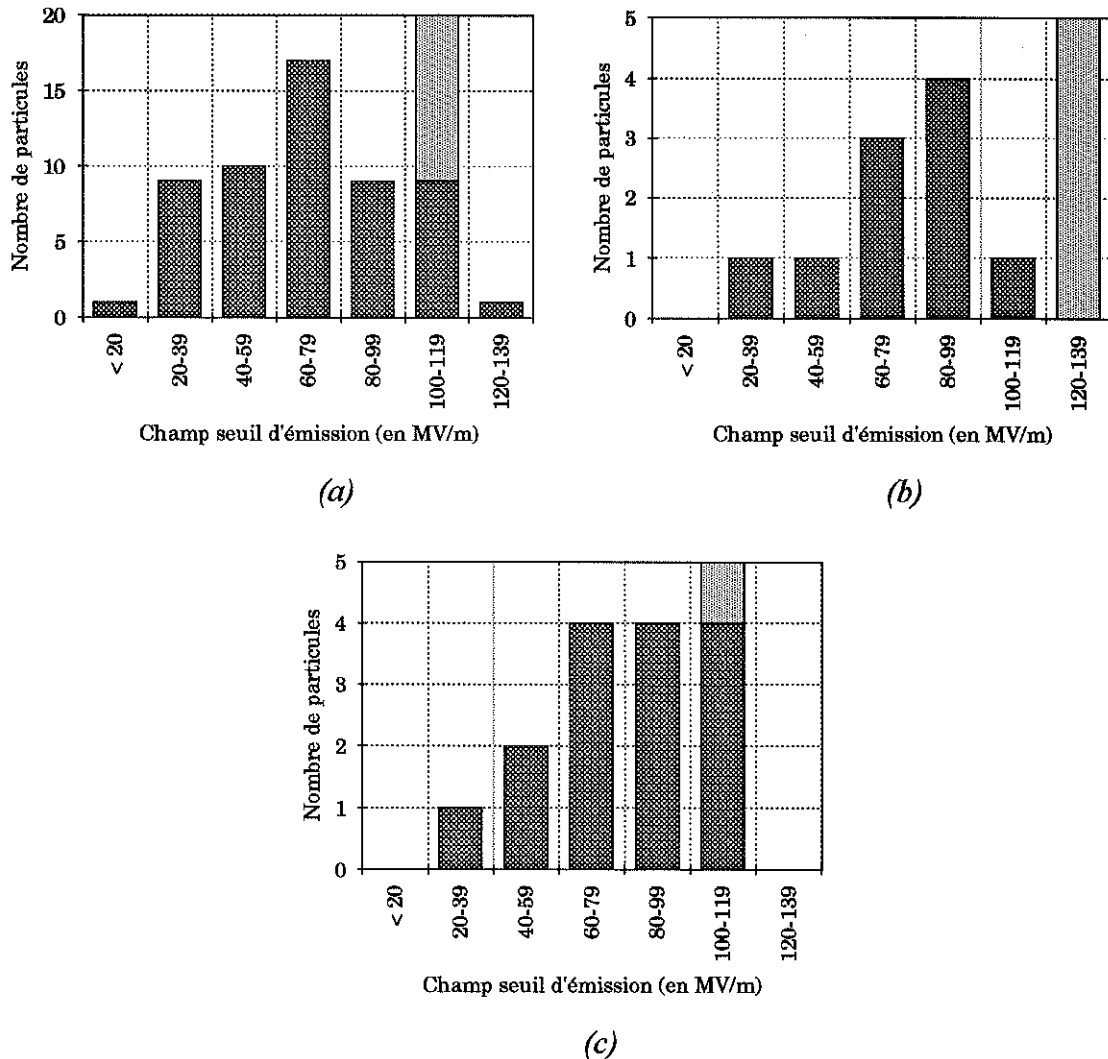


Figure III.12. Emission des particules de fer (a), de nickel (b) et d'argent (c) sur des échantillons de niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.

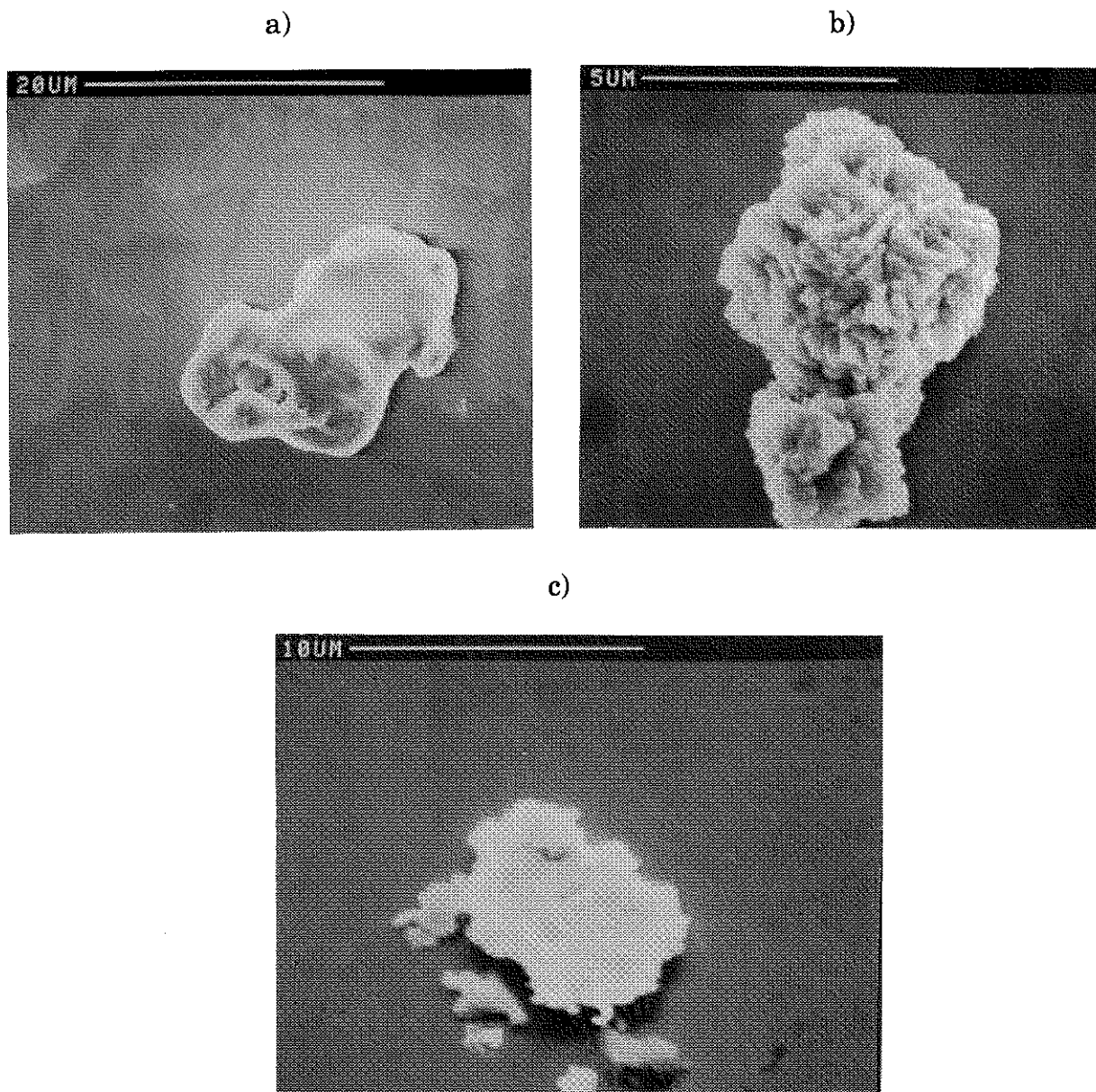


Figure III.13. Micrographies de particules de fer (a), de nickel (b) et d'argent (c) de formes quelconques.

Particules conductrices exemptes de couche d'oxyde :

L'émission des particules d'or est très intense et elle a lieu à des champs électriques appliqués statistiquement plus faibles que ceux observés sur les particules de fer, de nickel ou même d'argent. Il semblerait donc que les particules d'or soient les meilleurs émetteurs de la série de particules étudiées. Les figures III.14 et III.15 montrent respectivement les résultats de l'émission des particules d'or sur des échantillons en niobium et une micrographie d'une particule d'or.

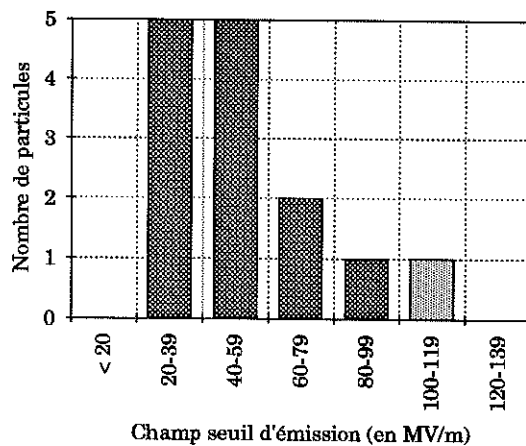


Figure III.14. Emission des particules d'or sur des échantillons de niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.

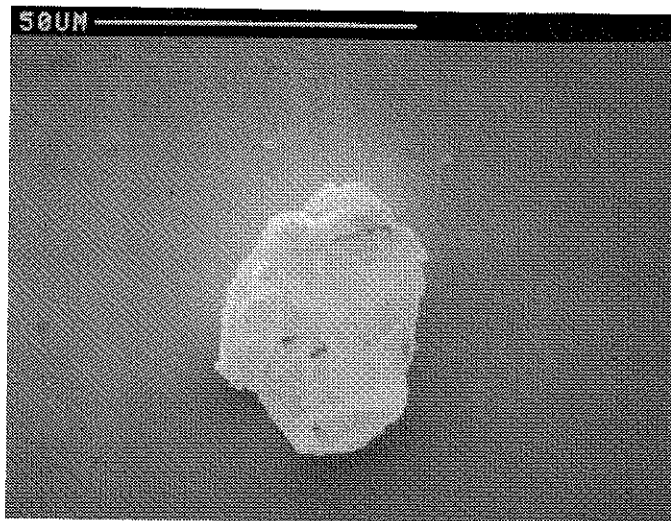
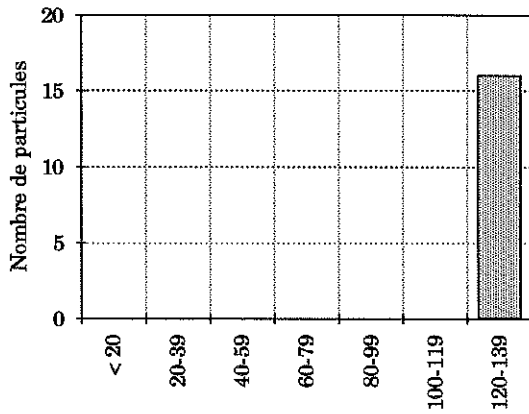


Figure III.15. Micrographie d'une particule d'or de forme quelconque.

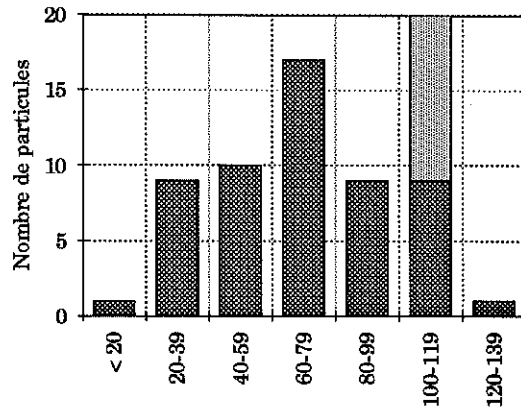
III.2.3.1.2. INFLUENCE DE LA FORME ET DE LA TAILLE DES PARTICULES

Nous disposons pour cette étude de deux sources de particules de fer et de nickel. Pour le fer, les particules de formes quelconques ont une taille moyenne de 20 microns alors que celles de formes sphériques ont une taille moyenne de 4 microns. Dans le cas du nickel, les particules de formes quelconques ont une taille moyenne de 5 microns alors que celles de formes sphériques ont une taille moyenne de 20 microns



Champ seuil d'émission (en MV/m)

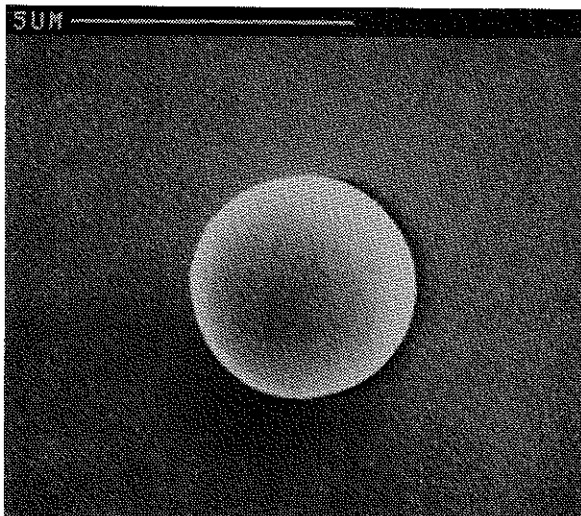
(a) $\phi=4\mu\text{m}$



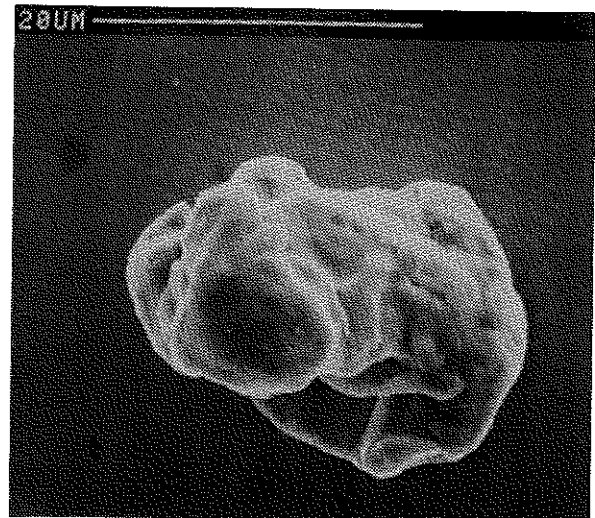
Champ seuil d'émission (en MV/m)

(b) $\phi=20\mu\text{m}$

Figure III.16. Emission des particules de fer de formes sphériques (a) et de formes quelconques (b) sur des échantillons de niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.



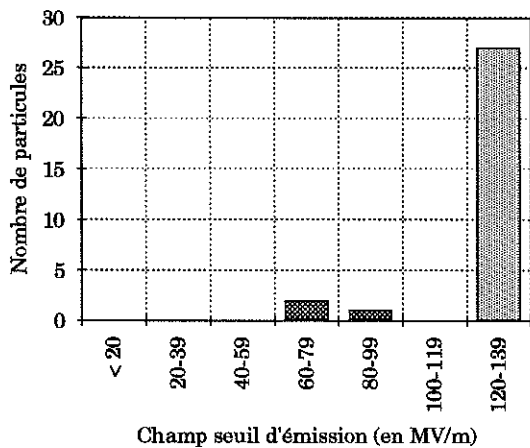
(a)



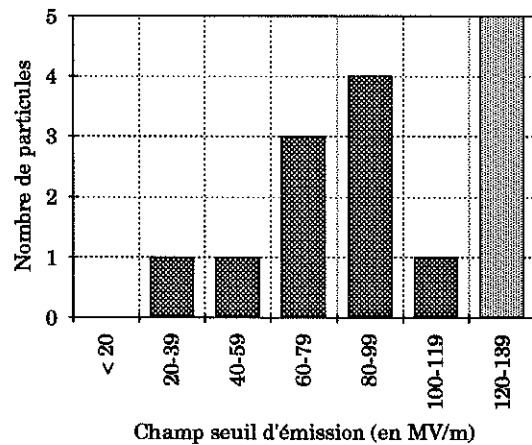
(b)

Figure III.17. Micrographies de deux particules de fer, une forme sphérique (a) et une de forme quelconque (b).

La figure III.16 montre l'émission de particules de fer de formes sphériques (a) et de formes quelconques (b) sur des échantillons de niobium. Les micrographies de la figure III.17 montrent un exemple de particule de fer de forme sphérique (a) et de forme quelconque (b). Sur les 16 petites sphères de fer, aucune n'a émis pour des champ inférieurs à 140 MV/m.

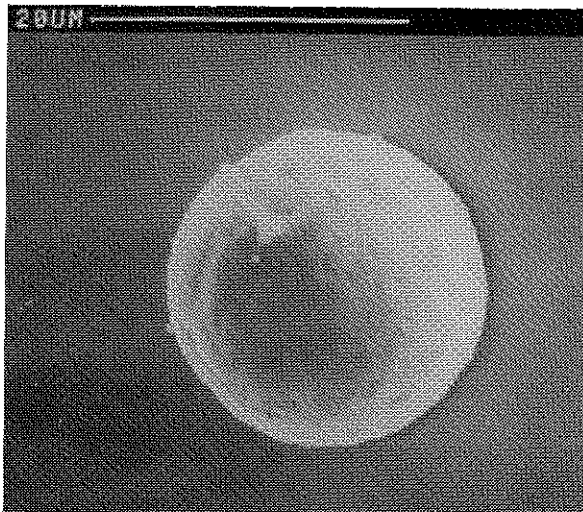


(a) $\phi=20\mu\text{m}$

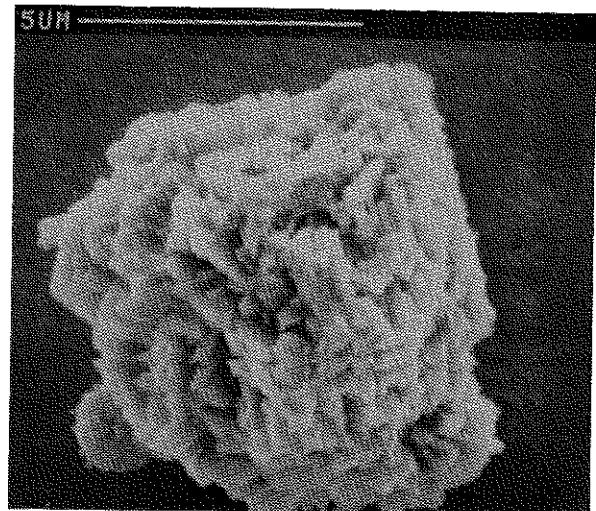


(b) $\phi=5\mu\text{m}$

Figure III.18. Emission des particules de nickel de formes sphériques (a) et de formes quelconques (b) sur des échantillons de niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.



(a)

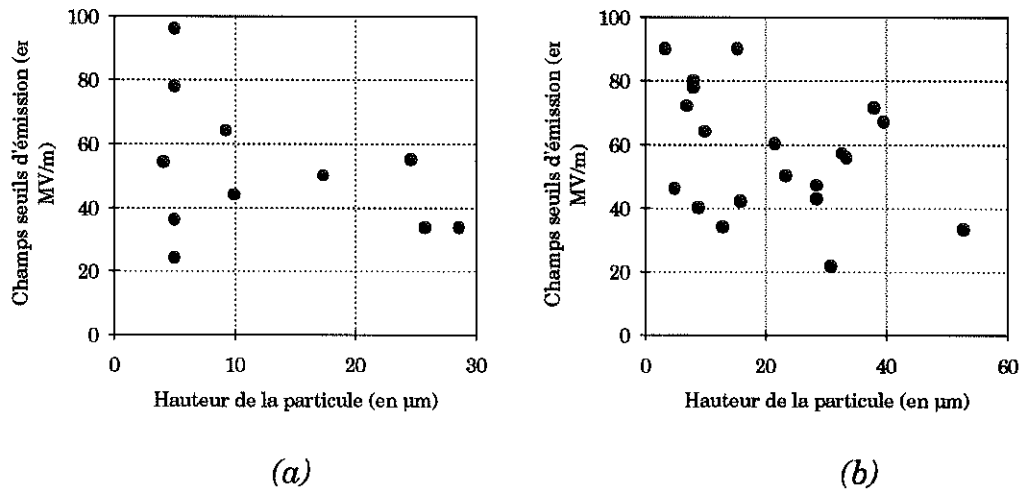


(b)

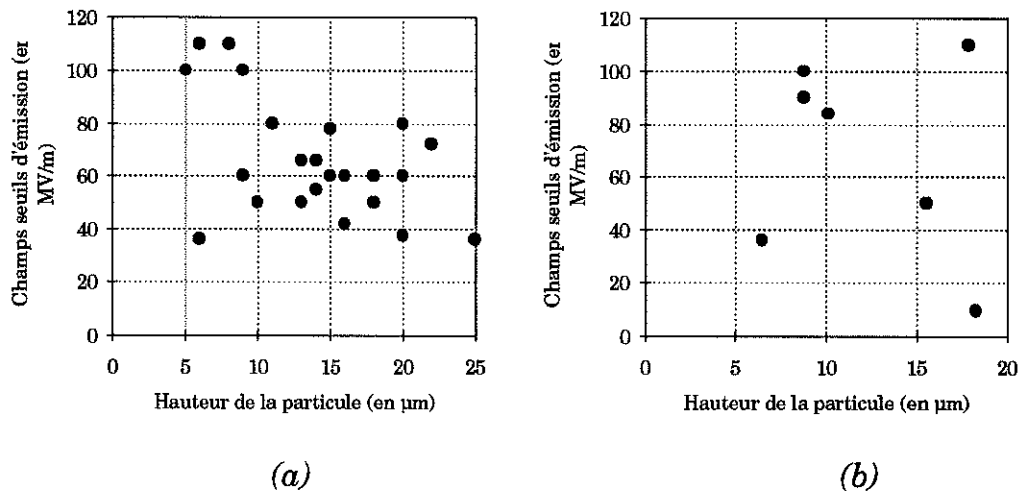
Figure III.19. Micrographies de deux particules de nickel, une de forme sphérique (a) et une de forme quelconque (b).

La figure III.18 montre l'émission de particules de nickel de formes sphériques (a) et de formes quelconques (b) sur des échantillons de niobium. Les micrographies de la figure III.19 montrent un exemple de particule de nickel de forme sphérique (a) et de forme quelconque (b). Les particules sphériques de nickel émettent très peu, 3 émetteurs sur 30 particules étudiées. Les petites particules de nickel de formes quelconques sont de bons émetteurs : 10 émetteurs sur 15 particules étudiées.

Tous ces résultats semblent indiquer que quelque soit la taille des particules, celles de formes sphériques n'émettent pas et celles de formes quelconques sont de bon émetteurs. Nous avons également testé l'émission des particules de fer et de nickel de formes sphériques sur des échantillons en or. Les mêmes résultats ont été obtenus à savoir pas d'émission des particules de formes sphériques.



Résultats obtenus avec les particules d'or

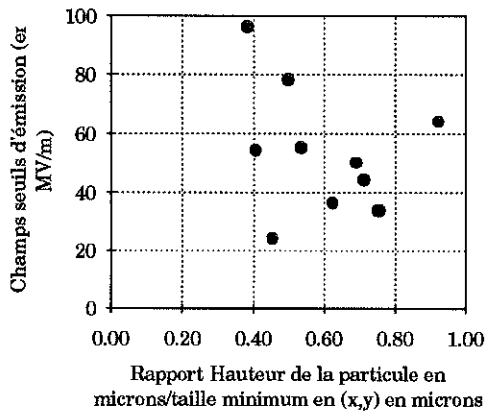


Résultats obtenus avec les particules de fer

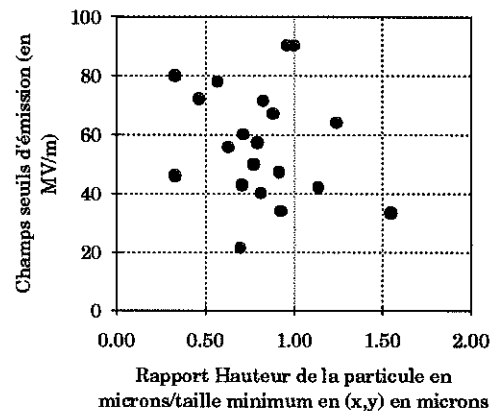
Figure III.20. Répartition des champs seuils d'émission des particules de fer et d'or en fonction de leurs hauteurs respectives. Particules posées sur des échantillons en niobium (a) et en or (b).

De plus, les études réalisées sur les champs seuils d'émission des particules de formes quelconques, n'ont montré aucune relation entre les tailles des particules et les champs seuils observés. Les figures III.20 et III.21 montrent les résultats obtenus sur les particules de fer et d'or. La figure III.20 représente en abscisse, la hauteur des particules et en ordonnée, leurs champs seuils d'émission respectifs. La figure III.21 représente, elle, en abscisse, le rapport : hauteur de la particule/taille minimale dans le plan horizontal et en ordonnée le champ seuil

d'émission. Ce rapport permet d'avoir un ordre de grandeur du renforcement local du champ lié à la géométrie microscopique des particules. Aucune de ces deux figures ne semble mettre en évidence un rôle de la taille des particules ni sur les échantillons en niobium (a) ni sur ceux en or (b). Ces résultats sont en bon accord avec des mesures de champs seuils d'émission réalisées sur des particules de tailles supérieures à 50 microns. En effet, ces dernières ne se sont pas révélées être de meilleurs émetteurs que les particules de tailles inférieures à 20 microns.

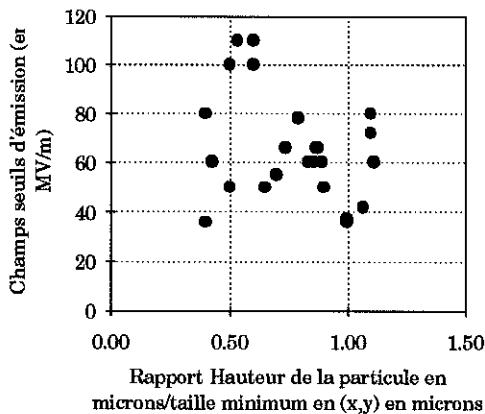


(a)

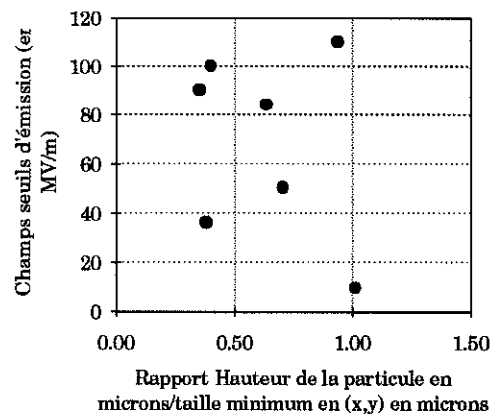


(b)

Résultats obtenus pour les particules d'or sur des échantillons en niobium (a) et en or (b)



(a)



(b)

Résultats obtenus pour les particules de fer sur des échantillons en niobium (a) et en or (b).

Figure III.21. Répartition des champs seuils d'émission des particules de fer et d'or en fonction du rapport hauteur de la particule/taille minimale dans le plan horizontal. Particules posées sur des échantillons en niobium (a) et en or (b).

III.2.3.2. PARTICULES POSEES SUR UN ECHANTILLON D'OR : INFLUENCE D'UNE COUCHE NATURELLE D'OXYDE SUR L'EMISSION ELECTRONIQUE

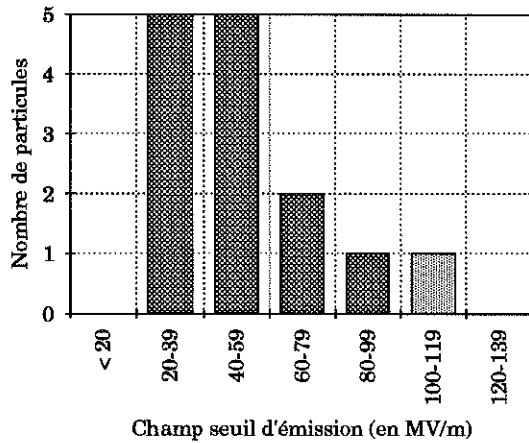
Pour clarifier un éventuel rôle joué par l'oxyde naturel présent sur les échantillons de niobium sur l'émission électronique, nous avons également étudié l'émission des particules de niobium, de fer et d'or sur des échantillons en or. Aussi surprenant que cela puisse paraître, les résultats obtenus semblent correspondre à ceux obtenus sur les échantillons de niobium qui sont recouvert eux, par leur fine couche naturelle d'oxyde. Les particules de niobium n'émettent pas sauf exceptions, les particules de fer et d'or émettent beaucoup. La figure III.22 montre les résultats obtenus pour les particules de niobium et d'or sur des échantillons en niobium (a) et en or (b). Toutes ces particules sont de formes quelconques.

III.2.3.3. INFLUENCE D'UNE COUCHE EPAISSE D'OXYDE SUR L'EMISSION ELECTRONIQUE

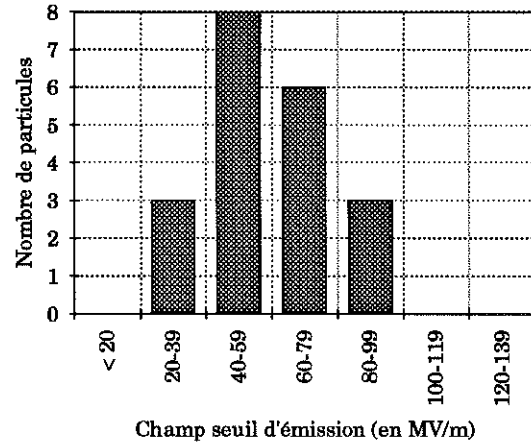
Les études réalisées n'ont montré aucune influence de la couche naturelle d'oxyde présente sur les échantillons de niobium sur l'émission électronique. L'épaisseur de la couche naturelle d'oxyde (~5 nm) étant très faible, nous avons décidé d'étudier l'influence d'une couche épaisse d'oxyde (>100 nm) afin de renforcer le rôle très souvent attribué à l'oxyde [III.25-III.29]. Nous avons donc étudié l'émission des particules de fer sur des échantillons de niobium et d'aluminium recouverts tous deux d'une couche épaisse d'oxyde anodique. Lors de l'anodisation d'échantillons de niobium, et pour des épaisseurs d'oxyde de niobium supérieures à 280 nm, il se produit très fréquemment des claquages dans la couche anodique. Ces claquages qui modifient localement les caractéristiques de l'oxyde, peuvent rendre très délicates les interprétations des résultats obtenus. Pour renforcer davantage le rôle de l'oxyde, nous avons donc utilisé des couches anodiques d'alumine car l'alumine faiblement dopée est un excellent diélectrique.

Echantillons de niobium anodisé

La figure III.23 présente une micrographie de particules de fer situées sur un échantillon de niobium recouvert de sa couche naturelle d'oxyde et d'une couche anodique d'oxyde de 240 nm d'épaisseur. L'influence d'une couche épaisse d'oxyde sur des particules de contamination peut être visualisée facilement grâce au halo noir présent autour de ces particules, halo dû à la charge des particules sous le faisceau primaire du MEB. Ce phénomène est décrit plus en détail au chapitre II.1.1.2.A. Ce halo n'est cependant pas visible sur l'oxyde naturel de niobium (5 nm) ce qui semble indiquer soit que la conductibilité électrique de celui-ci est suffisante pour écouler les charges vers l'échantillon soit alors que les électrons peuvent passer à travers la couche naturelle d'oxyde par effet tunnel.

