



HAL
open science

Faisceau d'ions focalisé à partir de source à structure coaxiale

Djouher Bedrane

► **To cite this version:**

Djouher Bedrane. Faisceau d'ions focalisé à partir de source à structure coaxiale. Physique [physics]. Aix Marseille Université, 2023. Français. NNT : 2023AIXMO331 . tel-04346345

HAL Id: tel-04346345

<https://amu.hal.science/tel-04346345>

Submitted on 15 Dec 2023

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Distributed under a Creative Commons Attribution - NonCommercial - NoDerivatives 4.0 International License

THÈSE DE DOCTORAT

Soutenue à Aix-Marseille Université
le 27 octobre 2023 par

Djouher Bedrane

Faisceau d'ions focalisés à partir de source à structure coaxiale

Discipline

Physique et sciences de la matière

Spécialité

Matière condensée et Nanosciences

École doctorale

ED352 Physique et sciences de la
matière

Laboratoire/Partenaires de recherche

Centre interdisciplinaire de
Nanosciences de Marseille CINaM-
CNRS-UMR7325
Orsay Physics
Région Sud Provence Alpes Côte D'azur

Composition du jury

- Anthony AYARI Rapporteur
- Directeur de recherche – CNRS (ILM, Lyon)
- Florent HOUELIER Rapporteur
- Ingénieur de recherche - CNRS (CEMES, Toulouse)
- Lorenzo RIGUTTI Examineur
- Maître de conférences – URN (GPM, Rouen)
- Irina MARTIN-GRAUR Présidente du jury
- Professeure d'université - AMU (IUSTI, Marseille)
- Stéphane VEESLER Directeur de thèse
- Directeur de recherche - CNRS (CINaM, Marseille)
- Evelyne SALANCON Codirectrice de thèse
- Maître de conférences - AMU (CINaM, Marseille)
- Arnaud HOUEL invité
- Docteur - Orsay Physics (Fuveau)

Affidavit

Je soussigné, Djouher Bedrane, déclare par la présente que le travail présenté dans ce manuscrit est mon propre travail, réalisé sous la direction scientifique de Stéphane Veesler et Evelyne Salançon, dans le respect des principes d'honnêteté, d'intégrité et de responsabilité inhérents à la mission de recherche. Les travaux de recherche et la rédaction de ce manuscrit ont été réalisés dans le respect à la fois de la charte nationale de déontologie des métiers de la recherche et de la charte d'Aix-Marseille Université relative à la lutte contre le plagiat.

Ce travail n'a pas été précédemment soumis en France ou à l'étranger dans une version identique ou similaire à un organisme examinateur.

Fait à Marseille, le 22 août 2023



Cette œuvre est mise à disposition selon les termes de la [Licence Creative Commons Attribution - Pas d'Utilisation Commerciale - Pas de Modification 4.0 International](https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/).

Liste de publications et/ou brevets et participation aux conférences

1) Liste des publications et/ou brevet¹ réalisées dans le cadre du projet de thèse :

1. D.Bedrane, A.Houël, A.Delobbe, M.Lagaize, Ph.Dumas, S.Veesler, and E.Salançon, "Coaxial Ion Source : pressure dependence of gaz flow and field ion emission", Journal of Vacuum Science & Technology B, publié¹.
2. L.Lapena, D.Bedrane, A.Degiovanni, and E.Salançon, "Bright sources under the projection microscope : using an insulating crystal on a conductor as electron source", The European Journal Applied Physics, publié².

2) Participation aux conférences² et écoles d'été au cours de la période de thèse :

1. Workshop Fit4nano, 2022, (Pologne), poster.
2. Workshop Fit4nano, 2023, (Portugal), présentation orale.
3. Congrès général de la SFP, 2023, Paris, poster.

¹ Cette liste comprend les articles publiés, les articles soumis à publication et les articles en préparation ainsi que les livres, chapitres de livre et/ou toutes formes de valorisation des résultats des travaux propres à la discipline du projet de thèse. La référence aux publications doit suivre les règles standards de bibliographie et doit être conforme à la charte des publications d'AMU.

² Le terme « conférence » est générique. Il désigne à la fois « conférence », « congrès », « workshop », « colloques », « rencontres nationales et/ou internationales » ... etc.

Indiquer si vous avez fait une présentation orale ou sous forme de poster.

Résumé

La source d'ions à structure coaxiale (CIS) est une source de type GFIS (Gas Field Ion Source) dont le principe physique repose sur l'ionisation de champ. Elle peut fonctionner à température ambiante. L'objectif de ma thèse est de la caractériser et l'optimiser pour pouvoir l'intégrer dans un faisceau d'ions focalisés.

Un flux de gaz est injecté à travers la structure coaxiale, pour être ionisé en bout de pointe. Durant ces trois années de thèse j'ai pu caractériser les régimes d'écoulements de la structure coaxiale, ainsi que l'intensité d'ionisation de la source dans toutes les gammes de pression et de tension souhaitées. Une couche de palladium a été déposée pour augmenter la durée de vie des pointes. Une estimation de la brillance a été effectuée. Les résultats sont si prometteurs pour une application FIB que la source sera bientôt évaluée dans ces conditions.

Au-delà des études effectuées sur l'efficacité d'ionisation induite par la géométrie de la structure coaxiale, une étude sur l'efficacité d'ionisation induite par la forme des pointes a été permise par des effets de corrosion du tungstène par l'eau sous champ électrique intense.

Ces résultats sont présentés à travers une structure de document comprenant une introduction au sujet portant sur l'histoire des sources à ionisation de champ, entre autres ; un chapitre « Matériel et méthodes », un chapitre « résultats expérimentaux et interprétations » suivi d'un chapitre « Introduction dans un FIB » pour finir sur une conclusion générale.

Mots clés : Ionisation de champ, source brillante, faisceaux d'ions focalisés, structure coaxiale.

Abstract

The coaxial ion source (CIS) is a GFIS (Gas Field Ion Source) whose physical principle is based on field ionisation. It can operate at room temperature. The aim of my thesis is to characterise and optimise it so that it can be integrated into a focused ion beam.

A flow of gas is injected through the coaxial ion source, to be ionised at the tip. During the three years of my thesis, I was able to characterise the flow regimes of the coaxial ion source, as well as the ionisation intensity of the source in all the desired pressure and voltage ranges. A layer of palladium was deposited to increase the lifetime of the tips. An estimate of the brightness was made. The results are so promising for a FIB application that the source will soon be evaluated under these conditions.

In addition to the studies carried out on the yield ionisation induced by the geometry of the coaxial structure, a study on the yield ionisation induced by the shape of the tips was made possible by the effects of water corrosion under an intense electric field.

These results are presented using a document structure that includes an introduction to the subject on the history of field ionisation sources, a chapter on "Materials and methods", a chapter on "Experimental results and interpretations" followed by a chapter on "Introduction to an FIB", and a general conclusion.

Keywords : field ionization, bright source, focused ion beam, coaxial source.

Table des matières

Affidavit	2
Liste de publications et/ou brevets et participation aux conférences.....	3
Résumé.....	4
Abstract	5
Table des matières	6
Sommaire des figures	9
Sommaire des tableaux.....	12
Rappel des acronymes :.....	13
Introduction.....	14
Chapitre 1 : Bibliographie.....	16
1. Caractéristiques d'une source.....	17
1.1. Brillance :.....	17
1.2. Taille de source :	18
1.3. Durée de vie et stabilité de la source :.....	19
1.4. Dispersion énergétique ΔE :.....	20
2. Différents types de sources d'ions.....	21
2.1. Les sources d'ions à métal liquide (LMIS) :	21
2.2. Gas field ion sources (GFIS):.....	22
2.2.1. Source Helium Ion Microscope (HIM):	22
2.2.2. Sources monoatomique :.....	23
2.2.3. Source d'ions à structure coaxiale (CIS) :.....	24
2.2.4. Les sources d'ions à plasma :.....	25
3. Émission de champ	27
3.1. Émission d'électrons :	27
3.2. Émission d'ions et Ionisation de champ :.....	29
4. Le microscope ionique à effet de champ (FIM : Field Ion Microscopy) :	31
4.1. Historique :.....	31
4.2. Principe de base :	31
5. Caractéristiques du courant en fonction de la tension et de la pression I (V, P) :.....	33
5.1. Caractéristiques du courant en fonction de la tension I(V) :.....	33
5.2. Caractéristiques du courant en fonction de la pression I (P) :.....	38
6. Ionisation de l'eau et corrosion du tungstène sous champ :	41
6.1. Ionisation de l'eau avec des pointes en tungstène :.....	41
6.2. Corrosion du tungstène :	42

6.3.	Influence de la corrosion sur le courant ionique :	43
7.	Conductances et régimes d'écoulements :	45
7.1.	Courbes en pression :	45
7.2.	Régimes d'écoulements :	47
7.2.1.	Régime moléculaire :	47
7.2.2.	Régime de transition :	48
7.2.3.	Régime visqueux ou laminaire :	48
7.2.4.	Régime exit-loss :	48
7.3.	Conductances :	48
Conclusion		52
Chapitre 2 : Matériel et méthodes		53
1.	Source d'ions à structure coaxiale :	54
1.1.	Préparation des pointes :	56
1.2.	Conditions de préparations :	57
1.3.	Recouvrement des pointes :	58
1.3.1	Dispositif expérimental :	60
1.3.2	Gainage des pointes :	61
1.3.3	Dépôt de palladium :	62
1.3.4	Chauffage des pointes après recouvrement.....	64
2.	Système de pompage et injection de gaz :	67
3.	Mesures électriques :	69
3.1.	Configuration initiale :	69
3.2.	Nouvelle configuration :	71
Conclusion :		73
Chapitre 3 : Résultats et discussions		74
1.	Régimes d'écoulement et conductances :	75
2.	Caractérisation du faisceau	85
2.1.	Courant ionique :	85
2.2.	Angle de cône :	88
3.	Courant en fonction de la tension et de la pression :	90
3.1.	Courant en fonction de la tension :	90
3.2.	Courant en fonction de la pression :	94
3.2.1.	Avantage de la structure coaxiale :	95
3.2.2.	Efficacité d'ionisation :	96
3.3.	Dépôt de palladium :	98
4.	Corrosion :	99
4.1.	Structure ₁ :	101
4.2.	Structure ₂ :	103
4.3.	Discussion :	105
5.	Durée de vie des structures :	108

Conclusion :	110
Chapitre 4 : Intégration de la source CIS dans le FIB.....	111
1. Modifications apportées :	112
2. Résultats expérimentaux :	115
2.1. Conductances :	115
2.2. Courant en fonction de la tension et de la pression :	117
2.2.1. Source CIS avec diaphragme :	117
2.2.2. Source CIS avec tube en quartz étiré :	117
3. Intégration de la source CIS dans le FIB :	121
Conclusion :	123
Conclusion générale et perspectives.....	124
Conclusion générale	125
Perspectives.....	127
Références bibliographiques :	128

Sommaire des figures

FIGURE 1 : FIGURE MONTRANT UNE POINTE EMETTRICE AVEC UNE SOURCE VIRTUELLE S_{SOURCE}	18
FIGURE 2 : LA TAILLE DE LA SOURCE D'IONS EST DETERMINEE EN MESURANT LE CONTRASTE AU BORD DE L'OMBRE D'UN OBJET. UN CHAMP MAGNETIQUE B EST UTILISE POUR SEPARER LES TROIS ESPECES. GRANDISSEMENT : $G = 180000$, POTENTIEL DE LA SOURCE D'IONS $V = 2KV$, DISTANCE SOURCE-ECRAN $D = 40CM$, DISTANCE SOURCE-OBJET. $D = 2,2\mu M$ (EXTRAIT DE LAPENA ET AL ²)...	19
FIGURE 3: SCHEMA EXPLICATIF DE LA FORMATION DU CONE DE TAYLOR (EXTRAIT PRESENTATION ARNAUD HOUËL).....	21
FIGURE 4: L'IMAGE MONTRE LE SCHEMA DES TROIS PREMIERES COUCHES DE LA POINTE(EXTRAIT DE FINK ET AL ¹⁴).....	23
FIGURE 5: SCHEMA D'UNE SOURCE DE TYPE SAT. LES MOLECULES DE GAZ ADSORBEES EN JAUNE SUR LA TIGE DE LA POINTE SONT ATTIREES VERS LE SOMMET DES FLECHES BLEUES PAR LE CHAMP ELECTRIQUE ET SONT IONISEES AU SOMMET DE LA POINTE (FLECHES ROUGES)(EXTRAIT DE LAI ET AL ¹⁸).	24
FIGURE 6: SCHEMA REPRESENTANT LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL DE LA CIS (EXTRAIT DE HAMMADI ET AL ²⁰).	25
FIGURE 7 : PROCEDE D'EXTRACTION D'IONS PAR PLASMA (EXTRAIT DE BAUTSCH ET AL ²¹).	26
FIGURE 8: SCHEMA REPRESENTANT LES ETATS D'ENERGIE OCCUPES DANS LE METAL, A PROXIMITE DE LA SURFACE METALLIQUE. EN L'ABSENCE DE CHAMP, LA BARRIERE QUE DOIVENT FRANCHIR LES ELECTRONS EST DE LARGEUR INFINIE.	27
FIGURE 9: SCHEMA REPRESENTANT LES NIVEAUX D'ENERGIE DU METAL SOUS EFFET DE CHAMP, LA BARRIERE DE POTENTIEL EST ABAISSEE, L'ELECTRON PEUT FRANCHIR LA BARRIERE DE POTENTIEL PAR EFFET TUNNEL.....	28
FIGURE 10 : COURBE FOWLER-NORDHEIM.	29
FIGURE 11: DIAGRAMME DES ENERGIES DANS LE CAS DE L'IONISATION DE CHAMP. (A) DIAGRAMME D'ENERGIE D'UN ATOME NEUTRE AVEC I_1 LE POTENTIEL D'IONISATION. (B) APRES APPLICATION D'UNE DIFFERENCE DE POTENTIEL PROCHE DU METAL POLARISE, $x_c \approx 0.5 nm$	30
FIGURE 12: IMAGE DES POSITIONS ATOMIQUES D'UNE POINTE D'IRIDIUM VUE PAR FIM, A 10^{-3} TORR DE PRESSION D'HELIUM (EXTRAIT DE MÜLLER ²³).	31
FIGURE 13: MICROSCOPE IONIQUE A EFFET DE CHAMP, $P = 10 - 3Torr$ (EXTRAIT DE MÜLLER ²³).	32
FIGURE 14: SCHEMA MONTRANT LA FORMATION DE L'IMAGE SUR L'ECRAN DANS UN FIM.....	32
FIGURE 15: COURBE D'UNE CARACTERISTIQUE COURANT-TENSION D'UNE SOURCE DE TYPE GFIS. U_c : TENSION DE COUPURE, U_{TH} : TENSION DE SEUIL. ON PEUT DISTINGUER DEUX REGIMES (I ET II) AVEC DES PENTES M TRES DIFFERENTES (EXTRAIT DE JOUSTEN ET AL ³⁰).	36
FIGURE 16: CARACTERISTIQUES COURANT-TENSION AVEC DE L'ARGON, A DES TEMPERATURES DE POINTE DIFFERENTES(EXTRAIT DE JOUSTEN ET AL ³⁰).	36
FIGURE 17: COURANT DU FAISCEAU D'IONS XE^+ EN FONCTION DE LA TENSION D'EXTRACTION SUR L'ECHELLE LOGARITHMIQUE. L'ENCART MONTRE L'IMAGE FIM DE L'EMETTEUR (EN UTILISANT LE XE COMME GAZ IMAGE) ACQUISE APRES LA MESURE, INDIQUANT QUE LE MOTIF D'EMISSION N'A PAS CHANGE PENDANT LA MESURE (EXTRAIT DE LAI ET AL ³¹).	38
FIGURE 18: COURANT IONIQUE EN FONCTION DE LA PRESSION DE H_2 (EXTRAIT DE JOUSTEN ET AL ³⁰).	39
FIGURE 19: (A) INTENSITE VS. PRESSION HELIUM A PRESSION STATIQUE. (B) INTENSITE VS. PRESSION HELIUM A PRESSION DYNAMIQUE(EXTRAIT DE KONISHI ET AL ⁴).	40
FIGURE 20: ETAT DE SURFACE DE LA POINTE APRES EMISSION (ARCHIVES SSP CINAM ⁶).....	42
FIGURE 21: L'INTENSITE EN FONCTION DE LA TENSION TOTALE APPLIQUEE A LA POINTE. FIXED PEAK : ZONE D'IONISATION PRES DE LA POINTE, MOVABLE PEAK : ZONE D'IONISATION LOIN DE LA POINTE (ANWAY ET AL ³⁴).	43