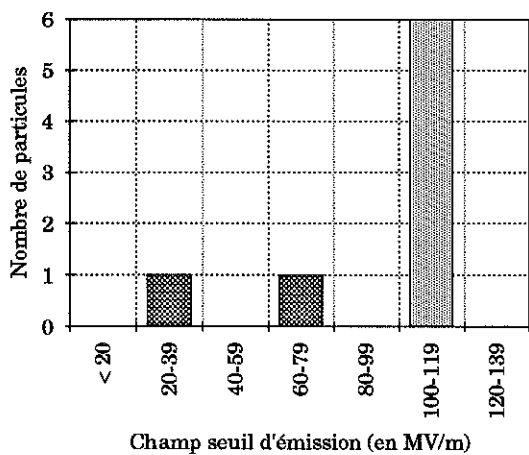


(a)

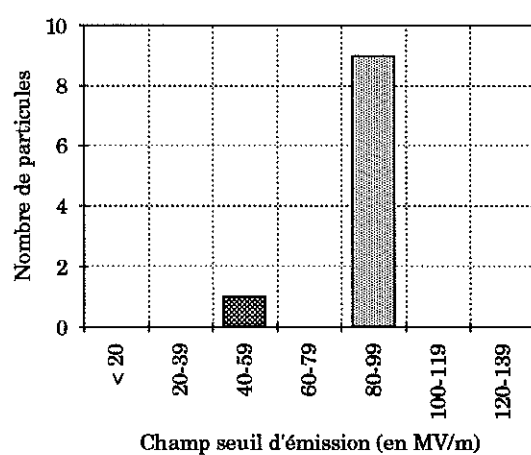


(b)

Emission des particules d'or sur un échantillon en niobium (a) et en or (b).



(a)



(b)

Emission des particules de niobium sur un échantillon en niobium (a) et en or (b).

Figure III.22. Comparaison de l'émission des particules d'or et de niobium sur des échantillons de niobium (a) et sur des échantillons d'or (b). Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.

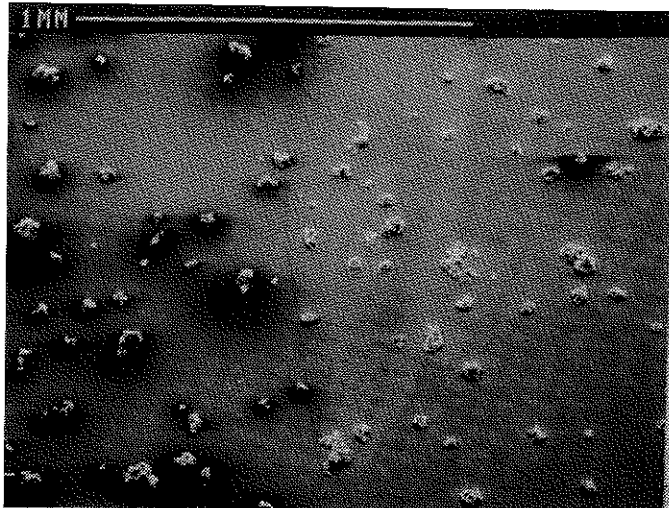


Figure III.23. Micrographie de particules de fer posées sur un échantillon niobium recouvert de sa couche naturelle d'oxyde (à droite) et recouvert de 240 nm d'oxyde anodique (à gauche).

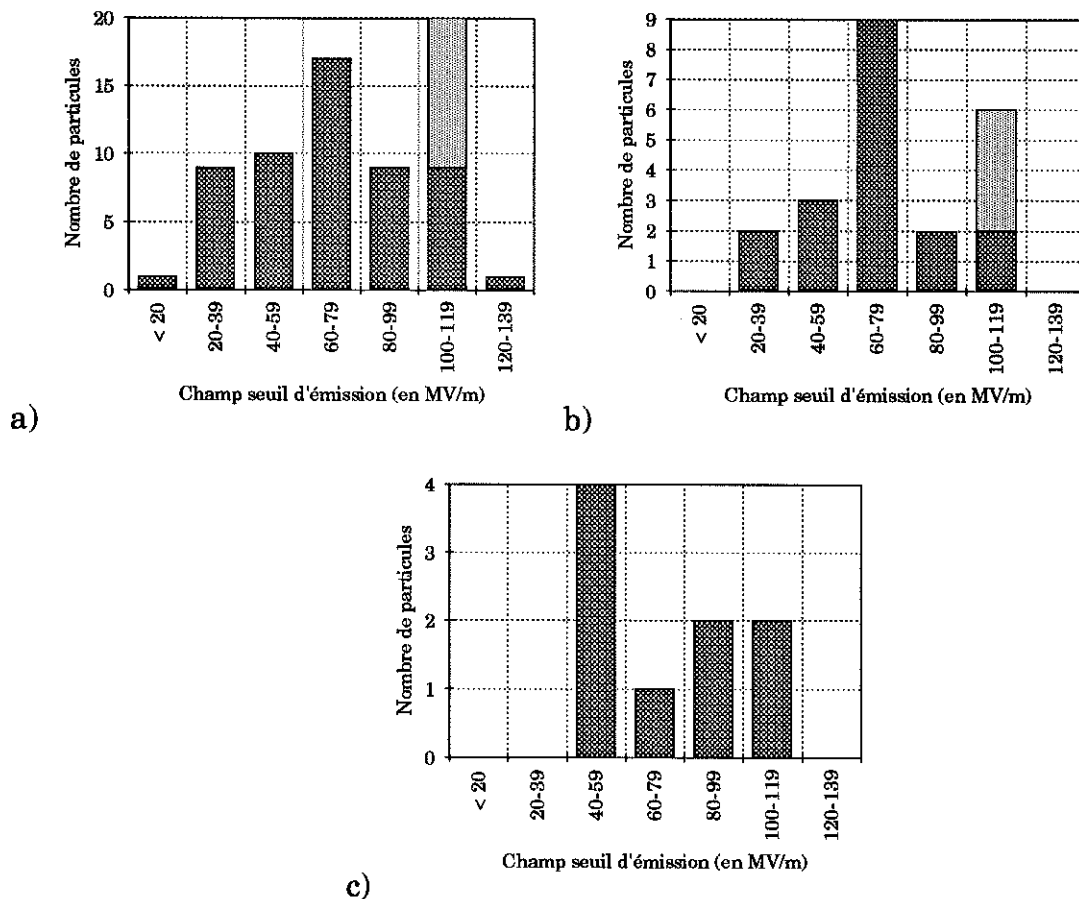


Figure III.24. Emission des particules de fer sur des échantillons de niobium recouvert de sa couche naturelle d'oxyde (a) et recouvert de 240 nm (b) et 260 nm (c) d'oxyde anodique. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.

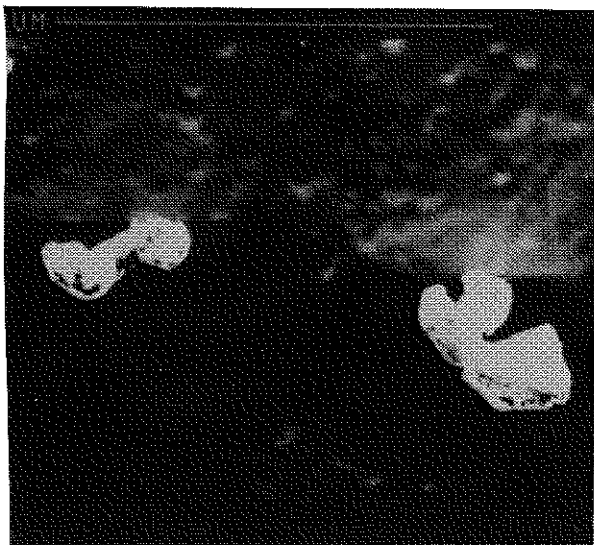
La figure III.24 montre l'émission de particules de fer sur un échantillon de niobium recouvert de sa couche naturelle d'oxyde et sur des échantillons de niobium recouverts de 240 nm (b) et de 260 nm (c) d'oxyde anodique. Etrangement, la présence ou l'absence de la couche anodique d'oxyde ne semble pas jouer un rôle important sur les champs seuils d'émission des particules de fer. En effet, étant donné que le courant d'émission pour une particule donnée fluctue avec le temps et que la forme incontrôlée des particules entraîne une variation de l'émission moyenne entre particules, la faible différence visible sur la figure III.24 ne semble pas statistiquement significative. Des résultats identiques ont été obtenus avec des particules d'argent. Tous ces résultats sont cohérents avec ceux annoncés par Niedermann [III.24] qui n'avait trouvé aucune influence d'une couche anodique de niobium d'épaisseur égale à 130 nm sur l'émission des particules de carbone.

La dernière constatation que nous ferons sur le rôle de la couche anodique d'oxyde concerne le halo visible sur toutes les particules posées sur la couche anodique d'oxyde. En effet, après que les particules aient émis, la charge visible sous l'effet du faisceau d'électrons du MEB disparaît. Un exemple de ce phénomène est donné dans la figure III.25 où l'on voit deux particules de fer posées sur une couche épaisse d'oxyde de niobium. La première micrographie représente la particule de fer comme elle apparaît au MEB avant l'application d'un champ électrique (a) et la suivante, sa nouvelle apparence après que celle-ci ait émis des électrons (b). La particule de droite qui est notre référence conserve, elle, le halo visible initialement. L'oxyde anodique présent sous la particule semble avoir été modifié avant que l'émission n'ait lieu ou pendant celle-ci car il est devenu suffisamment conducteur pour écouler les charges vers l'échantillon entraînant ainsi la disparition du halo visible au MEB. L'oxyde anodique situé entre les particules et l'échantillon semble donc avoir été rendu conducteur par l'émission électronique.

Nous avons cherché à savoir si la modification des propriétés de la couche d'oxyde était localisée sous la particule. Pour cela, nous avons déplacé soigneusement la particule à l'aide d'une pointe de rayon de courbure au sommet inférieur à un micron. La particule se charge à nouveau dès qu'elle est légèrement déplacée. Ce résultat suggère que l'oxyde n'a été modifié que sous les points de contact entre la particule et l'échantillon au moment de l'émission.

Après avoir écarté la particule de sa position initiale, nous avons testé l'émission de la zone où l'oxyde semble avoir été modifié. Aucune émission n'a été observée même pour des champs appliqués de 120 MV/m. La modification des propriétés de l'oxyde au moment de l'émission électronique ne peut donc pas justifier à elle seule un renforcement local du champ appliqué donc l'émission électronique observée sur les particules. Les mêmes études ont été répétées sur d'autres particules avec des résultats similaires.

a)



b)

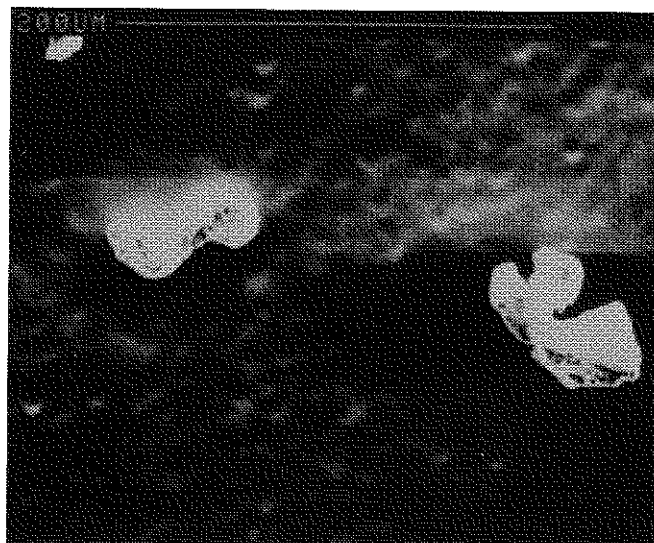


Figure III.25. Micrographie montrant une particule posée sur un échantillon de niobium recouvert par une couche de 240 nm d'oxyde anodique. Avant émission (a), les deux particules se chargent sous l'effet du faisceau électronique du microscope. Après émission (b), la particule de gauche ne se charge plus sous le faisceau alors que la particule de droite, qui est notre référence, continue de se charger.

Afin de poursuivre ce type d'études, nous avons fabriqué des structures MIM (Métal-Isolant-Métal) sur des échantillons de niobium. La couche anodique d'oxyde a une épaisseur de $e = 100$ nm et au dessus de cette couche, nous avons réalisé des dépôts cylindriques métalliques (dans notre cas de l'aluminium) par sputtering (figure III.26). En utilisant le dispositif décrit à la figure III.27, il est possible d'étudier la courbe caractéristique $I=f(V)$ de la MIM. On pourra donc appliquer une tension croissante jusqu'à ce que le courant soit contrôlé par le mécanisme de transport dans l'oxyde : région 2 (voir figure III.28). Ce régime qui est connu sous le nom de régime de Poole-Frenkel [III.30-III.32] est caractérisé par la linéarité de la caractéristique $I=f(V)$ lorsque les valeurs sont portées dans les coordonnées suivantes : \sqrt{E} en abscisse et $\ln(I/E)$ en ordonnée. Lorsqu'on continue d'augmenter la différence de potentiel appliquée à la structure MIM, on passe dans la région 3 de la courbe qui est caractérisée par une augmentation rapide du courant en fonction de la tension appliquée mais surtout par une modification irréversible des propriétés conductrices de la structure MIM. On dit alors qu'on a "formé" la couche d'oxyde. La rondelle métallique déposée sur la couche d'oxyde peut alors être dissoute chimiquement (NaOH, 1 N) de façon à laisser apparaître la zone de l'oxyde qui a été formée. Cette zone présente exactement le même aspect au MEB que le reste de la surface oxydée.

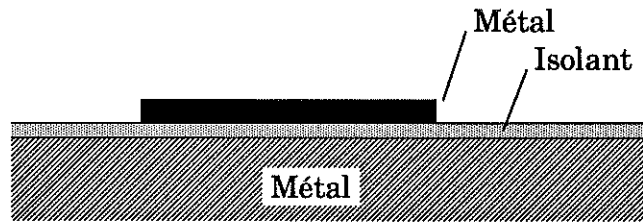


Figure III.26. Schéma d'une structure MIM.

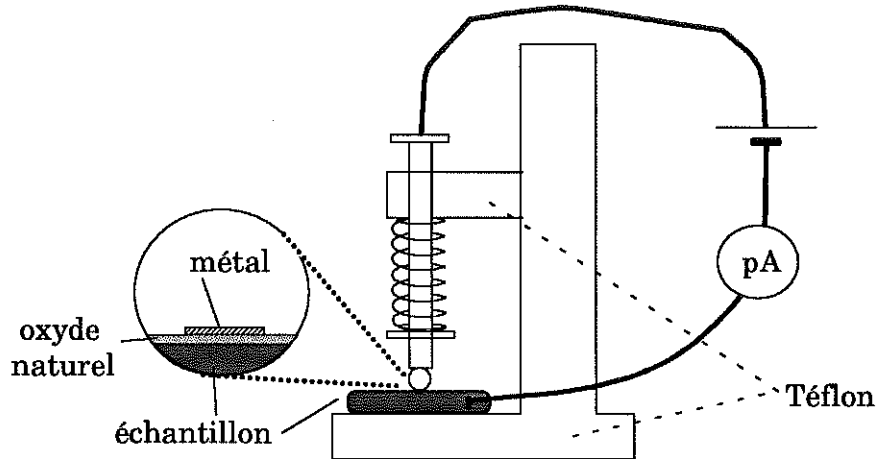


Figure III.27. Dispositif permettant la mesure du courant dans une MIM.

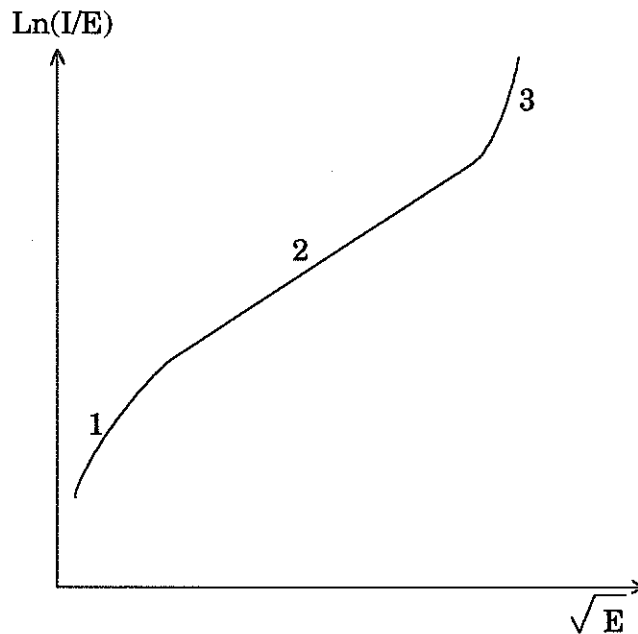


Figure III.28. Graphiques courant-tension dans des coordonnées de Poole-Frenkel.

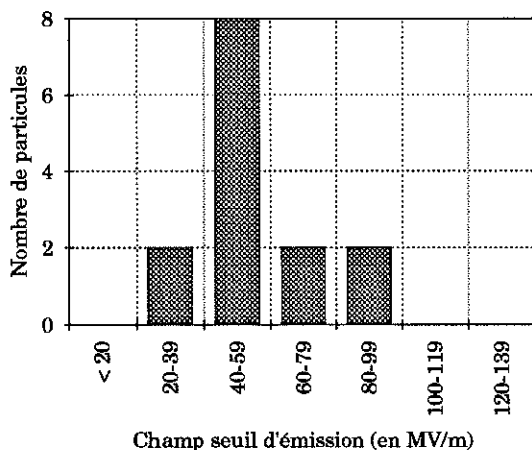
Le balayage en champ de cette zone d'oxyde "formé" n'a montré aucune émission ce qui indique que, bien que formée, la couche d'oxyde ne favorise pas l'émission électronique. Cette expérience a été renouvelée plusieurs fois sans qu'aucune émission ne soit observée dans la région où l'oxyde a été formé.

Le balayage en champ d'une structure MIM complète (avant dissolution du métal) n'a pas montré de courant d'émission même pour des champs appliqués de 150 MV/m. Des mesures n'ont pas pu être réalisées pour des champs plus élevés car il se produit alors des micro-claquages qui détruisent le dépôt métallique.

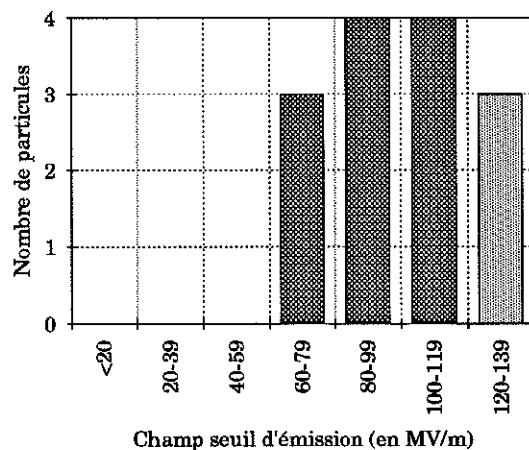
Echantillon d'aluminium anodisé

La figure III.29 montre les résultats obtenus pour les champs seuils d'émission des particules de fer posées sur un échantillon d'aluminium recouvert de sa couche naturelle d'oxyde (a) et d'une couche de 98 nm d'oxyde anodique (b)(c). La différence entre les figures III.26 (b) et (c) provient de la mesure du champ seuil d'émission. En effet, les résultats de la figure III.29(b) correspondent aux champs appliqués pour amorcer l'émission, alors qu'après une première émission, le champ seuil diminue légèrement et on obtient alors les résultats de la figure III.29(c). Ce phénomène est assez reproductible et par exemple, pour une particule dont le champ seuil d'émission est égal à 72 MV/m, après une émission électronique importante ($I > 1\mu A$), le nouveau champ seuil d'émission est de 60 MV/m. Si l'on renouvelle l'expérience, aucune différence n'est observée. Les propriétés de la couche d'oxyde ont donc été modifiées lors de la première émission.

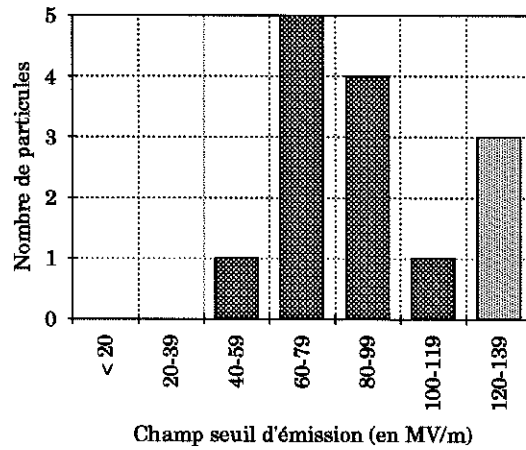
Dans tous les cas, nous observons un décalage des champs seuils d'émission d'une vingtaine de méga-volts par mètre environ ce qui traduit une influence importante de la couche anodique d'oxyde. Tous les phénomènes de charge observés au MEB pour les particules de fer posées sur une couche anodique de niobium ont également été observés pour les particules de fer posées sur une couche anodique d'alumine. Le courant d'émission nécessaire pour faire disparaître le halo visible autour des particules est sensiblement le même dans le cas de l'aluminium que dans le cas du niobium. Par contre, il est nécessaire de laisser les particules émettre plus longtemps dans le cas de l'aluminium que dans le cas du niobium pour que le halo disparaisse totalement. La figure III.30 montre une particule de fer sur la couche anodique d'alumine avant émission (a) et la même particule après émission (b).



(a)

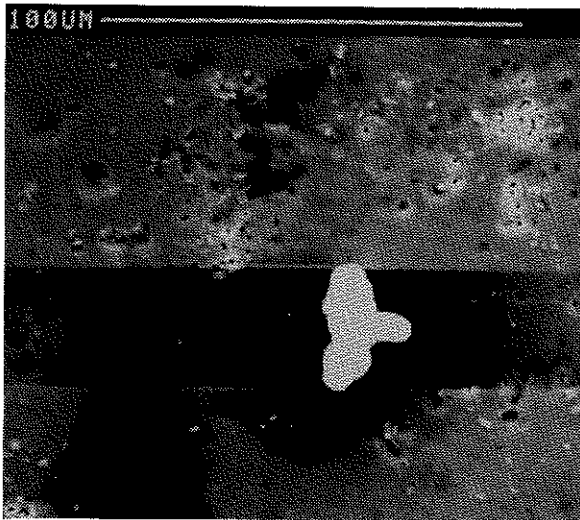


(b)



(c)

Figure III.29. Emission des particules de fer sur un échantillon d'aluminium recouvert de sa couche naturelle d'oxyde (a) et d'une couche de 98 nm d'oxyde anodique (b) et (c). (b) correspond aux champs nécessaires à l'amorçage de l'émission, (c) correspond aux champs obtenus après une première émission. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.



(a)



(b)

Figure III.30. Micrographie montrant une particule posée sur un échantillon d'aluminium recouvert par une couche de 98 nm d'oxyde anodique. Avant émission (a), la particule se charge sous l'effet du faisceau électronique du microscope. Après émission (b), la particule ne se charge plus sous le faisceau.

III.2.4. CARACTERISTIQUES COURANT-TENSION RELEVÉES SUR DES PARTICULES

Nous disposons de peu de statistiques sur les caractéristiques courant-tension obtenues sur des particules. En effet, les particules disparaissent pour des champs appliqués importants. De plus, l'émission de ces particules est très instable. La figure III.31 montre un exemple d'émission d'une particule de fer dans les coordonnées d'un diagramme de Fowler-Nordheim.

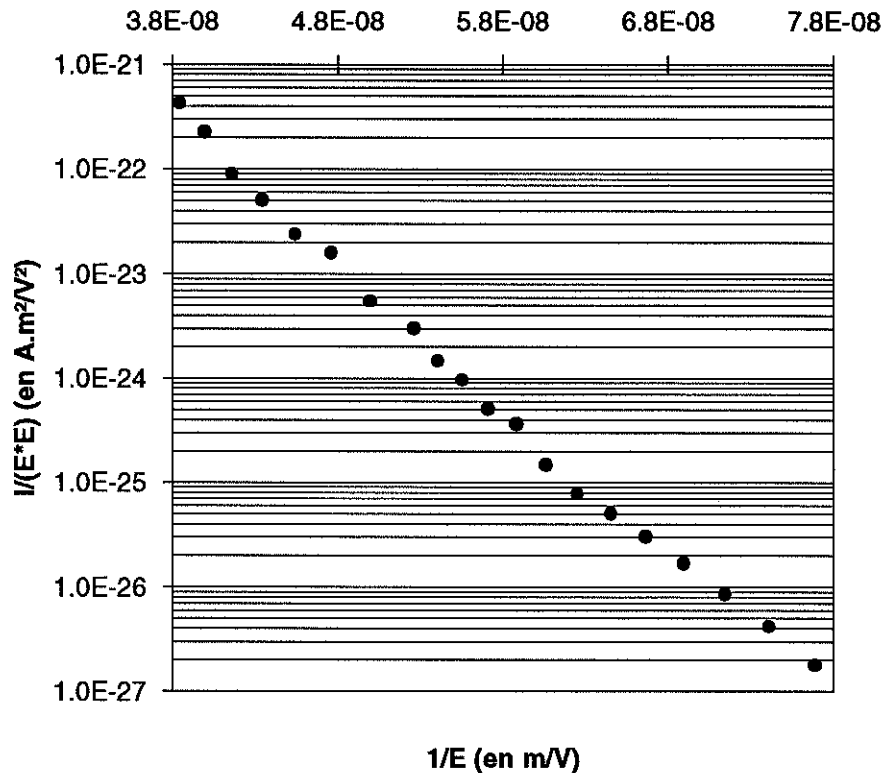


Figure III.31. Diagramme de Fowler-Nordheim représentant l'émission d'une particule de fer sur un échantillon en niobium ($\beta = 170$, $S = 5.10^{-15} m^2$).

III.2.5. EFFETS THERMIQUES SUR LES PARTICULES

Dans certains cas, lorsqu'une particule émet plusieurs microampères, il arrive que celle-ci se soude à la surface. Après cette soudure, la particule continue d'émettre mais le plus souvent pour des champs seuils d'émissions plus élevés que nous attribuons au lissage de la forme de la particule à cause de la fusion locale du métal. La figure III.32 montre un exemple de particule soudée à la surface après qu'elle ait émis un courant de plusieurs microampères (a) et la même région (b) après que nous ayons réussi à déplacer la particule à l'aide d'une pointe fine. La particule qui a résisté un peu, a fini par se détacher de la surface laissant apparaître des traces évidentes de fusion.

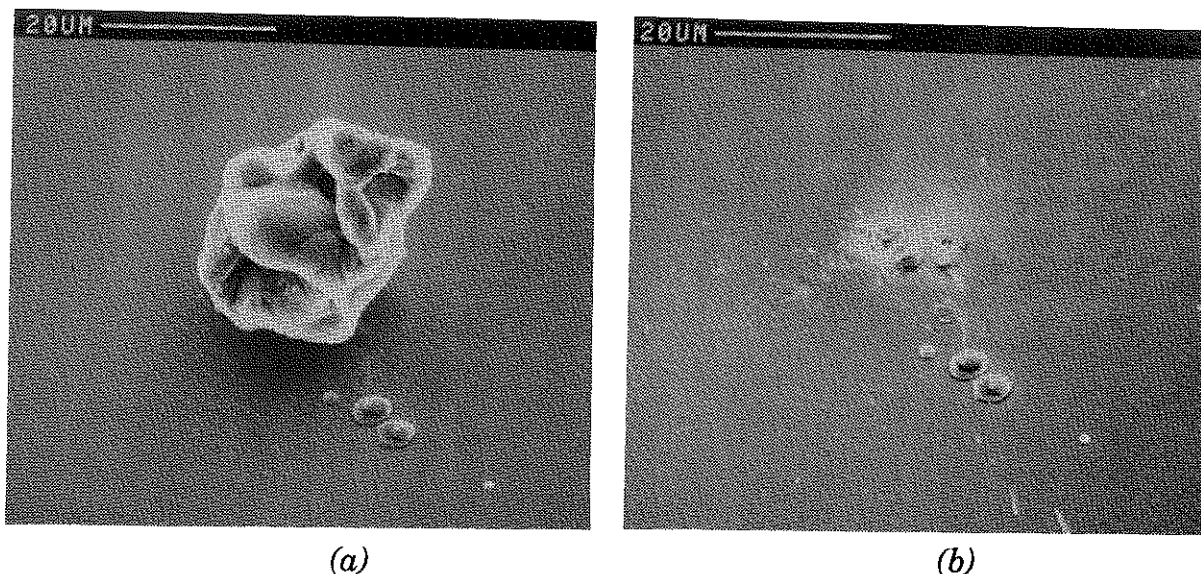


Figure III.32. Micrographies montrant un exemple de particule soudée à la surface après qu'elle ait émis un courant de plusieurs microampères (a) et la même région sans la particule (b).

III.2.6. DISCUSSION

Le tableau III.2 représente une synthèse de tous les résultats obtenus sur l'étude de l'émission des particules de contamination sélective.

De ce tableau, il ressort que :

1. Les taux de disparition des particules sous l'effet du champ électrique sont très importants d'où la difficulté d'obtenir des statistiques importantes pour certaines natures de particules.
2. Les natures de particules qui ont le plus fort taux d'émission sont par ordre décroissant : l'argent, l'or, le fer, le nickel, le niobium, le titane, l'alumine et la silice. Pour les quatre dernières natures de particules, le taux de particules émettrices est très faible. Nous retrouvons donc la séparation en trois grandes familles, les particules métalliques sans oxyde ou ayant un oxyde conducteur qui émettent beaucoup, les particules métalliques ayant un oxyde isolant qui n'émettent pas et les particules isolantes qui n'émettent pas non plus.
3. Les natures des particules présentant les plus faibles champs seuils moyens d'émission sont par ordre des champs seuils croissants : l'or, le fer, le nickel et l'argent. Ce même classement est retrouvé en prenant le champ seuil minimum d'émission de chaque nature de particules.
4. La comparaison des résultats obtenus sur des échantillons de niobium recouverts d'une couche naturelle d'oxyde et de ceux obtenus sur des échantillons en or ne permet pas de tirer des conclusions sur l'influence

de la couche d'oxyde située entre l'échantillon et les particules, sur l'émission des celles-ci.

5. La comparaison des résultats obtenus sur des échantillons de niobium recouverts d'une couche naturelle d'oxyde et recouverts d'une couche anodique d'oxyde ($e=260$ nm) montre une faible influence de l'oxyde sur l'émission des particules. En effet, le taux de particules qui émettent est plus faible en présence d'oxyde anodique. De plus, les champs seuils moyen d'émission ainsi que les champs seuils minimum d'émission sont en hausse sur l'oxyde anodique. La présence d'une couche d'oxyde anodique a donc plutôt tendance à augmenter les champs seuils d'émission.
6. La comparaison des résultats de l'émission des particules de fer obtenus sur des échantillons d'aluminium recouverts d'une couche naturelle d'oxyde et recouverts d'une couche anodique d'oxyde aboutit aux mêmes conclusions que (5). En effet, les valeurs des différents paramètres montrent que la couche d'oxyde est bien un obstacle à l'émission.

En plus des résultats extraits du tableau III.2, il est important d'insister sur trois autres points fondamentaux à savoir :

1. Les particules d'or posées sur des échantillons en or sont de très bon émetteurs, les meilleurs parmi toutes les particules testées.
2. Les particules, même soudées à la surface, continuent d'émettre avec des champs seuils voisins de ceux obtenus avant la soudure de la particule.
3. En étudiant l'émission électronique des particules de fer sur des couches anodiques de niobium et d'aluminium, nous avons observé que ces couches provoquent dans un premier temps un décalage des champs seuils d'émission. Ensuite, lorsque le courant d'émission devient important, les propriétés de l'oxyde situé entre les particules et l'échantillon sont modifiées et les champs seuils d'émission diminuent un peu en restant tout de même supérieurs aux valeurs obtenues sur une couche naturelle d'oxyde. Ce résultat fait penser au modèle du filament électroformé qui suppose une modification des propriétés conductrices de la couche d'oxyde de façon à favoriser fortement l'émission. Cependant, en plus d'entraîner des modifications faibles des champs seuils d'émission, la zone d'oxyde comprise entre les particules et l'échantillon n'émet pas d'électrons même pour des champs très intenses (120 MV/m). La modification locale de l'oxyde, bien que réelle, ne semble pas favoriser l'émission électronique des particules de fer. Ce résultat a été confirmé par les études d'émission réalisées sur les couches de niobium "électroformées" qui n'émettent pas. Il semble que le contact particule-couche d'oxyde soit nécessaire à l'observation d'une modification (même légère) de l'émissivité. L'utilisation en sonde de l'anode de tungstène n'est pas suffisante pour mettre en évidence une modification de l'émissivité des zones "électroformées".

Nature des particules	Nombre de particules qui émettent		Nombre de particules qui restent sans émettre		Nombre de particules qui n'ont pas disparu	Champ seuil moyen d'émission	Champ seuil minimal	Origine des particules	Taux de particules qui disparaissent (par rapport au nombre total de particules étudiées)
	Nbre	%	Nbre	%					
Echantillon de niobium									
Fe	56	82	12	18	68	66.2	16	PC	13
Fe sphère	0	0	16	100	16	/	/	PL	36
Au	12	92	1	8	13	49.4	24	C	24
Ag	15	94	1	6	16	78.2	30	C	27
Ni	10	67	5	33	15	74.4	30	PL	55
Ni sphère	3	10	27	90	30	(78)	(72)	PC	45
Nb	2	25	6	75	8	(56.3)	(36)	PC	56
Ti	1	8	12	92	13	(100)	(100)	PC	35
Alumine	2	4	45	96	47	(76)	(72)	PL	0
Silice	0	0	11	100	11	/	/	PL	0
Echantillon de niobium anodisé (e=260 nm)									
Fe	27	79	7	21	34	68.4	28	PC	31
Ag	5	83	1	17	6	81	55	C	14
Echantillon d'or									
Fe	7	47	8	53	15	68.6	36	PC	12
Au	20	100	0	0	20	57	21	C	33
Nb	1	10	9	90	10	(55)	(55)	PC	33
Echantillon d'aluminium									
Fe	14	100	0	0	14	55	24	PC	13
Echantillon d'aluminium anodisé (e=98nm)									
Fe	11	79	3	21	14	78.7	56	PC	7

(1) PC : poudre commerciale, PL : poudre de laboratoire, C : copeaux.

(2) les valeurs entre parenthèses sont données à titre indicatif et n'ont pas de sens réel car elles sont obtenues à partir d'un faible nombre de valeurs.

Tableau III.2. Synthèse des études d'émission sur des particules de contamination sélective.

III.3. DEFAUTS GEOMETRIQUES

Les études d'émission de champ réalisées sur les défauts géométriques naturels, c'est à dire n'ayant pas été réalisés intentionnellement, ont montré que ces défauts possèdent une émission très stable avec des champs seuils d'émission (pour $I = 10 \text{ pA}$) qui sont, en général, inférieurs à 100 MV/m . Ces résultats sont en bon accord avec ceux de Tsutsumi [III.33], de Lloyd [III.34] et de Bahder [III.35] qui ont montré que des contacts mécaniques diminuent les champs seuils d'émission et donc la tenue en tension des électrodes. La grande stabilité de l'émission de cette catégorie de sites laisse entrevoir la possibilité d'étudier plus en détail l'influence de plusieurs paramètres (nature de l'échantillon, morphologie des sites,...) sur l'émission et donc de mieux comprendre les mécanismes à l'origine de celle-ci.

Cependant, devant la difficulté d'obtenir une statistique suffisante sur les défauts géométriques naturels (seulement 10 défauts observés ayant un champ seuil inférieur à 40 MV/m pour l'ensemble de nos études), nous avons décidé d'élaborer ces défauts in situ par simple contact mécanique d'une pointe sur un échantillon. Certaines formes de défauts géométriques peuvent également être obtenues grâce à des attaques chimiques préférentielles. Les résultats des études réalisées sur de cette catégorie de défauts seront présentés en fin de chapitre.

III.3.1. ETUDE DES CHAMPS SEUILS D'EMISSION DES DEFAUTS DUS A DES CONTACTS SUR UN ECHANTILLON

III.3.1.1. PROTOCOLE DE FABRICATION DES DEFAUTS GEOMETRIQUES

Les défauts géométriques sont obtenus en réalisant des contacts sur la surface d'un échantillon à l'aide d'une pointe préalablement montée sur le porte-pointes. Par cette méthode, deux types de défauts peuvent être réalisés :

1. des "contacts ponctuels" obtenus par déplacement vertical de la pointe sur l'échantillon. La pression, qui définit la taille et la profondeur de l'empreinte, est contrôlée par la flexion du bras porte-pointes.
2. des "rayures" obtenues par un "contact ponctuel" suivi d'une translation horizontale.

En général, la pression est très faible et seul les rayures réalisées sur un échantillon très bien poli sont visibles à l'oeil nu. Les contacts ponctuels, eux, ne sont pas visibles à l'oeil nu.

Quatre types différents de pointes ont été utilisés pour réaliser les défauts :

1. des pointes en tungstène pour simuler les effets d'un contact avec un objet métallique sur un échantillon en niobium. Les pointes utilisées ont été obtenues par polissage électrolytique d'un fil de tungstène. Le rayon de courbure au sommet est inférieur à 5 microns.
2. des pointes en niobium pour simuler des chocs niobium/niobium dans les cavités hautes fréquences supraconductrices. Ces pointes, obtenues par polissage électrolytique d'un fil de niobium, ont un rayon de courbure au sommet inférieur à 5 microns.
3. des pointes en matière plastique pour étudier les conséquences du contact d'un outil en plastique avec une surface en niobium. Ces pointes ont été fabriquées par traction sur un fil chauffé.
4. enfin, des pointes en carbone diamant afin d'éviter une contamination du défaut que l'on souhaite étudier. La pointe en diamant provient d'une cellule électromagnétique commerciale destinée à un bras de platine tourne-disque (voir figure III.33), qui a été adaptée à notre support de pointes.

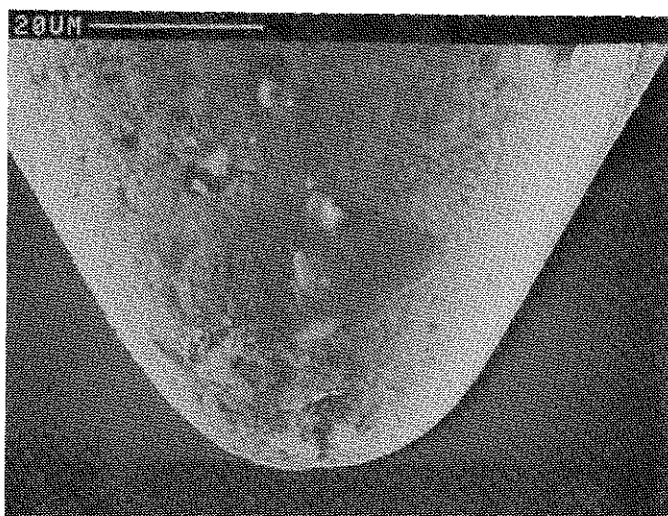
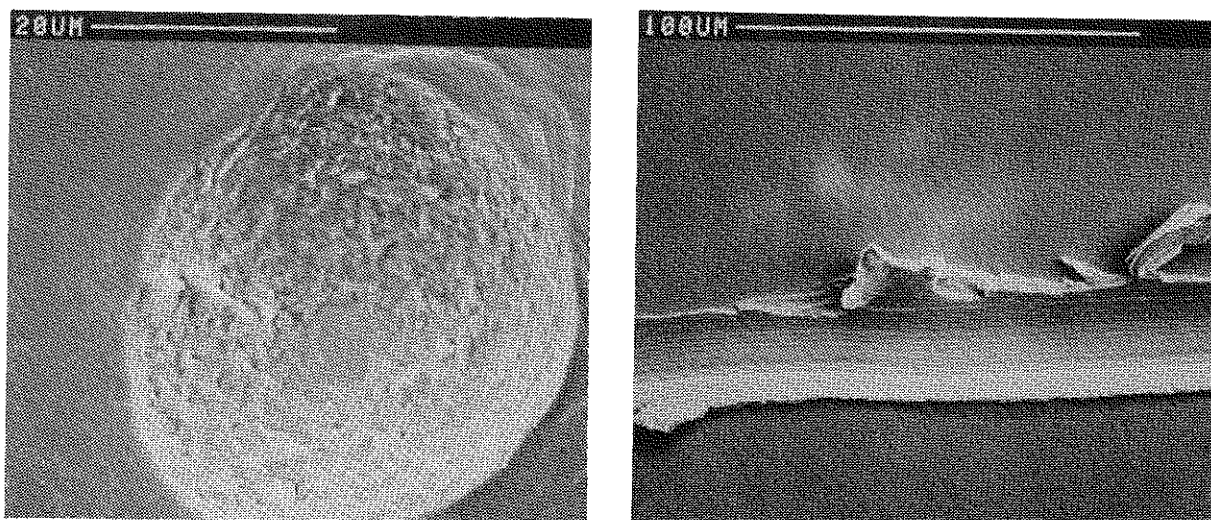


Figure III.33. Micrographie d'une des pointes en diamant utilisée pour la fabrication des défauts géométriques.

Deux types d'échantillons différents ont été utilisés :

1. le niobium, matériau de base des cavités supraconductrices,
2. l'or, pour se prémunir d'un éventuel rôle de l'oxyde naturel toujours présent sur le niobium.



(a)

(b)

Figure III.34. Micrographie d'un contact ponctuel (a) et d'une rayure (b) obtenus à partir d'une pointe diamant.

La figure III.34 représente des micrographies d'un contact ponctuel (a) et d'une rayure (b). Seuls les contacts ponctuels seront utilisés dans l'étude statistique de l'émission des défauts géométriques. En effet, la forme quelconque des sites obtenus par des rayures rend impossible les études statistiques. Cependant, ces défauts seront utilisés dans la suite de nos études car ils conduisent à des champs seuils d'émission en moyenne plus faibles que ceux observés sur les contacts ponctuels.

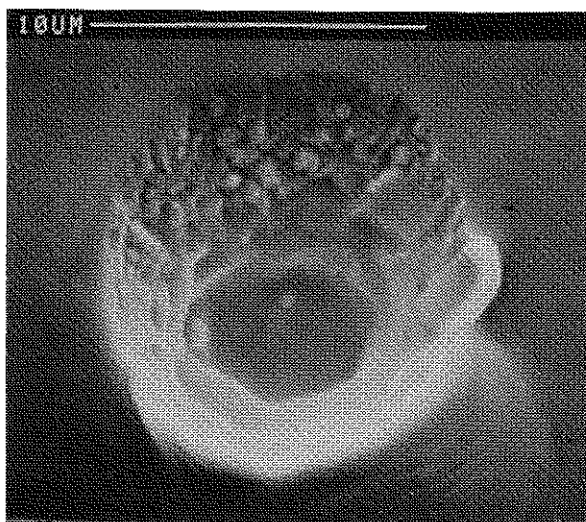
Les pointes utilisées pour mesurer les caractéristiques courant-tension sont les mêmes que celles utilisées pour les particules.

III.3.1.2. EFFET DES CONTACTS : TUNGSTENE SUR NIOBIUM ET TUNGSTENE SUR OR

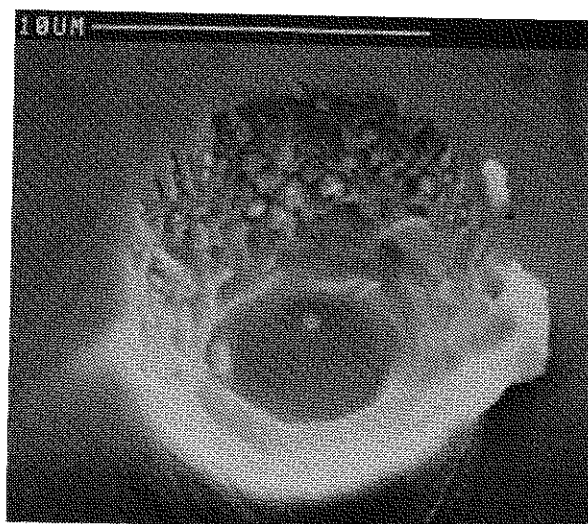
Dans cette partie sont présentés les résultats de l'émission des défauts obtenus par des contacts entre une pointe en tungstène et une surface en niobium. Ces études présentent un caractère appliqué car lors du montage des cavités supraconductrices interviennent des objets composés de matériaux divers (acier, fer, indium,...), aussi, est-il intéressant d'évaluer les risques liés à ce type de contacts.

Tous les défauts ont été réalisés avec une pointe de tungstène possédant un rayon de courbure au sommet d'environ 10 microns. Les défauts obtenus sont très reproductibles, aussi, la différence visible entre les figures III.35.a et III.35.b qui représentent respectivement des micrographies de deux défauts ponctuels réalisés sur un échantillon en niobium est-elle très faible. Peu de différence est également visible entre deux défauts réalisés sur un échantillon en or (voir figure III.36). Cependant, au fur et à mesure des contacts, la pointe évolue modifiant

par conséquent la forme microscopique des défauts engendrés lors du contact. Les formes sub-microscopiques, elles, restent aléatoires.

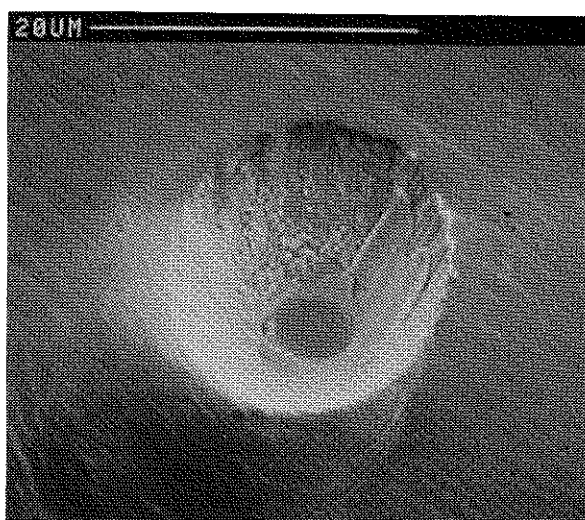


(a)

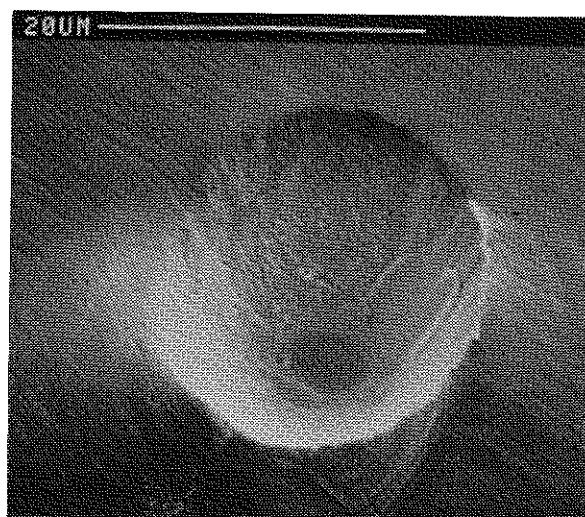


(b)

Figure III.35. Micrographies de deux défauts ponctuels réalisés sur un échantillon de niobium à l'aide d'une pointe en tungstène.



(a)



(b)

Figure III.36. Micrographies de deux défauts ponctuels réalisés sur un échantillon d'or à l'aide d'une pointe en tungstène.

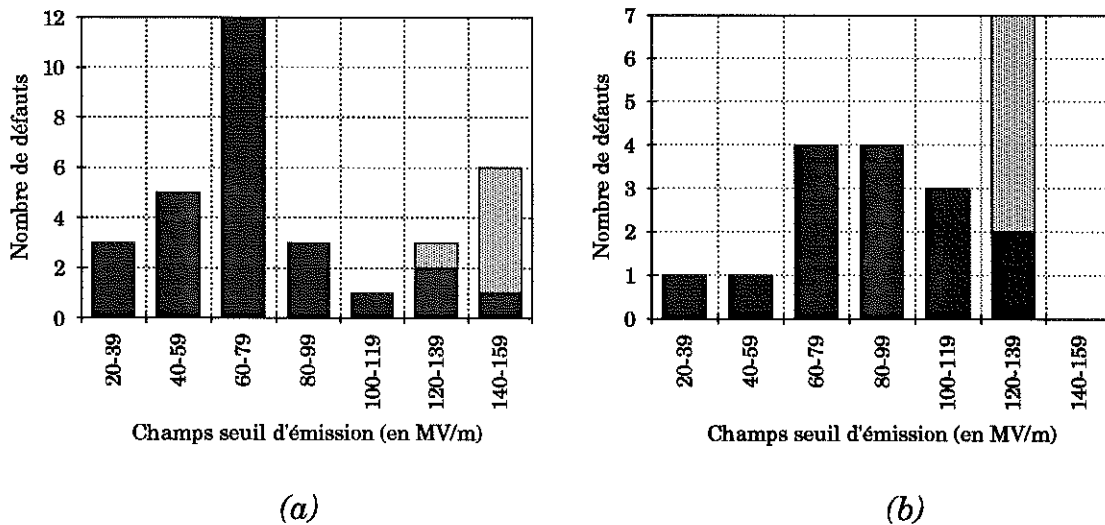


Figure III.37. Champs seuils d'émission des contacts ponctuels obtenus à l'aide d'une pointe en tungstène sur des échantillons en niobium (a) et en or (b). Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.

La figure III.37 représente les champs seuils d'émission des défauts géométriques obtenus par des contacts d'une pointe en tungstène sur un échantillon en niobium (a) et en or (b). Ces résultats semblent indiquer que les champs seuils d'émission sont plus faibles sur les échantillons en niobium que sur ceux en or.

III.3.1.3. EFFET DES CONTACTS : NIOBIUM SUR NIOBIUM

Les défauts réalisés par contact d'une pointe en niobium sur un échantillon en niobium sont peu reproductibles du fait de la dureté équivalente entre la pointe et l'échantillon. En effet, la géométrie de la pointe, qui définit la géométrie du défaut, évolue rapidement au fur et à mesure des contacts.

La figure III.38 représente les champs seuils d'émission des défauts géométriques obtenus par contact d'une pointe en niobium sur un échantillon en niobium. Ces défauts sont bien des émetteurs potentiels mais leurs champs seuils d'émission sont très élevés (supérieurs à 100 MV/m).

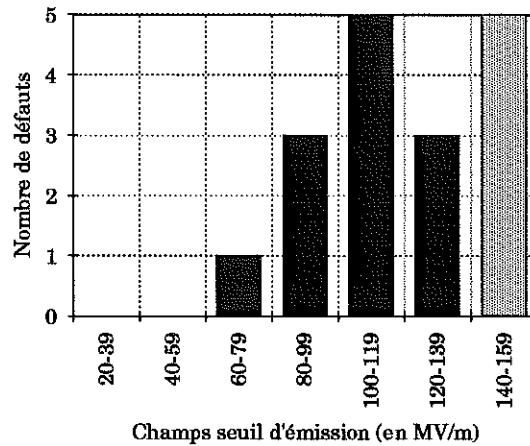


Figure III.38. Champs seuils d'émission de contacts ponctuels obtenus à l'aide d'une pointe en niobium sur des échantillons en niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.

III.3.1.4. EFFET DES CONTACTS : MATIERE PLASTIQUE SUR NIOBIUM

Deux types de matières plastiques ont fait l'objet de tests : le polychlorure de vinyle (nom commercial : PVC) et le polyméthylacrylate de méthyle (nom commercial : PLEXIGLAS). Dans les deux cas, nous avons réalisé des contacts ponctuels mais aussi des rayures. Aucune émission n'a été observée après ce type de contacts ou de rayures. Ce résultat n'est guère surprenant puisque la dureté du niobium est beaucoup plus élevée que celle du plastique. De fait, aucune déformation n'est visible sur l'échantillon en niobium. De plus, malgré l'importante contamination de la surface par de petites particules de plastique, aucune émission n'a été détectée ce qui confirme l'absence d'émission des particules isolantes.

III.3.1.5. EFFET DES CONTACTS : DIAMANT SUR NIOBIUM ET DIAMANT SUR OR

On pourrait attribuer l'émission électronique observée pour les différents types de défauts à la contamination de la surface par les pointes de tungstène ou de niobium. Afin d'éliminer cette hypothèse et d'étudier l'émission intrinsèque des défauts, nous avons réalisé les mêmes études mais en utilisant cette fois-ci, une pointe en diamant. En effet, la différence de dureté existant entre la pointe en diamant et l'échantillon en niobium ou en or garantit l'absence de contamination du défaut.

Les pointes disponibles commercialement sont destinées à l'étude de la microdureté des matériaux. Ces pointes, de dimensions importantes, ne nous ont

pas permis de réaliser de façon reproductible des défauts de tailles inférieures à 20 microns de diamètre. Cette difficulté a été surmontée grâce à l'utilisation de pointes en diamant (voir figure III.33) que nous avons adaptées à notre support de pointes. Ce type de pointe permet de réaliser de façon très reproductible des défauts dont la taille n'excède pas 20 microns de diamètre aussi bien sur des échantillons en niobium que sur des échantillons en or. Les figures III.39 et III.40, qui représentent deux séries de contacts ponctuels réalisées respectivement sur du niobium et sur de l'or, montrent la bonne reproductibilité de l'aspect microscopique de ce type de défauts. Or, l'émission a lieu pour des champs très variables d'un défaut à un autre. Ceci semble indiquer que des géométries sub-microscopiques pourraient être à l'origine de l'émission et que celles-ci sont aléatoires d'un défaut à un autre.

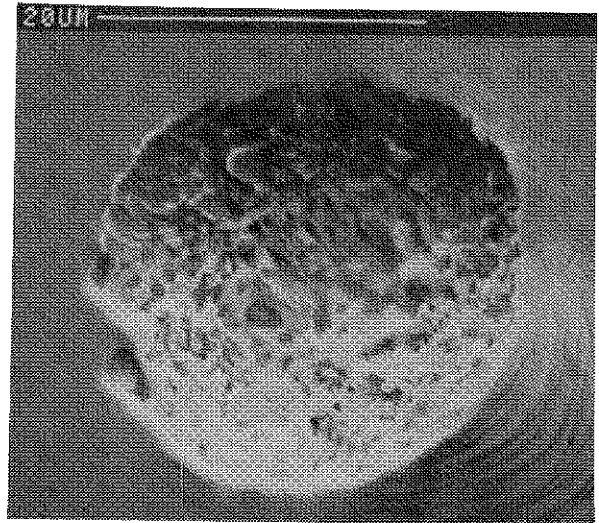
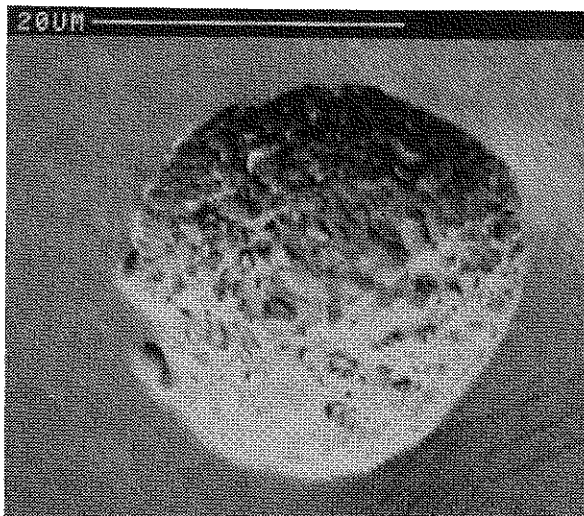


Figure III.39. Contacts ponctuels réalisés à l'aide d'une pointe en diamant sur des échantillons en niobium.

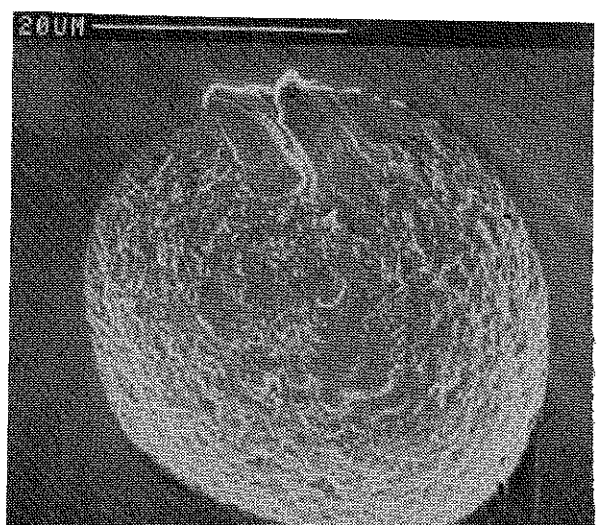
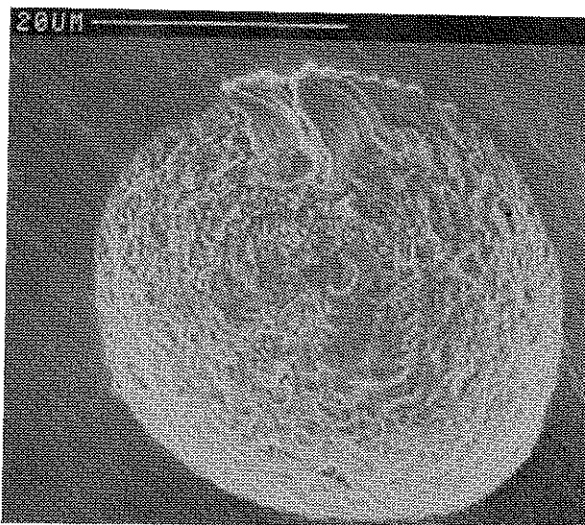
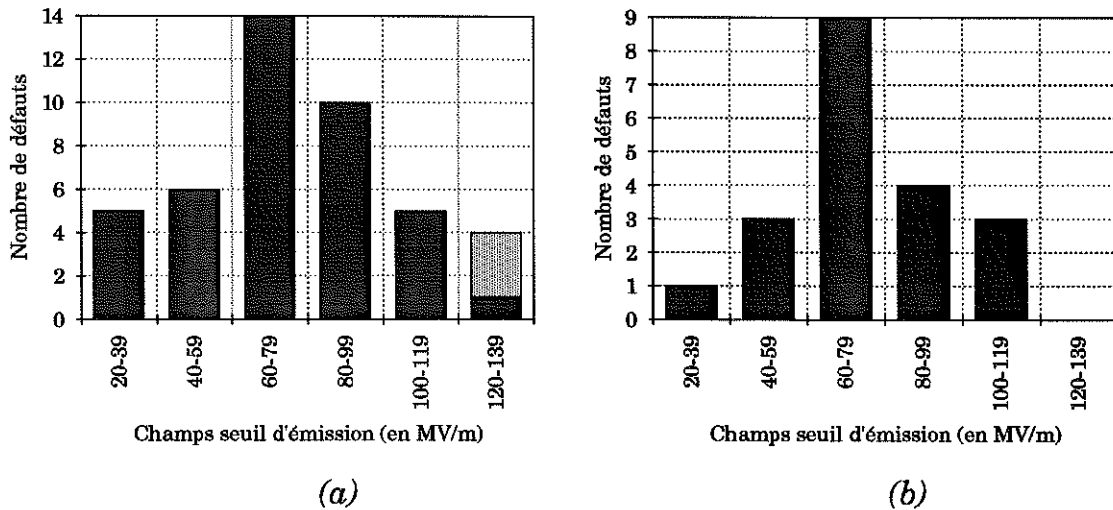


Figure III.40. Contacts ponctuels réalisés à l'aide d'une pointe en diamant sur des échantillons en or.



(a) (b)
Figure III.41. Champs seuils d'émission des contacts ponctuels obtenus à l'aide d'une pointe en diamant sur des échantillons en niobium (a) et en or (b). Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.

La figure III.41 représente les résultats obtenus sur l'émission des contacts ponctuels réalisés sur des échantillons en niobium (a) et en or (b) à l'aide d'une pointe en diamant. Il n'y a que peu de différence visible entre les deux histogrammes. La nature de l'échantillon ne joue donc pas un rôle très important.

III.3.1.6. EMISSION DES RAYURES

Les rayures fabriquées sur des échantillons d'or et de niobium (voir figure III.42), sont en général de faible profondeur, environ 1 à 2 microns, .

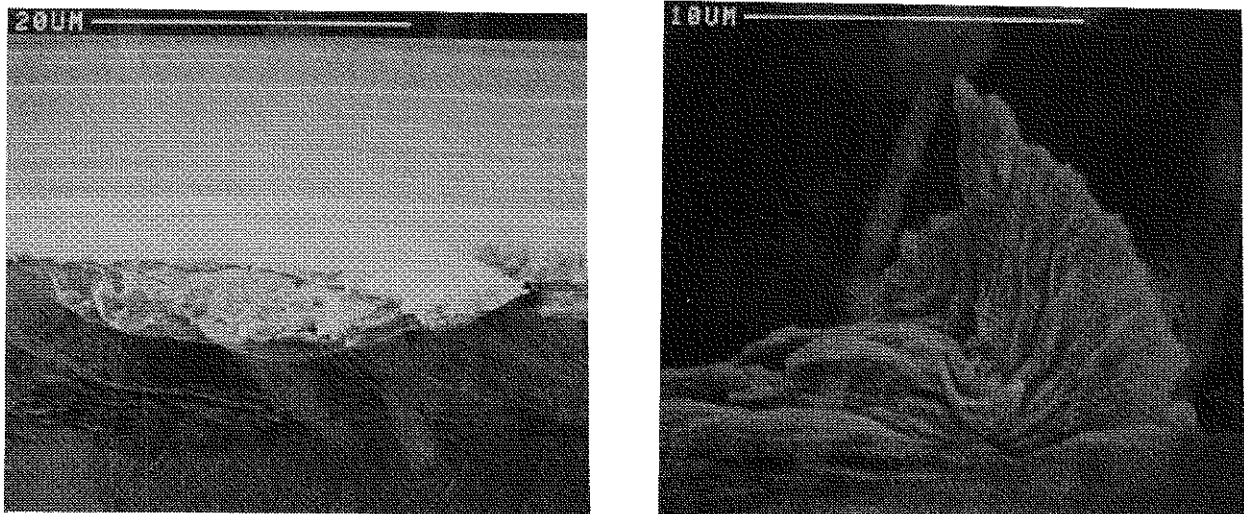


Figure III.42. Rayure réalisée à l'aide d'une pointe en diamant sur un échantillon en niobium, vue de dessus et vue de profil.

Comme attendu, les champs seuils d'émission se sont avérés être plus faibles que ceux des contacts ponctuels. On obtient ainsi facilement des défauts ayant une émission très stable pour des champs seuils d'émission compris entre 10 et 20 MV/m. Cette gamme de champ, difficilement accessible par les contacts ponctuels, vient combler une lacune permettant ainsi d'étendre notre travail à des défauts géométriques dont les champs seuils d'émission s'étalent de 10 à 120 MV/m.

A titre indicatif, sur 60 défauts géométriques étudiés sur le niobium (41 contacts et 19 rayures) et sur 26 défauts étudiés sur l'or (20 contacts et 6 rayures), les champs seuils d'émission minima relevés sont donnés dans le tableau III.3.