FIGURE 22: COURBES REPRESENTANT LA PRESSION BASSE PRESSION (P_{BP}), EN FONCTION DE LA PRESSION HAUTE PRESSION (P_{HP}) POUR DIFFERENTS GAZ (EXTRAIT DE LA THESE DE DESCOINS ⁶).	45
FIGURE 23: SCHEMA REPRESENTANT LA GEOMETRIE RECTANGULAIRE DE LA CIS.	46
FIGURE 24: SCHEMA POUR LES DIFFERENTS REGIMES D'ECOULEMENT.	47
FIGURE 25: CONDUCTANCE EN FONCTION DE LA PRESSION HAUTE PRESSION POUR DIFFERENTS GAZ A TEMPERATURE AMBIANTE ²⁴ . $SH_2 = 200 \text{ l/s}$; $S_{He} = 220 \text{ l/s}$; $SN_2 = 280 \text{ l/s}$.	49
FIGURE 26: LA CONDUCTANCE EN FONCTION DE L'INVERSE DU LIBRE PARCOURS MOYEN AVEC UN TUBE SERTI ⁴² .	50
FIGURE 27: (Q/D) VS. (P/D) POUR DIFFERENTES GEOMETRIES DU CAPILLAIRE (EXTRAIT DE HANLON ⁴³).	51
FIGURE 28: SCHEMA DE LA STRUCTURE COAXIALE : -A- VUE GLOBALE DE LA STRUCTURE CIS ; -B- VUE EN COUPE DU MANCHON EN CUIVRE RELIANT LE TUBE EN CERAMIQUE (A GAUCHE) ET LE CAPILLAIRE EN INOX (A DROITE) DANS LEQUEL EST INSERE LE FIL DE TUNGSTENE ; -C- IMAGE AU MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE DE LA SORTIE BASSE PRESSION DE LA CIS.	54
FIGURE 29: PHOTO DU MONTAGE DE LA STRUCTURE COAXIALE.	55
FIGURE 30: SCHEMA EXPLICATIF DE LA PREPARATION DES POINTES EN TUNGSTENE.	56
FIGURE 31: IMAGE SOUS TEM D'UNE POINTE EN TUNGSTENE DE DIAMETRE : $50\mu\text{M}$ FIGURE 32: (A) IMAGE SOUS TEM D'UNE POINTE EN TUNGSTENE DE DIAMETRE : $125\mu\text{M}$. (B) IMAGE SOUS TEM D'UNE POINTE EN TUNGSTENE DE DIAMETRE : $150\mu\text{M}$.	58
FIGURE 33 : SCHEMA DU MONTAGE EXPERIMENTAL.	60
FIGURE 34 : -A-SCHEMA MONTRANT LE GAINAGE DE LA POINTE, -B- IMAGE SOUS MICROSCOPE OPTIQUE DE LA POINTE GAINEE.	61
FIGURE 35 : -A- POINTE AVANT DEPOT, -B- POINTE APRES DEPOT.	63
FIGURE 36 : ANALYSE CHIMIQUE DE LA POINTE PAR EDX.	63
FIGURE 37: IMAGE MEB D'UNE POINTE RECOUVERTE DE PALLADIUM.	64
FIGURE 38: DISPOSITIF EXPERIMENTAL QUI PERMET DE CHAUFFER LA POINTE.	65
FIGURE 39: PHOTO DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL.	65
FIGURE 40: PHOTO DU FILAMENT A SON MAXIMUM DE CHAUFFAGE.	66
FIGURE 41: SCHEMA DE L'ENSEMBLE DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL.	68
FIGURE 42 : SCHEMA DE LA CONFIGURATION DE BASE.	69
FIGURE 43: PHOTO DU MONTAGE EXPERIMENTAL.	70
FIGURE 44: PHOTOS DU NOUVEAU MONTAGE EXPERIMENTAL.	71
FIGURE 45: INTENSITE EN FONCTION DE LA TENSION. $F = 100 \text{ HZ}$, $\Delta V = 1 \text{ KV}$, $T/\text{PALIER} = 5 \text{ S}$, EXCEPTE LE DERNIER A 16 KV QUI EST LE PLUS LONG.	72
FIGURE 46 : LA PRESSION DANS LA CHAMBRE BASSE PRESSION P_{bP} VS. LA PRESSION DANS LA CHAMBRE HAUTE PRESSION P_{hP} POUR 5 GAZ DIFFERENTS. -A- POUR LA STRUCTURE NOMMEE S_7 , -B- POUR LA STRUCTURE NOMMEE S_8 .	76
FIGURE 47: MESURE DE LA VITESSE DE POMPAGE EFFECTIVE. LA DIMINUTION (EXPONENTIELLE) DE LA PRESSION P_{IP} DANS LA CHAMBRE BASSE PRESSION EST ENREGISTREE AU COURS DU TEMPS T A L'AIDE DU SPECTROMETRE DE MASSE.	77
FIGURE 48: CONDUCTANCE VS. PRESSION HAUTE PRESSION POUR DEUX STRUCTURES. -A- STRUCTURE S_7 , -B- STRUCTURE S_8 .	79
FIGURE 49: CONDUCTANCE REDUITE VS. L'INVERSE DU LIBRE PARCOURS MOYEN POUR LES DEUX STRUCTURES. -A- STRUCTURE S_7 , -B- STRUCTURE S_8 .	83
FIGURE 50: INTENSITE A DIFFERENTS ENDROITS DE MESURE VS. TENSION APPLIQUEE SUR LA POINTE.	85
FIGURE 51: ANGLE DE CONE DU FAISCEAU. L'INTENSITE LUMINEUSE MOYENNE EST ENREGISTREE SUR L'ECRAN DE 4 CM TANDIS QUE LA STRUCTURE EST TOURNEE D'UN ANGLE θ .	88
FIGURE 52: COURANT EN FONCTION DE LA TENSION AVEC DE L'ARGON A DEUX PRESSIONS DIFFERENTES.	90
FIGURE 53: IMAGES SOUS MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE DE LA POINTE. (A) POINTE AVANT EMISSION, (B) POINTE APRES EMISSION.	92

FIGURE 54: COURANT EN FONCTION DE LA TENSION A DEUX PRESSIONS DIFFERENTES, POUR TROIS STRUCTURES COAXIALES.	93
FIGURE 55: COURANT EN FONCTION DE LA PRESSION BASSE PRESSION POUR DIFFERENTES STRUCTURES. S1, S2, S3 A PRESSION LOCALE, ET S4 A PRESSION PARTIELLE.	95
FIGURE 56: EFFICACITE D'IONISATION POUR TROIS STRUCTURES EN FONCTION DE LA PRESSION BASSE PRESSION.	96
FIGURE 57: STRUCTURE S3 OBSERVE SOUS MEB AVANT ET APRES EMISSION.....	98
FIGURE 58: SCHEMA MONTRANT LES ETAPES A SUIVRE POUR LES EXPERIENCES.....	100
FIGURE 59: SPECTROMETRE DE MASSE POUR TROIS PRESSIONS D'ARGON DIFFERENTES.....	100
FIGURE 60: IMAGE SOUS MICROSCOPE OPTIQUE DE LA STRUCTURE ₁ ET LA STRUCTURE ₂	101
FIGURE 61: COURANT EN FONCTION DE LA TENSION A PhP = 30 mbar , AVEC DE L'ARGON POUR LA STRUCTURE ₁ APRES 5 JOURS DE MANIP.....	102
FIGURE 62: SCHEMA MONTRANT LA RECONSTRUCTION DES POINTES.	102
FIGURE 63: IMAGES MEB MONTRANT L'EVOLUTION DU RAYON DE COURBURE DE LA POINTE APRES CHAQUE JOUR DE MANIP.....	103
FIGURE 64: COURANT EN FONCTION DE LA TENSION A PhP = 30 mbar , AVEC DE L'ARGON POUR LA STRUCTURE ₂ APRES 7 JOURS DE MANIP.....	104
FIGURE 65: IMAGES MEB MONTRANT L'EVOLUTION DU RAYON DE COURBURE DE LA POINTE APRES CHAQUE JOUR DE MANIP.....	104
FIGURE 66: ÉVOLUTION DE LA TENSION EN FONCTION DU RAYON POUR LA STRUCTURE ₁ , ET LA STRUCTURE ₂	105
FIGURE 67: NOMBRE DE CHARGES D'ARGON EMISES, ET D'ATOMES DE W CORRODES EN FONCTION DU RAYON DE LA POINTE POUR LES 2 STRUCTURES	106
FIGURE 68: NOMBRE DE CHARGES EMISES EN FONCTION DU TEMPS, -A- POINTE EN TUNGSTENE SEUL, - B- POINTE EN TUNGSTENE RECOUVERTE DE PALLADIUM.....	108
FIGURE 69: COURBES DE PASCHEN POUR DIFFERENTS GAZ (EXTRAIT DE WIKIPEDIA).	112
FIGURE 70: IMAGE SOUS MICROSCOPE OPTIQUE DU DIAPHRAGME ET DU PORTE MANCHON	113
FIGURE 71: PHOTO DU NOUVEAU MONTAGE DE LA STRUCTURE COAXIALE.	114
FIGURE 72: (A) VU DE LA PARTIE ETIREE DU TUBE EN QUARTZ. (B) VU DU DESSUS DU DIAMETRE DU TUBE EN QUARTZ.	114
FIGURE 73: PRESSION BASSE PRESSION PbP EN FONCTION DE LA PRESSION HAUTE PRESSION PhP , AVEC DE L'AZOTE, ET AVEC QUATRE SOURCES CIS DE GEOMETRIE DIFFERENTE.	115
FIGURE 74: CONDUCTANCE EN FONCTION DE L'INVERSE DU LIBRE PARCOURS MOYEN AVEC DE L'AZOTE, POUR QUATRE STRUCTURES DIFFERENTES.	116
FIGURE 75: COURANT EN FONCTION DE LA TENSION POUR DIFFERENTES PRESSIONS DE GAZ.	118
FIGURE 76: COURANT EN FONCTION DE LA TENSION A DEUX ENDROITS DIFFERENTS, A PhP = 386 mbar	119
FIGURE 77: COURANT EN FONCTION DE LA PRESSION BASSE PRESSION, A GAUCHE : MESURE SUR LE DIAPHRAGME, A DROITE ESTIME SUR LA POINTE.....	119
FIGURE 78: EFFICACITE D'IONISATION EN FONCTION DE LA PRESSION BASSE PRESSION ESTIMEE A V =11KV.	120
FIGURE 79: MONTAGE VITON DE LA SOURCE CIS.	121

Sommaire des tableaux

TABLEAU 1 : CARACTERISTIQUES DE DIFFERENTES SOURCES D'IONS.....	26
TABLEAU 2 : VITESSE DE POMPAGE EFFECTIVE ET FACTEUR DE JAUGE POUR TOUS LES GAZ SAUF POUR LE XENON POUR LEQUEL LA VITESSE DE POMPAGE A ETE DEDUITE.	78
TABLEAU 3 : L'INVERSE DU LIBRE PARCOURS MOYEN A LA TRANSITION ENTRE LE REGIME VISQUEUX ET L'EXIT-LOSS ($1/\lambda_{tr}$) POUR LES STRUCTURES S7 ET S8 ; LA LARGEUR B DE LA STRUCTURE ; ($b2/\lambda_{tr}$) ; ET LA LONGUEUR CARACTERISTIQUE EFFECTIVE (b_{eff}) CALCULEE A L'AIDE DE L'EQUATION 7.....	84
TABLEAU 4 : DIFFERENTES IMAGES POUR DIFFERENTES CONDITIONS EN IONISATION D'ARGON.....	87
TABLEAU 5: NOMBRE DE CHARGES EMISES EN FONCTION DU TEMPS POUR DIFFERENTES STRUCTURES. S_W (STRUCTURE AVEC DES POINTES EN TUNGSTENE SEUL). S_W/PD (STRUCTURE AVEC DES POINTES EN TUNGSTENE RECOUVERTE DE PALLADIUM).....	109
TABLEAU 6: TABLEAU RESUMANT LES RESULTATS OBTENUS AVEC LA STRUCTURE S2.....	117

Rappel des acronymes :

Acronymes	Significations
CIS	Coaxial Ion Source
GFIS	Gas Field Ion Source
FIB	Faisceau d'Ions Focalisé
LMIS	Sources d'Ions à Métaux Liquides
HIM	Sources à Hélium
FIM	Field Ion Microscopy
SAT	Single Atom Tip
SSP	Sources et Sondes Ponctuelles
TEM	Microscope Electronique à Transmission
MEB	Microscope Electronique à Balayage
ALD	Atomique Layer Deposition
EDX	L'analyse chimique en spectroscopie à dispersion d'énergie de rayon X
MCP	Microchannel Plate

Introduction

Ce manuscrit présente le travail effectué pendant ma thèse intitulée « *Faisceau d'ions focalisé à partir de sources à structure coaxiale* ». Cette thèse est effectuée en collaboration entre le Centre Interdisciplinaire de Nanosciences de Marseille (CINaM) et Orsay Physics entreprise de haute technologie, située à Fuveau. Elle est cofinancée par la région Sud et Orsay Physics. L'objectif de la thèse est de caractériser et d'optimiser la source d'ions à structure coaxiale pour pouvoir l'intégrer dans un faisceau d'ions focalisé (FIB). Le but est de travailler à température ambiante, avec différents gaz nobles, et avoir une source ponctuelle qui ne pollue pas l'échantillon, qui permet d'atteindre une meilleure résolution que les sources actuelles, et stable dans le temps.

Un faisceau d'ions focalisé est un outil essentiel dans de nombreuses applications scientifiques et technologiques, notamment en microscopie et en micro-fabrication. Aujourd'hui le principe de l'évaporation de champ est souvent utilisé dans les faisceaux d'ions focalisés (FIB) avec des sources à métaux liquides (LMIS)³, le plus souvent du Gallium. Ces sources sont connues avec leurs caractéristiques, notamment une brillance de $\sim 10^6 A \cdot cm^{-2} \cdot sr^{-1}$, une durée de vie de plusieurs centaines d'heures, une dispersion énergétique de $\Delta E \sim 5 - 10$ eV et une limite de résolution atteinte ≥ 4 nm. Au-delà de ces caractéristiques, les LMIS ont des inconvénients. Avec les LMIS, l'application est limitée à l'utilisation du Gallium dans la majorité des cas, et le Gallium est un matériau qui peut polluer l'échantillon.

L'utilisation de sources fonctionnant avec des gaz nobles, et une limite de résolution < 4 nm pourrait avoir un impact important pour l'application FIB : notamment en ce qui concerne l'analyse de défaillance de circuits-micro-électroniques. Au cours des dernières décennies, les chercheurs ont développé plusieurs sources de type GFIS (Gaz field ion sources), qui sont basées sur le processus d'ionisation de champ. Les GFIS fonctionnent à très basse température, elles ont une brillance de $\sim 10^9 A \cdot cm^{-2} \cdot sr^{-1}$, et une dispersion énergétique $\Delta E \sim 1$ eV. En 1988 Konishi⁴ a développé une source où le gaz est amené directement en bout de pointe. C'est un montage proche de la source d'ions à structure coaxiale sur laquelle Evelyne Salançon a effectué sa thèse en 2002⁵. Des résultats prometteurs ont été obtenus, alors le travail a été poursuivi avec la thèse de Marion Descoins en 2007⁶ et la mienne aujourd'hui.

Les sources utilisées pour générer les faisceaux d'ions varient en fonction de leurs propriétés et de leurs avantages spécifiques. Les sources à hélium (HIM)⁷, par exemple, peuvent être utilisées pour faire de l'imagerie à haute résolution, mais elles nécessitent des techniques de mise en froid, notamment, très contraignantes et pour l'abrasion, l'intensité est limitée ; elles ne permettent pas l'abrasion rapide. Les sources à métaux liquides (LMIS) produisent des faisceaux stables avec des courants élevés, adaptés à la nano-fabrication, mais elles sont limitées en termes de types d'ions et de résolution. Ainsi, le choix de la source d'ions dépend des besoins spécifiques de l'application, équilibrant

les avantages et les inconvénients pour obtenir les meilleures performances dans un contexte donné.

La source d'ions à structure coaxiale (CIS pour Coaxial Ion Source), que j'ai étudié pendant cette thèse, est une source de type GFIS qui fonctionne à température ambiante, son principe physique repose sur l'ionisation de champ. Un flux de gaz est injecté à travers la structure coaxiale pour être ionisé en bout de pointe. Il s'agit donc d'ionisation de champ en flux moléculaire plutôt qu'en pression partielle. La structure coaxiale permet une augmentation significative de la pression locale, en bout de pointe, tout en garantissant la libre propagation des ions dans l'enceinte. La source CIS présente un intérêt significatif dans le domaine des faisceaux d'ions focalisés et de leurs multiples applications. Cette approche pourrait permettre l'accès à des domaines tels que l'imagerie par des gaz légers comme l'He ou l'H₂, tout en garantissant la possibilité d'abrasion en utilisant des gaz lourds comme le Xe et l'Ar. Ainsi, cette thèse ouvre la voie à d'importants progrès dans plusieurs domaines, grâce à l'intégration de la source CIS dans une colonne à faisceaux d'ions focalisés.

Le travail que je vais présenter dans cette thèse est la suite de la caractérisation et de l'optimisation de cette source d'ions à structure coaxiale pour pouvoir l'intégrer dans une colonne FIB.

Le premier chapitre est un état de l'art présentant le principe fondamental de la physique en émission de champ, les caractéristiques souhaitées d'une source pour un bon fonctionnement dans un FIB, ainsi que le travail effectué jusqu'à aujourd'hui sur différentes sources dont la structure coaxiale, les avantages et les inconvénients de ces sources.

Le deuxième chapitre présente le dispositif expérimental, ainsi que les différentes expériences que j'ai effectuées pour la caractérisation de la source CIS, les problèmes rencontrés durant ces expériences, et les solutions apportées.

Le troisième chapitre détaille les résultats obtenus avec la source CIS et leurs interprétations. La caractérisation complète de la source y est présentée avec notamment l'efficacité d'ionisation de la CIS qui est désormais connue et mesurable.

Enfin, le dernier chapitre explique les modifications apportées au montage de la source CIS pour son intégration dans un faisceau d'ions focalisé, ainsi que les résultats obtenus avec ce nouveau montage dans le microscope à projection.

Je conclurai ce manuscrit en fournissant une synthèse complète de mon travail, accompagnée de perspectives pour des recherches futures.

Chapitre 1 : Bibliographie

Ce chapitre se décompose en sept parties : La première partie porte sur les caractéristiques d'une source. Les caractéristiques d'une source, et les méthodes utilisées pour leurs mesures sont expliquées. La seconde partie décrit les différentes sources utilisées (ou qui pourraient l'être) dans un faisceau d'ion focalisé (FIB), et leurs caractéristiques. La troisième partie traite du processus physique d'émission d'électrons et d'ions par effet de champ. La quatrième partie est un historique du microscope ionique à effet de champ et de ses applications. La cinquième partie résume les travaux qui ont été faits à partir des années 50 pour caractériser le courant ionique en fonction de la tension et de la pression. La sixième partie explique l'effet de l'eau sur le tungstène en présence d'un champ électrique. Enfin la dernière partie porte sur l'explication des régimes d'écoulements dans différent types de capillaires, en particulier dans la structure coaxiale.

1. Caractéristiques d'une source

En physique une source est un émetteur de rayonnement. Le rayonnement est un transfert d'énergie sous forme d'ondes ou de faisceaux de particules. Il existe différentes sources. Chaque source émet des particules avec un processus qui lui est propre.

Dans cette partie on va parler des sources d'ions. Les caractéristiques typiques d'une source d'ions sont les suivantes : La brillance dont la taille de la source virtuelle, la durée de vie et la stabilité, et la dispersion énergétique. Ces notions primordiales à la compréhension du manuscrit sont définies ci-après.

1.1. Brillance :

On peut définir la brillance B d'une source par le rapport du courant émis par la source sur le produit de la surface de la source par l'angle solide, elle est exprimée par la relation suivante :

$$B = \frac{I}{S_{source}\Omega} \quad (1)$$

I/Ω est l'intensité angulaire. Dans une colonne ionique elle est mesurée sur l'échantillon à une tension donnée. La mesure est faite avec une cavité de faraday qui permet de collecter les électrons (ou les ions) dans un angle solide déterminé par la dimension du diaphragme d'entrée. On peut aussi mesurer l'intensité totale émise par la source en faisant la mesure sur la pointe directement. Dans ce cas-là il est nécessaire de mesurer l'angle solide total d'émission.

Ω est l'angle solide calculé comme suit :

$$\Omega = 2\pi(1 - \cos\theta) \quad (2)$$

Avec θ le demi-angle d'ouverture du faisceau émis dont on verra la méthode de mesure dans le prochain chapitre dans un microscope à projection.

S_{source} est la surface de la source « virtuelle » elle est calculée comme suit :

$$S_{source} = \pi * s_{source}^2 \quad (3)$$

Avec s_{source} la taille latérale de la source virtuelle en m. La méthode de mesure est décrite juste après.

Si une source est ponctuelle, elle est brillante ; le contraire n'est pas nécessairement vrai. Dans un système à projection (sans lentilles) la brillance est une grandeur conservative tout au long du faisceau de particules, d'où son importance. Le fait d'avoir un faible

courant ne veut pas dire que la source n'est pas brillante si sa taille virtuelle est petite. Par exemple les sources à métaux liquides (LMIS) ont une brillance de $\sim 10^6 A.cm^{-2}.sr^{-1}$ pour un courant de $2 \mu A$, elles sont meilleures en termes de résolution que les sources plasma qui ont une brillance de $\sim 3 \times 10^4 A.cm^{-2}.sr^{-1}$ pour un courant ionique de l'ordre d'une dizaine de mA⁸.