	Contacts	Rayures
Nb	15 MV/m	10 MV/m
Au	30 MV/m	9 MV/m

Tableau III.3. Champs seuils minima d'émission observés pour des contacts ponctuels et des rayures réalisées sur des échantillons de niobium et d'or.

III.3.1.7. DISCUSSION

Le tableau III.4 est une synthèse des différents résultats obtenus sur l'émission des contacts ponctuels. De ce tableau, il ressort que les champs seuils moyens d'émission sont plus faibles sur les échantillons de niobium que sur les échantillons en or. Ceci peut être attribué à la différence de dureté existant entre le niobium et l'or. En effet, l'or étant un matériau très malléable, il est probablement plus difficile de réaliser des structures sub-microscopiques reproductibles (taille de l'ordre de la dizaine de nanomètre). Ce résultat est confirmé par la proportion de défauts émettant entre 20 et 39 MV/m qui est beaucoup plus faible dans le cas de l'or que dans le cas du niobium.

Les défauts géométriques sont les conséquences de contacts mécaniques avec la surface de l'échantillon. Aussi, serait-on tenté d'attribuer leur émission à une contamination des défauts géométriques par l'objet utilisé pour réaliser le contact. Les résultats montrent le contraire. En effet, la plus faible proportion de défauts n'émettant pas a été obtenue pour les contacts ponctuels réalisés à l'aide des pointes en carbone diamant.

Les taux de défauts n'émettant pas à 140 MV/m sont plus faibles sur les contacts ponctuels réalisés avec une pointe en diamant que pour ceux réalisés avec une pointe en tungstène ou même encore avec une pointe en niobium. Une bonne corrélation semble donc exister entre la proportion de défauts n'émettant pas et la dureté de la pointe avec laquelle ils ont été réalisés. En effet, à pression égale, plus la pointe est dure et plus nette sera l'empreinte réalisée. Tous les

objets réalisés dans un matériau de dureté équivalente ou supérieure à celle du niobium peuvent donc provoquer des sites émetteurs suite à des contacts mécaniques.

	Champ seuil moyen d'émission (en MV/m)	Proportion de défauts qui n'émettent pas à 140 MV/m	Proportion de défauts qui émettent entre 20 et 39 MV/m
Nb/Nb	104	38 %	0 %
W/Nb	71	22 %	11 %
W/Au	84	33 %	7 %
C/Nb	72	7 %	12 %
C/Au	74	0 %	5 %

Tableau III.4. Récapitulatif de tous les résultats obtenus sur l'émission des contacts ponctuels.

Les pointes en diamant présentent pour notre étude de nombreux avantages à savoir :

1. pas de risque de contamination en carbone car les pointes en diamant sont très dures. Des tests réalisés avec des pointes en diamant différentes sur les échantillons en niobium ou en or, ont donné des distributions pour les champs seuils d'émission identiques à celles présentées à la figure III.41.
2. bonne reproductibilité des défauts, aussi bien pour leurs morphologies que pour leurs champs seuils d'émission.
3. champ seuil moyen d'émission le plus faible.
4. faible taux de défauts qui n'émettent pas.
5. obtention de nombreux défauts ayant des champs seuils d'émission inférieurs à 40 MV/m.

Cependant, le taux de contacts ponctuels émettant pour des champs inférieurs à 20 MV/m restant très faible, nous utiliserons dans la suite de nos études, à la fois des contacts ponctuels et des rayures, tous réalisés avec une pointe en diamant. Ce panachage entre les contacts ponctuels et les rayures nous permettra de couvrir la plus grande gamme de champs seuils d'émission possible avec ces défauts (de 10 à 120 MV/m).

III.3.2. INFLUENCE DE L'ETAT DE SURFACE SUR L'EMISSION ELECTRONIQUE DE CHAMP

La bonne maîtrise de la fabrication des sites émetteurs géométriques rend possible leur utilisation en vue d'étudier l'influence des paramètres suivants sur les mécanismes à l'origine de l'émission électronique par effet de champ :

1. influence de la contamination de pompage sur les champs seuils d'émission,
2. influence de la couche naturelle d'oxyde de niobium sur l'émission,
3. influence d'une couche anodique d'oxyde sur les champs seuils d'émission,
4. étude des caractéristiques courant-tension ($I = f(V)$).

III.3.2.1. INFLUENCE DE LA CONTAMINATION LIEE AU SYSTEME DE POMPAGE SUR LES CHAMPS SEUILS D'EMISSION

Cette étape est en fait un préliminaire à toute étude. En effet, il a souvent été attribué à la couche de contamination (toujours présente sur l'échantillon) un rôle important sur l'émission électronique (voir paragraphe I.3.8).

Pour réaliser cette étude, nous avons sélectionné plusieurs défauts géométriques réalisés à l'aide d'une pointe en diamant sur un échantillon en niobium et dont les champs seuils d'émission sont compris entre 20 et 70 MV/m. La seconde étape a consisté à la mesure très précise des champs seuils d'émission des différents sites émetteurs. Finalement, après une attente de 2 heures, le système de pompage demeurant en marche, nous avons procédé à la mesure des nouveaux champs seuils d'émission. Les résultats de cette étude sont donnés sur la figure III.43. L'influence de la contamination de pompage sur l'émission électronique semble être à la fois négligeable et indépendante du temps de pompage.

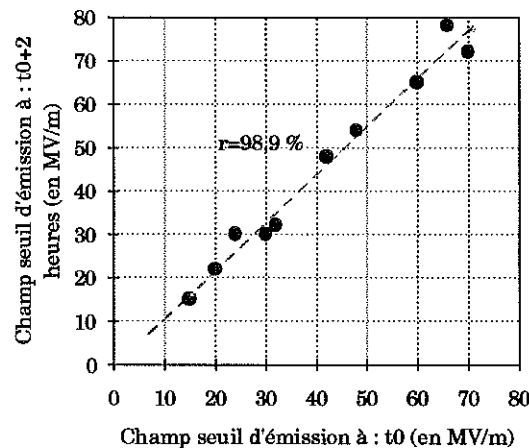


Figure III.43. Effet de la contamination de pompage sur les champs seuils d'émission des défauts géométriques réalisés sur un échantillon de niobium.

III.3.2.2. INFLUENCE DE LA COUCHE NATURELLE D'OXYDE DE NIOBIUM

De nombreux auteurs ont associé l'émission d'un défaut sur une surface à la présence sur celle-ci d'une couche d'oxyde. Afin de vérifier cette affirmation, nous avons réalisé des études sur l'effet de la couche naturelle d'oxyde de niobium sur l'émission de défauts géométriques réalisés sur un échantillon de niobium.

Le protocole adopté pour mettre en évidence un éventuel rôle de la couche naturelle d'oxyde de niobium sur les champs seuils d'émission est fortement inspiré des travaux réalisés en électrochimie ou en tribologie pour étudier la cinétique de passivation des métaux [III.36-III.40]. En effet, pour étudier l'effet d'une couche naturelle d'oxyde, une technique simple et très efficace consiste à réaliser une rayure afin de briser la couche d'oxyde puis à la laisser se reconstituer en électrolyte ou en atmosphères contrôlés.

Plusieurs contacts ponctuels et rayures ont été réalisés in situ dans la chambre du MEB sous un vide de 10^{-4} Pa (pression de travail). Les champs seuils d'émission ont été mesurés immédiatement après leur réalisation de façon à éviter la reconstitution de l'oxyde. En effet, même à des pressions très faibles, la couche naturelle d'oxyde se reconstitue très rapidement [III.14][III.41]. Après que tous les champs seuils d'émission ait été relevés, une entrée d'air filtré est réalisée dans l'enceinte du MEB et l'échantillon est ainsi exposé à une atmosphère ambiante pendant une dizaine d'heures. Une fois la pression de travail atteinte à nouveau dans la chambre du microscope, les champs seuils d'émission sont de nouveau relevés.

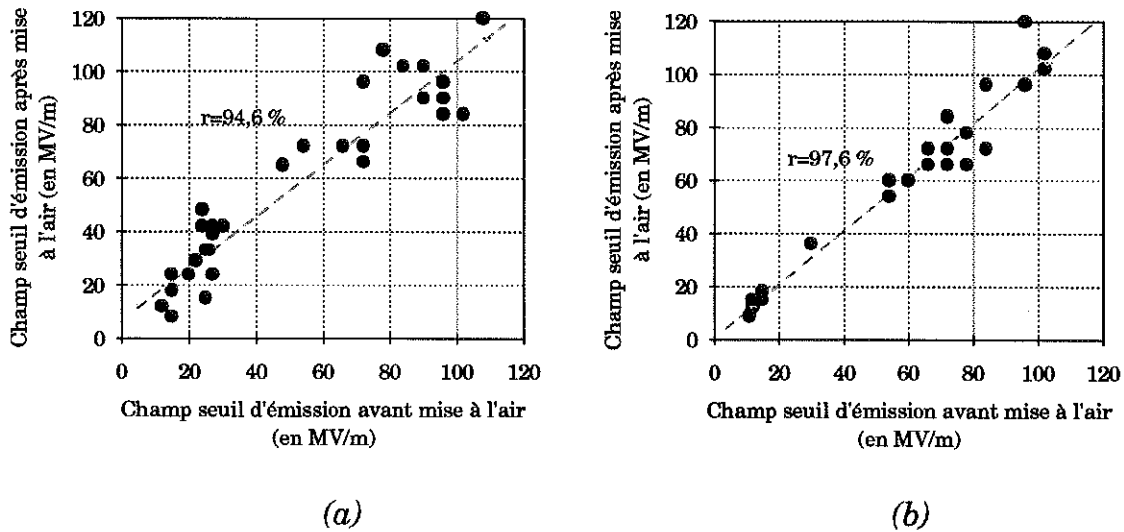


Figure III.44. Effet d'une mise à l'air ambiant sur les champs seuils d'émission des défauts géométriques sur des échantillons en niobium (a) et en or (b).

La figure III.44 montre l'effet d'une mise à l'air sur les champs seuils d'émission de défauts géométriques réalisés sur des échantillons en niobium (a) et en or (b). L'échantillon en or sert d'échantillon témoin car c'est un élément inerte chimiquement. Par conséquent, aucun effet ne devrait être visible sur ce dernier.

La figure III.44.b, relative au substrat d'or, ne montre aucun décalage des champs seuils d'émission et confirme ainsi l'absence d'effet dû à la mise à l'air ou à la contamination de pompage. De plus, ces résultats confirment l'excellente reproductibilité de notre protocole de mesure des champs seuils d'émission.

La figure III.44.a est plus délicate à interpréter en raison de la dispersion des points de mesure. En effet, nous nous retrouvons à nouveau confrontés à l'instabilité de l'émission des défauts en niobium, instabilité déjà constatée dans des études préliminaires sur les mesures des champs seuils d'émission des défauts en niobium. Malgré la dispersion des points de mesure, il semble tout de même qu'il y ait un faible décalage des champs seuils d'émission après la mise à l'air. Ce décalage, qui est d'une dizaine de méga-volts par mètre pourrait être attribuée à la barrière tunnel due à la couche naturelle d'oxyde de niobium qui s'est reconstituée lors de la mise à l'air ambiant de l'échantillon. En effet, une seconde mise à l'air n'a pas modifié les champs seuils d'émission précédemment mesurés.

Afin de mieux quantifier le rôle de l'oxyde de niobium sur le mécanisme d'émission électronique, nous avons décidé d'étudier l'effet d'une couche anodique d'oxyde de niobium sur l'émission des défauts géométriques. En effet, une couche plus épaisse d'oxyde de niobium devrait amplifier son effet sur l'émission, le rendant par conséquent suffisamment important pour que celui-ci puisse être détecté avec notre dispositif expérimental.

III.3.2.3. INFLUENCE D'UNE COUCHE ANODIQUE D'OXYDE DE NIOBIUM

La mise en évidence de l'effet d'une couche anodique d'oxyde de niobium sur l'émission de défauts géométriques, passe par les trois étapes suivantes :

1. réalisation de plusieurs défauts (contacts ponctuels et rayures) ayant des champs seuils d'émission compris entre 10 et 120 MV/m dont on relève les valeurs.
2. anodisation de l'échantillon sur lequel ont été réalisés les défauts. Une fois la couche anodique obtenue, un rinçage très poussé est réalisé afin d'éviter la présence de traces dues l'anodisation.
3. nouvelle mesure des champs seuils d'émission des défauts ainsi recouverts par une couche anodique d'oxyde.

Le tableau III.5 rassemble l'ensemble des résultats obtenus. Il apparaît très clairement que la présence d'une couche anodique d'oxyde sur les défauts géométriques modifie fortement leurs émissions. En général, cette couche anodique d'oxyde augmente fortement les champs seuils d'émission et arrive parfois même à supprimer l'émission d'un site jusqu'à des valeurs de champs voisines de 140 MV/m.

Champ seuil d'émission avant anodisation (en MV/m)		Champ seuil d'émission après anodisation (en MV/m)	
émission à	27	émission à	66
	15		72
	20		78
	15	pas d'émission à	120
	24		120
	36		120
	48		120
	84		120
	84		120
	102		120
	120		120

Tableau III.5. Récapitulatif de l'effet d'une couche anodique d'oxyde de niobium ($e = 280 \text{ nm}$) sur les champs seuils d'émission des défauts géométriques sur un échantillon en niobium.

Cependant, et comme le montre la figure III.45, l'oxyde ne peut être en totalité rendu responsable du changement de l'émission provenant des sites géométriques. En effet, la comparaison de la figure III.45.a et III.45.b montre que l'anodisation, en plus de rajouter une barrière supplémentaire due à l'oxyde, lisse considérablement les aspérités des défauts géométriques. Il devient donc difficile d'attribuer le décalage observé sur les champs seuils d'émission à l'un ou l'autre de ces deux facteurs.

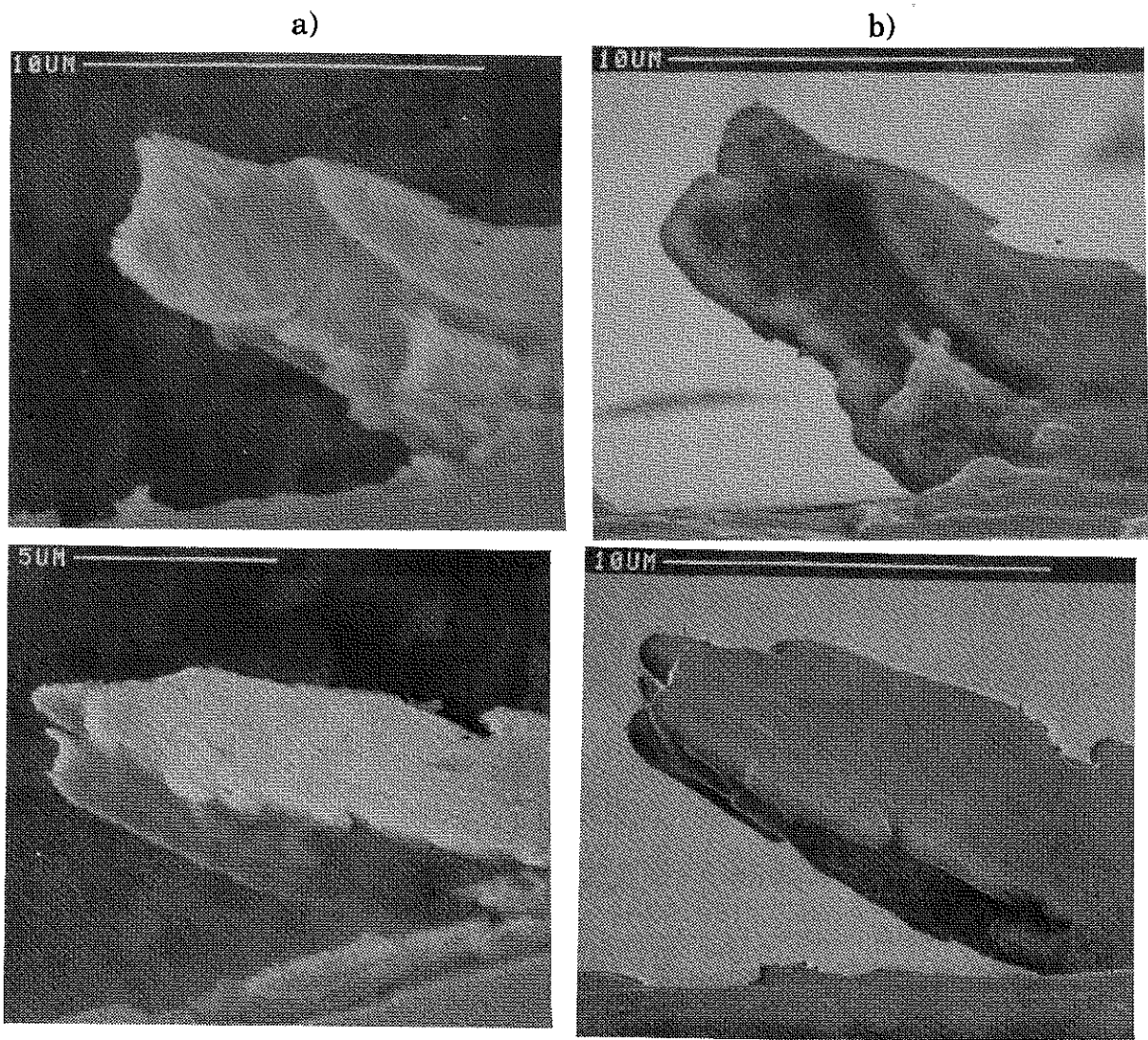


Figure III.45. Micrographies montrant deux sites émetteurs réalisés sur un échantillon de niobium avant (a) et après (b) anodisation de celui-ci.

III.3.2.4. CARACTERISTIQUES COURANT-TENSION

De nombreuses caractéristiques courant-tension ont été réalisées sur des contacts ponctuels ou sur des rayures. Seuls les défauts réalisés sur des échantillons en or ont montré une grande stabilité de leur émission. La figure III.46 montre un graphique de Fowler-Nordheim représentant l'émission d'une rayure obtenue sur un échantillon en or. Ce graphique montre une bonne reproductibilité de la courbe, aux valeurs croissantes et décroissantes du champ appliqué. Les défauts réalisés sur des échantillons en niobium ont montré quant à eux une émission moins stable entrecoupée de nombreuses "bouffées" de courant (voir figure III.47) pouvant provoquer occasionnellement des micro-claquages. Le facteur de renforcement local du champ β et la surface émissive S extraits des graphiques de Fowler-Nordheim sont rassemblés dans le tableau III.6 qui rassemble toutes les mesures réalisées au cours de nos études. Les valeurs obtenues pour le paramètre β sont en bon accord avec les valeurs

habituellement proposées dans la littérature pour les sites émetteurs naturels [III.10][III.42-III.44]. Les valeurs obtenues pour S varient dans une gamme de surfaces plus étendue (10^{-20} à 10^{-10} m²) que celle proposée pour les sites émetteurs naturels (10^{-18} à 10^{-14} m²). La signification des valeurs des différents paramètres β et S sera discutée dans la section III.3.5.

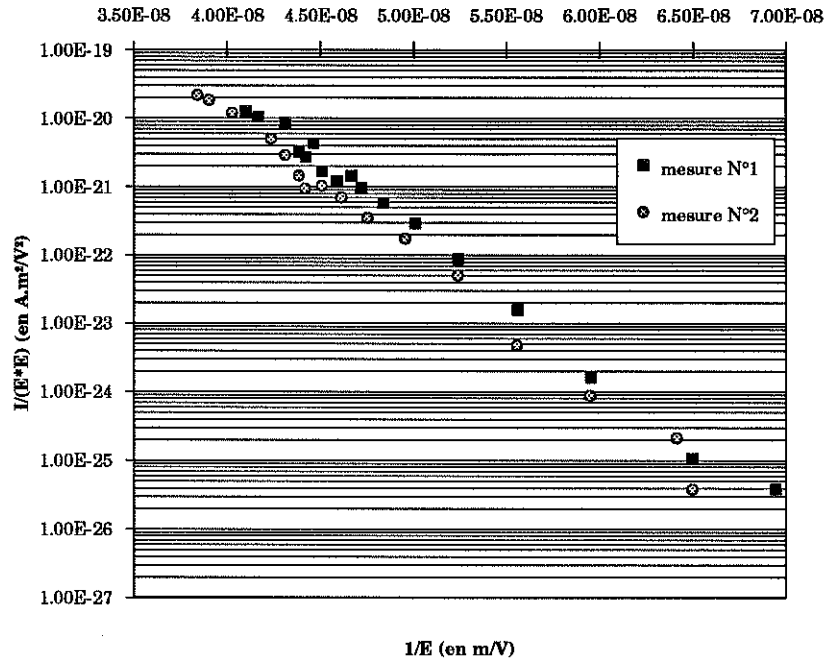


Figure III.46. Graphique de Fowler-Nordheim montrant la reproductibilité des mesures de l'émission d'une rayure réalisée sur un échantillon de niobium.

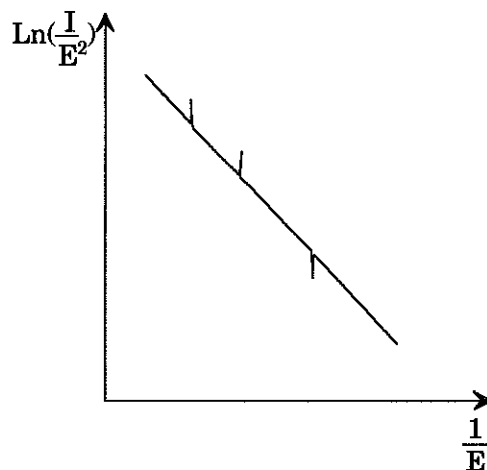


Figure III.47. Evolution du courant d'émission d'une rayure réalisée sur un échantillon en niobium en fonction du champ appliqué. Les sauts visibles sur cette courbe correspondent aux "bouffées" de courant observées pendant les mesures.

	Facteur de renforcement local du champ (beta)	Surface émissive S (en m ²)
Au	97	7.10 ⁻¹¹
	104	7.10 ⁻¹⁰
	116	2.10 ⁻¹⁵
	136	8.10 ⁻¹⁴
	155	10 ⁻¹⁴
	168	2.10 ⁻¹²
	220	10 ⁻²²
	258	2.10 ⁻¹⁸
	271	6.10 ⁻¹⁷
Nb	58	5.10 ⁻¹⁰
	60	10 ⁻¹⁰
	71	4.10 ⁻¹⁹
	76	7.10 ⁻¹²
	92	3.10 ⁻²²
	92	4.10 ⁻¹⁹
	95	9.10 ⁻¹⁸
	120	3.10 ⁻¹³
	120	6.10 ⁻¹⁵
	132	4.10 ⁻²⁰
	135	5.10 ⁻⁰⁹
	175	10 ⁻¹⁶
	182	8.10 ⁻¹⁸
	206	4.10 ⁻¹⁷
	214	2.10 ⁻¹⁶
	382	7.10 ⁻¹⁶
	415	3.10 ⁻¹⁶
496	4.10 ⁻¹⁷	

Tableau III.6. Tableau récapitulatif des valeurs du facteur de renforcement local du champ β et de la surface émissive S extraits des graphiques de Fowler-Nordheim. Chaque couple (β ,S) représente un site émetteur différent des autres.

III.3.3. DEFAUTS GEOMETRIQUES DUS A UNE ATTAQUE CHIMIQUE

La présence d'une discussion sur l'émission des défauts géométriques dus à une attaque chimique sur des échantillons en niobium peut paraître surprenante. En réalité, les attaques chimiques sont directement responsables de l'état de surface mais aussi du gravage de la surface avec, le plus souvent mise en relief des grains par attaque préférentielle des joints de grains. Les "marches" qui en résultent rentrent dans la catégorie des défauts géométriques. Dans cette partie, nous souhaitons présenter les résultats des études que nous avons réalisées sur l'émission de ce type particulier de défauts géométriques.

La rugosité obtenue avec le bain d'attaque utilisé pour le niobium (voir paragraphe II.2.2.2 du chapitre II) est inférieure à 5 microns (voir figure II.13).

Aucune émission n'a été relevée sur ce type d'état de surface même pour des champs appliqués supérieurs à 150 MV/m.

Un autre type de "marches" peut être obtenu en réalisant des attaques chimiques préférentielles. La figure III.48.a montre une micrographie obtenue au MEB et où l'on peut voir l'aspect très saillant des joints de grains. La figure III.48.b donne une idée de la hauteur de la "marche". Malgré une géométrie très favorable, aucune émission n'a été observée dans cette zone même pour des champs appliqués supérieurs à 150 MV/m.

Les défauts géométriques obtenus sur des échantillons de niobium après une attaque chimique, qu'elle soit préférentielle ou non, ne constituent pas des sites émetteurs potentiels. Il faut en plus que ces défauts aient des géométries très perturbées. Ces résultats confirment ceux avancés lors de l'étude des sites émetteurs naturels pour lesquels nous avons montré que l'émission ne pouvait provenir que de zones très perturbées des échantillons de niobium ou alors de particules de contamination posées sur la surface, mais pas d'une surface vierge.

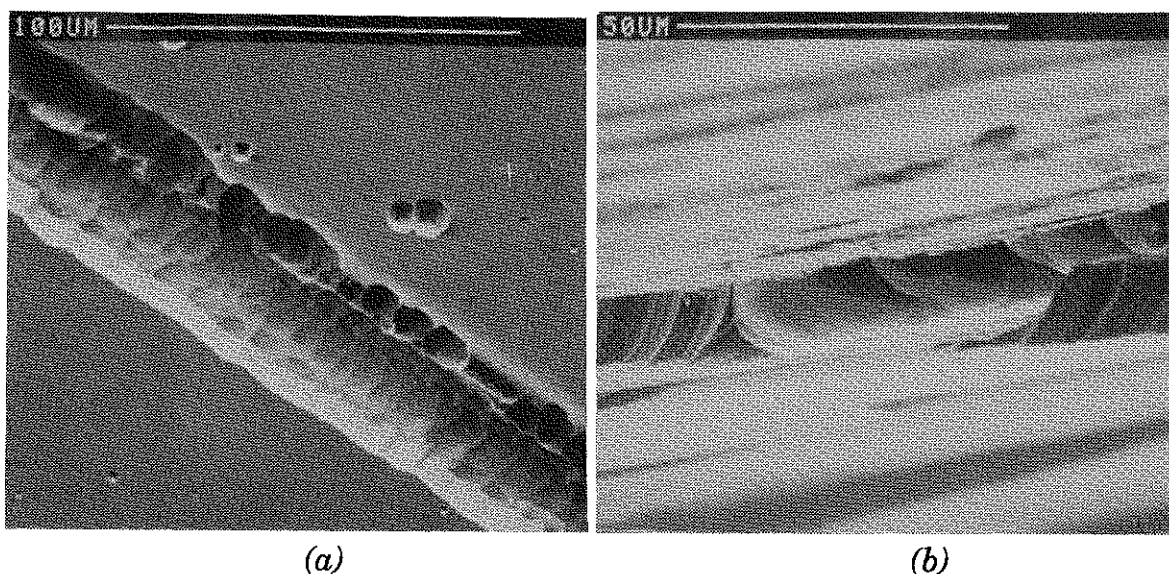


Figure III.48. Micrographies montrant l'effet d'une attaque chimique préférentielle sur un échantillon de niobium. Cette attaque produit des figures de corrosion sur lesquelles on peut observer des arêtes très vives (a) ; hauteur de la "marche" (b) due à l'attaque chimique.

III.3.4. EFFETS THERMIQUES SUR LES DEFAUTS GEOMETRIQUES

Nous avons constaté au cours de nos expériences sur les défauts géométriques que de des effets thermiques sont associés à l'émission de champ. Parmi ces effets thermiques, nous ne nous intéresserons qu'à la fusion des défauts eux même, les micro-claquages étant abordés dans la quatrième partie de ce chapitre.

Après une émission intense, nous retrouvons très fréquemment de petits cratères et des microstructures fondues dans les contacts ponctuels (voir figure III.49). Ceux-ci peuvent probablement expliquer les nombreuses instabilités constatées sur les caractéristiques courant-tension. Ce phénomène n'est pas nouveau puisqu'il est souvent appelé "période de formage" des micro-pointes constituant le défaut.

L'extrémité de certains défauts arrive même à fondre après une émission très intense ($I \approx 99 \mu\text{A}$). La figure III.50 montre deux séries de micrographies obtenues au MEB montrant deux défauts avant et après leur fusion. La forme microscopique ne s'en trouve que peu modifiée mais l'émission elle-même évolue beaucoup. On constate que l'arrondissement du sommet des défauts provoque une forte augmentation des champs seuils d'émission. Dans les deux cas que nous présentons, les champs seuils d'émission sont passés de 9 à 29 MV/m pour le premier site émetteur et de 12 à 56 MV/m pour le second.