Pour les LMIS (sources d'ions à métal liquide) la brillance est exprimée par $B_r = B/V$, qui est une brillance réduite, comme le courant est proportionnel à la tension, exprimer la brillance réduite peut être intéressant car cela permet d'intégrer les aberrations de la colonne. Dans notre cas la dépendance du courant par rapport à la tension est étudiée (le courant n'est pas proportionnel à la tension), mais pas la dépendance de la brillance par rapport à la tension. Pour cela, il faudrait connaître la taille de source virtuelle dans toutes les conditions de tension. Ces expériences ont été effectuées dans une condition de champ bien précise, celle que nous utiliserons pour calculer la brillance. Pour faciliter la comparaison avec les autres sources, on préservera la définition originale de la brillance, (eq.1).

1.2. Taille de source :

La taille de source virtuelle définit sa taille de sonde c'est-à-dire la résolution du microscope. Pour avoir une source brillante il faut que la taille virtuelle de la source soit la plus petite possible au regard de la longueur d'onde. Si on prend une pointe métallique comme source émissive, la convergence du faisceau (ions ou électrons) donne la taille de la source virtuelle, comme on le voit sur la figure 1. Sur cette figure, seules les lignes de champ extrêmes sont représentées (en vert) elles sont toujours perpendiculaires aux équipotentielles, les faisceaux d'ions sont représentés en traits noirs. Le champ électrique est fort en bout de pointe, et plus faible vers l'extracteur (écran sur la figure 1), les électrons acquièrent leurs vitesses rapidement en fonction de la décroissance du champ donné par $1/x^2$, l'émission se fait là où le champ électrique est le plus fort cette zone d'émission est schématisée en rouge sur la figure 1.

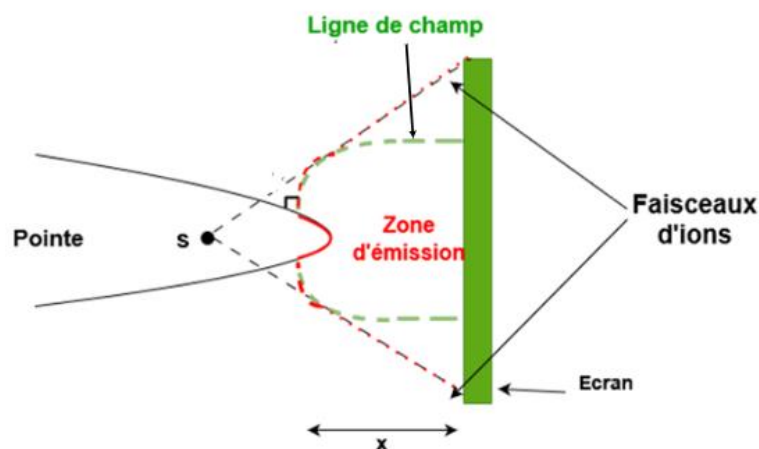


Figure 1 : figure montrant une pointe émettrice avec une source virtuelle s_{source} .

Dans notre cas la taille de la source virtuelle est dérivée d'une image de microscope à projection, la procédure a été décrite dans Lapena et al². L'image d'une grille est projetée sur l'écran fluorescent (voir la figure 2). Si la source est étendue, l'ombre du bord d'un objet apparaît floue. À partir de la largeur de la pénombre, connaissant le grandissement $G = \frac{D}{d}$ du microscope à projection, une limite supérieure à la taille de source virtuelle peut être obtenue. Dans le cas de la source d'ions à structure coaxiale, une taille de source de 2nm a été mesurée pour une pression basse pression d'hydrogène de 10^{-5} mbar, et une tension appliquée de 2 kV, pour une distance source extracteur de 2 μm , le courant total pour ces conditions est de 10 nA.

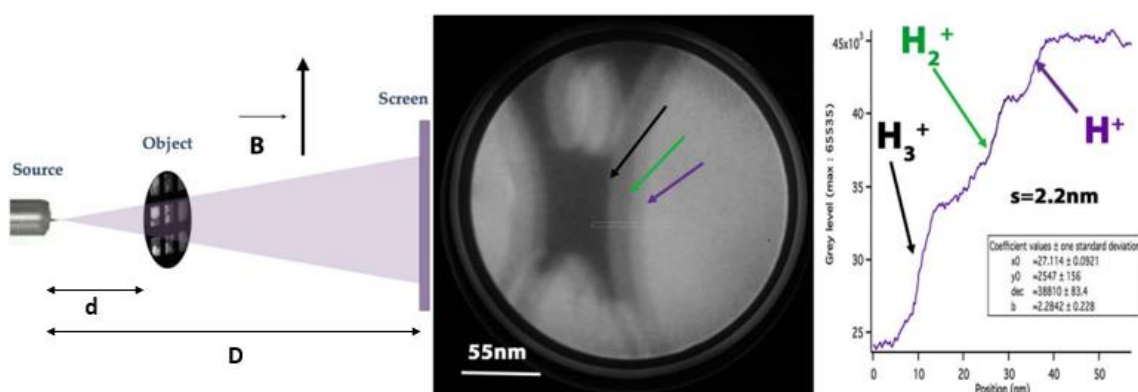


Figure 2 : La taille de la source d'ions est déterminée en mesurant le contraste au bord de l'ombre d'un objet. Un champ magnétique \vec{B} est utilisé pour séparer les trois espèces. Grandissement : $G = 180000$, potentiel de la source d'ions $V = 2\text{kV}$, distance source-écran $D = 40\text{cm}$, distance source-objet. $d = 2,2\mu\text{m}$ (extrait de Lapena et al²).

Dans une colonne ionique la taille de source n'est pas mesurée de la même façon que dans un microscope à projection. Dans une colonne la largeur du faisceau gaussien est mesuré, et défini comme la largeur à mi- hauteur de la gaussienne. Ce diamètre donne la taille de la source virtuelle.

1.3. Durée de vie et stabilité de la source :

La mise en place et l'alignement d'une source dans une colonne prend beaucoup de temps. C'est pour cela que la durée de vie d'une source est très importante pour son utilisation pratique. Pour une source d'ions, sa durée de vie est définie comme étant son

temps de fonctionnement, c'est-à-dire le temps de conservation de l'intensité au cours du temps. En se mettant à un courant donné, on peut enregistrer le temps de fonctionnement de la source. Dans le cas de sources fonctionnant avec des régimes d'intensités variées, cette durée de vie peut être exprimée en termes de nombre de charges émises en fonction du temps.

En pratique, une source d'ions doit aussi être la plus stable possible pour son utilisation dans une colonne. La stabilité correspond à la variation de l'intensité (ΔI) au cours du temps. Pour caractériser une source et le mécanisme d'émission, la stabilité est indiquée comme $\frac{\Delta I}{I} = 0.1\%$ à une fréquence de quelques Hz, par exemple. Cette dernière valeur correspond à la stabilité classique d'un processus d'émission de champ. Si une source n'est pas stable dans le temps, la fréquence et l'amplitude du bruit devront être prises en compte pour acquérir l'information souhaitée. Bien entendu, l'acquisition est simplifiée quand la stabilité de la source est élevée avec, par exemple, $\frac{\Delta I}{I} < 10\%$ sur plusieurs heures et $\frac{\Delta I}{I} < 1\%$ durant l'acquisition d'une image (quelques minutes).

1.4. Dispersion énergétique ΔE :

La dispersion de l'énergie pour un faisceau d'ions est importante car une distribution étroite favorise un fonctionnement optimal de l'optique ionique. Dans une colonne, la dérivée par rapport à l'énergie du courant enregistré permet d'obtenir la distribution de l'énergie donc le ΔE . Pour les sources à métal liquide⁹, elle est de 5 à 40 eV ; et pour les sources d'ions gazeux, elle est de 1eV.

La dispersion énergétique initiale est appelée dispersion intrinsèque, c'est l'écart de l'énergie du faisceau d'ions lié à la température de la surface d'émission des particules chargées. Dans la littérature, deux types de dispersion énergétique sont expliqués pour les sources à ionisation de champ^{9,10}. La première est "dominée par les collisions" et dite "non laminaire", et la seconde, "sans collision", est dite "laminaire". Dans le premier type, la quantité de mouvement est transférée d'une particule à une autre par des collisions qui se produisent généralement à des pressions $> 10^{-4}$ mbar. Ce type de mécanisme conduit à des écarts d'énergie importants, donc à une moins bonne résolution. Le second type a été développée par Knauer¹¹, pour le cas des faisceaux émis par champ. Il décrit que les faisceaux d'ions divergent si rapidement après l'émission que les trajectoires des particules ne se croisent pas (dans notre cas pour des pressions $< 10^{-4}$ mbar), de sorte que les collisions sont rares, et donc la dispersion énergétique est faible, et directement liée à la température (distribution électronique).

2. Différents types de sources d'ions

Il existe plusieurs types de sources d'ions. Dans cette partie, nous allons voir différentes sources qui sont considérées comme des candidates potentielles pour les applications FIB (Faisceau d'ions focalisé). Le FIB est comme un microscope électronique à balayage (MEB), sauf que le MEB utilise un faisceau d'électron pour imager un échantillon, et le FIB utilise un faisceau d'ion focalisé. Le FIB est généralement utilisé dans le domaine de la micro-fabrication. Les principaux domaines d'application sont la science des matériaux et en particulier le domaine des semi-conducteurs et des circuits intégrés. On peut faire de l'abrasion, du dépôt, et de la modification de circuits intégrés en fonction de la masse des ions utilisés.

2.1. Les sources d'ions à métal liquide (LMIS) :

Une LMIS est constituée d'une pointe en tungstène, un réservoir de gallium est rattaché à cette pointe. La fusion est obtenue par effet Joule, en faisant passer un courant électrique dans un filament de tungstène qui supporte la pointe.

La pointe est polarisée positivement par rapport à une électrode extractrice. En montant le courant de chauffage, le gallium se liquéfie. Le gallium diffuse vers le bout de la pointe. Quand le champ électrique est suffisamment élevé cette goutte de gallium prend la forme d'un cône appelé « cône de Taylor », à partir duquel les ions sont émis (Figure 3).

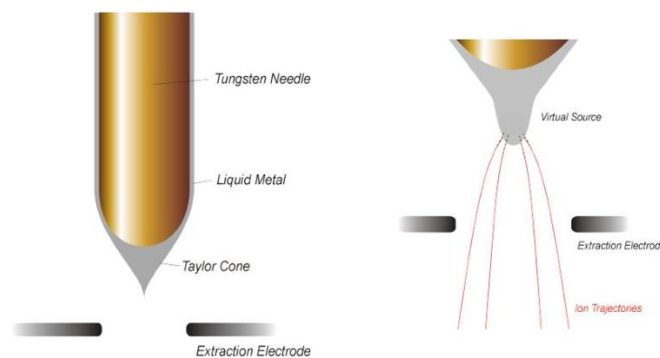


Figure 3: Schéma explicatif de la formation du cône de Taylor (extrait présentation Arnaud Houël).

Un cône de Taylor désigne le cône observé à partir duquel un jet de particules chargées est émis lors du franchissement d'un seuil de tension. Ce phénomène est décrit pour la première fois par Sir Geoffrey Ingram Taylor en 1964¹². Quand un petit volume de liquide

électriquement conducteur est exposé à un champ électrique $\sim 20V/nm$, le liquide se déforme de sa forme initiale liée à sa tension de surface. Quand le champ électrique commence à exercer une ampleur comparable à la force de la tension de surface sur la goutte de liquide, on observe la formation d'un cône au bout arrondi. La forme est proche de celle d'un cône. Lorsqu'un certain seuil de tension est atteint le bout légèrement arrondi s'inverse et émet un jet de liquide, phénomène appelé cône-jet, c'est le début du processus d'électro-nébulisation (la dispersion d'un liquide sous forme de gouttelettes chargées électriquement) au cours duquel les ions peuvent être transférés à la phase gazeuse¹².

Pour les sources LMIS¹³, le courant augmente linéairement par rapport à la tension, et le courant total émis va de 1 à 10 μA . La taille de source virtuelle $\approx 50 nm$, on s'attend à une brillance de $10^6 A.cm^{-2}.sr^{-1}$, et $\Delta E \sim 5 - 10 eV$.

Les sources à métal liquide sont les sources utilisées aujourd'hui dans les FIB. L'inconvénient des LMIS, est le gallium qui est un matériau contaminant pour les semi-conducteurs, notamment ; et la résolution obtenue est $\geq 4 nm$. Il serait intéressant de pouvoir utiliser des ions de gaz rares (Ar, Xe, Ne ...) pour éviter cette contamination de l'échantillon, et avoir une taille de source virtuelle plus petite afin d'atteindre des résolutions $< 4 nm$.

2.2. Gas field ion sources (GFIS):

Les sources basées sur le processus d'ionisation de champ sont connues sous le nom de sources d'ions « gazeuses »: GFIS (Gas field ion sources). Ce processus d'ionisation, qui a lieu pour un champ électrique élevé ($>10 V/nm$), a été étudié en microscopie ionique de champ puis appliqué pour les GFIS intégrées dans une colonne ionique.

Les différents types de GFIS sont définis comme suit :

2.2.1. Source Helium Ion Microscope (HIM):

Dans le microscope à hélium⁷, la pointe de tungstène est refroidie cryogéniquement dans un environnement d'hélium gazeux à basse pression. Les atomes d'hélium qui arrivent adhèrent partout à la pointe, mais ce n'est qu'en bout de pointe que le champ électrique est suffisamment élevé pour que les atomes s'ionisent. Cela se produit à une tension d'extraction relativement faible. La forme la plus stable en bout de pointe est constituée d'un ensemble de trois atomes appelé trimère comme on le voit sur la figure 4. Un atome du trimère est sélectionné pour produire le faisceau pour le microscope à ions hélium, tandis que les faisceaux des deux autres atomes sont dirigés vers une décharge de faisceau.

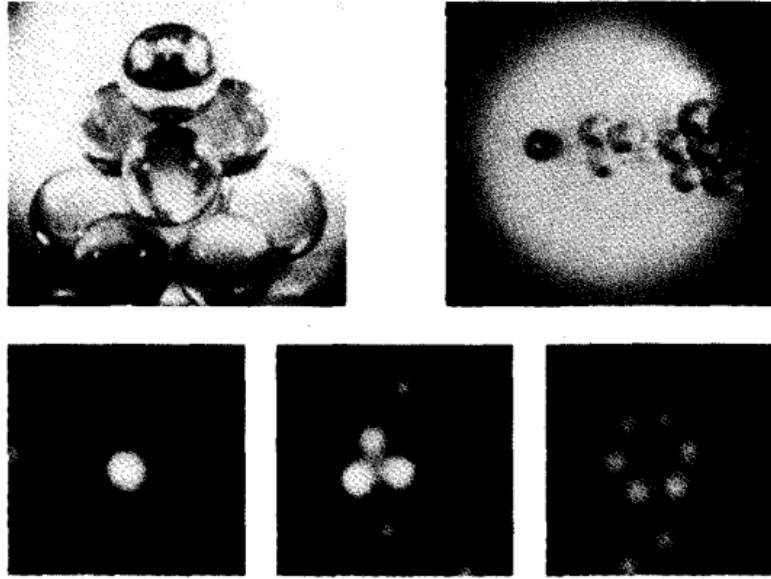


Figure 4: L'image montre le schéma des trois premières couches de la pointe(extrait de Fink et al¹⁴).

2.2.2. Sources monoatomique :

En 2001, Fu et al.¹⁵ ont été les premiers à mettre en évidence l'existence d'une pointe monoatomique (SAT : single atom tip, voir figure 5) de W (111) recouverte par dépôt sous vide d'un film de Pd ultrafin sur la surface d'une pointe de W propre, suivi d'un recuit thermique. Plus tard, Kuo et al.¹⁶ ont encore simplifié la préparation de ces pointes en remplaçant le nettoyage de la pointe et le dépôt sous vide par des processus électrochimiques et ont préparé avec succès plusieurs types différents de SAT W (111) recouvertes de métaux nobles. Contrairement aux autres techniques, ce type de SAT est thermiquement stable et chimiquement inerte et peut donc être régénéré par un recuit doux si l'apex est endommagé. Récemment, il a été démontré que ces SAT étaient des sources d'électrons très efficaces et fiables¹⁷.

La SAT Ir/W est la plus utilisée, car l'iridium peut supporter des températures plus élevées, des champs électriques positifs plus importants et des attaques chimiques. Des faisceaux d'ions hydrogène, hélium, argon et oxygène sont générés avec la SAT¹⁸.

Lai et al.¹⁹ en 2017 ont montré que la SAT Ir/W (111) peut émettre des faisceaux d'ions Xe⁺ avec une grande stabilité de courant par rapport au He-GFIS. Par rapport au Ga-LMIS, le Xe est un gaz inerte, qui ne contaminerait donc pas la surface de l'échantillon. La masse du Xe est également beaucoup plus importante que celle du He et du Ga. Par conséquent, les systèmes Xe⁺-GFIS-FIB peuvent devenir un outil très puissant pour le fraisage et l'analyse à l'échelle nanométrique.

Les sources GFIS (HIM), sont aussi utilisées dans les FIB, leur taille de source virtuelle est $< 1 \text{ nm}$, leur dispersion énergétique $\Delta E \sim 1 \text{ eV}$, et leur brillance est de $B = 10^9 \text{ A.cm}^{-2}\text{sr}^{-1}$. Les inconvénients de ces sources sont : le fait de travailler à des

températures très basses ($\approx 20\text{ K}$) pour pouvoir stabiliser le monomère ou le trimère, ce qui revient cher financièrement et impose des contraintes techniques exigeantes, et les intensités accessibles sont faibles ($\leq 70\text{ pA}$), donc l'abrasion rapide n'est pas possible.

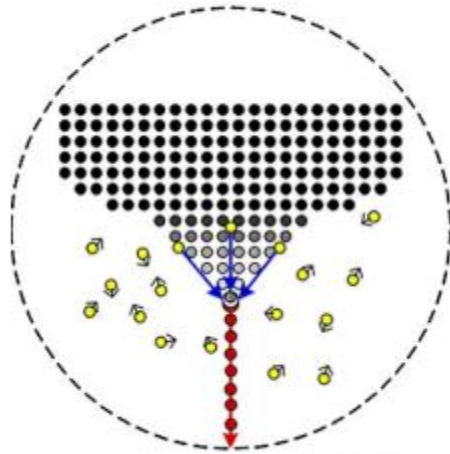


Figure 5: Schéma d'une source de type SAT. Les molécules de gaz adsorbées en jaune sur la tige de la pointe sont attirées vers le sommet des flèches bleues par le champ électrique et sont ionisées au sommet de la pointe (flèches rouges)(extrait de Lai et al¹⁸).

2.2.3. Source d'ions à structure coaxiale (CIS) :

La source d'ions à structure coaxiale fait partie des sources GFIS. La CIS se trouve entre deux compartiments. Un compartiment haute pression à travers lequel on injecte le gaz vers un compartiment basse pression. Le gaz est guidé à travers un tube en inox vers le bout de la pointe en tungstène comme on le voit sur la figure 6. L'ionisation de champ se fait au bout de cette pointe. Konishi et al.⁴ ont fait fonctionner leur source d'ions gazeux avec des pressions de gaz allant jusqu'à 10^{-1} Pa , à des températures autour de 12 K . Plus récemment, Salançon et al.²⁰ ont utilisé la même géométrie, mais avec des pressions plus élevées, jusqu'à 10 Torr côté haute pression. L'avantage de ces sources, c'est qu'on a une pression locale importante en bout de pointe, ce qui n'est pas le cas avec les sources présentées précédemment, aussi on peut travailler avec des gaz rares à température ambiante. La taille de source virtuelle d'une CIS² est $\leq 2\text{ nm}$, le courant est de l'ordre de 10 nA . La dispersion énergétique de ces sources est supposée être du même ordre de grandeur que les autres GFIS : $\Delta E \approx 1\text{ eV}$, et la brillance est estimée être de l'ordre de $10^7\text{ A.cm}^{-2}.\text{sr}^{-1}$, soit un ordre de grandeur de plus que la brillance des LMIS. Les premiers résultats de la CIS sont prometteurs pour les FIB. La suite du travail avec ces sources sera détaillée dans les prochains chapitres.

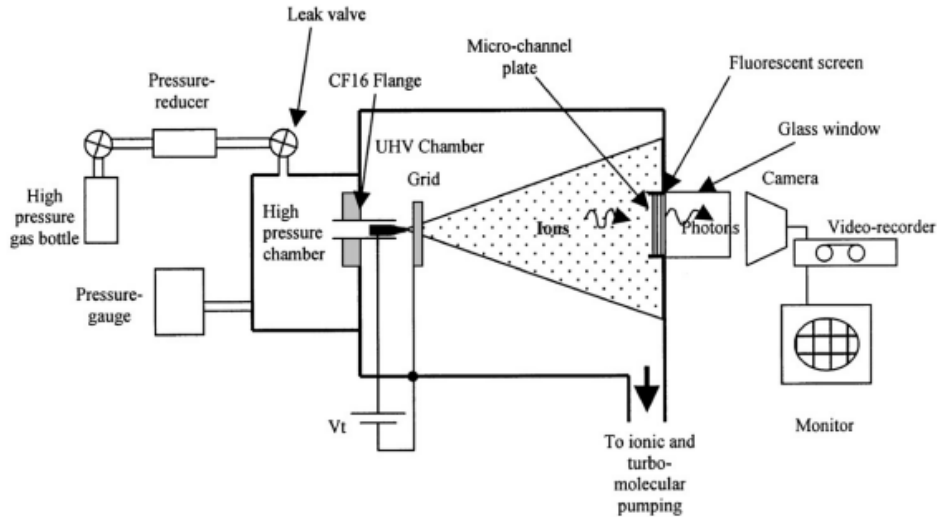


Figure 6: Schéma représentant le dispositif expérimental de la CIS (extrait de Hammadi et al²⁰).

2.2.4. Les sources d'ions à plasma :

La source plasma²¹ est composée d'un capillaire en quartz à travers lequel le gaz est injecté. À l'intérieur de ce capillaire se trouve un fil de tungstène d'un diamètre de 10 à 250 μm . Une cathode extractrice se trouve en face de ce capillaire comme on le voit sur la figure 7. En appliquant une différence de potentiel allant de 1 à 15 kV entre le fil de tungstène et la cathode, une micro-décharge est créée à l'extrémité du tube en quartz, et les particules du plasma sont accélérées par le champ électrique vers la cathode.

Une source d'ions-plasma peut être utilisée pour générer des faisceaux d'ions positifs de gaz nobles He, Ne, Ar, Kr et Xe. Plusieurs types d'espèces d'ions gazeux peuvent être produits. Pour une taille de source de 10-100 μm de diamètre, la brillance²² est de $\sim 3 \times 10^4 \text{ A. cm}^{-2} . \text{sr}^{-1}$.

Ces sources sont bien connues comme sources d'ions à large faisceau ayant une dispersion énergétique²¹ de 250-300 eV. Elles permettent une large gamme d'applications industrielles et sont souvent utilisées pour le fraisage rapide. Elles sont utilisées dans les faisceaux d'ions focalisés pour la gravure en micro-électronique, le traitement de surface, et l'abrasion, par exemple en utilisant des gaz lourds comme du xénon et de l'argon pour une abrasion de volume importante en un temps minimum. L'inconvénient de ces sources est que leur limite de résolution est de 30nm donc il n'est pas possible de faire des structures plus petites.

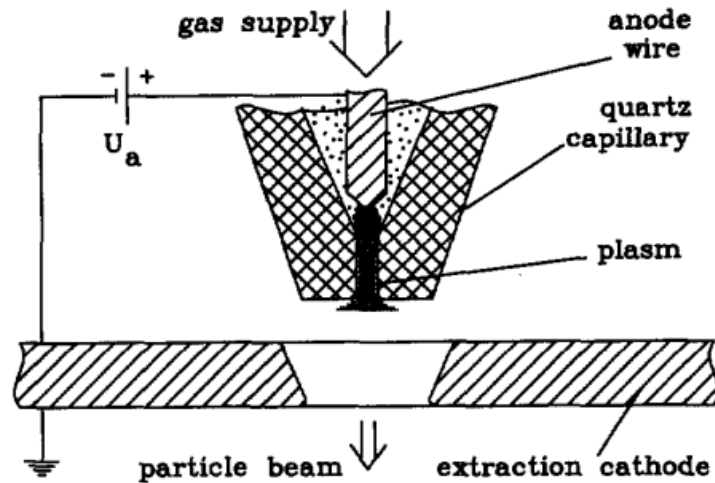


Figure 7 : Procédé d'extraction d'ions par plasma (extrait de Bautsch et al²¹).

Le Tableau 1 résume les caractéristiques de trois sources d'ions différentes. La taille de source et la dispersion énergétique des sources LMIS sont relativement élevées comparé à celles de la source à hélium. La brillance des sources LMIS est de $10^6 A. cm^{-2}. sr^{-1}$ elle est inférieure à la brillance de la source à hélium qui est de $10^9 A. cm^{-2}. sr^{-1}$. La source d'ions à structure coaxiale (CIS) a le même principe d'ionisation que la source à hélium donc on s'attend à une dispersion énergétique $\Delta E \sim 1 eV$.


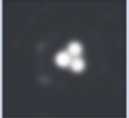

	LMIS	He : GFIS	CIS : GFIS
Image			
Taille de source (nm)	50	0,35	?
ΔE (eV)	5-10	1	1
Intensité	1-10 μA	70 pA	?
Angle de cône (degré / sr)	17 / 0,27	1 / 0,001	?
Brillance ($A. cm^{-2}. sr^{-1}$)	10^6	10^9	?
Types d'ions	Ga	He/Ne	H_2 /?
Température (K)	> 350	≈ 20	300
Durée de vie	Opérationnelle	Régénérable	?
Résolution (nm)	≥ 4	0,35	?

Tableau 1 : Caractéristiques de différentes sources d'ions.

3. Émission de champ

Certaines sources d'ions qu'on vient de voir dans la partie deux de ce chapitre fonctionnent avec le même principe physique fondamental basé sur l'émission d'ions par effet de champ, ou plus simplement l'ionisation de champ. L'émission de champ est le phénomène physique qui décrit l'émission d'électron à partir d'une surface solide, liquide, ou d'une molécule de gaz par un effet de champ électrique. Dans cette partie je vais décrire ces deux phénomènes physiques : émission et ionisation de champ dont le principe fondamental est très proche.

3.1. Émission d'électrons :

Dans un métal à $T = 0$ K, les électrons occupent les niveaux d'énergie du métal inférieurs au niveau de Fermi. En physique, et en mécanique quantique, le travail de sortie représente l'énergie minimum pour qu'un électron puisse passer du niveau de Fermi d'un métal vers le niveau du vide. Le travail de sortie Φ pour un électron à la surface d'un métal est défini comme la différence de son énergie potentielle entre le niveau du vide et le niveau de Fermi : $\Phi = E_v - E_F$ (figure 8).

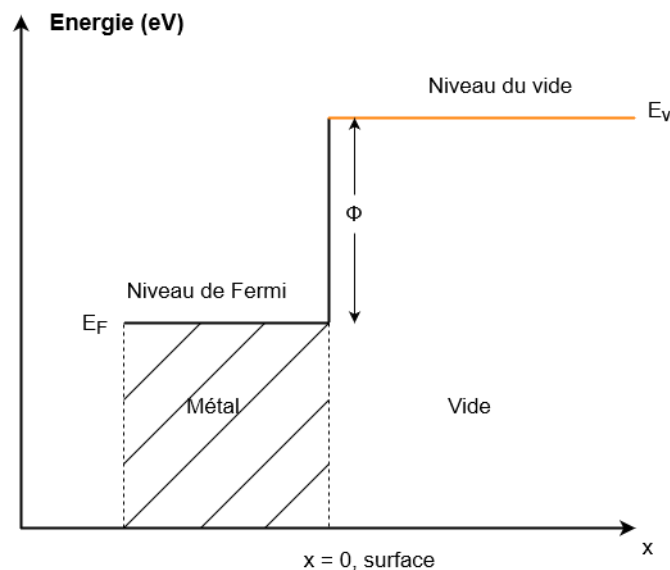


Figure 8: Schéma représentant les états d'énergie occupés dans le métal, à proximité de la surface métallique. En l'absence de champ, la barrière que doivent franchir les électrons est de largeur infinie.

Il existe différents mécanismes pour extraire un électron du métal :

- **L'effet photoélectrique** : lorsqu'un photon arrive sur un métal avec une énergie $h\nu$ supérieure au travail de sortie de ce dernier. Dès que cette énergie est transférée à l'électron, il passe de son énergie initiale E_0 à $E_0 + h\nu$ une énergie suffisamment élevée pour qu'il soit arraché du métal.

- **Effet thermoïonique** : prenons l'exemple d'un filament chauffé. L'élévation de température joue sur la distribution énergétique des électrons au niveau de Fermi et peut se calculer par la distribution de Fermi-Dirac. Plus la température est élevée plus le nombre d'électrons au niveau du vide augmente et permet l'émission d'électrons en appliquant un champ extracteur faible.

- **Effet de collision** : c'est un processus secondaire lié à l'émission d'électrons par collision qui peut avoir lieu entre atomes, avec des ions ou des électrons impactant une surface métallique qui génère l'émission d'électrons secondaires.

- **Effet de champ** : en appliquant une différence de potentiel entre une cathode en forme de pointe fine et une anode plate, on crée un champ électrique intense en bout de pointe. L'expression du champ électrique est donnée comme suit :

$$F = \frac{V}{kr} \quad (4)$$

Avec V la tension appliquée sur la pointe, k un facteur géométrique adimensionnel qui dépend de la forme de la pointe (environ 5 dans notre cas), et r le rayon de courbure de la pointe. Ce champ électrique fait baisser la barrière de potentiel. Lorsque cette barrière est suffisamment étroite, l'électron peut la franchir par effet tunnel comme on le voit sur la figure 9 pour un champ de l'ordre de 1V/nm dans le cas du tungstène.

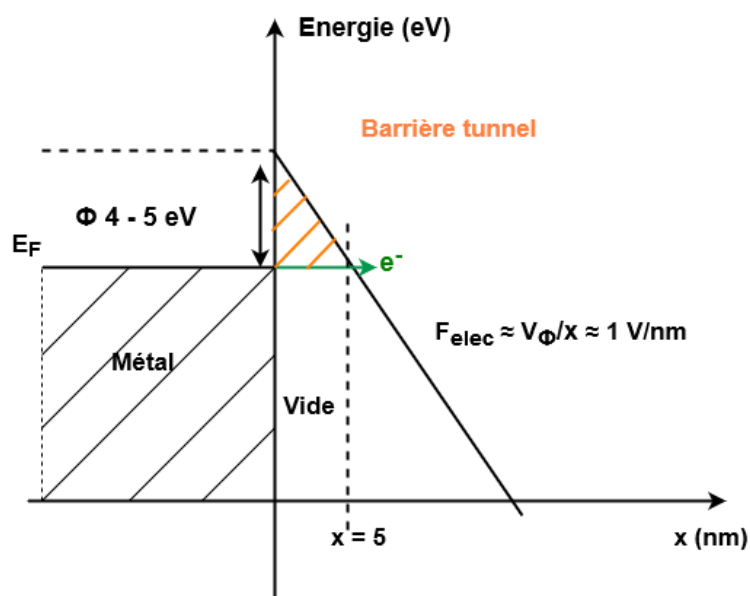


Figure 9: Schéma représentant les niveaux d'énergie du métal sous effet de champ, la barrière de potentiel est abaissée, l'électron peut franchir la barrière de potentiel par effet tunnel.

L'émission d'électrons par effet de champ se caractérise par une courbe de type Fowler-Nordheim. Une courbe typique, mesurée avec les pointes présentées plus tard dans ce document. La figure 10 présente la courbe Fowler-Nordheim qui est une droite décroissante dans un graphique semi-log de $I/V^2 = f(1/V)$.

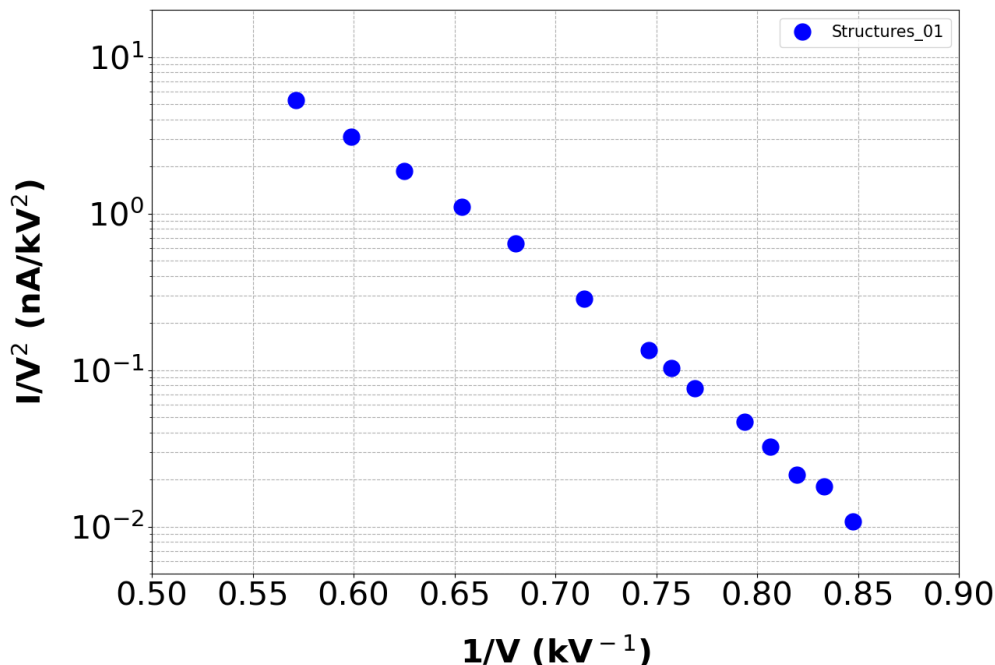


Figure 10 : Courbe Fowler-Nordheim.

La croissance du courant se fait de façon exponentielle avec le champ et semble ne pas avoir de limite. Dans notre cas, la pression n'est pas suffisamment faible pour maintenir l'état de la pointe intact au-delà de 1nA d'émission. La caractéristique permet tout de même d'estimer le rayon de courbure (ici de l'ordre de 200 nm). Elle est effectuée de façon quasi-systématique avant chaque expérience.

3.2. Émission d'ions et Ionisation de champ :

Le mot « ionisation » vient du fait d'enlever ou d'ajouter des charges électriques à un atome ou à une molécule. En perdant ou en gagnant un ou plusieurs électrons, l'entité prend le nom d'ion.

L'ionisation de champ d'un atome de gaz libre a été visualisée par Gamow en 1928 (citer par Muller²³), en appliquant les nouveaux concepts de la mécanique quantique. Il a montré que dans un champ électrique l'électron d'un atome d'hydrogène a une durée de vie finie. Pour ioniser un atome de gaz il faut un potentiel d'ionisation suffisant, c'est-à-dire fournir à l'électron une énergie nécessaire pour qu'il soit arraché de l'atome de gaz : c'est son potentiel d'ionisation I_i .

Il existe différentes méthodes de création d'ions :

- **Ionisation par collision :** elle se produit grâce à l'impact d'un électron qui arrache l'un des électrons de l'atome ou de la molécule qu'il rencontre.

- **Ionisation par rayonnement** : l'ionisation par rayonnement se produit lorsque les rayonnements (X et gamma) émettent un rayon d'énergie suffisamment élevée pour transformer les atomes qu'ils traversent en ions en gagnant ou en perdant un ou plusieurs électrons.
- **Ionisation thermique** : l'apport d'une énergie thermique suffisamment élevée à un gaz fait que son énergie moyenne peut être égale ou supérieure à son énergie d'ionisation. Donc le gaz peut s'ioniser par les chocs entre les molécules.
- **Ionisation chimique** : c'est une réaction entre une molécule et un ion réactant, résultant en un transfert d'électrons ou en une création d'une molécule par addition de deux autres molécules.

En 1954 la théorie actuelle de l'ionisation de champ près d'une surface métallique a été largement documentée par Muller et Bahadur²³. Pour qu'un atome soit ionisé, il faut appliquer une différence de potentiel importante à une pointe métallique afin d'atteindre des champs électriques de l'ordre de 10 V/nm. Un champ électrique assez élevé courbe la barrière de potentiel entre le métal et l'atome, et permet aux électrons de transiter par effet tunnel des niveaux d'énergie des électrons de l'atome au niveau de Fermi du métal (figure 11).

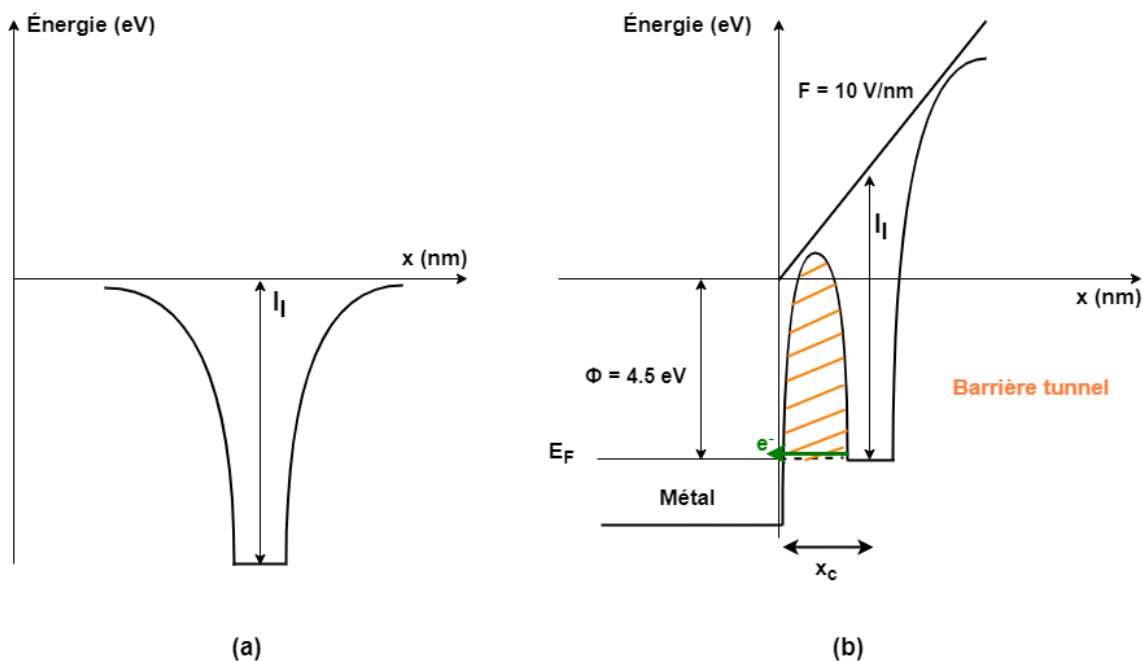


Figure 11: Diagramme des énergies dans le cas de l'ionisation de champ. (a) diagramme d'énergie d'un atome neutre avec I_I le potentiel d'ionisation. (b) après application d'une différence de potentiel proche du métal polarisé, $x_c \approx 0.5$ nm.