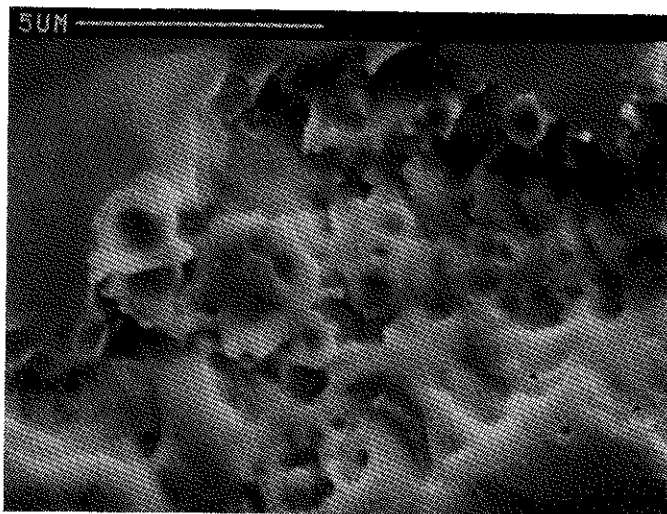
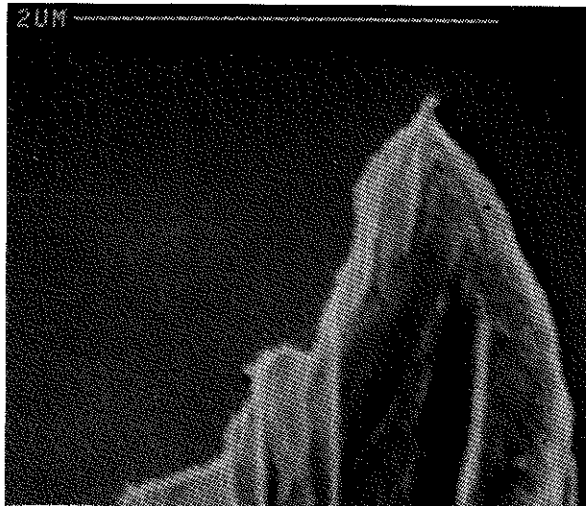
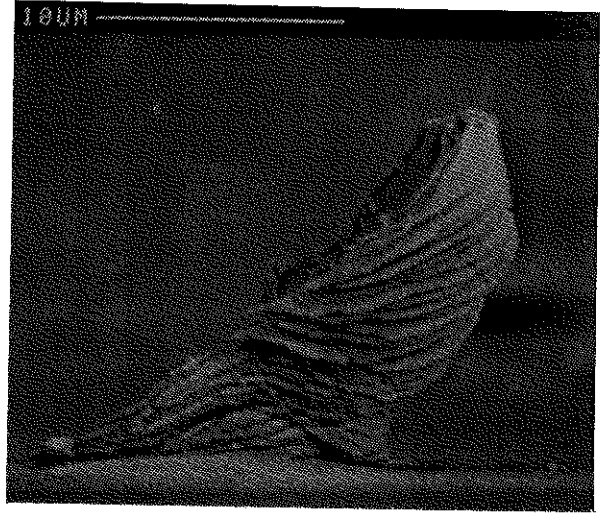
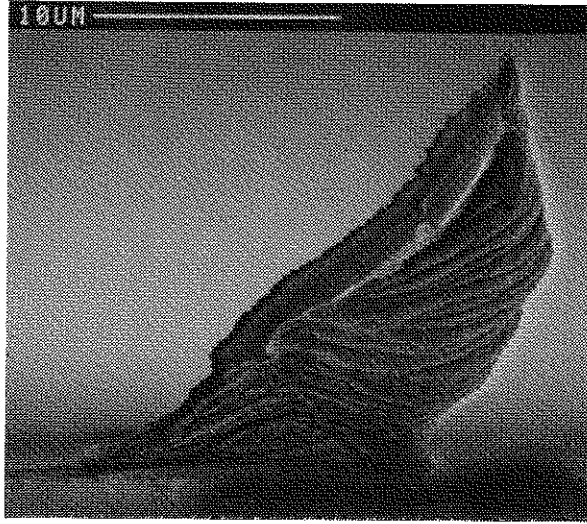


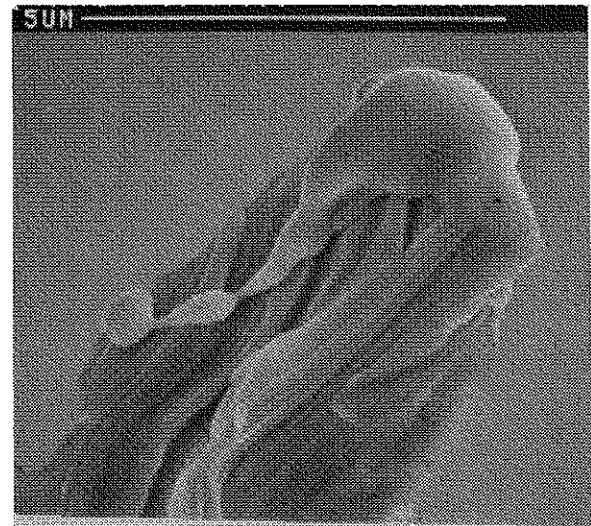
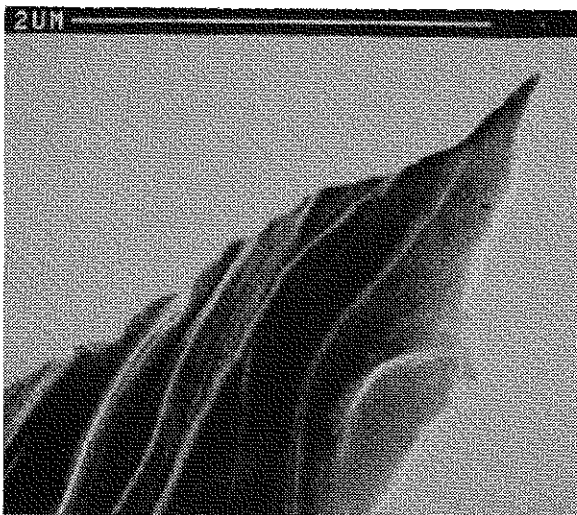
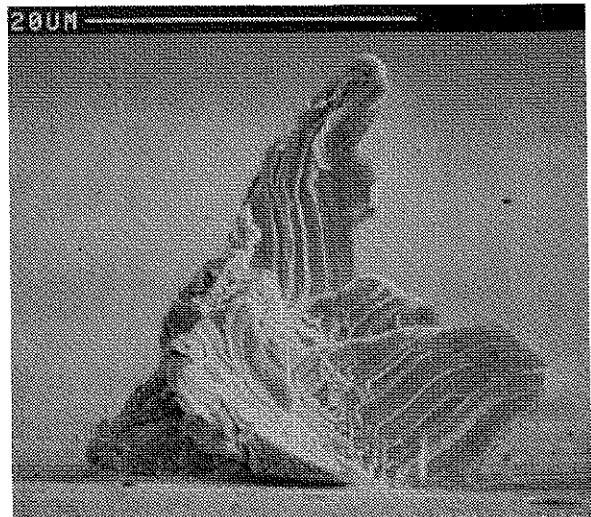
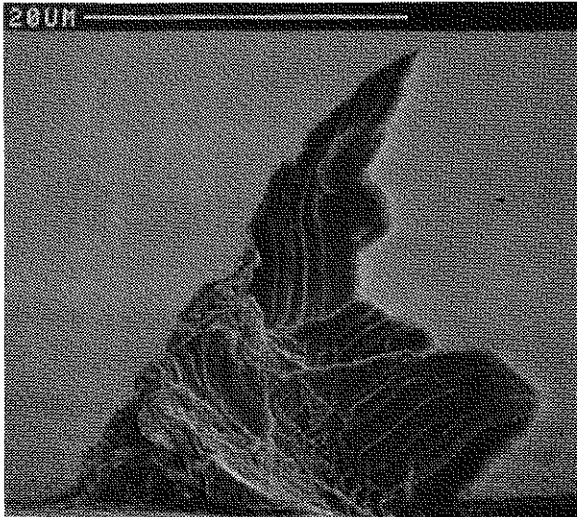
Figure III.49. Micrographie montrant des microstructures fondues dans un contact ponctuel après qu'il ait émis plusieurs micro-ampères.



9 MV/m
(a)

29 MV/m
(b)

champs seuils d'émission



12 MV/m
(a)

56 MV/m
(b)

champs seuils d'émission

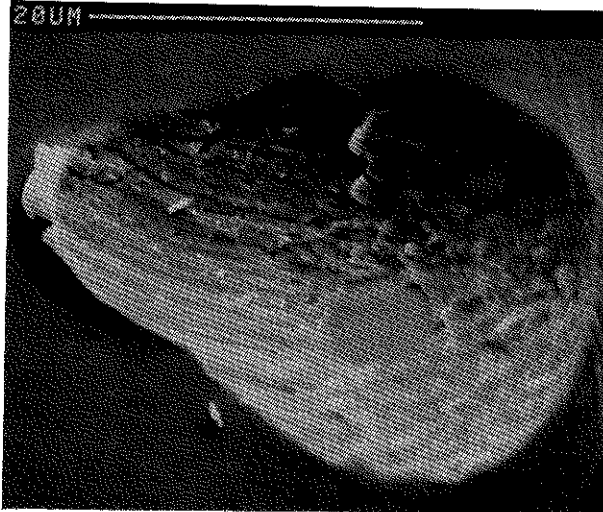
Figure III.50. Micrographies montrant deux défauts avant (a) et après (b) la fusion de leurs extrémités.

Bien que nous ne disposions d'aucun moyen expérimental pour étudier les phénomènes thermiques associés à l'émission de champ, ceux-ci peuvent être utilisés astucieusement pour localiser très précisément la zone responsable de l'émission dans un défaut. L'exemple proposé dans la figure III.51 est celui d'un contact ponctuel réalisé à l'aide d'une pointe en diamant sur un échantillon de niobium. Ce contact ponctuel, dont une vue de dessus est donnée à la figure III.51.a, est un site émetteur dont le champ seuil d'émission est égal à 80 MV/m. Dans ce cas particulier, il est difficile vu la taille du défaut, de localiser très précisément l'origine de l'émission électronique. La vue de profil de ce défaut (voir figure III.51.b) montre un site potentiel à savoir une pointe localisée sur la bordure du défaut. D'autres sites d'aspects moins favorables, c'est à dire ne rendant pas facilement compte d'un renforcement local du champ appliqué, sont également visibles sur ce défaut ponctuel. L'utilisation d'une pointe plus petite (rayon de courbure au sommet inférieur à 5 microns) a permis de confirmer que l'émission provient de la zone où se situe la petite pointe.

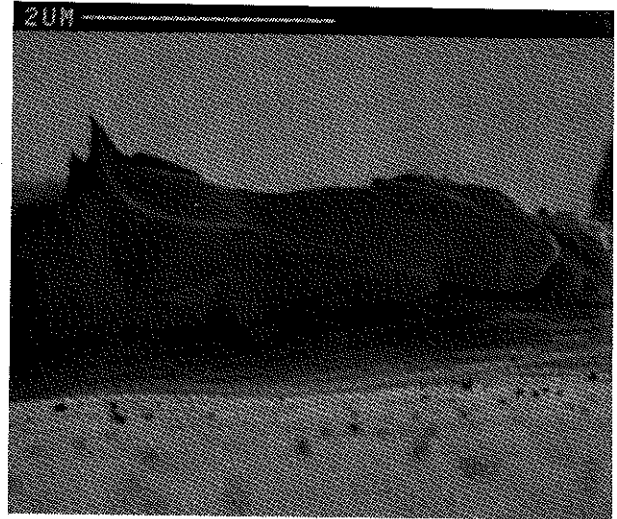
A ce stade, l'idée d'utiliser les phénomènes thermiques associés à l'émission de champ devrait nous permettre de départager nos deux sites. En effet, le site ayant le plus faible champ seuil d'émission sera responsable de la majorité de l'émission et sera donc l'unique siège des phénomènes thermiques. Dès lors, le site modifié par les phénomènes thermiques est donc le meilleur site émetteur c'est à dire celui ayant le champ seuil d'émission le plus faible.

L'application d'un champ élevé au contact ponctuel afin d'augmenter son courant d'émission a pour objectif de faire apparaître des phénomènes thermiques sur le site ayant le champ seuil d'émission le plus faible. Effectivement, la figure III.51.c montre que la seule région qui a été le siège de phénomènes thermiques est celle de la pointe (qui a fondu) qui était par conséquent le meilleur émetteur du contact ponctuel. Le nouveau champ seuil d'émission du contact ponctuel, plus élevé que celui observé avant la fusion de la pointe (100 MV/m au lieu de 80 MV/m), confirme que celle-ci était responsable de l'émission observée.

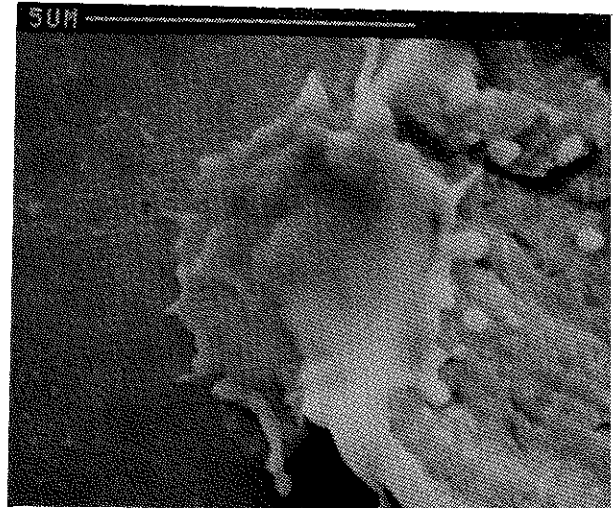
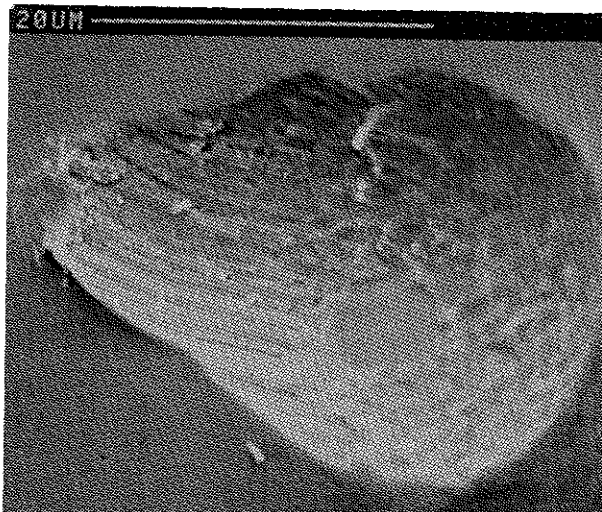
Les phénomènes thermiques associés à l'émission de champ en plus de modifier fortement l'émission des sites émetteurs peuvent être utilisés comme une méthode destructive de localisation du meilleur émetteur d'une région de l'échantillon.



(a)



(b)



(c)

Figure III.51. Micrographies montrant un contact ponctuel, vu de dessus (a) et vu de profil (b) avant émission, puis vu de dessus (c) après une émission intense.

III.3.5. DISCUSSION

Les défauts géométriques obtenus par des contacts mécaniques d'une pointe métallique sur la surface d'un échantillon de niobium ou d'or sont des sites émetteurs redoutables. En effet, plus de 10 % des contacts ponctuels réalisés ont des champs seuils d'émission inférieurs à 40 MV/m. Les statistiques sont encore plus favorables pour les rayures, qui sont de meilleurs émetteurs, car elles peuvent présenter une dizaine de sites ayant des champs seuils d'émission inférieurs à 40 MV/m, pour une rayure de seulement 100 microns de longueur. Finalement, alors que toutes les rayures émettent pour des champs appliqués inférieurs 140 MV/m, le taux de défauts qui n'émettent pas dans cette gamme de champs est voisins de 10 %.

Aucun effet de la nature de l'échantillon n'a été observé sur l'émission des contacts ponctuels. Cependant, il semble qu'il y ait une corrélation entre la dureté des pointes utilisées pour réaliser les contacts ponctuels et leurs champs seuils d'émission. En effet, plus la pointe utilisée est dure et plus le champ seuil d'émission sera faible, les meilleurs résultats étant obtenus pour les pointes en diamant. Tout ceci semble montrer que la contamination du défaut par la pointe n'est pas à l'origine de l'émission observée sur ce dernier.

L'influence de la contamination de pompage sur les champs seuils d'émission des défauts géométriques est négligeable et indépendante de la durée de pompage. Par contre, il semble que l'on ait un effet bien qu'assez faible de la couche naturelle d'oxyde de niobium sur les champs seuils d'émission. En effet, au cours des mesures réalisées, une faible augmentation (10 MV/m) des champs seuils d'émission a été observée pour les défauts réalisés sur les échantillons en niobium après que ceux-ci aient été exposé à l'air ambiant. Les résultats obtenus sur les couches anodiques d'oxyde sont plus convainquants puisqu'une forte augmentation des champs seuils d'émission est observée après l'anodisation de l'échantillon. Cependant, il est difficile d'attribuer l'augmentation des champs seuils d'émission à la seule barrière tunnel introduite par la couche d'oxyde. En effet, on pourrait penser que l'anodisation de la surface réalise un certain lissage des aspérités modifiant par là, le facteur de renforcement local du champ.

D'un point de vu qualitatif, trois résultats essentiels semblent découler de l'observation des effets thermiques associés à l'émission de champ. Leur utilisation judicieuse permet d'avoir une méthode destructive très précise de localisation de la zone responsable de l'émission. La fusion par effet thermique des micro-pointes constitutives des défauts géométriques augmente considérablement les champs seuils d'émission de ces défauts. Enfin, tout semble indiquer que les micro-pointes sont à l'origine de l'émission observée sur les défauts géométriques.

Nous avons montré au paragraphe I.3.5 que les gaz résiduels ou les gaz adsorbés sur un site émetteur peuvent provoquer des variations importantes du facteur pré-exponentiel A de l'équation de Fowler-Nordheim (équation I.9). On a en effet diminution de la valeur de A sous l'effet des gaz rares et de l'hydrogène et augmentation de A sous l'effet des autres gaz comme par exemple : l'azote

(N₂), le dioxyde de carbone (CO₂) ou encore le monoxyde de carbone (CO). Dans des enceintes à vide non étuvées, c'est le cas de notre dispositif, les gaz adsorbés à la surface sont essentiellement composés de : vapeur d'eau, H₂, N₂, CO, CO₂. Le facteur pré-exponentiel obtenu expérimentalement sera donc plus élevé ou plus faible que celui obtenu dans le cas d'un interface métal/vide parfait. Or la surface réelle émissive S est inversement proportionnelle à A (voir équation II.5). Il est donc normal de trouver expérimentalement des sites émetteurs dont les géométries ne rendent pas compte des surfaces émissives S déduites des caractéristiques courant-tension. Le facteur β étant indépendant du facteur pré-exponentiel A , il ne variera presque pas.

La présence d'une couche naturelle d'oxyde sur les sites émetteurs modifie leur courant d'émission [III.25-III.29]. Les paramètres β et S qui sont extraits de la caractéristique courant-tension n'ont plus une signification purement géométrique car la permittivité ϵ_r de la couche diélectrique devrait logiquement influencer ces deux paramètres. Les auteurs précédents ont montré expérimentalement que le paramètre S varie beaucoup alors que β restera sensiblement constant.

Lorsque l'on cumule l'effet des gaz à celui de l'oxyde, on aboutit à la conclusion que la distribution des facteurs β doit être sensiblement la même sur les échantillons de niobium et d'or alors que les surfaces émissives doivent varier différemment à cause de la présence d'une couche d'oxyde uniquement sur le niobium. Les valeurs de β et de S du tableau III.6 vont bien dans ce sens.

Finalement, les valeurs de β et S sont extraites des graphiques de Fowler-Nordheim à partir des équations II.5 qui ne prennent pas en compte l'effet de la force image. Avant de comparer la géométrie des sites observés au MEB avec les caractéristiques β et S , il est nécessaire de s'interroger sur la validité des ces paramètres au vu des remarques précédentes.

Les surfaces vierges, quelles que soit leurs rugosités, n'émettent pas d'électrons, à notre échelle de mesure, même pour des champs appliqués de 150 MV/m. De même, aucune émission n'a été observé pour des contacts réalisés avec une pointe en matière plastique ce qui s'explique facilement par la différence de dureté existant entre le niobium et les matières plastiques utilisées.

III.4. PHENOMENES PHYSIQUES ASSOCIES A L'EMISSION ELECTRONIQUE DE CHAMP

L'objectif de cette partie n'est pas de présenter une étude complète sur les micro-claquages associés à l'émission électronique de champ mais plutôt d'évaluer les conséquences de ce type de phénomène sur les champs seuils d'émission que l'on peut mesurer sur des électrodes larges ou dans les cavités accélératrices. En effet, les mécanismes très complexes à l'origine des décharges sous vide ne seront pas abordés dans cette thèse.

Nous allons donc présenter des aspects plus qualitatifs que quantitatifs et surtout l'application des résultats obtenus à la compréhension des mécanismes à l'origine de l'émission observée sur les électrodes larges.

Définition : Lors de la mesure des courant d'émission, il arrive que pour une faible variation du champ électrique appliqué, nous observions une augmentation brutale du courant d'émission de plusieurs ordres de grandeur. Si cette augmentation est associée à la présence sur la surface de cratères, nous dirons alors qu'il s'est produit un micro-claquage.

III.4.1. CRATERES

Les études de l'émission électronique de champ réalisées sur des électrodes larges n'ayant subi ni une contamination de la surface par des particules ni des contacts mécaniques n'ont montré en général que très peu d'émission avant que des micro-claquages se produisent sur la surface [III.44]. Après les micro-claquages, la situation peut être différente et des expériences réalisées par Hackam [III.45-III.47] ont montré que les cratères dus aux micro-claquages peuvent être à l'origine de l'émission observée sur des électrodes larges. Selon ce même auteur, la géométrie de ces cratères pourrait même expliquer un renforcement local du champ appliqué.

Aucune étude systématique de l'émission des cratères n'a jusqu'ici été réalisée. Nous avons donc décidé de provoquer in situ des micro-claquages afin d'étudier plus en détail l'émission électronique de champ des cratères obtenus.

Nous présenterons également des résultats qualitatifs sur l'influence de certains paramètres (nature de l'échantillon, état de la surface, nature de la contre-électrode) sur la forme des cratères.

III.4.1.1. ORIGINE DES CRATERES

Les cratères que nous avons observés ont toujours été associés à des micro-claquages très localisés sur la surface, obtenus par augmentation de la tension donc du champ (si on travaille à gap constant) au voisinage :

- d'une particule de contamination ou d'un défaut géométrique,
- d'une surface vierge.

Les champs appliqués nécessaires à l'obtention d'un micro-claquage sont très variables suivant que l'on se place sur un défaut ou sur une surface vierge, sur un site émetteur ou non. Globalement, les champs provoquant des micro-claquages sont supérieurs à 150 MV/m en moyenne sur les défauts géométriques et sur les surfaces vierges. Lorsqu'on se place sur des particules, tout dépend du comportement de la particule sous l'effet du champ appliqué. En général, pour des champs importants et lorsque la particule émet peu (c'est le cas pour 95 % des particules provenant de la contamination naturelle d'une surface), la particule est "arrachée" de la surface par la force électrostatique due au champ et il se produit alors souvent un micro-claquage sous la particule vraisemblablement au moment où celle-ci quitte la surface. Les champs appliqués sont voisins de 100 MV/m. Lors du micro-claquage, la particule peut se retrouver soudée à la surface de l'échantillon. Si la particule est un site émetteur, il peut être nécessaire d'avoir recourt à des champs aussi élevés que ceux indiqués pour les défauts géométriques ou les surfaces vierges.

Finalement, nous n'avons pas observé de sites préférentiels de création des cratères. En effet, on les retrouve aussi bien autour ou sous les particules, autour ou dans les défauts de surface ou finalement localisés sur les joints de grains ou au milieu de ceux-ci (voir figure III.52).

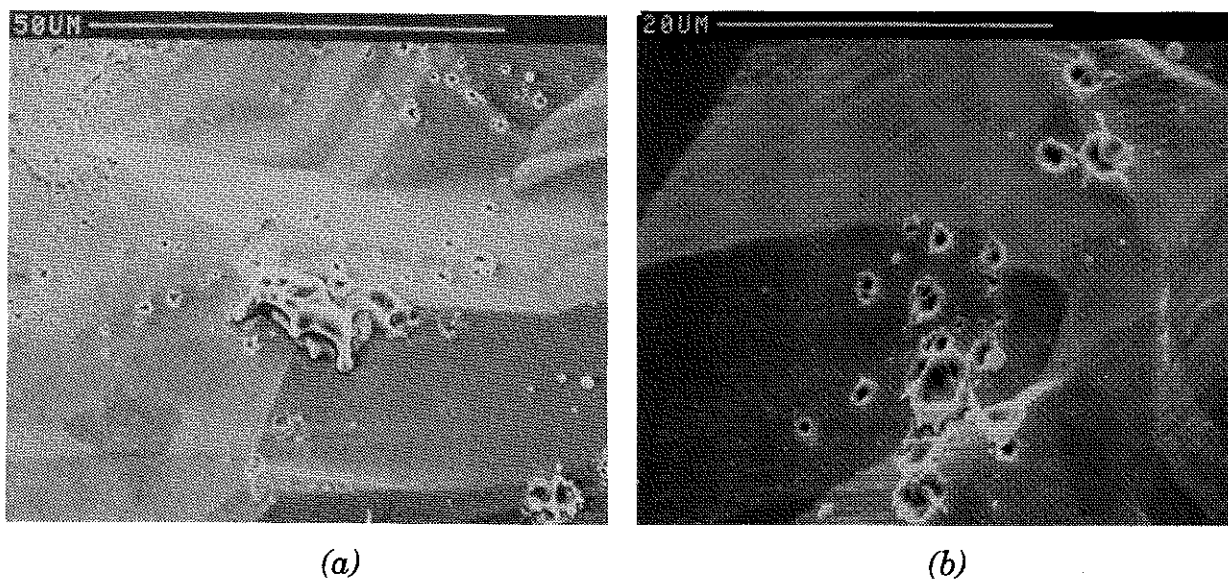


Figure III.52. Micrographies de cratères autour et dans un défaut (a) ou alors localisés sur les joints de grains ou au milieu de ceux-ci (b).

III.4.1.2. MORPHOLOGIE DES CRATERES

La morphologie des cratères obtenus sur des échantillons de niobium recouverts de leurs couche naturelle d'oxyde est sensiblement invariante bien que les formes exactes des cratères soient aléatoires. Les images obtenues en imagerie d'électrons secondaires ou d'électrons retrodiffusés montrent un fort contraste dû à la géométrie mais peu de contraste de numéro atomique. Ces observations qui semblent montrer que les cratères ne présenteraient pas d'éléments de nature extrinsèque en quantité suffisante pour être détectés sont confirmés par les mesures réalisées par E.D.X qui n'ont révélé que la présence du niobium et de l'oxygène provenant de la couche naturelle d'oxyde. La teneur en oxygène semble d'ailleurs plus faible dans le cratère que sur le reste de la surface. Les cratères ont des tailles qui varient de 1 à 20 microns (figure III.53).

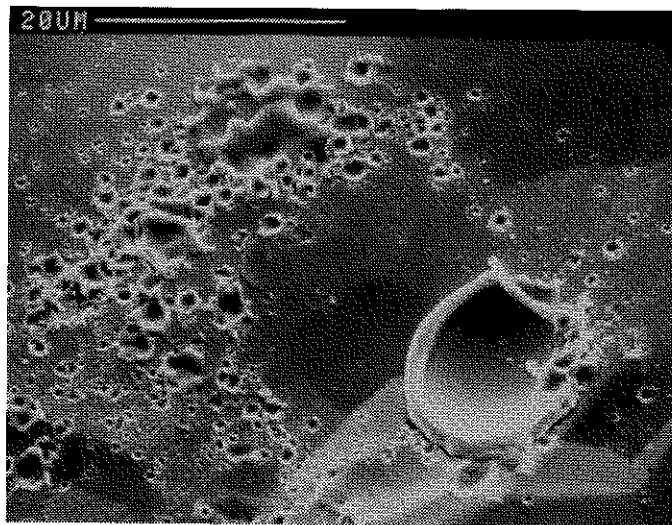


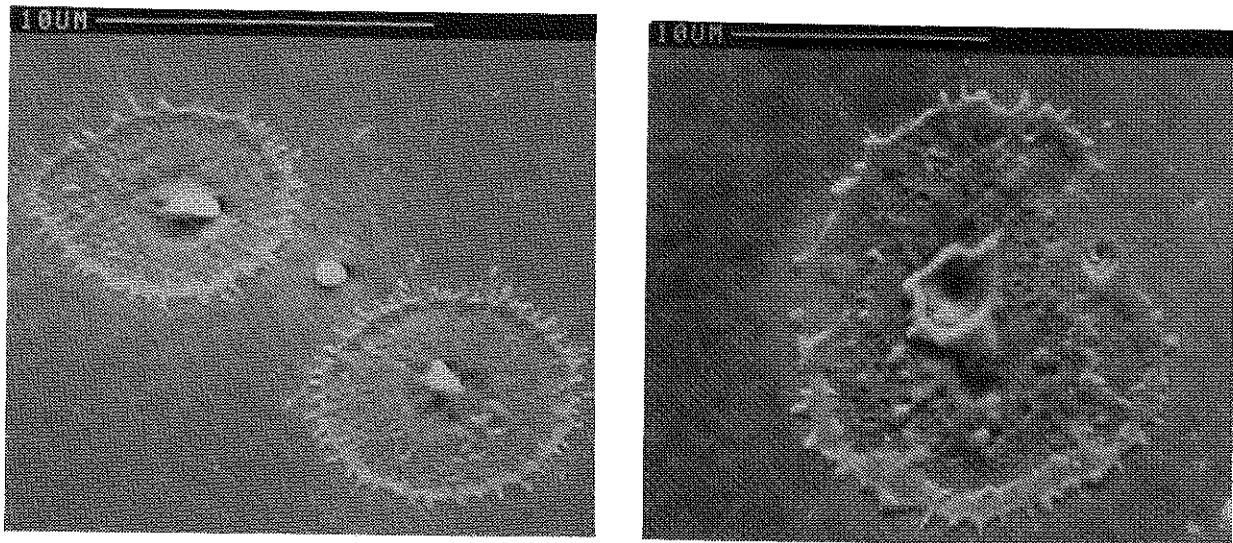
Figure III.53. Micrographie montrant des cratères des tailles très variables.

III.4.1.3. INFLUENCE DE LA NATURE DE L'ECHANTILLON

Pour ces études, nous avons utilisé quatre natures différentes d'échantillons : niobium, titane, tantale et or. Les échantillons de titane et de tantale ont été utilisés car ils ont une couche naturelle d'oxyde possédant des caractéristiques voisines de celles de l'oxyde de niobium. Les échantillons en or ont été utilisés car ce matériau n'est pas recouvert d'une couche d'oxyde. Les morphologies des cratères obtenus sur ces différentes natures d'échantillons n'ont montré aucune influence importante de la nature de l'échantillon sur la forme des cratères obtenus.

III.4.1.4. INFLUENCE D'UNE COUCHE EPAISSE D'OXYDE

La morphologie des cratères obtenus sur les couches anodiques d'oxyde de niobium (figure III.54) est très différente de celle obtenue sur les échantillons de niobium recouverts de leur couche naturelle d'oxyde (figure III.53). Le changement de morphologie des cratères commence à être visible pour des épaisseurs de la couche d'oxyde supérieures à 40 nm. Au delà de 80 à 100 nm, la morphologie des cratères reste sensiblement la même. La figure III.54 montre l'évolution de la forme des cratères en fonction de l'épaisseur de la couche anodique d'oxyde. Lorsque celle-ci augmente, la bordure du cratère s'élargit.



(a)

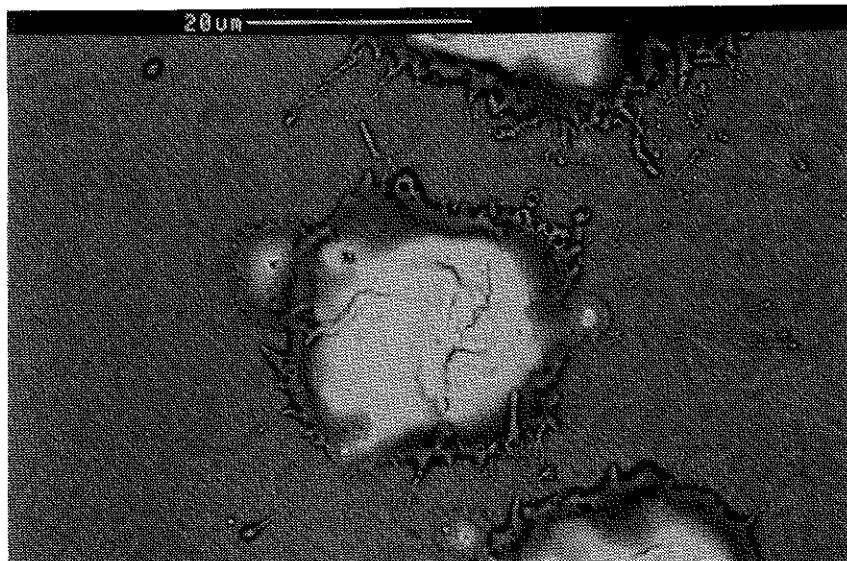
(b)

Figure III.54. Micrographies montrant des cratères obtenus sur des échantillons de niobium recouverts d'une couche anodique d'oxyde : (a) 50 nm, (b) 280 nm

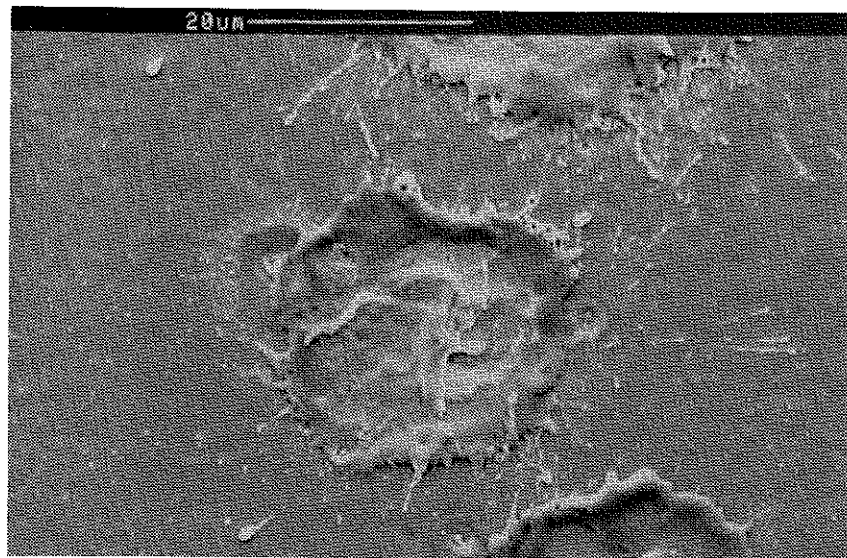
La figure III.55 obtenue au MEB montre le même cratère visualisé en imagerie d'électrons secondaires (a) et en imagerie d'électrons retrodiffusés (b). Sur la micrographie en imagerie d'électrons retrodiffusés, on voit qu'au centre du cratère, une proportion importante de l'oxyde a disparu au moment du micro-claquage ce qui semble indiquer que la couche d'oxyde a été pulvérisée.