4. Le microscope ionique à effet de champ (FIM : Field Ion Microscopy) :

4.1. Historique :

Le microscope à ionisation de champ a été mis au point par Erwin W. Muller en 1951²³, à l'université de Berlin puis de Pennsylvanie. Le microscope ionique permet de visualiser le détail atomique d'une surface solide (figure 12). La résolution atomique a été obtenue pour la première fois²³ avec le microscope à ionisation de champ.



Figure 12: Image des positions atomiques d'une pointe d'iridium vue par FIM, à 10^{-3} Torr de pression d'hélium (extrait de Müller²³).

4.2. Principe de base :

Le microscope ionique est composé d'une pointe métallique fine en face d'un écran fluorescent. Les deux sont montés dans un tube en verre sous vide. Une pression partielle de 10^{-3} Torr de gaz est injectée dans ce tube, comme on le voit sur la figure 13.

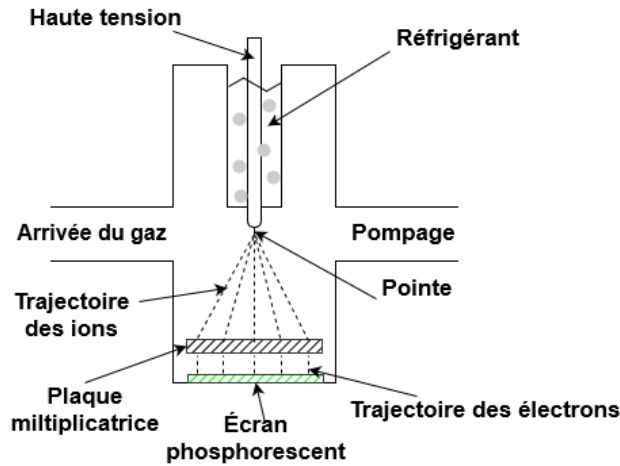


Figure 13: Microscope ionique à effet de champ, $P = 10^{-3} Torr$ (extrait de Müller²³).

En appliquant une tension positive suffisamment élevée (entre 5 et 30 kV) à la pointe, un champ électrique d'environ 10 V/nm est créé en bout de pointe. Les ions sont comme projetés de la surface de la pointe vers l'écran, et forment une image agrandie de la surface de la pointe sur l'écran fluorescent. En réalité, ce qu'on observe sur l'écran, ce sont les sites d'émission, c'est-à-dire, la surface de la pointe métallique résolue à l'échelle atomique. L'ionisation se fait sur des sites atomiques car l'atome de gaz est ionisé à l'endroit où le champ électrique est le plus fort. Comme on le voit sur la figure 14, cela permet de visualiser le détail atomique de la surface de la pointe.

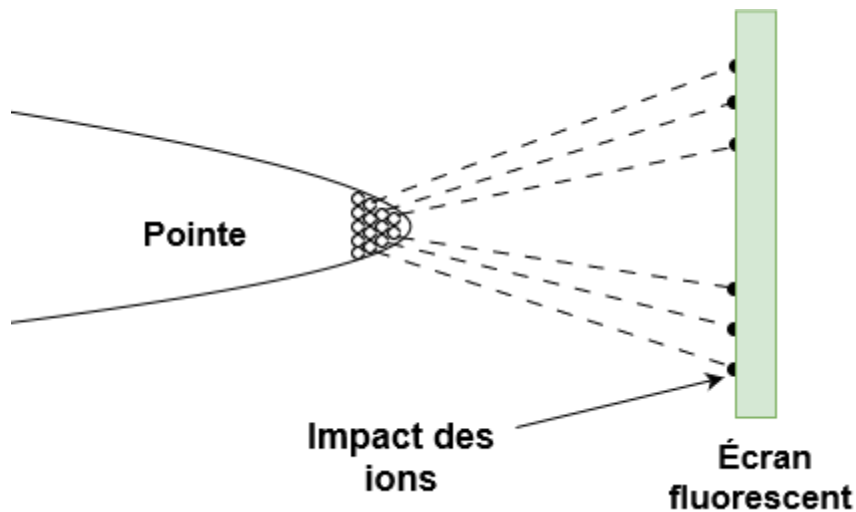


Figure 14: schéma montrant la formation de l'image sur l'écran dans un FIM.

5. Caractéristiques du courant en fonction de la tension et de la pression I (V, P) :

Avant mon arrivée en thèse, la source d'ion à structure coaxiale a fait l'objet de trois publications : La première qui discute le principe de la source²⁰, la seconde qui indique comment caractériser ses régimes d'écoulements²⁴, et la dernière qui présente les résultats de l'ionisation de l'eau sous champ électrique²⁵. La caractérisation complète du courant ionique de la structure coaxiale (CIS) dans toute la gamme de pression et de tension n'avait pas été faite auparavant. Dans cette partie je vais présenter l'historique de la caractérisation du courant en fonction de la tension et de la pression pour d'autres sources que la CIS mais qui reposent sur le même phénomène physique : l'ionisation de champ.

5.1. Caractéristiques du courant en fonction de la tension I(V) :

Courant ionique : Muller et Bahadur²³, ont mesuré les courants ioniques en fonction de la tension et de la pression pour divers gaz à température ambiante. En 1963, Southon²⁶, ont été les premiers à publier les caractéristiques courant-tension d'un microscope ionique fonctionnant à l'hélium avec des températures de pointe descendant jusqu'à 63K. Leurs résultats représentés sous la forme $\log I=f(\log V)$ indiquent deux pentes. Les mêmes résultats ont été obtenus avec Muller²⁷, et dans plusieurs autres études²⁸⁻³².

La première pente de la courbe est obtenue pour des tensions <10 kV. Dans cette partie de la courbe, l'intensité émise est limitée par le champ, le courant augmente rapidement avec une pente $m \approx 50$, jusqu'à la tension de coupure U_c comme on le voit sur la Figure 15. D'après Jousten et al.³⁰, en supposant que les particules de gaz sont entièrement accommodées à la température de la pointe, le courant peut être écrit comme :

$$I = c e^{-\frac{F_0}{F}} e^{\Phi} \quad (5)$$

Avec c une constante qui dépend de la concentration et la température du gaz par rapport à la température de la pointe, F_0 le champ minimum pour atteindre l'ionisation de champ, Φ le rapport entre l'énergie de polarisation et l'énergie thermique :

$$\Phi = \frac{1}{2} \frac{\alpha F^2}{kT} \quad (6)$$

F, le champ électrique, α , la polarisabilité du gaz, k, la constante de Boltzmann, et T, la température du gaz. Dans cette partie le champ électrique est très faible, donc la probabilité d'ionisation l'est aussi (figure 11). De la relation (5) si F augmente et que l'équilibre thermique n'est pas perturbé, le courant I augmente rapidement avec la tension (exponentiellement) d'où la forte pente.

La deuxième pente est obtenue pour des tensions > 10 kV. Le champ est suffisamment élevé pour considérer que la probabilité qu'un atome soit ionisé est égale à 1. L'augmentation du courant avec le champ ne peut donc plus se faire, c'est l'apport en matière à ioniser qui limite le courant (notons que ce n'est pas le cas avec l'émission d'électrons puisque le réservoir d'électrons est infini !). Nous devons aussi prendre en considération les collisions des particules, c'est-à-dire que certaines particules peuvent traverser le volume d'ionisation, frapper la surface et avoir encore suffisamment d'énergie pour s'échapper de la pointe sans être ionisées. La probabilité qu'une particule ne puisse pas s'échapper de l'émetteur est appelée la probabilité de capture P_c . P_c augmente lorsque l'intensité du champ augmente et que la température du gaz diminue. Donc dans cette deuxième partie de la courbe l'intensité d'ionisation est limitée par la fonction d'apport (nombre de molécules /unité de temps et de surface qui passe par la zone d'émission, noté f_0). La pente de la courbe est moins importante que dans la première partie $m \approx 2$ (Figure 15). C'est-à-dire que dans le volume d'ionisation en bout de pointe de surface A_{tip} , un certain nombre de molécules est ionisé par unité de temps. Le courant dans cette partie s'écrit dans la littérature comme suit :

$$I = f_0 A_{tip} q_{gaz} s P_c \sigma(\Phi) \quad (7)$$

f_0 s'exprime en nombre de molécules $.s^{-1}.m^{-2}$, c'est la fonction d'apport au niveau de la pointe. A_{tip} , la surface d'émission sur la pointe en m^2 . q_{gaz} , la charge de l'ion en Coulomb. s, est appelé le « shank », c'est la tige de la pointe qui contribue d'une manière considérable à l'apport de gaz en bout de pointe par diffusion de surface³². $\sigma(\Phi)$ décrit l'accommodation entre l'énergie thermique et l'énergie de polarisation suivant la forme de la pointe.

- Si la pointe est de forme sphérique³⁰ :

$$\sigma(\Phi) = \sqrt{\pi\Phi} \quad (8a)$$

- Si la pointe est de forme hyperboloïde³⁰ :

$$\sigma(\Phi) = 1/4 \left(\Phi + 2.7\Phi^{\frac{2}{3}} + 2.7\Phi^{\frac{1}{3}} + 1 \right) \quad (8b)$$

En pression statique (pression partielle), la loi des gaz parfait s'écrit comme : $PV = NkT$. Ici N est le nombre de molécules par un volume V à une pression P, et une température du gaz T en kelvin, k, la constante de Boltzmann.

Si toutes les particules qui arrivent en bout de pointe sont ionisées, le courant s'exprime comme :

$$I_{tot} = Zq_{gaz} = q_{gaz} \frac{dN}{dt} \quad (9)$$

Avec Z, le nombre de molécules ionisé par unité de temps. Donc Z est calculé comme suit :

$$Z = \frac{dN}{dt} = d \left(\frac{PV}{kT} \right) \cdot \frac{1}{dt} \quad (10)$$

Si P et T sont constants, on peut exprimer $\frac{dV}{dt} = \frac{1}{4} A_{tip} v$, le volume de capture par unité de temps, avec $v = \sqrt{\frac{8kT}{\pi m}}$, la vitesse moyenne des molécules. De l'équation (9) et (10), on peut écrire :

$$I_{tot} = \frac{P}{\sqrt{2\pi mkT}} A_{tip} q_{gaz} \quad (11)$$

C'est-à-dire que si on identifie avec l'équation (7) :

$$I = I_{tot} s P_c \sigma(\Phi) = \frac{P}{\sqrt{2\pi mkT}} A_{tip} q_{gaz} s P_c \sigma(\Phi) \quad (12)$$

On trouve :

$$f_0 = \frac{P}{\sqrt{2\pi mkT}} \quad (13)$$

P en Pa, la pression partielle m, la masse du gaz en kg, k, la constante de Boltzmann, et T la température du gaz en kelvin.

L'équation (12) ici est donnée dans le cas d'une pression statique (pression partielle). Nous verrons dans la partie discussion (page 91) que nous pouvons exprimer cette équation dans notre cas, c'est-à-dire, dans le cas d'une pression dynamique ou d'un flux de molécules localisé en bout de pointe, donc nous allons remplacer P par P_{tip} qui est la pression en bout de la pointe.

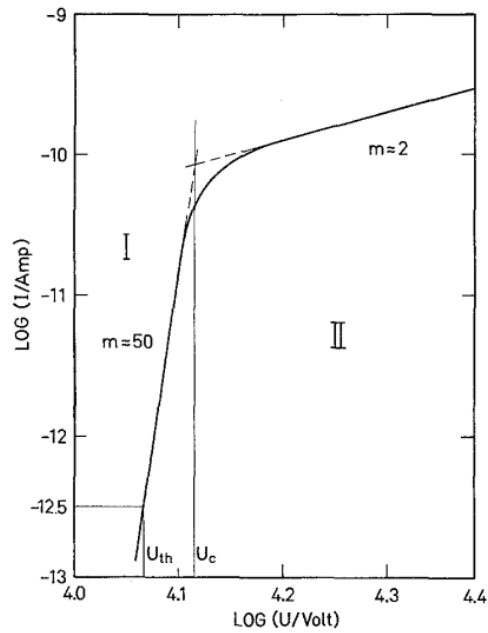


Figure 15: Courbe d'une caractéristique courant-tension d'une source de type GFIS. U_c : tension de coupure, U_{th} : tension de seuil. On peut distinguer deux régimes (I et II) avec des pentes m très différentes (extrait de Jousten et al³⁰).

La figure 16 montre les mesures de $I(V)$ avec de l'argon à des températures de pointe différentes. On voit qu'à des températures supérieures à 140 K, le courant augmente de façon monotone. Le régime à faible champ montre la dépendance attendue du courant avec la température de la pointe, c'est-à-dire que les pentes des caractéristiques courant-tension augmentent avec la diminution de la température de la pointe.

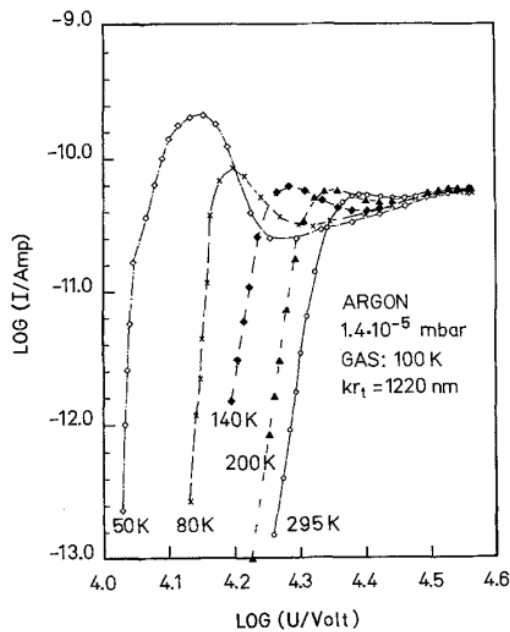


Figure 16: Caractéristiques courant-tension avec de l'argon, à des températures de pointe différentes(extrait de Jousten et al³⁰).

Le changement de pente observé près de la tension de coupure sur la figure 15 a été décrite par Chen, YC³². Ils mesurent le courant provenant des différents plans atomiques du tungstène, et montrent que l'intensité du champ varie avec les zones d'ionisation à la surface de l'émetteur. En 1967, A.A. Holscher propose l'existence de trois zones de champs : l'une allant du plan (111) aux plans (211) et (411), le second allant du plan (110) à ses environs, le troisième au niveau du plan (100). Ils expliquent cela en considérant deux régions **A** et **B** de champ différent : **A** a une intensité de champ plus élevée que **B**. Si, pour une certaine tension, la probabilité d'ionisation au-dessus de **B** est encore faible, les particules sont attirées par les forces dipolaires vers **A**, où elles peuvent être ionisées. Cela signifie que le courant ionique de **A** est renforcé par cette alimentation latérale. Dès que la probabilité d'ionisation devient élevée au-dessus de **B** pour des tensions plus élevées, cet apport latéral cesse et le courant au-dessus de **A** devient plus faible. Quand l'ionisation se fait à température ambiante, il existe plusieurs sites d'émission possibles à la surface de la pointe, aucun site n'est privilégié en fonction du potentiel. Pour fixer un site d'émission il faut baisser la température de la pointe et choisir le potentiel le plus probable pour le site recherché.

Le point optimal de fonctionnement d'une GFIS (Gas Field Ion Source)³⁰ se situe à une tension légèrement supérieure à la tension de coupure (U_c) de la figure 15. En ce point de fonctionnement, Jousten et al.³⁰ observent que le courant augmente avec P , une formule empirique est donnée. En pA, elle est de la forme :

$$I = i \left(\frac{P_{tip}}{T} \right) r_{tip}^{2.5} \quad (14)$$

Avec $i = 8, 30,$ et 6 pour (l'argon, l'hydrogène, et l'hélium) respectivement³⁰. P_{tip} , la pression à l'apex en Pa, T est la température du gaz en Kelvin, et r , le rayon de courbure de la pointe en nm.

La figure 17 montre le courant ionique en fonction de la tension d'extraction mesurée pour une pression partielle de Xe de 2×10^{-5} torr avec une source de type « single atom tip » fabriquée à partir d'une pointe monocristalline recouverte de palladium. Le courant augmente jusqu'à atteindre un courant de saturation de 1,2 pA. Le comportement représenté par les deux pentes est similaire aux mesures précédentes^{29,30}, sauf que pour cette expérience les tensions appliquées à la pointe sont plus petites que celles des expériences précédentes et que la pente dans le régime II est plus importante. Ceci est expliqué par la forme hémisphérique des pointes.

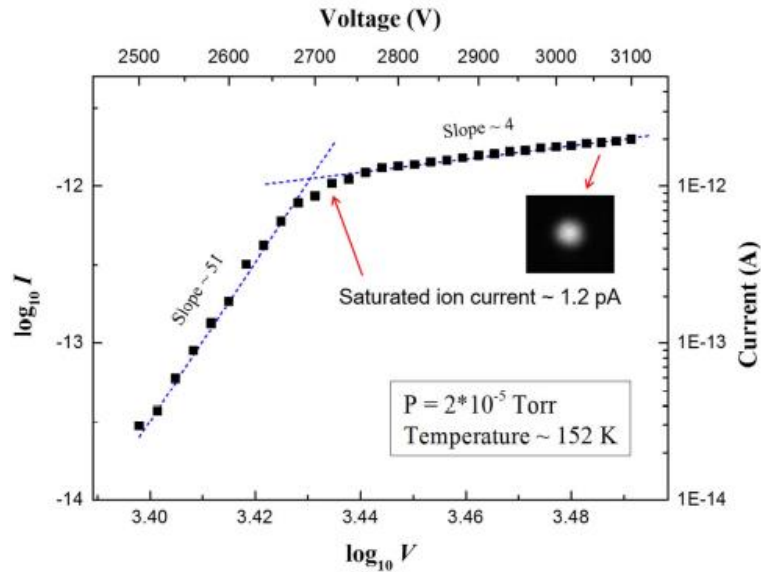


Figure 17: Courant du faisceau d'ions Xe⁺ en fonction de la tension d'extraction sur l'échelle logarithmique. L'encart montre l'image FIM de l'émetteur (en utilisant le Xe comme gaz image) acquise après la mesure, indiquant que le motif d'émission n'a pas changé pendant la mesure (extrait de Lai et al³¹).

5.2. Caractéristiques du courant en fonction de la pression I (P) :

On vient de voir que le courant d'une source d'ion est déterminé par la fonction d'apport en bout de pointe, c'est-à-dire qu'il est en lien direct avec la pression du gaz en bout de pointe. Jousten et al.³⁰ ont vu que le courant ionique évolue linéairement avec la pression du gaz (H₂) ($I \propto P_{gaz}$), comme le montre la figure 18.