III.4.1.5. INFLUENCE DE LA NATURE DE LA CONTRE ELECTRODE

Aucune influence n'a pu être attribuée à la nature des contre-électrodes utilisées pour réaliser les micro-claquages puisque les cratères obtenus avec des pointes en tungstène et en niobium sont sensiblement identiques.



(a)



(b)

Figure III.55. Micrographies du même cratère en imagerie d'électrons secondaires (a) et en imagerie d'électrons retrodiffusés (b).

III.4.1.6. INFLUENCE DU POLISSAGE

Les mêmes remarques peuvent être faites sur l'influence du polissage puisque les morphologies des cratères obtenus sur des échantillons polis "Saclay" sont sensiblement identiques à celles des cratères obtenus sur des échantillons électropolis.

III.4.1.7. EMISSION DES CRATERES

Une forte proportion de cratères obtenus au cours des micro-claquages ont des géométries qui peuvent difficilement rendre compte d'un facteur de renforcement local du champ supérieur à 10 (voir figure III.56 et III.57). Il arrive toutefois que des micro-claquages produisent des cratères possédant des géométries très favorables (voir figure III.58).

Des expériences déjà citées [III.45-III.47] ont montré l'existence d'une corrélation entre l'émission électronique de champ d'une électrode large et la présence sur sa surface de cratères dus à des micro-claquages. Afin d'éclaircir ces résultats, nous avons réalisé des études systématiques de l'émission électronique des cratères tous obtenus dans les mêmes conditions. De plus, nous avons essayé d'établir une corrélation entre la morphologie des cratères (vus de dessus) et leur aptitude à émettre ou non des électrons sous l'effet d'un champ appliqué. Les résultats obtenus montrent que :

1. environ 50 % des cratères sont des sites émetteurs (voir figure III.59) mais les champs seuils d'émission sont souvent supérieurs à 60 MV/m.
2. aucune corrélation n'a pu être établie entre la morphologie des cratères (vus de dessus) et leur aptitude à émettre ou non des électrons. La figure III.60 montre une série de quatre micrographies de cratères tous différents dont deux sont des sites émetteurs (a) et deux n'émettent pas (b). Les morphologies de ces quatre cratères ne permettent pas d'identifier ceux d'entre eux qui sont des émetteurs.
3. une vue de profil des cratères ayant des champs seuils d'émission très faibles (inférieurs à 40 MV/m) a montré que ceux-ci ont des géométries susceptibles de rendre compte d'un renforcement local important du champ appliqué (voir figure III.61).

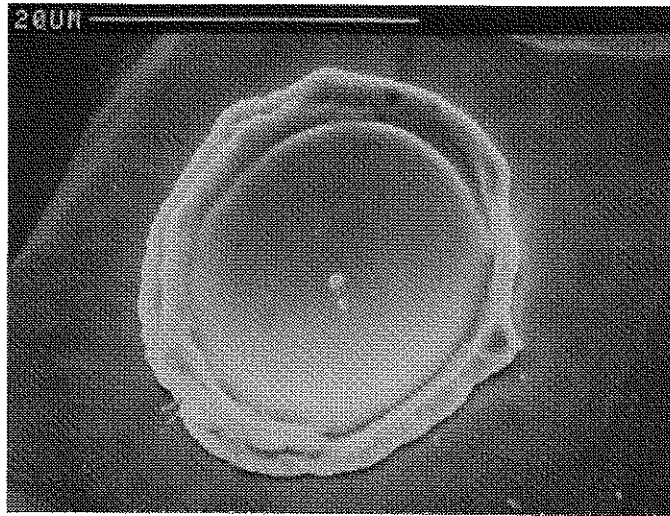


Figure III.56. *Micrographie d'un cratère obtenu sur un échantillon de niobium. Nous attirons l'attention sur les formes très arrondies de ce cratère.*

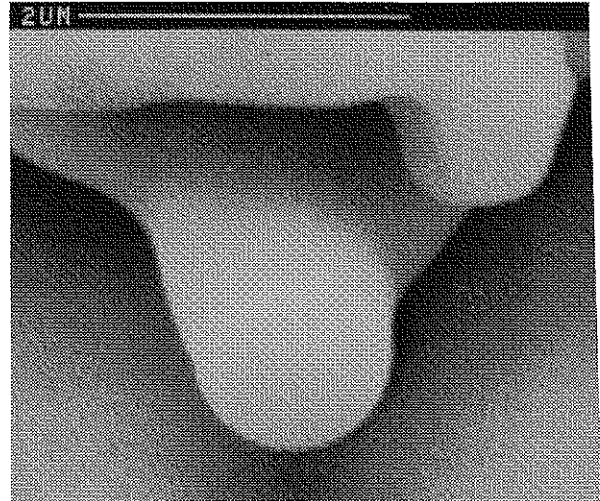
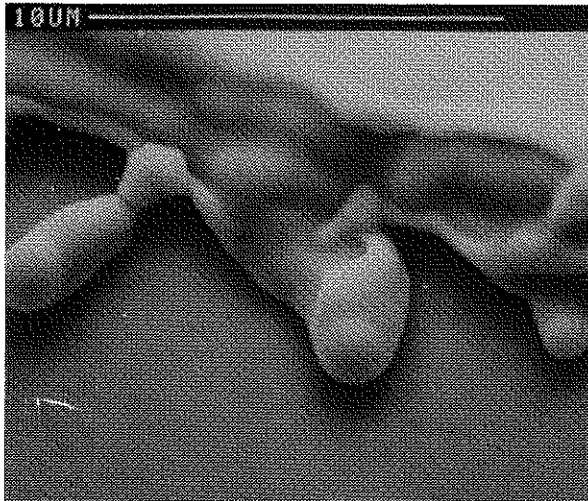
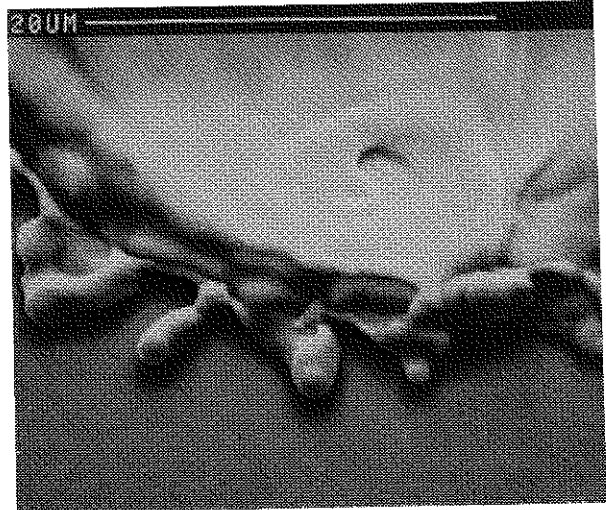
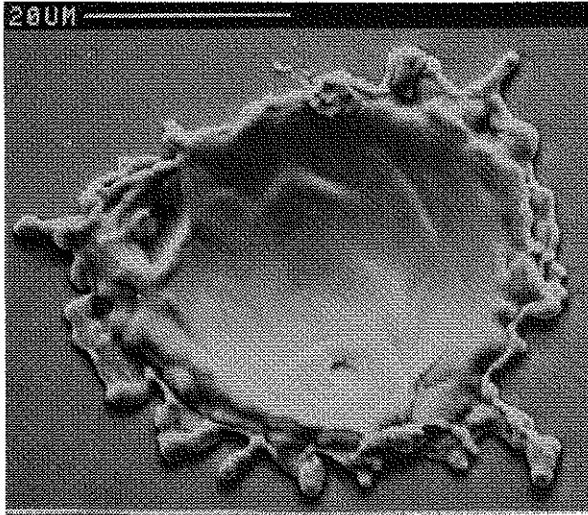


Figure III.57. Micrographies d'un cratère montrant des formes très arrondies.

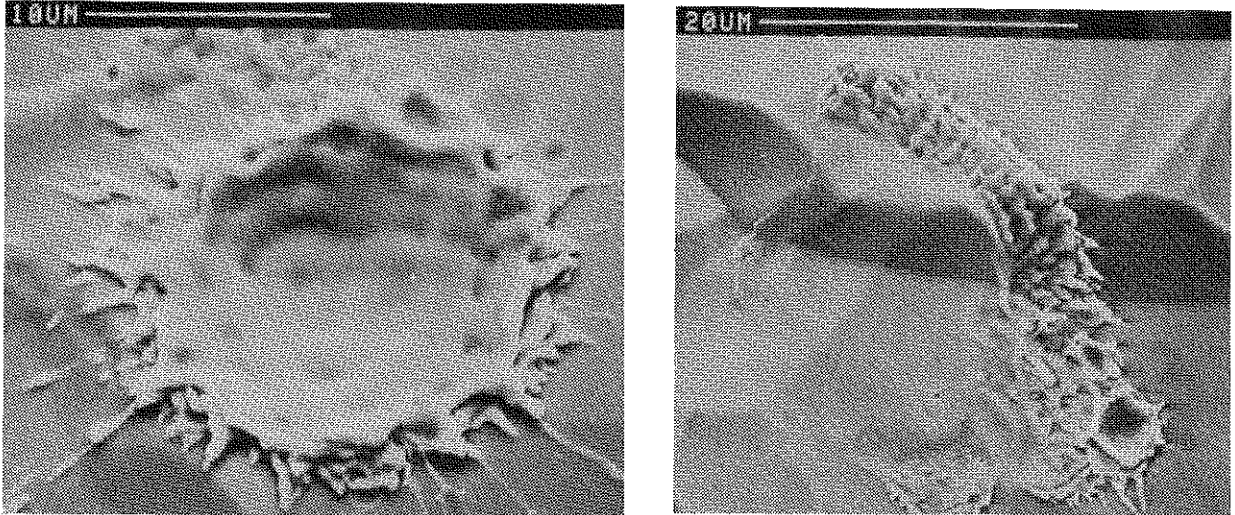


Figure III.58. Micrographies de deux cratères montrant des géométries pouvant expliquer un renforcement local important du champ appliqué.

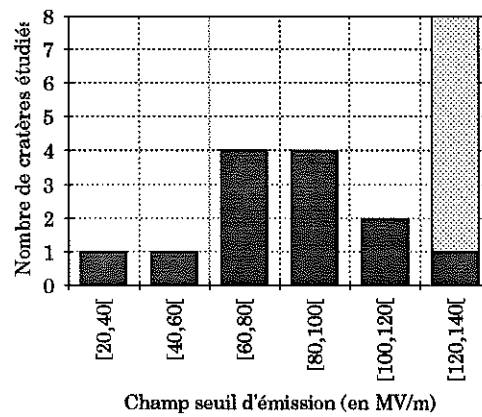
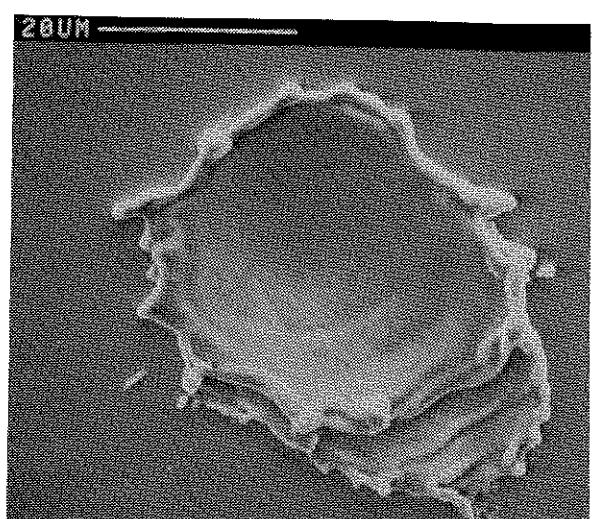
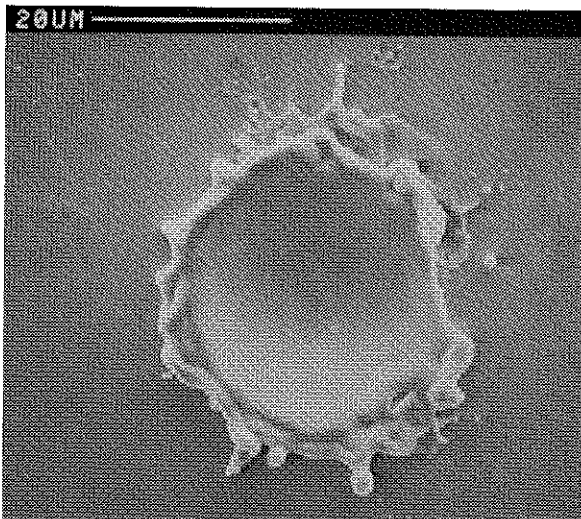
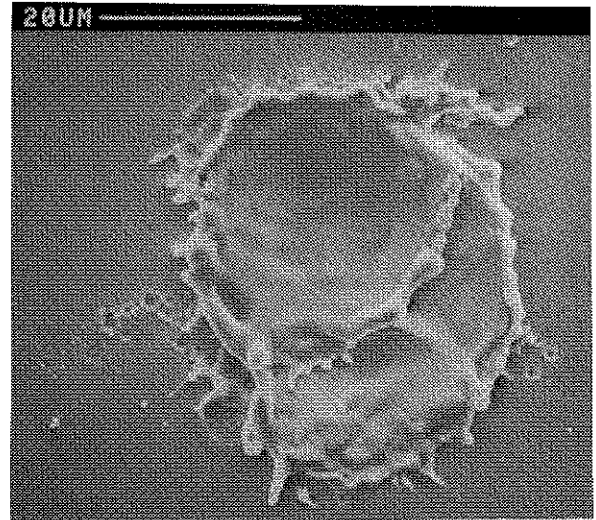
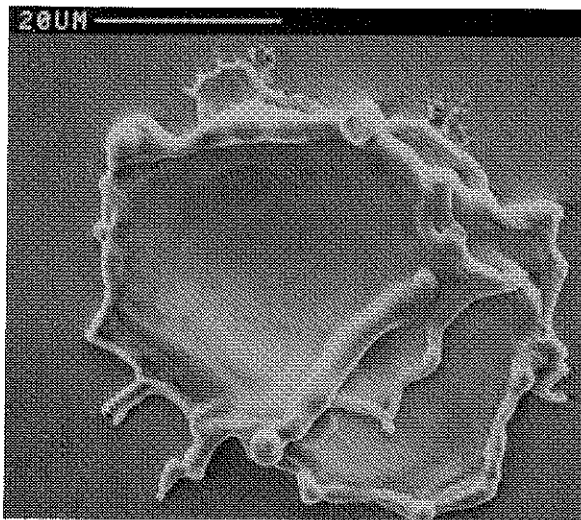


Figure III.59. Histogramme des champs seuils d'émission des cratères obtenus sur un échantillon de niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.



(a)

(b)

Figure III.60. Micrographies de quatres cratères, deux sont des sites émetteurs (a) et deux n'émettent pas (b).

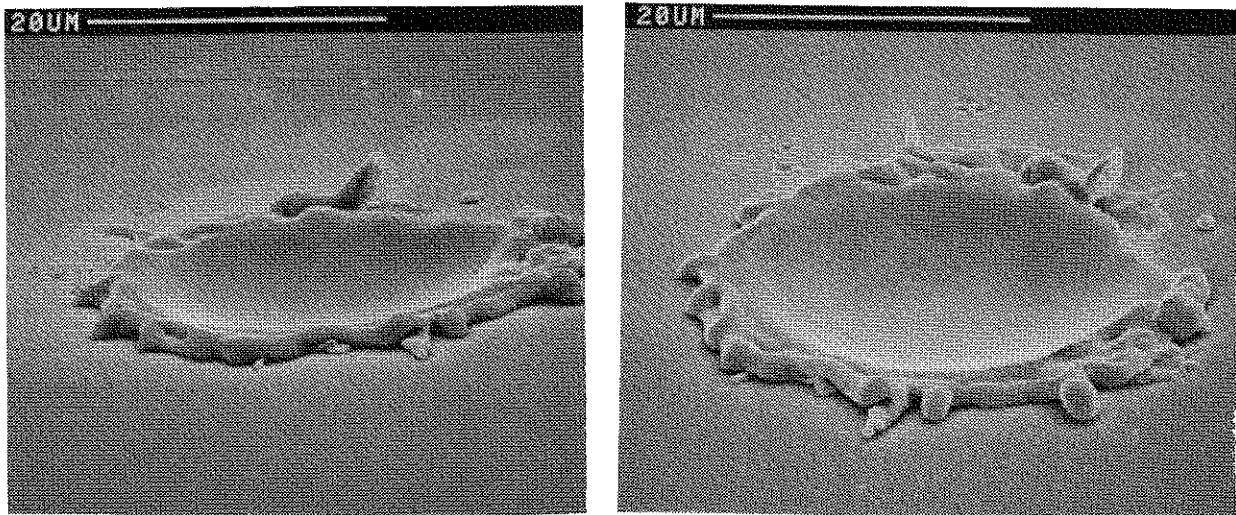


Figure III.61. Micrographie montrant une vue de profil d'un cratère ayant un champ seuil d'émission de 36 MV/m.

Il existe donc bien une proportion de cratères qui sont des sites émetteurs et pour lesquels une vue de profil au MEB peut montrer des géométries rendant compte d'un renforcement local du champ important et donc des champs seuils observés expérimentalement.

III.4.2. STARBURSTS

La figure III.62 montre deux exemples de "starbursts" obtenus sur des échantillons de niobium après un micro-claquage. Afin de faciliter les comparaisons de nos résultats avec ceux des autres auteurs travaillant sur l'émission électronique de champ dans les structures accélératrices d'électrons, nous conserverons le nom de "starburst" qui a été attribué par Moffat et al [III.48][III.49] qui ont été les premiers à les voir au MEB sur un échantillon testé dans une cavité hautes fréquences. Nous avons par la suite observé ce phénomène lors de nos expériences en champs continus. Les starbursts sont toujours associés à des micro-claquages mais il est nécessaire d'utiliser des réglages très précis du MEB pour pouvoir les visualiser. En effet, l'épaisseur étant faible, il est nécessaire de travailler avec un faisceau primaire peu énergétique (~ 7 eV) et en incidence normale de façon à minimiser le contraste de topographie. De plus, il est nécessaire de mettre le potentiomètre de contraste au maximum et d'utiliser une résolution compatible avec la taille des starbursts. La difficulté provient de ce que toutes ces exigences sont contradictoires expérimentalement.

L'intérêt de ce phénomène tient au fait qu'il est souvent associé aux micro-claquages et qu'il peut donc être utilisé comme outil de diagnostic des cavités hautes fréquences accélératrices. En effet, nous avons montré au cours de nos expériences que les micro-claquages étaient souvent associés à des défauts de surface, à des particules de contamination ou finalement à de l'émission

électronique de champ. Les starbursts, qui sont à leur tour associés aux micro-claquages vont donc permettre de localiser à posteriori dans les cavité, les zones où se sont produits les micro-claquages. Les tailles des starbursts observés dans les cavités (100 à 200 microns de diamètre) sont supérieures à celles des cratères ce qui va faciliter le repérage des micro-claquages sur des surfaces importantes, comme c'est le cas des cavités.

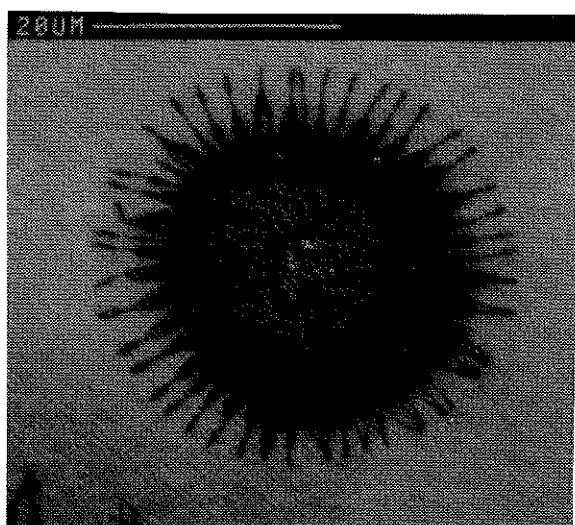
Il s'agit donc, dans cette partie, d'étudier qualitativement les starbursts afin de les utiliser avantageusement comme outil de diagnostic des cavités hautes fréquences accélératrices.

III.4.2.1. POSITION DES STARBURSTS DANS LES MICRO-CLAQUAGES

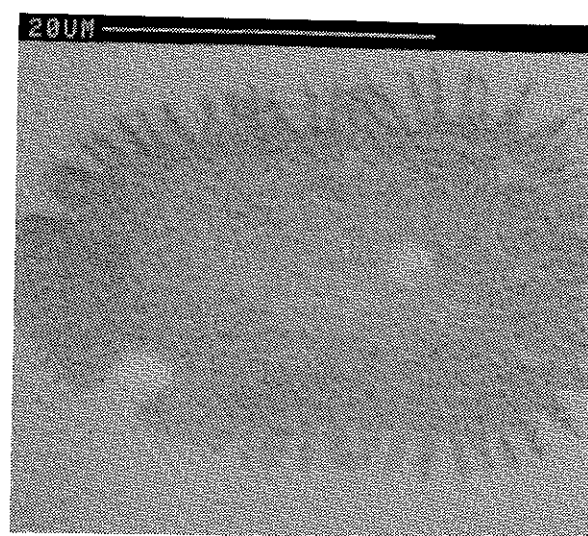
Les starbursts sont toujours associés aux micro-claquages mais tous les micro-claquages ne produisent pas de starbursts. Ils sont majoritairement localisés autour des cratères dus aux micro-claquages mais il arrive quelques fois que l'on trouve des starbursts loins (environ 200 microns) des zones où se sont produit les micro-claquages.

III.4.2.2. MORPHOLOGIE DES STARBURSTS

Les starbursts ont des formes très variées qui peuvent être rassemblées dans trois familles, des étoiles, des ellipses étoilées et des formes d'insectes (voir figure III.62).

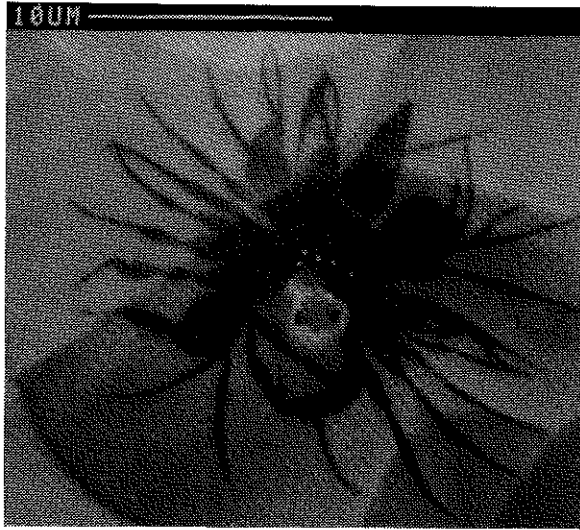


(a)

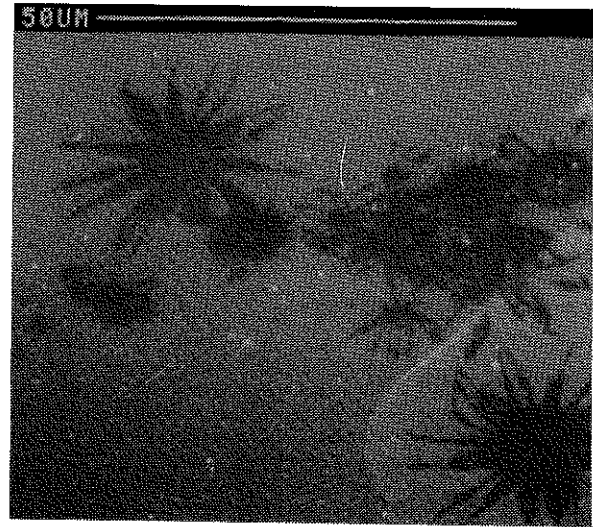


(b)

exemple de starburst



(c)



(d)

Figure III.62. Exemples de starbursts représentatifs des trois familles : étoiles (a), ellipses étoilées (b) et insectes (c) et (d). Ces micrographies sont obtenues en imagerie d'électrons secondaires.

III.4.2.2.1. EN IMAGERIE D'ELECTRONS SECONDAIRES

Les starbursts apparaissent en général plus sombres que le reste de la surface même lorsque l'échantillon est incliné et ils ont des contours nets. Les contours nets semblent indiquer la présence d'un contraste topographique ; Le starburst n'est donc pas dans le même plan que le reste de la surface. Cependant, ceci n'explique pas pourquoi le starburst apparaît d'un gris homogène. Le starburst doit donc avoir un coefficient d'émission secondaire plus faible que le reste de la surface. De plus, les hydrocarbures (provenant du système de pompage) qui sont toujours présents sur la surface des échantillons, sont craqués très rapidement sous l'effet du faisceau primaire du microscope et le contraste disparaît peu à peu. L'énergie des électrons primaires qui donne le meilleur contraste est voisine de 7 keV ce qui montre que les starbursts sont bien un phénomène de surface.

Sur 60 micro-claquages ayant donné lieu à la création de starbursts, 44 d'entre eux ont donné des starbursts plus sombres que le reste de la surface, 15 ont donné des starbursts plus clairs et dans un cas, nous avons trouvé simultanément des starbursts apparaissant plus clairs et plus sombres que le reste de la surface.

III.4.2.2.2. EN IMAGERIE D'ELECTRONS RETRODIFFUSES

Lorsqu'on se place en incidence normale du faisceau primaire sur la surface de l'échantillon, les starbursts apparaissent tous plus clairs que le reste de la surface (voir figure III.63). Le numéro atomique moyen de la zone concernée par le starbursts est donc plus élevé que celui du reste de la surface qui est composé

du niobium recouvert de sa couche naturelle d'oxyde. La contre-électrode utilisée pour produire le micro-claquage étant en tungstène (numéro atomique plus élevé que celui du niobium), nous avons vérifié que le starburst n'avait pas pour origine une projection de tungstène sur la surface de l'échantillon. Pour cela, nous avons réalisé des expériences similaires mais en utilisant une anode en niobium. Les résultats obtenus sont identiques. La contamination par l'anode est donc à écarter.

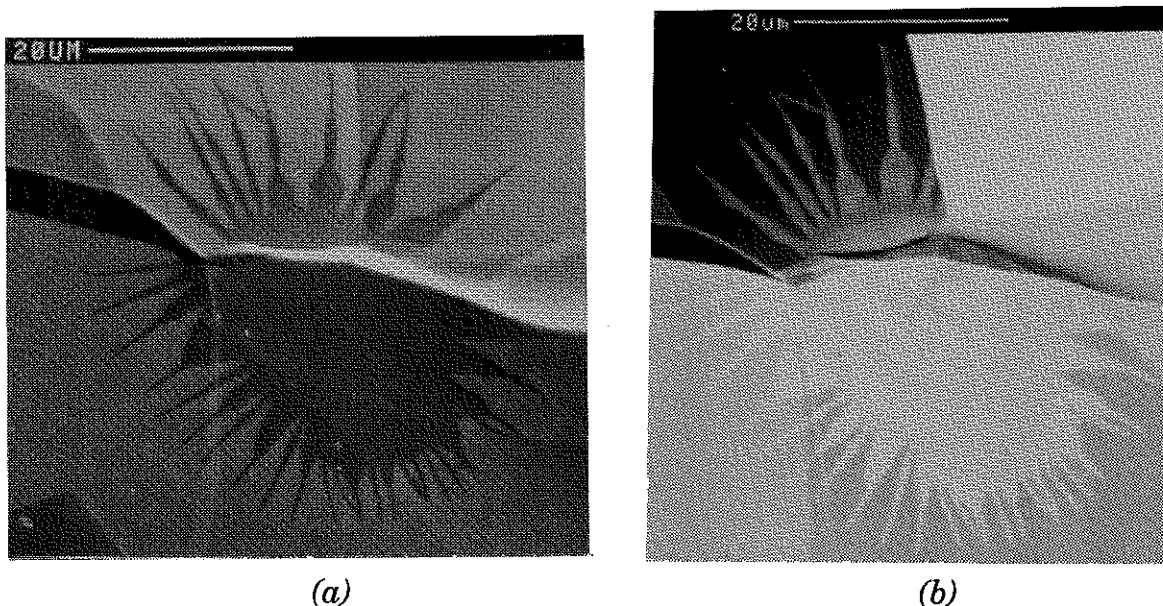


Figure III.63. Micrographies obtenues au MEB du même starburst en imagerie d'électrons secondaires (a) et d'électrons retrodiffusés (b).

En faisant varier l'énergie des électrons primaires du MEB nous avons observé que les starbursts ne sont plus visibles pour des énergies inférieures à 6 keV et supérieures à 15 keV. Ceci nous permet d'estimer l'épaisseur des starbursts à environ 10 nm.

Finalement, nous n'avons pas observé de façon systématique la présence d'un petit cratère au centre des starbursts. En effet, lorsqu'on est proche de la zone où s'est produit le micro-claquage, la majorité des starbursts ont des cratères au centre mais ce n'est plus le cas pour les starbursts que l'on trouve à plus de 100 microns du centre du micro-claquage.

III.4.2.3. INFLUENCE DE LA MISE A L'AIR

Lorsque l'échantillon est exposé à l'air ambiant, les starbursts disparaissent très rapidement (10 à 20 minutes). Par contre, après une entrée d'azote dans l'enceinte du microscope suivi d'une demi-heure d'attente, les starbursts sont toujours visibles. L'oxygène de l'air semble donc contribuer à la disparition de l'image des starbursts.

III.4.2.4. ETAT DE LA SURFACE

Nous n'avons observé aucune influence de la rugosité des échantillons sur l'apparition des starbursts en dehors du fait qu'ils sont plus faciles à localiser sur des échantillons électropolis. Par contre, le vieillissement de l'échantillon intervient beaucoup car les starbursts ne sont observés que sur des échantillons préparés chimiquement depuis moins de 72 heures. Au delà, aucun starburst n'a été observé bien que des tâches noirâtres puissent être localisés sur la surface mais les formes géométriques sont très différentes.

III.4.2.5. INFLUENCE DE LA NATURE DE L'ECHANTILLON

L'existence des starbursts est-elle liée à la nature de l'échantillon ou à sa couche naturelle d'oxyde? Pour répondre à cette question, nous avons réalisé des expériences sur des échantillons de titane et de tantale dont les oxydes naturels ont des propriétés proches de celles de l'oxyde de niobium. Nous avons également réalisé des micro-claquages sur des échantillons en or de façon à nous affranchir de la couche d'oxyde. Les résultats obtenus sont clairs, les starbursts ne sont visibles que sur des échantillons en niobium. Sur les échantillons en titane et en tantale, des zones noirâtres ont été observées en imagerie d'électrons secondaires mais les formes sont très éloignées de celles observées sur les échantillons de niobium.