On a vu que dans Jousten et al.³⁰ le courant s'exprime comme suit :

$$I = f_0 A_{tip} q_{gaz} S P_c \sigma(\Phi) \quad (15)$$

C'est le produit de la fonction d'apport f_0 multipliée par la probabilité de capture P_c ; et, $f_0 = P_{tip} / \sqrt{2\pi m k T}$, dépend linéairement de la pression à la pointe P_{tip} . Cette linéarité a été observée dans d'autres travaux^{4,28,29}.

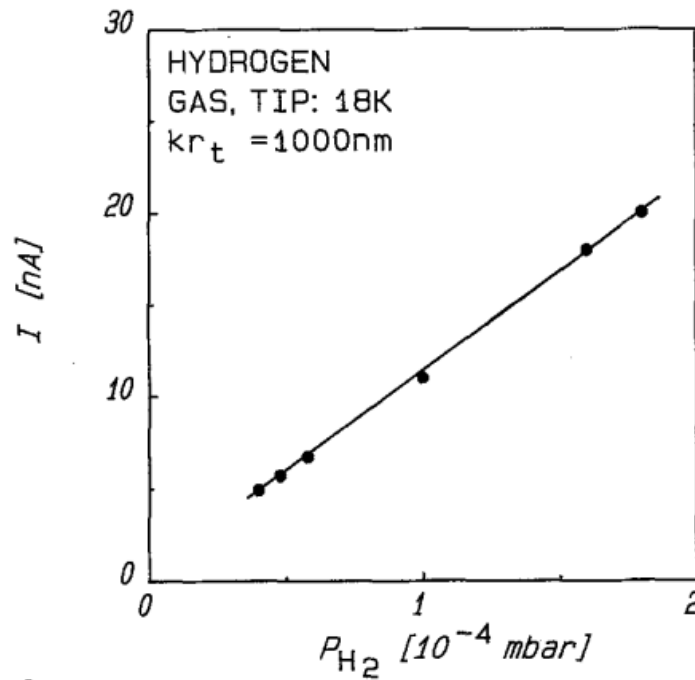


Figure 18: Courant ionique en fonction de la pression de H₂ (extrait de Jousten et al³⁰).

La linéarité du courant en fonction de la pression a aussi été observée par Konishi⁴. Dans son cas, les expériences sont menées en pression dynamique, c'est-à-dire que le gaz est injecté à travers un capillaire en téflon vers le bout de la pointe (la pression est localisée en bout de pointe). L'intensité évolue linéairement par rapport à la pression d'hélium dans l'enceinte.

Quand le gaz est injecté directement dans le FIM, en pression partielle et sans passer par le capillaire, l'augmentation de la température de la pointe par conduction thermique à travers le gaz (He) provoque dans leur expérience un léger fléchissement de cette linéarité à plus forte pression. Comme on le voit sur la figure 19, ils trouvent aussi que les valeurs de courants ioniques en écoulement sont équivalentes aux valeurs obtenues en pression partielle pour des pressions dans l'enceinte inférieures de deux ordres de grandeur. Ce résultat peut être attribué à une pression locale beaucoup plus élevée à l'extrémité de l'émetteur⁴.

Nous verrons que les résultats présentés dans ce manuscrit confirment les résultats obtenus par Konishi. Dans notre cas, nous travaillons à température ambiante et avons des vitesses de pompage plus élevées nous permettant d'atteindre des pressions en bout de pointe un peu plus élevées.

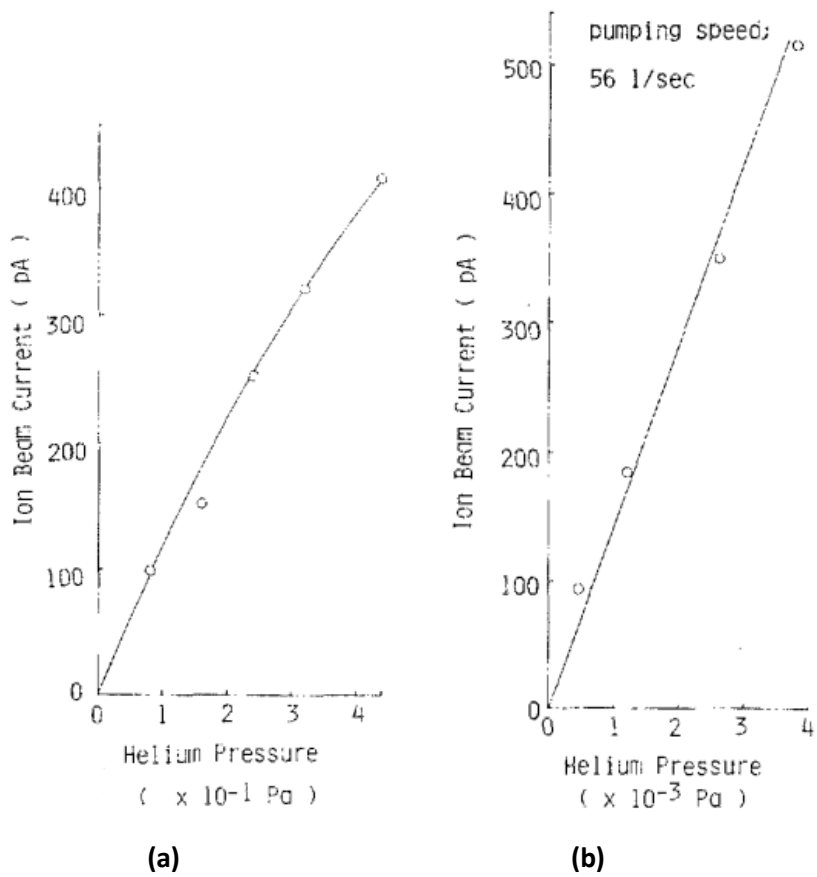


Figure 19: (a) Intensité vs. Pression Hélium à pression statique. (b) Intensité vs. Pression Hélium à pression dynamique(extrait de Konishi et al⁴).

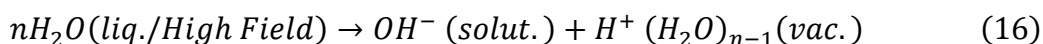
6. Ionisation de l'eau et corrosion du tungstène sous champ :

Nous allons voir que même en utilisant des gaz nobles, le tungstène se corrode sous champ en présence d'une petite quantité d'eau. L'ionisation de l'eau avec des pointes en tungstène a déjà été étudiée précédemment, et des oxyde de tungstène ont été détectés³³, en spectrométrie de masse. Lors de ces expériences, une augmentation du rayon de courbure des pointes a été observée^{25,34}. Ce sont ces travaux sur la corrosion du tungstène sous champ qui sont décrits dans cette partie car nous les utiliserons pour l'analyse de nos travaux.

6.1. Ionisation de l'eau avec des pointes en tungstène :

Des études sur l'ionisation de champ de l'eau ont été réalisées en utilisant différents matériaux de pointe : W, Ir, Pt, Au et Mo, en changeant la température de la pointe à la fois au-dessus et en-dessous de la température ambiante³⁴.

Le mécanisme de l'ionisation de l'eau s'écrit avec la formule suivante :



En 1969, Anway et al.³⁴ ont fait des expériences d'ionisation d'eau en injectant de la vapeur d'eau dans l'enceinte. Des masses 19, 37, 55, et 73 *amu* ont été observées à l'aide d'un spectromètre de masse à température ambiante et à faible champ (environ 0,3 V/Å). Ces masses correspondent aux produits $H_3O^+ \cdot nH_2O$ où $n \geq 0$. À température ambiante des ions avec des $n < 3$ sont difficiles à détectés, et donc l'intensité ionique est faible, par contre, des n jusqu'à 9 étant observés à des températures de glace. Le rapport $[H_2O^+]/[H_3O^+]$ augmente avec des champs plus élevés. Les mêmes masses ont été observées en 1993 par Panitz³⁵.

En 2012 Hammadi et al.²⁵ ont fait de l'ionisation d'eau avec des pointes en Pt, Pd, et W, à température ambiante. Des masses de 1, 2, 3, et 4 *amu* ont été obtenues avec les différents matériaux ; mais des masses de 19, et 37 *amu* ont aussi été obtenues avec des pointes en tungstène. Les études précédentes³⁴ indiquent la probabilité que ces ions lourds soient des protons hydratés $H^+ \cdot H_2O$ (M= 19), et $H^+ \cdot (H_2O)_2$ (M= 37). Une forme caractéristique de la corrosion du tungstène a également été observée lors de l'ionisation de l'eau (voir la figure 20).

6.2. Corrosion du tungstène :

La corrosion : La corrosion désigne l'altération d'un matériau par réaction chimique avec un oxydant (le dioxygène et le cation H^+ en majorité). Dans notre cas la corrosion est une réaction chimique qui correspond à l'adsorption en multicouches des molécules d'eau qui se produit sous l'effet d'un champ électrique sur un matériau, le matériau en question utilisé pour les travaux qui seront présentés ici est le tungstène. La corrosion du tungstène produit des oxydes de tungstène^{25,33-35}.

Lors des expériences d'ionisation de l'eau avec des pointes en tungstène l'augmentation du rayon des pointes a été observée^{25,34}. Amano et al.³⁶ ont observé des modifications importantes de la topographie de la surface du tungstène, dû à la corrosion sous l'effet du champ électrique. Ils expliquent cela par la forte adsorption des molécules d'eau sur la pointe. En 2007, Descoins⁶ avait mis en œuvre une mini-chambre à vide permettant l'observation microscopique du bout de la pointe. En injectant de l'eau, et en polarisant la pointe positivement. À 5kV, la croissance d'un dépôt blanchâtre et la récession de la pointe ont été observées. La figure 20 montre l'image de la pointe au microscope électronique à balayage après l'expérience.

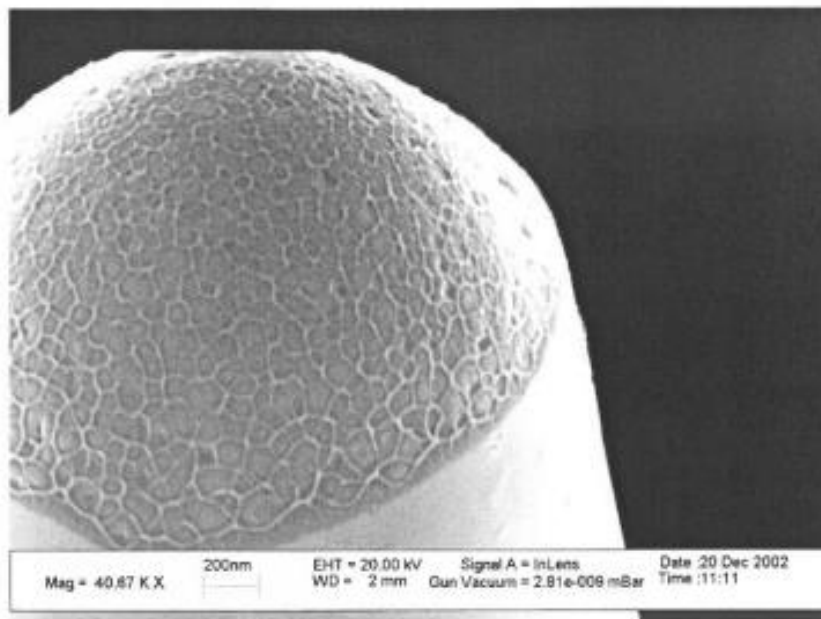


Figure 20: état de surface de la pointe après émission (Archives SSP CINaM⁶).

Sachant que le bout de la pointe fait généralement $\sim 10\text{ nm}$ avant émission, on voit qu'après émission le rayon est de $\sim 2\ \mu\text{m}$, le rayon de la pointe a grossi, c'est-à-dire que la pointe a été corrodée sous champ en présence d'eau, ce qui confirme les résultats obtenus par Anway 1968³⁴.

6.3. Influence de la corrosion sur le courant ionique :

L'augmentation du rayon de courbure de la pointe ne permet pas de garder un champ électrique constant tout au long d'une expérience. Anway et al.³⁴ ont vu que le courant ionique s'éteint progressivement en fonction de la tension appliquée à la pointe, comme on le voit sur la figure 21, où ils estiment que la tension de pointe de 4600 V produit un champ de 0,2 V/Å.

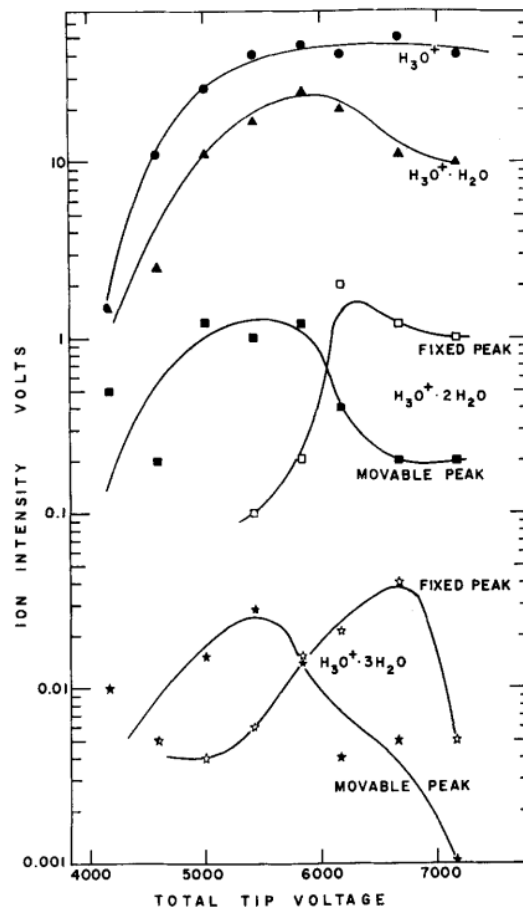


Figure 21: L'intensité en fonction de la tension totale appliquée à la pointe. Fixed peak : zone d'ionisation près de la pointe, movable peak : zone d'ionisation loin de la pointe (Anway et al³⁴).

Divers ions d'oxyde de tungstène ont été observés avec des pointes en tungstène. Mais en utilisant des pointes de métaux nobles (Ir, Pt, Pd...)³⁴ aucun oxyde n'a été observé. Donc pour avoir un courant stable, une durée de vie importante, et une brillance élevée, nous avons opté pour un recouvrement des pointes en tungstène avec des métaux nobles au lieu de faire des pointes avec ces métaux directement, car les pointes que nous arrivons à

faire ne sont pas aussi fines que celle du tungstène. Nous verrons la méthode de recouvrement dans les prochains chapitres.

7. Conductances et régimes d'écoulements :

Pour pouvoir ioniser un gaz, on doit d'abord l'apporter en bout de pointe. Dans toutes les expériences (excepté Konishi et al.⁴) présentées précédemment une pression partielle de gaz ou d'un mélange de gaz est appliquée dans une chambre basse pression. Dans notre cas, la pointe est plongée dans un flux moléculaire, au niveau de l'introduction du gaz dans l'enceinte. Il convient de caractériser ce flux pour connaître l'état du gaz en bout de pointe. Dans cette partie on va donc s'intéresser aux écoulements du gaz dans la structure coaxiale.

7.1. Courbes en pression :

Comme on l'a vu dans la partie deux de ce chapitre, la structure coaxiale se trouve entre deux compartiments. Un compartiment haute pression (P_{hp}) et un compartiment basse pression (P_{bp}). En 2007 Descoins et al.⁶ ont étudié l'évolution de la pression dans l'enceinte en fonction de la pression de gaz injecté. Plusieurs mesures en pression avec différents gaz (hydrogène, hélium et azote) à température ambiante ont été faites, comme on le voit dans la figure 22.

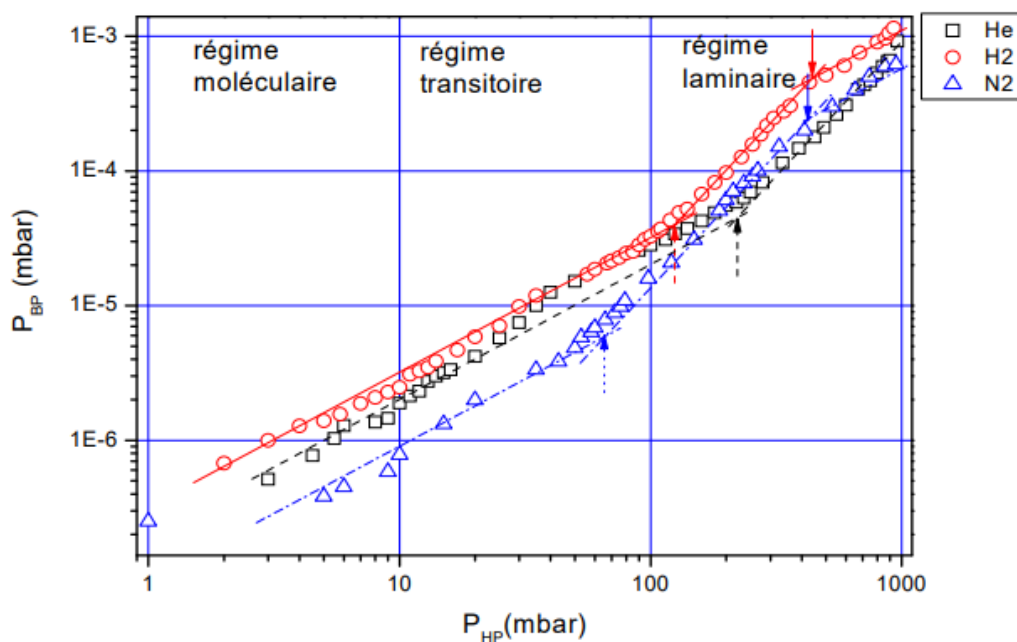


Figure 22: Courbes représentant la pression basse pression (P_{bp}), en fonction de la pression haute pression (P_{hp}) pour différents gaz (extrait de la thèse de Descoins⁶).

En abscisse est représentée la pression de gaz injecté (haute pression) et en ordonnée la pression dans l'enceinte (basse pression) pour l'hélium, l'hydrogène et l'azote. Dans la littérature^{6,37-40}, les régimes d'écoulements sont déterminés en fonction du nombre de Knudsen. Le nombre de Knudsen est un nombre adimensionnel qui compare le libre parcours moyen des molécules λ à une caractéristique géométrique la plus petite du tube, z , avec :

$$K = \frac{\lambda}{z} \quad (17)$$

$$\lambda = \frac{\eta}{P_{hp}} \sqrt{\frac{\pi kT}{2m}} \quad (18)$$

Avec η , la viscosité du gaz en (Pa/s).

La théorie de Knudsen est définie dans la théorie cinétique des gaz, avec une vitesse de molécules donnée par :

$$v = \sqrt{\frac{8kT}{\pi m}} \quad (19)$$

La vitesse est fixée par la distribution de Maxwell-Boltzmann donc par la température.