III.4.2.6. INFLUENCE D'UNE COUCHE EPAISSE D'OXYDE

L'étude de ce phénomène sur des échantillons présentant une couche anodique d'oxyde ($e > 200$ nm) n'a montré aucun starbursts sur la surface ni en imagerie d'électrons secondaires ni en retrodiffusés. Sur la figure III.65, on voit très bien que les micro-claquages réalisés sur la couche naturelle d'oxyde de niobium provoquent des starbursts alors qu'aucun starburst n'est observé lorsque l'on s'intéresse à la couche anodique d'oxyde.

III.4.2.7. STATISTIQUES

Afin de mieux caractériser les starbursts, nous avons réalisé des études systématiques de la taille, de la distance séparant le starburst du centre du micro-claquage et finalement de la longueur des tentacules des starbursts.

Les tailles des starbursts obtenus en champ continu varient en moyenne entre 25 et 35 microns (voir figure III.64), valeurs beaucoup plus faibles que celles observées dans les cavités hautes fréquences (taille $\sim 100-200$ μm) [III.48][III.49]. Les figures III.65 et III.66 montrent que des starbursts peuvent être observés à plus de 100 microns du centre du micro-claquage et que les tailles des tentacules sont en moyenne inférieures à 6 microns.

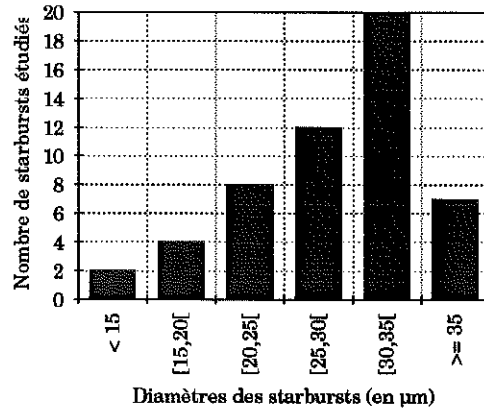


Figure III.64. Distribution des tailles des starbursts.

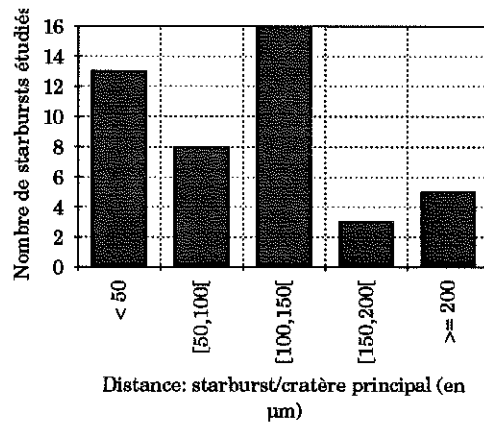


Figure III.65. Distances entre les starbursts et le centre du micro-claquage.

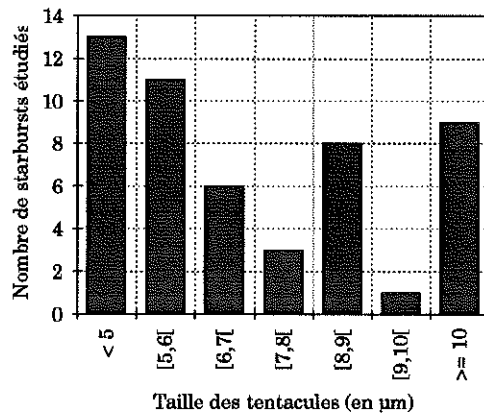


Figure III.66. Distribution de la taille des tentacules des starbursts.

III.4.3. DISCUSSION

III.4.3.1. CRATERES

Plusieurs articles [III.50-III.52] traitent les aspects théoriques et expérimentaux de l'émission explosive d'électrons qui est un phénomène associé à l'émission électronique de champ. En effet, lorsque la densité de courant due à l'émission électronique de champ atteint des valeurs supérieures à 10^{12} - 10^{13} A/m², la fusion locale du site émetteur provoque une explosion. Cette explosion, qui suit le courant d'émission de champ d'environ 1 ns, a pour origine une dissipation d'énergie importante en un temps très bref.

Dès lors, une zone fondue peut-être localisée autour du site émetteur. De plus, l'explosion s'accompagne de la formation d'un plasma dense dû à la vaporisation du métal. La concentration de ce plasma est au voisinage de la surface, proche de 10^{25} à 10^{29} m⁻³ [III.53] qui est une valeur proche de la densité des métaux à l'état solide. Le plasma, dont l'expansion est isotrope, a une concentration qui décroît lorsqu'on s'éloigne du centre de l'explosion. Il est entretenu par les pertes ohmiques produites par le courant d'émission qui le traverse.

Le plasma dense présent au voisinage de la surface exerce une pression locale importante sur le métal en fusion qui est refoulé hors de cette zone. Le champ électrique très intense qui existe entre la surface et les boules de métal en fusion qui s'en détachent, peut provoquer une nouvelle explosion. La multitude de cratères que nous observons après un micro-claquage résulte probablement de plusieurs explosions très localisées sur la surface.

La vitesse de propagation de l'interface entre le métal liquide et le métal solide, c'est à dire la vitesse de refoulement de matière, est voisine de 10^2 m/s. Pour obtenir des cratères de tailles comprises entre 1 et 20 microns, le mécanisme d'érosion doit durer de 10^{-8} à 10^{-7} secondes ce qui est compatible avec les valeurs obtenues expérimentalement. La Figure III.67 montre schématiquement la fabrication d'un cratère pendant un micro-claquage.

III.4.3.2. STARBURSTS

Nous avons montré expérimentalement que les starbursts sont toujours associés à des cratères donc à des micro-claquages aussi proposons-nous le mécanisme suivant pour expliquer l'apparition des starbursts.

Pendant la formation des cratères (processus décrit précédemment), le champ électrique et le plasma sont très intenses et il est donc possible d'imaginer qu'une petite goutte de métal en fusion soit projetée loin du centre de l'explosion (voir figure III.68). La petite boule de métal fondu s'écraserait ensuite sur la surface en produisant le starburst. Beaucoup de résultats expérimentaux sont favorables à ce mécanisme de production et nous les commenterons les uns après les autres :

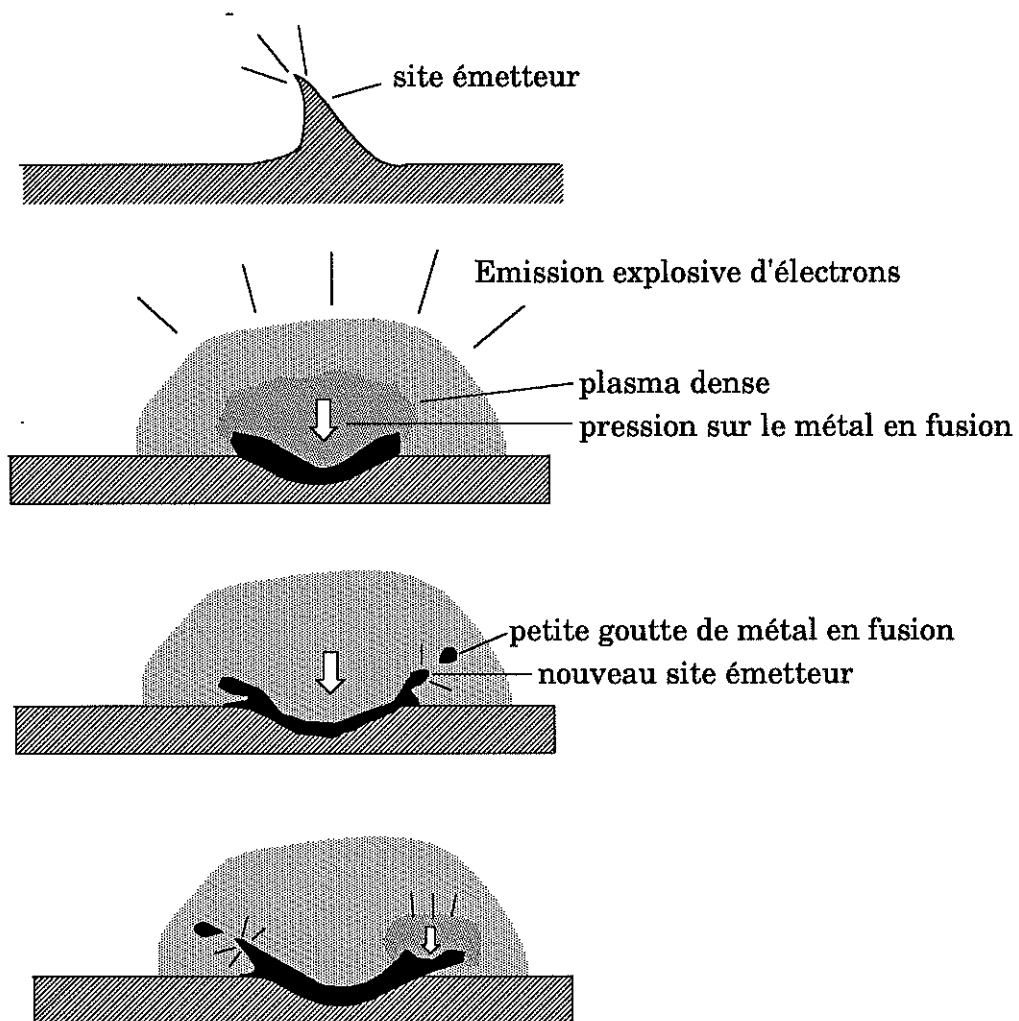


Figure III.67. Mécanisme pouvant expliquer l'apparition d'un cratère lors d'un micro-claquage.

1. Le volume de matière mis en jeu est très faible (diamètre moyen des starbursts ≈ 20 microns, épaisseur ≈ 10 nm), de l'ordre de $3 \mu\text{m}^{-3}$ de niobium ce qui correspond à une goutte de moins de $1 \mu\text{m}$ de rayon. Or, on trouve très souvent sur la surface, des boules de niobium dont les tailles varient de 1 à 3 microns de rayon.
2. Le starburst qui est en niobium apparaît en imagerie d'électrons retrodiffusés plus clair que le reste de la surface qui est recouverte d'une couche naturelle d'oxyde et qui a de facto, un numéro atomique moyen plus faible.
3. Le starburst qui est en niobium apparaît en imagerie d'électrons secondaires plus sombre que le reste de la surface. En effet, le libre parcours moyen des électrons est plus élevé dans les isolants que dans les métaux. L'oxyde naturel émettra donc un signal d'électrons secondaires plus intense et apparaîtra plus clair que le starburst.
4. La présence d'un contraste topographique visible aussi bien en imagerie d'électrons retrodiffusés qu'en imagerie d'électrons secondaires.
5. Nous avons montré en faisant varier l'énergie des d'électrons primaires que le starburst est un phénomène de surface.
6. Le starburst disparaît lorsqu'il est exposé à l'air ambiant ce que nous expliquons simplement par une re-oxydation du niobium entraînant la disparition du contraste de numéro atomique. De plus, on perd également du contraste topographique car l'oxyde, qui croît en partie au dépend du métal, va lisser la géométrie de la surface.

On pourrait également penser à un mécanisme dans lequel la couche naturelle d'oxyde serait pulvérisée laissant apparaître localement le niobium. Ce mécanisme expliquerait aussi les résultats (2) à (6). Mais il serait difficile par contre d'expliquer pourquoi des starbursts peuvent être situés à plus de 200 microns du centre du micro-claquage. L'hypothèse de la goutte de métal en fusion qui s'écraserait sur la surface produisant un starburst est donc celle qui explique le mieux les résultats expérimentaux.

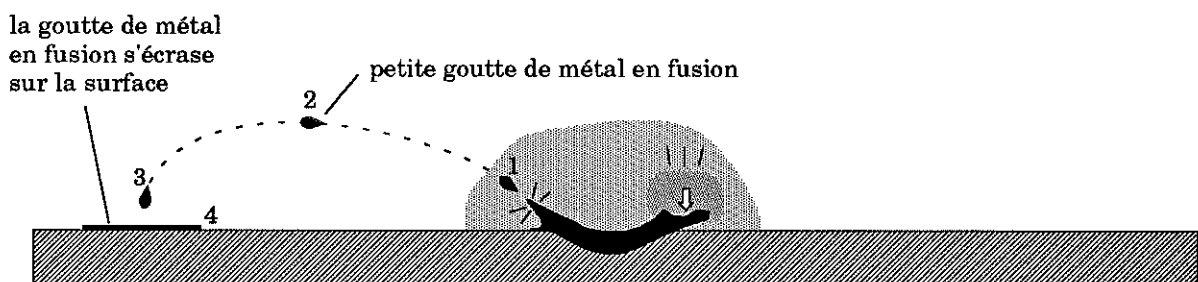


Figure III.68. Mécanisme pouvant expliquer la présence de starbursts sur une surface de niobium après un micro-claquage.

CHAPITRE IV

DISCUSSION DES MODELES THEORIQUES

CHAPITRE IV

DISCUSSION DES MODELES THEORIQUES

L'objectif de cette partie est d'opposer nos résultats expérimentaux aux modèles théoriques décrits au chapitre I afin d'identifier le ou les modèles qui correspondent le mieux aux réalités expérimentales. Notre discussion se fera en deux parties, la première abordera les modèles supposant des effets de surface (couche diélectrique, gaz adsorbés,...) et la seconde le modèle géométrique simple.

IV.1. MODELES SUPPOSANT DES EFFETS DE SURFACE

Tous les modèles présentés au chapitre I à l'exception du modèle géométrique, supposent la présence sur la surface d'une couche ou d'une particule diélectrique. L'hypothèse principale de ces différentes théories est la suivante : pour certaines valeurs du champ électrique appliqué, les propriétés de la couche diélectrique se trouveraient fortement modifiées, par un phénomène de "switching de la couche d'oxyde", de façon à faciliter le passage des électrons de l'échantillon vers le vide. Mais, plusieurs de nos résultats semblent montrer que la couche diélectrique, plutôt que de favoriser l'émission électronique, représente un obstacle supplémentaire au passage des électrons dans le vide. Ces résultats sont les suivants :

1. les champs seuils d'émission des particules sont sensiblement les mêmes lorsque celles-ci sont posées sur des échantillons en niobium ou en or. La couche naturelle d'oxyde ne semble donc pas jouer un rôle très important sur l'émission des particules.

2. les champs seuils d'émission des particules sont plus importants lorsque celles-ci sont posées sur des échantillons recouverts d'une couche anodique d'oxyde que sur ceux recouverts de leur couche naturelle d'oxyde. Une couche anodique d'oxyde représente donc une barrière supplémentaire au passage des électrons du métal vers le vide.
3. lors de l'étude de l'émission des particules posées sur une couche anodique d'oxyde, nous avons observé que les propriétés conductrices de l'oxyde sous la particule se trouvaient fortement modifiées. En effet, après émission, l'oxyde permet l'écoulement des charges entre la particule et l'échantillon, il est donc devenu conducteur. Ce phénomène peut être rapproché des phénomènes de "switching" de la couche d'oxyde. Cependant, malgré ce "switching" de la couche anodique d'oxyde, les champs seuils d'émission des particules restent plus élevés que ceux mesurés sur les particules posées sur un échantillon recouvert d'une couche naturelle d'oxyde. De plus, la zone de l'oxyde qui a été modifiée n'émet pas même pour des champs appliqués de 150 MV/m.
4. certains modèles reposent sur la présence dans la couche diélectrique de canaux conducteurs lorsque celle-ci a subi un "switching". Ces zones seraient responsables d'un renforcement local du champ appliqué. Mais le résultat précédent (3) montre que ces zones n'émettent pas. Pour compléter cette étude, nous avons formé des structures MIM puis, après avoir dissout le dépôt métallique, nous avons appliqué des champs intenses sur les zones d'oxyde qui ont été "formées" sans qu'aucune émission ne soit détectée même pour des champs appliqués de 150 MV/m.

Les couches d'oxyde, qu'elles soient naturelles ou anodiques ne semblent donc pas favoriser l'émission électronique même lorsque celles-ci sont formées. La présence d'une couche diélectrique explique très bien le spectre en énergie des électrons émis et l'émission lumineuse associée à l'émission de champ mais elle peut difficilement expliquer un renforcement local du champ appliqué.

Les couches de gaz adsorbées peuvent expliquer un renforcement du courant d'émission par effet tunnel résonant mais n'expliquent pas un renforcement local du champ appliqué.

IV.2. MODELE GEOMETRIQUE SIMPLE

Nombre de nos résultats semblent être en faveur du modèle géométrique c'est à dire d'un renforcement local du champ dû à la géométrie du site émetteur. Les résultats en faveur de ce modèle sont :

1. les particules d'or posées sur des échantillons en or sont d'excellents émetteurs, les meilleurs émetteurs parmi toutes les particules étudiées.

2. la forme géométrique des particules joue un rôle très important sur l'émission. En effet, les particules de formes aléatoires émettent beaucoup alors que les particules de formes sphériques n'émettent pas.
3. les particules, même soudées à l'échantillon, restent de bon sites émetteurs.
4. les défauts géométriques sont d'excellents émetteurs. Plus la rugosité de ces défauts est élevée et plus les champs seuils d'émission sont faibles.
5. la fusion de l'extrémité des défauts géométriques, qui se traduit par un arrondissement de ceux-ci, provoque une augmentation importante des champs seuils d'émission.
6. les cratères sont dans 50 % des cas d'excellents émetteurs.

Tous ces résultats sont en faveur du modèle géométrique mais un modèle géométrique simple tel que celui présenté au chapitre I, ne peut expliquer certains résultats expérimentaux comme par exemple :

- i. les facteurs de renforcement β obtenus expérimentalement ($80 < \beta < 500$). En effet, en supposant des protubérances ayant des formes géométriques simples et de dimensions microscopiques, le facteur de renforcement local du champ excèdera difficilement 10.
- ii. l'allure des spectres d'énergie des électrons émis et l'émission lumineuse associée à l'émission de champ : aucune étude spécifique n'a été réalisée sur ces deux familles de sites émetteurs (particules conductrices et défauts géométriques), il n'est donc pas certain que les résultats obtenus seraient défavorable à un mécanisme d'émission reposant sur le modèle géométrique.

IV.3. MODELE DES PROTUBERANCES SUPERPOSEES

La faiblesse du modèle géométrique simple est que celui-ci ne rend pas compte des facteurs β mesurés expérimentalement. Cependant, des facteurs β supérieurs à 100 peuvent facilement être obtenus en supposant que les sites émetteurs sont constitués de deux protubérances superposées. Ce modèle n'est pas nouveau car plusieurs auteurs [IV.1] y ont déjà fait allusion par le passé mais aucune étude poussée n'avait été entreprise avant nos travaux. En effet, soit une première protubérance qui provoquerait un renforcement local du champ β_1 et soit une seconde protubérance, située sur la première et provoquant un renforcement local du champ β_2 . En première approximation, le facteur β ne dépend que du rapport h/r où h est la hauteur de la protubérance et r le rayon de courbure au sommet. Si la seconde protubérance a une taille très faible par rapport à celle de la première protubérance, le champ électrique au voisinage de celle-ci peut être considéré comme uniforme. Le facteur de renforcement total du champ β sera donc égal au produit de β_1 par β_2 (voir figure IV.1).

Afin de vérifier ce modèle, nous avons réalisé des simulations numériques pour des valeurs finies du rapport h_1/h_2 en utilisant le programme POISSON [IV.2]. Ce programme résout les équations de Laplace en deux dimensions pour des géométries très variées. Si on suppose une symétrie cylindrique, on peut alors modéliser un site tridimensionnel.

Pour une protubérance caractérisée par un rapport $h/r=8$, la simulation numérique donne un facteur $\beta=10$ en bon accord avec les résultats de Vibrans [IV.3]. La figure IV.2 montre les équipotentielles obtenues sur un défaut constitué par deux protubérances superposées caractérisées par un rapport $h_i/r_i=8$ donc $\beta=10$. Le programme ne permettant pas de réduire indéfiniment ni la maille utilisée pour le calcul numérique ni la taille des défauts, nous avons été limité à un rapport $h_1/h_2=10$. Les résultats qui sont rassemblés dans le tableau IV.1 sont obtenus avec une précision de $\pm 10\%$. On constate que plus le rapport h_1/h_2 est grand et plus le facteur de renforcement total β se rapproche du produit des deux facteurs β_1 et β_2 .

Protubérance(s)	h_1/h_2	β
une seule	-	10
deux superposées	5	32
deux superposées	10	50
deux superposées	∞	100

Tableau IV.1. Facteur de renforcement du champ β calculé pour une protubérance en forme de cylindre surmonté d'une demi-sphère et pour deux protubérances superposées ayant un rapport h_1/h_2 et ayant chacune un facteur $\beta=10$.

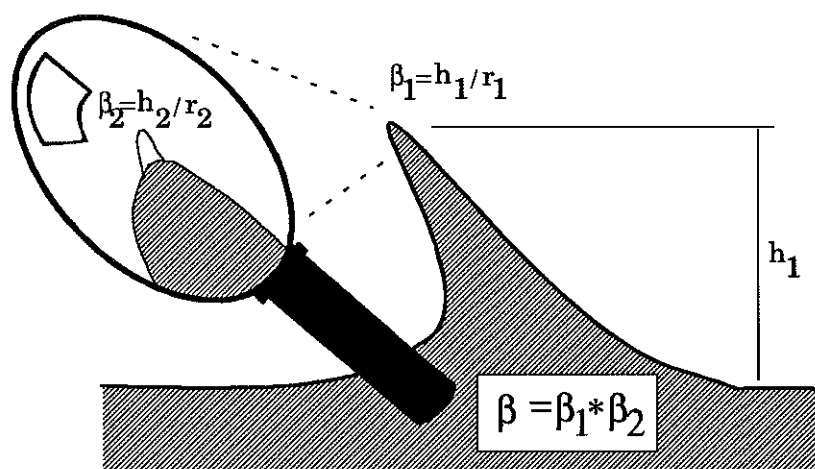


Figure IV.1. Schéma montrant les deux protubérances constituant le site émetteur.

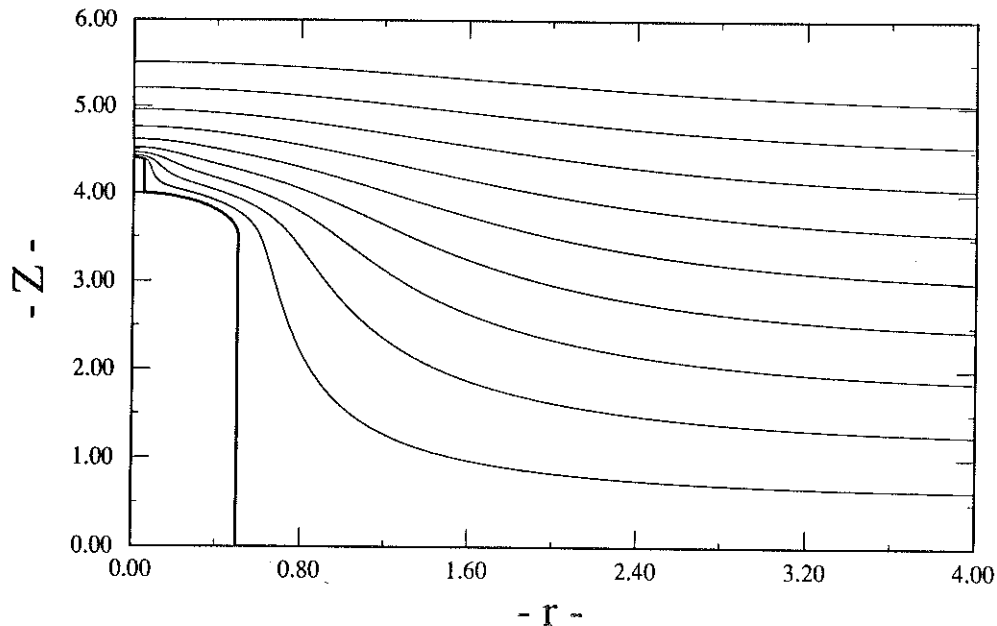


Figure IV.2. Equipotentielles obtenues sur un défaut constitué par deux protubérances superposées caractérisées par un rapport $h_1/r_1=8$ donc $\beta=10$.

L'étude microscopique des sites émetteurs permet d'estimer facilement l'ordre de grandeur de la hauteur h et du rayon de courbure au sommet r de la protubérance principale. On obtient un facteur $\beta_1=h_1/r_1$ supérieur ou égal à 10, avec par exemple : $h_1=10\mu\text{m}$ et $r_1=1\mu\text{m}$. La seconde protubérance, qui doit rendre compte d'un facteur $\beta_2=h_2/r_2$ supérieur ou égal à 10, avec $h_2 \ll h_1$. Pour cela, il est nécessaire de supposer la présence de défauts sur la surface ayant les caractéristiques suivantes : $h_2 \approx 100 \text{ nm}$ et $r_2 \approx 10 \text{ nm}$.

Ces hypothèses sont très raisonnables. En effet, les travaux réalisés par Niedermann [IV.4] qui en utilisant un microscope à effet tunnel travaillant en émission de champ, a montré qu'il y a bien sur des surfaces apparemment lisses lorsque visualisées au MEB, des sites émetteurs. Ces sites émetteurs ont des facteurs β compris entre 3 et 10 et des tailles nanométriques. S'il est possible de trouver ce type de défauts sur des surfaces lisses à l'échelle microscopique, il est facilement concevable de trouver le même type de sites émetteurs sur des défauts géométriques ou sur des particules.

Avec l'hypothèse des protubérances superposées, il est possible d'obtenir des facteurs β estimés à partir de la géométrie des sites émetteurs proches de ceux extraits des caractéristiques courant-tension. La figure IV.3 montre une géométrie qui rend facilement compte d'un facteur β supérieur à 100, la valeur du facteur β extrait de la caractéristique courant-tension de ce site donne une valeur de 120.

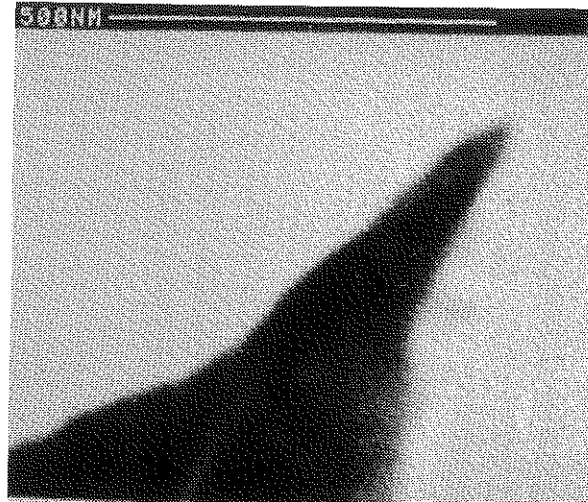
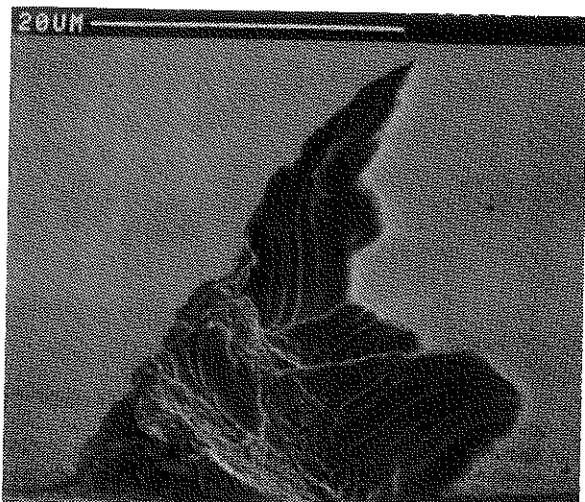


Figure IV.3. Micrographies obtenues au MEB d'un site émetteur géométrique sur lequel on voit des géométries compatibles avec les ordres de grandeur proposés dans le modèle des protubérances superposées.

IV.4 APPLICATION AUX CAVITES ACCELERATRICES EN NIOBIUM

L'étude de l'émission d'échantillons ayant subi le même protocole de préparation que les cavités accélératrices à l'exception du séchage en salle blanche, a permis d'identifier deux familles auxquelles appartiennent tous les sites émetteurs identifiés sur la surface : les défauts géométriques et les particules de contamination. La densité des sites émetteurs "naturels" (ils ne sont pas volontaires) est faible, ~ 5 sites/cm². Ce sont en majorité (95 %) des particules provenant de la contamination naturelle des échantillons de niobium. Les 5 % de sites émetteurs restant sont des défauts géométriques qui ont pour origine des attaques chimiques préférentielles de zones bien localisées de la surface des échantillons (voir figure III.).

Un parallèle direct ne peut être établi entre les résultats obtenus sur nos échantillons et la "réalité" des cavités accélératrices. En effet, les précautions prises lors de la préparation des cavités sont plus poussées (séchage et montage en salle blanche). On s'attend alors à avoir une densité de particules provenant de la contamination naturelle plus faible. Par contre, la surface des cavités soumise à un champ électrique intense est importante et il n'est donc pas surprenant d'avoir des sites émetteurs même pour des champs électriques de quelques mégavolt par mètre. Le cas des défauts géométriques doit être pris à part car le niobium utilisé est le même dans les deux cas aussi la densité de sites émetteurs de ce type devrait être identique.

De plus, les sites émetteurs des cavités accélératrices peuvent avoir d'autres origines comme par exemple la contamination par particules lors du montage. Les études de contamination sélective d'échantillons de niobium par des particules de natures variées, ont permis de montrer que les particules métalliques émettent beaucoup alors que les particules isolantes n'émettent pas pour des champs appliqués inférieurs à 140 MV/m. Ces particules peuvent avoir des origines diverses comme par exemple des systèmes vis-écrou, des frottements de deux surfaces ou alors les joints métalliques utilisés pour l'étanchéité. En effet, parmi les sites émetteurs que nous avons identifiés dans les cavités puis étudiés avec notre dispositif, il y avait des particules de fer, d'alliages fer-chrome et d'argent, provenant des vis utilisées ou alors d'indium provenant des joints.

Les contacts mécaniques provoquent des défauts géométriques donc des sites émetteurs. Nous avons montré que les rayures ont des champs seuils d'émission beaucoup plus faibles que les contacts ponctuels. En toute logique, il est fort probable que des contacts mécaniques lors du montage des cavités provoquent des rayures et non des contacts ponctuels tels que nous les avons définis. Seuls des défauts géométriques provenant de contacts mécaniques avec des matériaux plus durs que le niobium peuvent s'avérer dangereux pour les cavités. Nous avons également montré que les contacts mécaniques réalisés avec une pointe en matière plastique n'émettent pas. Ce résultat qui paraît sans importance est en fait un point déterminant pour le montage des cavités accélératrices. En effet, au cours du montage, l'utilisation d'outils en plastiques supprime tout risque de défauts géométriques donc de sites émetteurs. Une éventuelle contamination serait sans importance car les particules isolantes n'émettent pas dans la gamme de champ allant jusqu'à 140 MV/m, largement au dessus des champs habituellement rencontrés dans les cavités accélératrices.

La moitié des cratères que nous avons étudié émettent pour des champs inférieurs à 140 MV/m. Cependant, le champ seuil moyen d'émission, de l'ordre de 60 MV/m, est très supérieur aux champs que l'on trouve dans les cavités (champ maxima sur la surface 50 MV/m). Dès lors, ils ne contribueront que faiblement à l'émission électronique dans les cavités.