En 2008²⁴, une géométrie de canal à section rectangulaire de section $S_{rect} = a \cdot b$, comme on le voit sur la figure 23, et de longueur L, avait été choisie pour représenter la géométrie de la structure coaxiale. Dans ce cas, la caractéristique géométrique à utiliser dans le nombre de Knudsen est $z = b$, alors :

$$K = \frac{\lambda}{b} \quad (20)$$

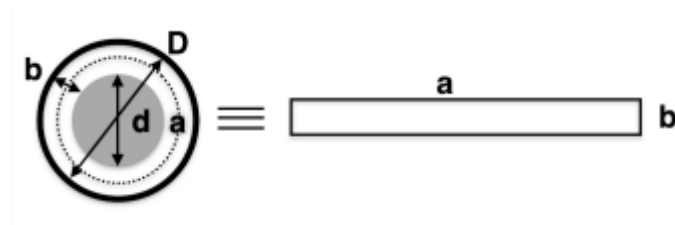


Figure 23: Schéma représentant la géométrie rectangulaire de la CIS.

7.2. Régimes d'écoulements :

Dans la littérature (*vacuum manual*⁴⁰), les régimes d'écoulement d'un canal sont déterminés selon la conductance qui évolue avec la pression haute pression.

La conductance d'un canal correspond à sa capacité à transmettre des molécules d'un compartiment à un autre. Elle est définie comme suit :

$$C = \frac{Q}{(P_{hp} - P_{bp})} \quad (21)$$

Avec Q le débit du gaz donné par :

$$Q = S \cdot P_{bp} \quad (22)$$

S, la vitesse de pompage, P_{bp} , la pression dans la chambre basse pression. P_{hp} , la pression dans la chambre haute pression. P_{bp} est négligeable devant P_{hp} , donc :

$$C = S \cdot \frac{P_{bp}}{P_{hp}} \quad (23)$$

La figure 24 schématise les différents régimes d'écoulement.

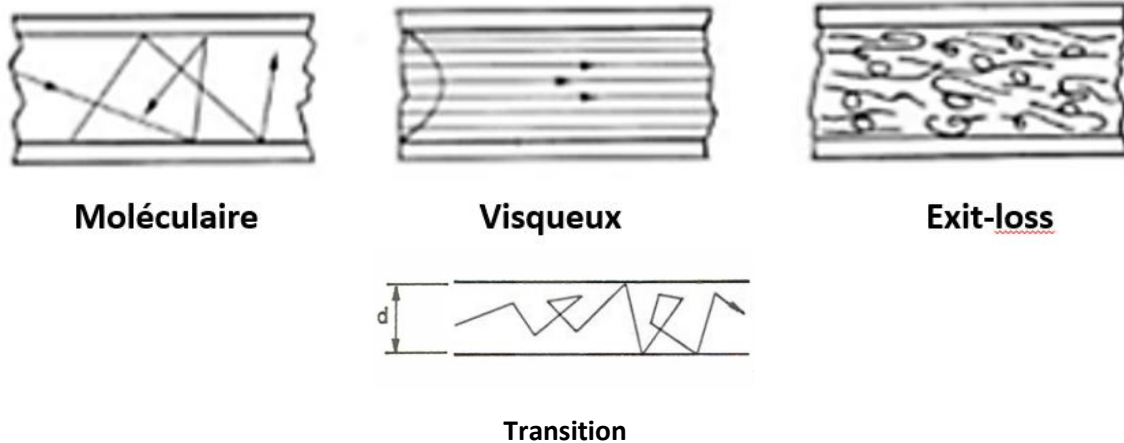


Figure 24: Schéma pour les différents régimes d'écoulement.

7.2.1. Régime moléculaire :

Dans ce régime, la pression de gaz est si faible que le libre parcours moyen des molécules est plus grand que la caractéristique $b \Rightarrow K > 3$. La conductance pour notre section rectangulaire dans ce régime s'exprime comme suit :

$$C_{mol} = \left(\frac{ab^2}{8L}\right) \left(1 + 2\ln\left(\frac{2a}{b}\right)\right) \times \sqrt{\frac{8kT}{\pi m}} \quad (24)$$

Avec k , la constante de Boltzmann, T , la température du gaz, et m , la masse du gaz.

7.2.2. Régime de transition :

En augmentant la pression, le libre parcours moyen devient du même ordre de grandeur que la caractéristique $b \Rightarrow 3 > K > 1/10$. Ce régime a tendance à rendre les mesures instables entre le régime moléculaire et le régime visqueux.

7.2.3. Régime visqueux ou laminaire :

Aux fortes pressions, le débit moléculaire augmente. Le gaz s'écoule régulièrement dans le tube suivant des filets parallèles aux parois en absence de forces extérieures avec une vitesse moyenne qui reste dominée par la température. Le libre parcours moyen est inférieur à la caractéristique $b \Rightarrow 1/10 > K > 1/100$. La conductance s'exprime comme suit :

$$C_{visq} = \left(\frac{\pi ab^3}{96L}\right) \times \frac{1}{\lambda} \times \sqrt{\frac{8kT}{\pi m}} \quad (25)$$

On peut noter que dans le régime visqueux la conductance est proportionnelle à la pression, alors qu'elle est constante dans les autres régimes.

7.2.4. Régime exit-loss :

Le régime exit-loss est un régime caractéristique d'un diaphragme (orifice). Dans ce régime, la vitesse des molécules atteint la vitesse du son (Mach 1 : 340 m/s). Ce régime d'écoulement est discuté par Santeler⁴¹, il correspond à un régime qui limite l'augmentation de la pression. Dans ce régime tout dépend de la dimension de la sortie du tube $\Rightarrow 1/100 > K$. La conductance s'exprime comme suit :

$$C_{exit-loss} = C_0 \sqrt{\frac{\pi}{8}} ab \times \Gamma \times \sqrt{\frac{8kT}{\pi m}} \quad (26)$$

Avec C_0 , un coefficient adimensionnel dépendant de la géométrie de l'orifice et Γ qui dépend des paramètres du gaz, il est égal à 0,725 pour les gaz monoatomiques et à 0,685 pour les gaz diatomiques.

7.3. Conductances :

Pour mieux déterminer les régimes d'écoulements, Descoins et al.²⁴ ont décidé de représenter les conductances du système. Le système est déterminé par les dimensions géométriques de la structure coaxiale à travers laquelle on fait passer un volume de gaz

par seconde, et une vitesse de pompage qui correspond au volume de gaz sortant de la chambre basse pression par seconde.

La figure 25 montre les résultats de la conductance C en fonction de la pression haute pression pour trois gaz à température ambiante²⁴.

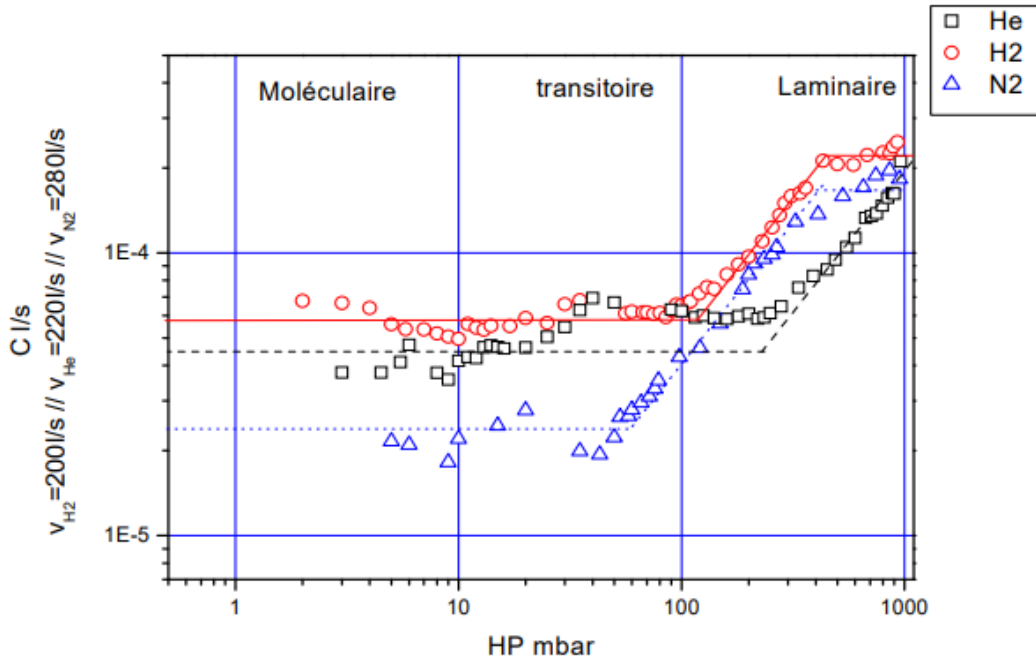


Figure 25: Conductance en fonction de la pression haute pression pour différents gaz à température ambiante²⁴. $S_{H_2} = 200 \text{ l/s}$; $S_{He} = 220 \text{ l/s}$; $S_{N_2} = 280 \text{ l/s}$.

La conductance est constante dans le régime moléculaire (et de transition), puis elle augmente linéairement dans le régime visqueux (laminaire) jusqu'à atteindre le régime exit-loss à des pressions très élevées.

Dans la littérature la conductance est généralement représentée en fonction de l'inverse du nombre de Knudsen, ou de l'inverse du libre parcours moyen, pour des systèmes proches de la structure coaxiale. Tison et al.⁴² ont fait des mesures de conductance avec un tube en inox avec un diamètre constant, et deux tubes en inox sertis, avec différents gaz. Ils ont comparé ces mesures aux résultats obtenus avec la modélisation du modèle de Knudsen et un modèle appelé « slip flow » où la vitesse du gaz est non nulle sur les parois du tube dans le régime visqueux. Leurs résultats montrent que les mesures faites avec des capillaires sertis suivent parfaitement le modèle « slip flow », et ne suivent pas le modèle de Knudsen. Dans le cas de tubes lisses, leurs résultats suivent le modèle de Knudsen. Ces résultats indiquent que la conductance peut présenter un minimum au niveau du régime de transition, entre le régime moléculaire et le régime visqueux comme on le voit sur la figure 26.

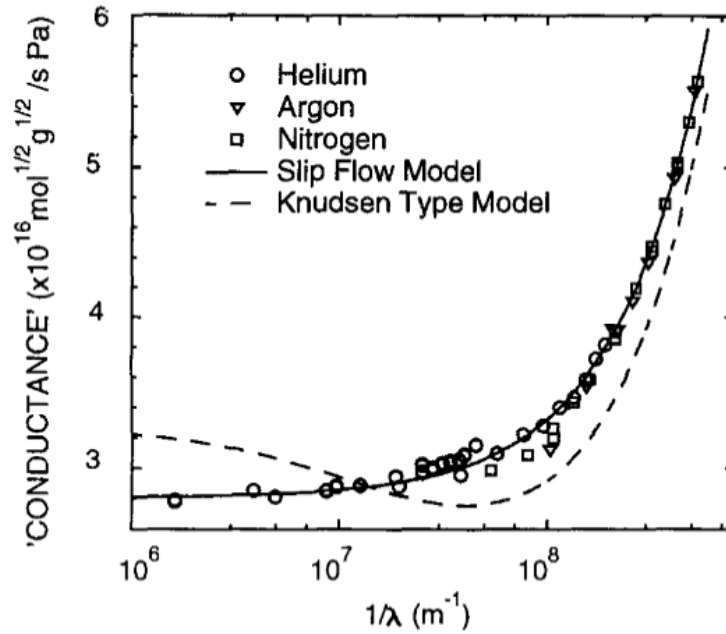


Figure 26: La conductance en fonction de l'inverse du libre parcours moyen avec un tube serti⁴².

Pour déterminer les régimes d'écoulements, Hanlon³⁷ a fait une comparaison de son modèle avec plusieurs résultats expérimentaux pour des systèmes rectangulaires de longueur L , d'épaisseur e , et de largeur w . Dans les expériences, les valeurs de L varient de 0.8 à 11.5 cm, les valeurs de e , de 0.03 à 0.1 cm, w reste constant, égal à 5 cm. Le modèle de Hanlon considère les conductances telle qu'on les a décrites ci-dessus, excepté qu'il considère des régimes d'écoulements en séries dans les systèmes rectangulaire long.

La figure 27 issue du livre de Hanlon⁴³ présente le débit moléculaire divisé par la taille du capillaire (Q/d) en fonction de la pression multipliée par la distance ($P.d$), pour différentes géométries du capillaire. Ce graphique illustre parfaitement les différents régimes d'écoulements en fonction des caractéristiques géométriques du système. Dans le cas de la structure coaxiale on s'attend à être dans la partie comprise entre $50 < L/d < 500$ (le résultat est présenté page 83).

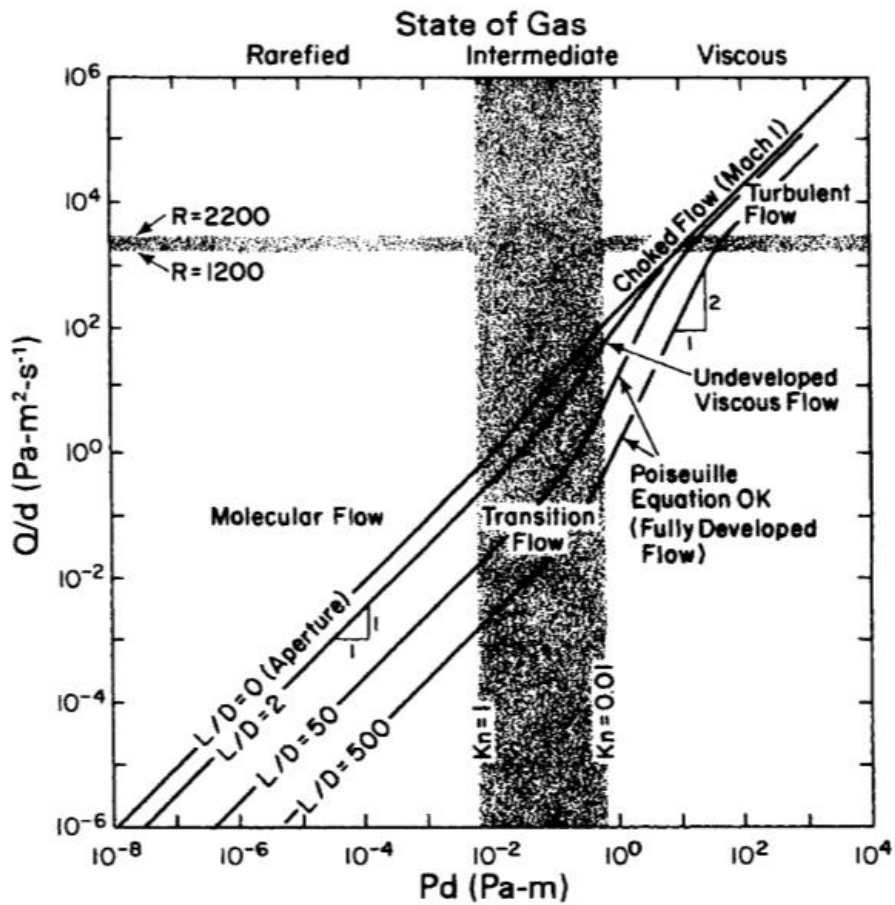


Figure 27: (Q/d) vs. $(P.d)$ pour différentes géométries du capillaire (extrait de Hanlon⁴³).

Conclusion

Dans ce chapitre j'ai introduit le principe du processus physique de l'émission de champ. On a vu que les caractéristiques d'une source d'ions pour son utilisation pratique dans une colonne FIB sont : la brillance qui contient la taille de la source et l'intensité angulaire, la stabilité et la durée de vie, et la dispersion énergétique. Les sources GFIS (type HIM, SAT) sont plus favorables pour être utilisées dans une colonne FIB en raison de leurs brillances qui est supérieure de trois ordres de grandeurs par rapport aux LMIS, et aussi leurs faibles dispersions énergétiques, la seule raison pour laquelle les LMIS sont les plus utilisées à ce jour dans les FIB, est que les GFIS sont chères financièrement car elles imposent des contraintes techniques exigeantes, et que les sources plasma malgré leurs avantages d'une abrasion rapide sont des sources avec une résolution faible $\sim 30\text{nm}$.

En ionisation de champ, tous les travaux présentés précédemment ont montré que le courant ionique évolue selon deux pentes. La première pente est limitée par le champ électrique et la seconde est limitée par la fonction d'apport. On a vu également que le courant ionique évolue linéairement en fonction de la pression basse pression pour tous les travaux (pression partiel ou locale), excepté ceux de Konishi et al⁴. Quand ils injectent le gaz directement dans le FIM, l'augmentation de la température de la pointe par conduction thermique provoque un léger fléchissement de cette linéarité à plus forte pression.

On a vu que la diminution du courant au cours des expériences, et l'augmentation du rayon des pointes est dû à la corrosion du tungstène sous champ électrique, en présence d'eau.

Les régimes d'écoulements pour des systèmes proches de la structure coaxiale ont été caractérisés en fonction du nombre de Knudsen et de l'inverse du libre parcours moyen. Les régimes d'écoulements de la structure coaxiale ont été déterminés en traçant la conductance en fonction de la pression haute pression. Cette méthode ne permet pas de faire une comparaison des transitions des régimes d'écoulements pour les différents gaz. Il est donc important de compléter ces résultats dans le cas de la structure coaxiale.

L'avantage de la structure coaxiale est qu'elle peut être utilisée avec différents gaz à température ambiante. De plus, l'apport du gaz en bout de pointe est localisé avec la structure coaxiale, ce qui va permettre, pour les mêmes conditions de pression dans l'enceinte, l'augmentation de la fonction d'apport, et donc l'augmentation du courant ionique.

Le principe de fonctionnement du microscope à projection décrit dans ce chapitre sera utilisé dans toutes les expériences de caractérisation de la source d'ions à structure coaxiale présentées dans les prochains chapitres.

Chapitre 2 : Matériel et méthodes

Ce chapitre présente les différents outils et méthodes (capillaires, gaz, pompes, jauges, et appareils de mesures) utilisés durant ma thèse. La fabrication de la source d'ions à structure coaxiale (CIS), la préparation et la méthode de recouvrement des pointes sont expliquées. Les différentes configurations de mesures des pressions et du courant ionique sont décrites.

1. Source d'ions à structure coaxiale :

La source d'ions à structure coaxiale est composée d'un capillaire en céramique (ou en quartz) collé avec de la colle époxy sur une bride CF16. L'injection de gaz se fait à travers ce capillaire en céramique, de la chambre haute pression vers la chambre basse pression. Le gaz est ensuite guidé vers le bout de la pointe à travers un capillaire en inox comme on le voit sur la figure 28-a. Le fil de tungstène (diamètre : $d = 125\mu\text{m}$) est inséré dans le capillaire en inox de diamètre : $D = 150$ ou $170\mu\text{m}$ et de longueur : $L = 0.6$ cm. Le fil de tungstène et le capillaire en inox sont insérés dans un manchon qui est précédé par le capillaire en céramique. Le fil de tungstène est taillé électro-chimiquement en pointe ultrafine d'un rayon $r \sim 10$ nm. La pointe est ensuite rétractée à l'intérieur du capillaire en inox, en contrôlant la position de l'apex en dehors du capillaire en inox (la pointe sort d'environ $l \sim 130\mu\text{m}$). Pour garantir l'étanchéité de la source, le capillaire en inox, le fil de tungstène, et le capillaire en céramique sont collés au niveau du manchon, comme on le voit sur la figure 28-b.