En définitive, faute d'avoir des traitements très efficaces permettant d'éliminer les sites émetteurs, la seule solution reste d'éviter la contamination des cavités par des particules et les contacts mécaniques, pendant toutes les phases allant de la préparation chimique, à l'installation définitive des cavités dans le cryostat.

CONCLUSION

Les études précédentes réalisées sur l'émission électronique de champ avaient permis de montrer que l'émission électronique observée sur des électrodes larges avait pour origine des régions bien localisées de la surface appelées : sites émetteurs. Mais les sites émetteurs étudiés provenaient généralement d'échantillons n'ayant subi aucun traitement particulier en dehors du décapage chimique. Or ces résultats n'avaient pas permis d'établir une corrélation entre les paramètres caractéristiques (forme géométrique, composition chimique,...) des sites émetteurs et leur aptitude à émettre ou non des électrons sous l'effet d'un champ électrique appliqué.

C'est en cela que nos résultats sont innovants et intéressants. En effet, aussi bien au travers des études de la contamination naturelle, que des études de la contamination sélective, des défauts géométriques ou finalement de l'émission des cratères, nous avons montré qu'il existe une corrélation d'une part entre la nature chimique des particules et leur aptitude à l'émission et d'autre part entre l'aptitude à l'émission et la forme géométrique du site considéré. Mais nous sommes allé encore plus loin en étudiant expérimentalement l'influence d'une couche d'oxyde sur l'émission électronique de champ et en proposant un modèle théorique qui est plébiscité par tous nos résultats.

Evidemment, nos études n'ont porté que sur l'émission des particules et des défauts géométriques et les conclusions que nous tirons ne doivent être considérées que dans le cadre de ces deux familles de sites émetteurs. Mais comme nous avons également montré que l'émission électronique de champ était toujours associée à la présence sur la surface d'un défaut qui entre dans l'une ou l'autre de ces deux familles, ces résultats ont une portée d'autant plus importante.

Finalement, ces deux familles de sites émetteurs, qui ont été assez bien caractérisées, pourront être utilisées afin de comparer d'une part l'émission électronique en champ continu et en champ haute fréquence et d'autre part être utilisés comme moyen de test reproductible pour étudier des traitements susceptibles de supprimer l'émission électronique.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

CHAPITRE I

- [I.1] Wood R. H., *Phys. Rev.* **5** (1897) 1
- [I.2] Schottky W., *Z. Physik* **14** (1923) 63
- [I.3] Gossling B. S., *Phil. Mag.* **1** (1926) 609
- [I.4] Fowler R. H., Nordheim L., *Proc. R. Soc. London A* **119** (1928) 173-181
- [I.5] Good R. H., Müller E. W., *Handbuch der Physik* **21** (1956) 176-231
- [I.6] Dyke W. P., Dolan W. W., *Adv. Electron. and Electron Phys.* **8** (1956) 90-185
- [I.7] Nordheim L., *Proc. Roy. Soc. London A* **121** (1928) 626
- [I.8] Sprindt C. A., Brodie I., Humphrey L., Westerberg E. R., *J. Appl. Phys.* **47** (1976) 5248
- [I.9] Christov S. G., *Phys. Stat. Sol.* **17** (1966) 11-26
- [I.10] Haeffer R., *Z. Physik* **116** (1940) 604-22
- [I.11] Dyke W. P., Trolan J. K., Martin E. E., Barbour J. P., *Phys. Rev.* **91** (1953) 1043
- [I.12] Chatterton P. A., *Proc. Phys. Soc. London* **88** (1966) 231-45
- [I.13] Whitartt R. D. B., Blott B. H., *Phys. Rev. Lett.* **23** (1969) 639
- [I.14] Noer R. J., *Appl. Phys.* **A28** (1982) 1-24
- [I.15] Little R. P., Smith S. T., *J. Appl. Phys.* **36** (1965) 1502
- [I.16] Alpert D., Lee D. A., Lyman E. M., Tomaschke H. E., *J. Vac. Sci. Technol.* **1** (1964) 35-50
- [I.17] Cox B. M., Wort D. E. J., *Vacuum* **20** (1972) 453
- [I.18] Walters C. S., Fox M. W., Latham R. V., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **7** (1974) 911
- [I.19] Cox B. M., *J. Phys. D : Appl. Phys.* **8** (1975) 2065
- [I.20] Allen N. K., Cox B. M., Latham R. V., *J. Phys. D : Appl. Phys.* **12** (1979) 969
- [I.21] Athwal C. S., Latham R. V., *Physica* **104 C** (1981) 46
- [I.22] Allen N. K., Latham R. V., *J. Phys. D : Appl. Phys.* **11** (1978) L55
- [I.23] Latham R. V., *IEEE Trans. Electrical Insul.* **EI-18** (1983) 194
- [I.24] Young R. D., *Phys. Rev.* **113** (1959) 110
- [I.25] Athwal C. S., Latham R. V., *Physica* **104 C** (1981) 189

- [I.26] Hurley R. E., *J. Phys. D : Appl. Phys.* **12** (1979) 2229; **12** (1979) 2247; **13** (1980) 1121
- [I.27] Latham R. V., *High Voltage Vacuum Insulation : The Physical Basis*, Academic Press, London (1981)
- [I.28] Zeitoun-Fakiris A., Jüttner B., *J. Phys. D* **21** (1988) 960-7
- [I.29] Bajic S., Latham R. V., *IEEE Trans. Elec. Insul.* **EI-23** (1988) 27-33
- [I.30] Zeitoun-Fakiris A., Jüttner B., *IEEE Trans. Elec. Insul.* **EI-23** (1988) 83-6
- [I.31] Vibrans G., *MIT Lincoln Lab. Report* **353** (1964)
- [I.32] Niedermann P., Thèse Université de Genève (1986)
- [I.33] Hackam R., *J. Appl. Phys.* **45** (1974) 114-118
- [I.34] Hackam R., *Mater. Res. Bull.* **7** (1972) 655-662
- [I.35] Hackam R., *Mater. Res. Bull.* **8** (1973) 868-870
- [I.36] Sayag G. J., Viet N. T., Bergeret H., Septier A., *J. Appl. Phys.* **33** (1962) 1897-1898
- [I.37] Latham R.V., Bayliss K.H., Bajic S., *IEEE trans. on Elec. Insul.* **24**, N°6 (1989) 897-900
- [I.38] Kiejna A., Niedermann P., Fischer O., *Appl. Phys. A* **50** (1990) 331-338
- [I.39] Dearnaley G., *Phys. Lett.* **25 A** (1967) 760-761
- [I.40] Biederman H., *Vacuum* **26** (1976) 513-523
- [I.41] Pagnia H., Sotnik N., *Phys. Stat. Sol. A* **108** (1988) 11-65
- [I.42] Ovshinsky S.R., "Structure and excitation of amorphous solids", AIP NY (1976)
- [I.43] Boer K.W., Ovshinsky S.R., *J. Appl. Phys.* **41** (1970) 2675-81
- [I.44] Dearnaley G., Stoneham A. M., Morgan D. V., *Rep. Prog. Phys.* **33** (1970) 1129-1191
- [I.45] Hickmott T.W., *Thin Solid Films* **3** (1969) 85-107
- [I.46] Hickmott T.W., *J. Appl. Phys.* **37** (1966) 4380-88
- [I.47] Hickmott T.W., Hiatt W.R., *Solid State Elec.* **13** (1970) 1033-47
- [I.48] Belkacem I.Y., Thèse Université de Paris-Sud (1989)
- [I.49] Many A., Goldstein Y., Grover N.B., "Semiconductor Surface", p.131, North Holland Pub.Co., Amsterdam (1965)
- [I.50] McKelvey J.P., "Solid State and Semiconductor Physics", p.485, Harper & Row, New York and London (1966)
- [I.51] Athwal C. S., Bayliss K. H., Calder R., Latham R. V., *IEEE Trans. Plasma Sci.* **PS-13** (1985) 226
- [I.52] Latham R. V., *Vacuum* **32** (1982) 137

- [I.53] Halbritter
- [I.54] Xu, N. S., Latham R. V., *J. Phys. D : Appl. Phys.* **19** (1986) 477-82

CHAPITRE II

- [II.1] Niedermann P., Thèse Université de Genève (1986).
- [II.2] Mahner E., Minatti N., Piel H., Pupeter N., *Applied Surface Sci.* **67**, (1993) 23-28.
- [II.3] Von Ardenne, *Zeits. f. Physik* **108** (1938) 338-52 ; **109** (1938) 553-72
- [II.4] Reimer L., "*Scanning electron microscopy*", vol 45, Springer-Verlag Berlin.
- [II.5] Maurice F., Meny L., Tixier R., "*Microanalyse et microscopie électronique à balayage*", Les Editions de Physique, Orsay-France (1978).

CHAPITRE III

- [III.1] Latham R. V., *IEEE Trans. Electrical Insul.* **EI-18** (1983) 194
- [III.2] Young R. D., *Phys. Rev.* **113** (1959) 110
- [III.3] Athwal C. S., Latham R. V., *Physica* **104 C** (1981) 189
- [III.4] Farrall G.A., *Physica* **104 C** (1981) 139-154.
- [III.5] Cox B. M., Wort D. E. J., *Vacuum* **20** (1972) 453
- [III.6] Walters C. S., Fox M. W., Latham R. V., *J. Phys. D : Appl. Phys.* **7** (1974) 911
- [III.7] Cox B. M., *J. Phys. D : Appl. Phys.* **8** (1975) 2065
- [III.8] Athwal C. S., Bayliss K. H., Calder R., Latham R. V., *IEEE Trans. Plasma Sci.* **13** (1985) 226
- [III.9] Noer R. J., Niedermann P., Sankarraman N., Fischer Ø., *J. Appl. Phys.* **59** (1986) 3851
- [III.10] Renner C., Niedermann P., Fischer Ø., *IEEE trans. on Elec. Insul.* **24**, N°6 (1989) 911-6
- [III.11] Odier D., Rifflet J.C., Loup J.P., *J. Material Sci.* **19** (1984) 2121
- [III.12] Diamaria D.J., "Physics of SiO₂ and its Interfaces", S.T. Pantelides, Pergamon Press NY (1978).
- [III.13] Halbritter J., *Appl. Phys.* **A 43** (1987) 1
- [III.14] Jouve G., *Phil. Mag.* **B 64** (1991) 207
- [III.15] Goube J., Jouve G., *Thin Solid Films* **59** (1979) 361
- [III.16] Bartels C, Danfuss B, Schultze JW, Passivity of Metals and Semiconductors ed M Froment (Amsterdam : Elsevier)

- [III.17] Cahan B. D., Chen C. T., *J. Electrochem. Soc.* **129**, 17, 474 (1982) 921
- [III.18] McNatt J.L., *Phys. Rev. Lett.* **23** (1969) 915.
- [III.19] Tench D. M., Yeager E., *J. Electrochem. Soc.* **120** (1973) 164
- [III.20] MacDougall B., Cohen M., *J. Electrochem. Soc.* **124** (1977) 1185
- [III.21] Wagner F. T., Moylan T. E., *J. Electrochem. Soc.* **136** (1989) 2498
- [III.22] Jarzebski Z.M., "Oxide semiconductors", B.R. Bandlin Ed. Intern. Series Monographs in Science and Solid State Vol 4, pp150-189, Pergamon Press (1973).
- [III.23] Garforth, "Oxidation of metals and alloys", Butterworths Sci. Pub. London (1953).
- [III.24] Niedermann P., Sankarraman N., Noer R. J. and Fischer Ø., *J. Appl. Phys.* **59** (1986) 892
- [III.25] Latham R. V. Bayliss K. H. Bajic S., *IEEE trans. on Elec. Insul.* **24**, N°6 (1989) 897-900
- [III.26] Kiejna A., Niedermann P., Fischer Ø., *Appl. Phys. A* **50** (1990) 331-338
- [III.27] Hübner H., *Journal de Physique, Colloque C* **9** N°12 (1984) 45
- [III.28] Xu N. S., Latham R. V., *J. Phys. D : Appl. Phys.* **19** (1986) 477-482
- [III.29] Sayag C., *J. Phys. E* **10** (1977) 176
- [III.30] Frenkel J., *Phys. Rev.* **54** (1938) 647
- [III.31] Jouve J., *Phil. Mag.* **B 64** N°2 (1991) 207-218
- [III.32] Hill R.M., *Phil. Mag.* **23** (1971) 59
- [III.33] Tsutsumi T., Shioiri T., Okubo H., Yanabu S., *Proc of the XIIIth ISDEIV*, Paris (1988)
- [III.34] Lloyd O., Hackam R., *Proc. IEE* **122** N°11 (1975)
- [III.35] Bahder H. P., Jutter B., *Proc of the XIth ISDEIV* (1984) 279
- [III.36] Burstein G.T., Newman R.C., *J. Electrochem. Soc.* **128** (1981) 2270.
- [III.37] Hashimoto et al, "Passivity of Metals", R.P. Frankenthal, J. Krouger Ed. pp161-7, The Electrochemical Society, Princetown NJ (1978).
- [III.38] Diegle R.B., Lineman D.M., *J. Electrochem. Soc.* **131** (1984) 106.
- [III.39] Ashley, *Corrosion* **39** (1983) 241.
- [III.40] Burstein G.T. et al, *Electrochim. Acta* **28** (1983) 363.
- [III.41] Halbritter J., *Appl. Phys. A* **13** (1987) 1
- [III.42] Pursch H., Siemroth, Jüttner, *IEEE Trans. on Elec. Insul.* **24** N°6 (1989) 917-920
- [III.43] Niedermann P., Renner C., Kent A. D., Fischer Ø., *J. Vac. Sci. Technol. A* (1990)

- [III.44] Noer R. J., *Appl. Phys.* **A28** (1982) 1-24
- [III.45] Hackam R., *J. Appl. Phys.* **45** (1974) 114-118
- [III.46] Hackam R., *Mater. Res. Bull.* **7** (1972) 655-662
- [III.47] Hackam R., *Mater. Res. Bull.* **8** (1973) 868-870
- [III.48] Moffat D. et al, *Particle Acc.* **40** (1992) 85-126
- [III.49] Moffat D. et al, Proc of the 1991 Particle Accelerator Conference, San Francisco
- [III.50] Mesyats G. A., *IEEE Trans. Elec. Insul.* **EI-18**, N°3 (1983) 218-225
- [III.51] Litvinov E. A., *IEEE Trans. Elec. Insul.* **EI-20**, N°4 (1985) 683-689
- [III.52] Fursey G. N., *IEEE Trans. Elec. Insul.* **EI-20**, N°4 (1985) 659-670
- [III.53] Cross J. D., Mazurek B., Srivastava K. D., *IEEE Trans. Elec. Insul.* **EI-18**, N°3 (1983) 230-233

CHAPITRE IV

- [IV.1] Rorhbach F., Thèse Université de Genève (1971).
- [IV.2] Accelerator Code Group, Los Alamos National Laboratory.
- [IV.3] Vibrans G., *MIT Lincoln Lab. Report* **353** (1964).
- [IV.4] Niedermann P., Fischer Ø., *IEEE Trans. on Elec. Insul.* **24** N°6 (1989) 905-910.

LISTE DES FIGURES

Chapitre I

- I.1. Interface métal-vide supposé par Fowler et Nordheim. Le niveau de fermi du métal est noté ϵF et le travail de sortie est noté ϕ . (a) en l'absence de champ ($E=0$) et (b) en présence d'un champ appliqué ($E>0$). Les traits pointillés montrent la barrière en l'absence de la force image.
- I.2. Variations du facteur de renforcement β en fonction du rapport h/r où h est la hauteur du site et r son rayon de courbure au sommet. (A) Cylindre vertical possédant une extrémité sphérique, (B) ellipsoïde, (C) cylindre horizontal, et (D) défaut en forme de coin.
- I.3. Diagramme d'énergie d'un système métal-isolant-vide en présence d'un champ $E>0$. ϵF est le niveau de fermi du métal, ϕ son travail de sortie, χ l'affinité électronique de l'isolant et finalement e , l'épaisseur de la couche isolante. Les effets de la force image et de la charge d'espace sont négligés.
- I.4. Diagramme des niveaux d'énergie d'un système Métal-Isolant-Vide.
- I.5. Modèle d'antenne qui suppose la présence d'une fine couche isolante sous la particule. Les lignes représentent schématiquement les équipotentielles du champ appliqué.

Chapitre II

- II.1. Photographie (a) et schéma (b) du dispositif expérimental.
- II.2. Schéma de principe du microscope électronique à balayage.
- II.3. Dépendance entre la résolution et la nature du signal détecté.
- II.4. Origine des différents contrastes liés à la topographie de la surface d'un échantillon. Ses est l'intensité du signal d'émission secondaire.
- II.5. Variations du rendement total d'émission s en fonction de l'énergie des électrons incidents.
- II.6. Influence de la charge négative des particules isolantes sur une micrographie obtenue au MEB. Cette influence se traduit par la présence d'un halo noir autour des particules.
- II.7. Distorsions des lignes de champ dues à la charge de la particule.

- II.8. Micrographie obtenue en imagerie d'électrons retrodiffusés montrant un contraste dû à l'orientation cristalline sur un échantillon de niobium électropoli.
- II.9. Photographie de l'intérieur de la chambre du MEB.
- II.10. Spectre d'un échantillon de niobium obtenu avec le système EDX.
- II.11. Schéma fonctionnel du dispositif porte-pointe.
- II.12. Surface d'un échantillon d'or poli mécaniquement.
- II.13. Surface d'un échantillon de niobium ayant subi un polissage chimique du type "Saclay".
- II.14. Surface d'un échantillon de niobium ayant subi un polissage électrolytique.
- II.15. Schéma de principe du montage utilisé pour le processus d'anodisation.
- II.16. Schéma de la caractéristique $V = f(t)$ à courant constant obtenue lors de l'anodisation d'un échantillon. V_{tot} est la chute de tension totale aux bornes de la cellule, V_{sol} est la chute de tension dans l'électrolyte et V_F est la chute de tension aux borne du film, dite tension de formation. C'est la seule valeur à prendre en compte pour calculer l'épaisseur des films.
- II.17. Micrographies d'une pointe plane (a) et d'une pointe fine de géométrie hyperbolique (b) réalisées à partir de fils de tungstène.
- II.18. Graphique montrant en abscisse la tension affichée sur le générateur de tension et en ordonnée la tension réellement appliquée.
- II.19. Evolution du courant dans les résistances de protection en fonction de la tension appliquée aux bornes de celles-ci.
- II.20. Evolution des tensions appliquées en fonction de la distance pointe/surface à courant d'émission constant.
- II.21. Comparaison des champs seuils d'émission d'une série de défauts géométriques réalisés sur un échantillon en or, avant et après que l'échantillon ait été sorti puis réintroduit dans le MEB.

Chapitre III

- III.1. Micrographie de deux défauts géométriques naturels émettant un courant de plusieurs nanoampères pour des champs appliqués inférieurs à 40 MV/m.

- III.2. Micrographies de deux particules provenant de la contamination naturelle d'un échantillon de niobium.
- III.3. Fréquence d'apparition des différents éléments dans la composition des particules de contamination.
- III.4. Tailles des particules de contamination rencontrées sur la surface.
- III.5. Taille des 16 particules de contamination émettant pour des champs inférieurs à 100 MV/m
- III.6. Champs seuils d'émission des 16 particules de contamination émettant pour des champs inférieurs à 100 MV/m
- III.7. Micrographies de deux particules de contamination dont une est un bon émetteur (a) et l'autre non (b). La particule qui n'émet pas est entourée d'un halo noir caractéristique des particules isolantes.
- III.8. Emission des particules d'alumine (a) et de silice (b) sur des échantillons de niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.
- III.9. Micrographie d'une particule d'alumine (a) et de silice (b) de formes quelconques.
- III.10. Emission des particules de niobium (a) et de titane (b) sur des échantillons de niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.
- III.11. Micrographie d'une particule de niobium de formes quelconques.
- III.12. Emission des particules de fer (a), de nickel (b) et d'argent (c) sur des échantillons de niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.
- III.13. Micrographies de particules de fer (a), de nickel (b) et d'argent (c) de formes quelconques.
- III.14. Emission des particules d'or sur des échantillons de niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.
- III.15. Micrographie d'une particule d'or de forme quelconque.

- III.16. Emission des particules de fer de formes sphériques (a) et de formes quelconques (b) sur des échantillons de niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.
- III.17. Micrographies de deux particules de fer, une forme sphérique (a) et une de forme quelconque (b).
- III.18. Emission des particules de nickel de formes sphériques (a) et de formes quelconques (b) sur des échantillons de niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.
- III.19. Micrographies de deux particules de nickel, une de forme sphérique (a) et une de forme quelconque (b).
- III.20. Répartition des champs seuils d'émission des particules de fer et d'or en fonction de leurs hauteurs respectives. Particules posées sur des échantillons en niobium (a) et en or (b).
- III.21. Répartition des champs seuils d'émission des particules de fer et d'or en fonction du rapport hauteur de la particule/taille minimale dans le plan horizontal. Particules posées sur des échantillons en niobium (a) et en or (b).
- III.22. Comparaison de l'émission des particules d'or et de niobium sur des échantillons de niobium (a) et sur des échantillons d'or (b). Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.
- III.23. Micrographie de particules de fer posées sur un échantillon niobium recouvert de sa couche naturelle d'oxyde (à droite) et recouvert de 240 nm d'oxyde anodique (à gauche).
- III.24. Emission des particules de fer sur des échantillons de niobium recouvert de sa couche naturelle d'oxyde (a) et recouvert de 240 nm (b) et 260 nm (c) d'oxyde anodique. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.

- III.25. Micrographie montrant une particule posée sur un échantillon de niobium recouvert par une couche de 240 nm d'oxyde anodique. Avant émission (a), les deux particules se chargent sous l'effet du faisceau électronique du microscope. Après émission (b), la particule de gauche ne se charge plus sous le faisceau alors que la particule de droite, qui est notre référence, continue de se charger.
- III.26. Schéma d'une structure MIM.
- III.27. Dispositif permettant la mesure du courant dans une MIM.
- III.28. Graphiques courant-tension dans des coordonnées de Poole-Frenkel.
- III.29. Emission des particules de fer sur un échantillon d'aluminium recouvert de sa couche naturelle d'oxyde (a) et d'une couche de 98 nm d'oxyde anodique (b) et (c). (b) correspond aux champs nécessaires à l'amorçage de l'émission, (c) correspond aux champs obtenus après une première émission. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.
- III.30. Micrographie montrant une particule posée sur un échantillon d'aluminium recouvert par une couche de 98 nm d'oxyde anodique. Avant émission (a), la particule se charge sous l'effet du faisceau électronique du microscope. Après émission (b), la particule ne se charge plus sous le faisceau.
- III.31. Diagramme de Fowler-Nordheim représentant l'émission d'une particule de fer sur un échantillon en niobium ($\beta = 170$, $S = 5.10^{-15} \text{ m}^2$).
- III.32. Micrographies montrant un exemple de particule soudée à la surface après qu'elle ait émis un courant de plusieurs microampères (a) et la même région sans la particule (b).
- III.33. Micrographie d'une des pointes en diamant utilisée pour la fabrication des défauts géométriques.
- III.34. Micrographie d'un contact ponctuel (a) et d'une rayure (b) obtenus à partir d'une pointe diamant.
- III.35. Micrographies de deux défauts ponctuels réalisés sur un échantillon de niobium à l'aide d'une pointe en tungstène.
- III.36. Micrographies de deux défauts ponctuels réalisés sur un échantillon d'or à l'aide d'une pointe en tungstène.

- III.37. Champs seuils d'émission des contacts ponctuels obtenus à l'aide d'une pointe en tungstène sur des échantillons en niobium (a) et en or (b). Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.
- III.38. Champs seuils d'émission de contacts ponctuels obtenus à l'aide d'une pointe en niobium sur des échantillons en niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.
- III.39. Contacts ponctuels réalisés à l'aide d'une pointe en diamant sur des échantillons en niobium.
- III.40. Contacts ponctuels réalisés à l'aide d'une pointe en diamant sur des échantillons en or.
- III.41. Champs seuils d'émission des contacts ponctuels obtenus à l'aide d'une pointe en diamant sur des échantillons en niobium (a) et en or (b). Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.
- III.42. Rayure réalisée à l'aide d'une pointe en diamant sur un échantillon en niobium, vue de dessus et vue de profil.
- III.43. Effet de la contamination de pompage sur les champs seuils d'émission des défauts géométriques réalisés sur un échantillon de niobium.
- III.44. Effet d'une mise à l'air ambiant sur les champs seuils d'émission des défauts géométriques sur des échantillons en niobium (a) et en or (b).
- III.45. Micrographies montrant deux sites émetteurs réalisés sur un échantillon de niobium avant (a) et après (b) anodisation de celui-ci.
- III.46. Graphique de Fowler-Nordheim montrant la reproductibilité des mesures de l'émission d'une rayure réalisée sur un échantillon de niobium.
- III.47. Evolution du courant d'émission d'une rayure réalisée sur un échantillon en niobium en fonction du champ appliqué. Les sauts visibles sur cette courbe correspondent aux "bouffées" de courant observées pendant les mesures.
- III.48. Micrographies montrant l'effet d'une attaque chimique préférentielle sur un échantillon de niobium à savoir l'aspect très saillant des joints de grains (a) et la hauteur de la "marche" (b) due à l'attaque chimique.

- III.49. Micrographie montrant des microstructures fondues dans un contact ponctuel après qu'il ait émis plusieurs micro-ampères.
- III.50. Micrographies montrant deux défauts avant (a) et après (b) la fusion de leurs extrémités.
- III.51. Micrographies montrant un contact ponctuel, vu de dessus (a) et vu de profil (b) avant émission, puis vu de dessus (c) après une émission intense.
- III.52. Micrographies de cratères autour et dans un défaut (a) ou alors localisés sur les joints de grains ou au milieu de ceux-ci (b).
- III.53. Micrographie montrant des cratères des tailles très variables.
- III.54. Micrographies montrant des cratères obtenus sur des échantillons de niobium recouverts d'une couche anodique d'oxyde : (a) 50 nm, (b) 280 nm
- III.55. Micrographies du même cratère en imagerie d'électrons secondaires (a) et en imagerie d'électrons retrodiffusés (b).
- III.56. Micrographie d'un cratère obtenu sur un échantillon de niobium. Nous attirons l'attention sur les formes très arrondies de ce cratère.
- III.57. Micrographies d'un cratère montrant des formes très arrondies.
- III.58. Micrographies de deux cratères montrant des géométries pouvant expliquer un renforcement local important du champ appliqué.
- III.59. Histogramme des champs seuils d'émission des cratères obtenus sur un échantillon de niobium. Les colonnes sombres montrent les champs seuils d'émission, les colonnes claires montrent les valeurs de champs maxima appliquées sans émission détectable.
- III.60. Micrographies de quatre cratères, deux sont des sites émetteurs (a) et deux n'émettent pas (b).
- III.61. Micrographie montrant une vue de profil d'un cratère ayant un champ seuil d'émission de 36 MV/m.
- III.62. Exemples de starbursts représentatifs des trois familles : étoiles (a), ellipses étoilées (b) et insectes (c) et (d). Ces micrographies sont obtenues en imagerie d'électrons secondaires.
- III.63. Micrographies obtenues au MEB du même starburst en imagerie d'électrons secondaires (a) et d'électrons retrodiffusés (b).
- III.64. Distribution des tailles des starbursts.

- III.65. Distances entre les starbursts et le centre du micro-claquage.
- III.66. Distribution de la taille des tentacules des starbursts.
- III.67. Mécanisme pouvant expliquer l'apparition d'un cratère lors d'un micro-claquage.
- III.68. Mécanisme pouvant expliquer la présence de starbursts sur une surface de niobium après un micro-claquage.

Chapitre IV

- IV.1. Schéma montrant les deux protubérances constituant le site émetteur.
- IV.2. Equipotentiellles obtenues sur un défaut constitué par deux protubérances superposées caractérisées par un rapport $h_i/r_i=8$ donc β est égal à 10.
- IV.3. Micrographies obtenues au MEB d'un site émetteur géométrique sur lequel on voit des géométries compatibles avec les ordres de grandeur proposés dans le modèle des protubérances superposées.

LISTE DES TABLEAUX

Chapitre I

- I.1. Tableau donnant les valeurs du rapport h/r , où h est la hauteur et r le rayon de courbure au sommet, pour quelques valeurs habituelles de β

Chapitre III

- III.1. Récapitulatif de la composition chimique élémentaire, de la taille, de la charge, du contact particule/surface et du champ seuil d'émission des 16 particules émettrices. La particule se charge (O), ne se charge pas (N) ou se charge un peu (m).
- III.2. Synthèse des études d'émission sur des particules de contamination sélective.
- III.3. Champs seuils minima d'émission observés pour des contacts ponctuels et des rayures réalisées sur des échantillons de niobium et d'or.
- III.4. Récapitulatif de tous les résultats obtenus sur l'émission des contacts ponctuels.
- III.5. Récapitulatif de l'effet d'une couche anodique d'oxyde de niobium ($e = 280$ nm) sur les champs seuils d'émission des défauts géométriques sur un échantillon en niobium.
- III.6. Tableau récapitulatif des valeurs du facteur de renforcement local du champ β et de la surface émissive S extraits des graphiques de Fowler-Nordheim. Chaque couple (β, S) représente un site émetteur différent des autres.

Chapitre IV

- IV.1. Facteur de renforcement du champ β calculé pour un ellipsoïde et pour deux ellipsoïdes superposées ayant un rapport h_1/h_2 et ayant chacun un facteur $\beta=10$.



ETUDE DE L'EMISSION ELECTRONIQUE PAR EFFET DE CHAMP EN COURANT CONTINU SUR DES ELECTRODES ETENDUES

Résumé

L'émission électronique par effet de champ en courant continu (DC) d'électrodes étendues a été mesurée dans un microscope électronique à balayage (MEB) modifié par introduction d'une pointe permettant des études localisées de l'émission électronique. Deux sortes de sites émetteurs ont été étudiés en détail : des particules, de nature et de formes contrôlées, déposées volontairement sur la cathode et des défauts géométriques obtenus par des contacts mécaniques sur la surface de la cathode. Nous avons montré que la taille des particules ne semble pas influencer les champs seuils d'émission alors que leurs formes ou leurs natures jouent un rôle déterminant vu que les particules isolantes ou de formes sphériques n'émettent pas même pour des champs appliqués de 120 MV/m. La méthode de fabrication des défauts géométriques et la similarité de leur émission sur des échantillons de niobium et d'or suggère que l'émission pourrait provenir de protubérances métalliques. Un modèle de protubérances superposées est proposé pour expliquer le renforcement local du champ sur ces deux sortes de sites émetteurs.

Abstract

The direct current (DC) electron field emission from large-area cathodes has been measured in a secondary electron microscope (SEM) modified by the addition of a scanning anode tip. Two special kinds of emitters have been studied in detail : intentionally introduced particles of controlled nature and geometry, and sites produced by intentional mechanical damage to the cathode surface. We found that the size of particles seems to play no role in their threshold field but their shapes and their nature are a determinant factor since spherical particles and insulating particles do not emit for fields up to 120 MV/m. The method of creation of damage sites, and the similarity of their emission on Nb and Au substrates suggest the possibility that emission comes from geometrical protrusions. A model of superposed geometrical protrusions is proposed to explain the enhanced field emission behaviour of this particular type of surface defects.

Mots-clés

Emission électronique de champ, Emission électronique, Effet de pointe, Décharges sous vide, Isolation sous vide, Niobium, Cavités accélératrices.