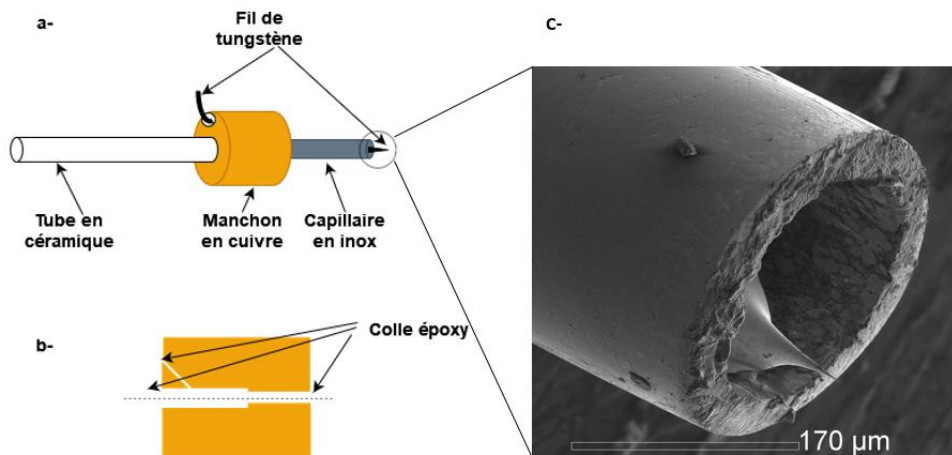


Figure 28: Schéma de la structure coaxiale : -a- Vue globale de la structure CIS ; -b- Vue en coupe du manchon en cuivre reliant le tube en céramique (à gauche) et le capillaire en inox (à droite) dans lequel est inséré le fil de tungstène ; -c- Image au microscope électronique à balayage de la sortie basse pression de la CIS.

Une fois que l'ensemble (manchon, pointe, tube en inox, et tube en céramique ou quartz) est monté en structure coaxiale comme on le voit sur la figure 29, la structure coaxiale est mise au four pendant 24H à 145°C pour éliminer toute l'eau résiduelle et pour limiter les disruptions qui peuvent avoir lieu au niveau du capillaire en céramique (ou en quartz) au moment de la polarisation de la pointe. Les tensions de disruption (V_e) suivent la loi de Paschen $V_e = f(P \cdot d)$ une fonction non linéaire du produit de la pression du gaz P, par la distance entre les électrodes d. Dans notre cas c'est la pression du gaz dans le capillaire en quartz qui est isolant, et sa longueur qui fait la distance entre les deux électrodes (la pointe et l'extracteur). On chauffe aussi la structure pour éliminer les solvants de la colle époxy qui pourraient ensuite dégazer sous vide et nuire à l'ultra vide dans la chambre basse pression.

La polarisation de la pointe est faite à travers un disque en cuivre qui maintient le manchon. Les « tubes en céramique pleine » servent à aligner et maintenir le disque avec des vis, et sont collés avec de la colle époxy sur la bride CF16 comme le montre la figure 29.

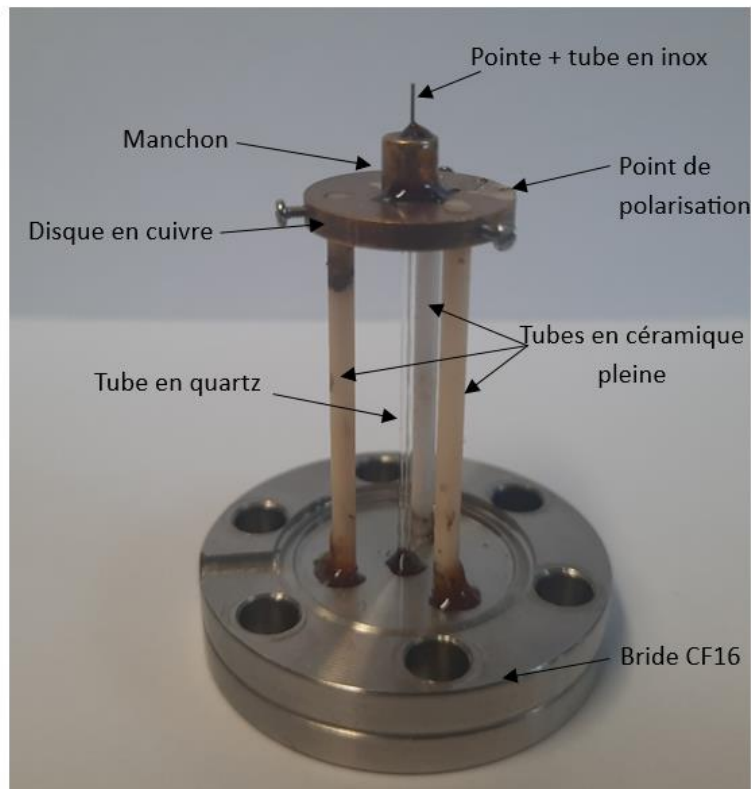


Figure 29: Photo du montage de la structure coaxiale.

1.1. Préparation des pointes :

Durant ma thèse, toutes les expériences ont été effectuées avec des pointes en tungstène polycristallin. Le choix du tungstène est fait par rapport à sa dureté (facile à manipuler), et à la possibilité de tailler des pointes ultrafines sur lesquelles des études antérieures ont été faites par la communauté scientifique de l'émission de champ²³. La préparation de la pointe se fait dans un bécher qui contient une solution électrolytique (soude à 20%). On plonge le fil de tungstène qui constitue l'anode avec une certaine longueur, et un fil de molybdène qui constitue la cathode.

Une plaque en plastique permet de séparer les deux électrodes afin de faciliter le suivi de l'attaque du fil, car il y a des bulles qui se forment lors de l'attaque, et si ces bulles arrivent à l'interface liquide-air (ménisque), elles font bouger le ménisque et interrompent la réaction en arrêtant l'attaque (attaque alternative -> bulles sur le fil de tungstène, et attaque continue -> bulles sur le fil de molybdène).

La longueur du fil de tungstène plongée dépend de son diamètre et est contrôlée par un micromanipulateur, l'attaque est suivie par un microscope optique de grandissement x25.

Un courant alternatif est appliqué en premier lieu pendant quelques secondes pour le nettoyage et le polissage du fil de tungstène. Ensuite, une attaque en courant continu est effectuée. Le fil de tungstène est aminci progressivement jusqu'à ce qu'un étranglement se forme à l'interface liquide-air (ménisque) jusqu'à sa rupture finale comme on le voit sur la figure 30. Un multimètre est placé en série pour mesurer la décroissance du courant au moment de la rupture finale. Le fil taillé en pointe est ensuite rincé à l'eau distillée pour éliminer tous les produits résiduels après l'attaque.

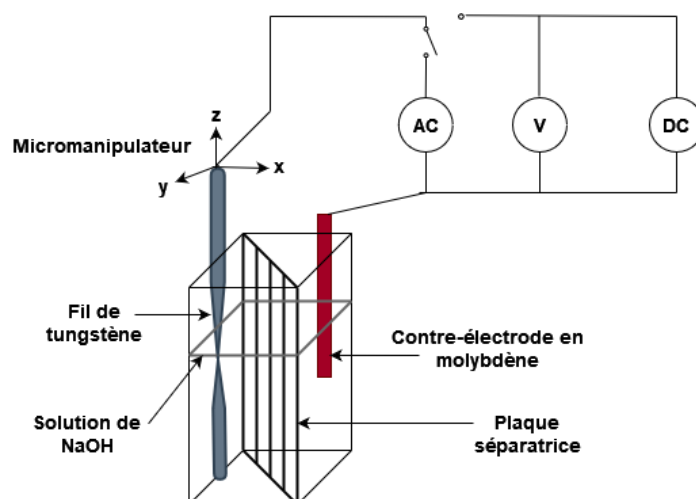
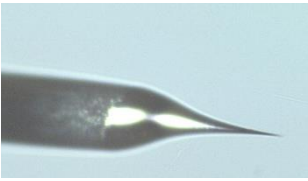
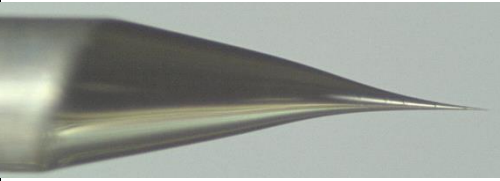
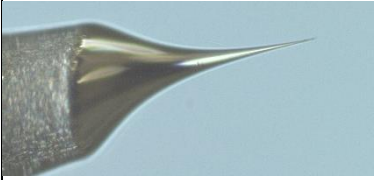


Figure 30: schéma explicatif de la préparation des pointes en tungstène.

Les conditions de préparation des pointes sont résumées dans le tableau ci-dessous :

1.2. Conditions de préparations :

	Pointe 1	Pointe 2	Pointe 3
D du fil de tungstène (μm)	50	125	150
Fréquence	100 mHz	250 Hz	250 Hz
Amplitude	10 V CC	10 V CC	10 V CC
Longueur plongée 1 (μm)	1375	2000	800
Temps (s)	7	13	12
Longueur plongée 2 (μm)	1250	925	750
Courant1 (mA)	10	10	17
Courant2 (mA)	0.5	1.5	1
Rayon (nm)	9	10	5
Image au microscope optique			

Les figures 31, et 32 montre les images de différentes pointes prises au microscope électronique à transmission.

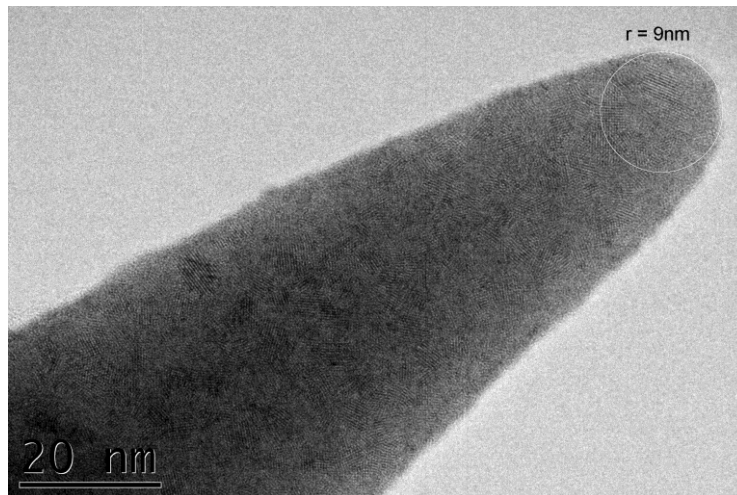


Figure 31: Image sous TEM d'une pointe en tungstène de diamètre : 50 μ m

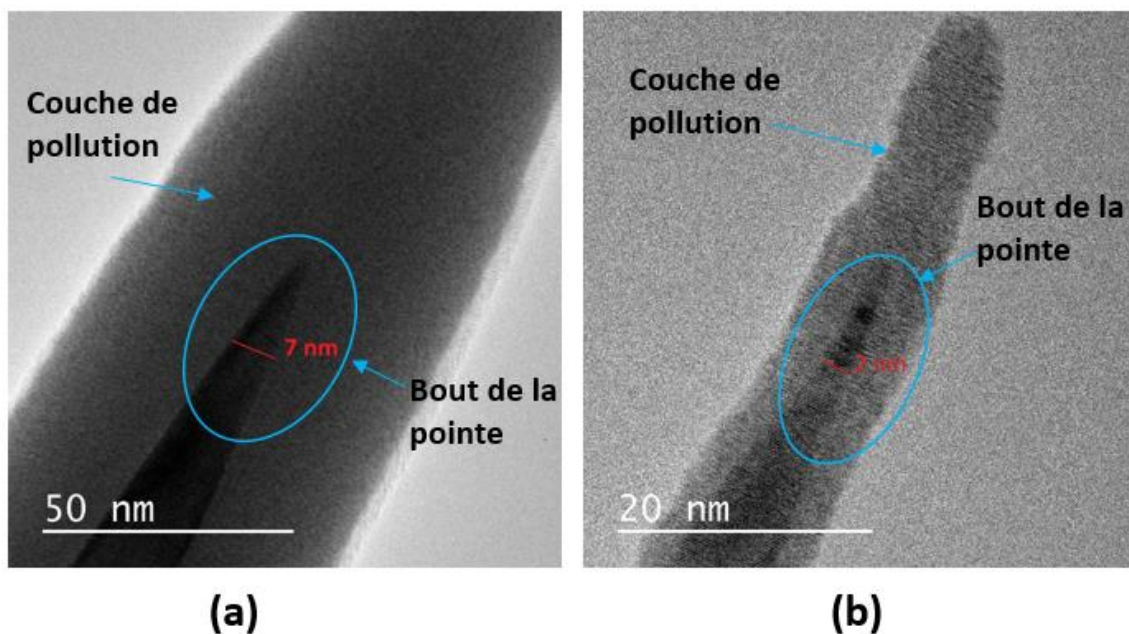


Figure 32: (a) Image sous TEM d'une pointe en tungstène de diamètre : 125 μ m. (b) Image sous TEM d'une pointe en tungstène de diamètre : 150 μ m.

Remarque : La couche qu'on voit autour de la pointe est une contamination qui se forme lors du réglage du faisceau.

1.3. Recouvrement des pointes :

On a vu au chapitre précédent que les pointes en tungstène se corrodent sous champ électrique en présence d'eau^{25,34}. Pour éviter cette corrosion on a décidé de recouvrir les pointes avec des couches fines de métaux nobles qui ne réagissent pas avec l'eau sous champ, notamment le palladium et l'iridium. Le dépôt peut se faire avec différentes méthodes, comme le dépôt par évaporation sous vide « ALD : *Atomique Layer Deposition* », ou le dépôt par voie électrochimique. Pour ma thèse, on a décidé d'utiliser la méthode du

dépôt par voie électrochimique car c'est plus adapté à un développement industriel. Dans cette partie je vais expliquer les étapes à suivre pour effectuer le dépôt de palladium.

En premier lieu on procède à la préparation des solutions. La première solution est une solution d'acide chlorhydrique, elle est utilisée pour le nettoyage des pointes avant de commencer le dépôt. Pour la préparer on dilue 30µl de HCl dans 10 ml d'eau distillée pour avoir une concentration de 0.1 M de HCl.

La deuxième solution contient du PdCl₂ pour le dépôt de palladium. Après avoir testé différentes concentrations de palladium pour différents temps de dépôts, une concentration de 0.01mM a été choisie. Cela permet de déposer suffisamment lentement pour contrôler manuellement le temps de dépôt et garder un rayon de courbure inférieur à 200nm.

La préparation de PdCl₂ se fait comme suit :

On veut une solution avec une concentration de 0.01 mM, donc on calcule la masse m qu'il faut diluer dans 10 ml d'eau :

$$[PdCl_2] = \frac{n}{V} = \frac{m}{MV} \Rightarrow m = [PdCl_2] \times M \times V \quad (1)$$

Avec $[PdCl_2]$, la concentration en mol/l, M, la masse molaire de PdCl₂ en g/mol, et V le volume dans lequel on va diluer notre solution en ml.

$$M = M_{Pd} + 2M_{Cl} \quad (2)$$

On trouve M = 177.3 g/mol, donc on peut calculer la masse m qu'il nous faut :

$$m = 0.01 \times 10^{-3} \times 177.3 \times 10 \times 10^{-3} = 1.77 \times 10^{-5} g \quad (3)$$

La masse m est la valeur exacte qu'il nous faut pour avoir la concentration de 0.01 mM, on revient à la concentration exacte selon la pesée précise à 10 µg près de la balance.

1.3.1 Dispositif expérimental :

Trois électrodes sont utilisées. Une électrode de travail (E_T) qui est notre pointe en tungstène, une contre électrode (E_C) en platine, et une troisième électrode en platine, appelée électrode de référence (E_{ref}), qui permet de maintenir une tension constante entre l'électrode de travail et la contre-électrode : Au moment du dépôt les paramètres de la solution changent avec l'appauvrissement des espèces ioniques au cours de la réaction, cela entraîne des instabilités. Pour cela un potentiostat est utilisé, il est doté de deux amplificateurs opérationnels différents : un amplificateur soustracteur dont la sortie dépend de la différence de tension entre l'électrode de référence et l'électrode de travail et qui fixe donc le courant "feedback", et un amplificateur actionneur, assurant la contre-réaction pour stabiliser la tension appliquée à la contre-électrode.

Le principe du potentiostat est le suivant :

- Une tension de consigne E_{cons} est imposée. Cette tension est appliquée entre l'électrode de travail et la contre-électrode. En introduisant une électrode de référence, on s'assure avec le potentiostat de maintenir une valeur de tension aussi proche que possible de E_{cons} en permanence.
- En sortie du premier amplificateur, si la différence de potentiel est nulle, cela signifie que $I_{feedback}$ est nulle et donc que $E_T - E_{ref} = 0$. Sinon, une valeur de tension proportionnelle à $I_{feedback}$ est injectée à l'amplificateur actionneur pour que la différence de potentiel soit très proche de la valeur de consigne.
- Enfin l'amplificateur actionneur est équipé d'un système de rétroaction négative. Il permet d'une part de corriger la valeur de tension qui sera finalement fixée entre la contre-électrode et l'électrode de travail et d'autre part de réduire l'effet du bruit et des perturbations. Ainsi on mesure le courant et le potentiel qui traverse l'électrode de travail. Le dispositif expérimental est représenté sur la figure 33.

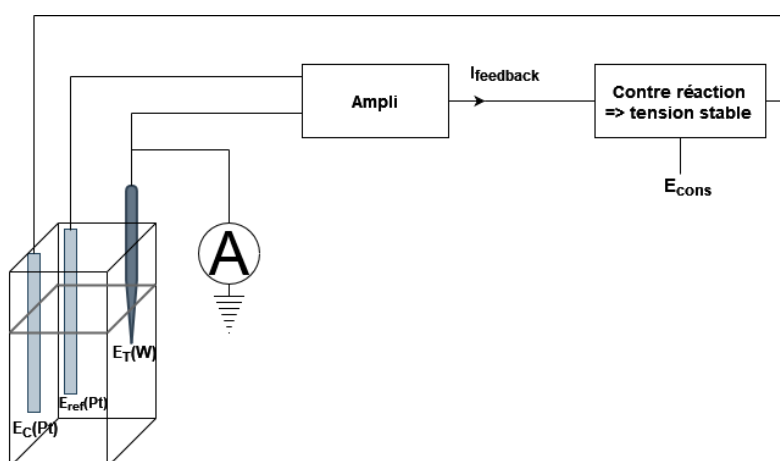


Figure 33 : Schéma du montage expérimental.

Le dépôt par voie électrochimique se fait en deux étapes :

- Gainage des pointes
- Dépôt du palladium

1.3.2 Gainage des pointes :

Une fois que le fil de tungstène est taillé en pointe comme on l'a vu précédemment, on procède au gainage de la pointe. Le gainage se fait pour limiter la zone de dépôt. Comme l'ionisation de champ se fait au niveau de l'apex de la pointe c'est cette partie-là qui est la plus exposée à la corrosion. Avec le gainage, la surface de dépôt est limitée à l'apex de la pointe, cela permet d'économiser du produit de dépôt, généralement assez onéreux tout en garantissant un dépôt spécifique sur la zone visée.

Le gainage de la pointe permet de l'isoler, il est possible de le faire avec du vernis à ongle ou de la cire d'abeille. D'après des études faites par Z. Hammadi, la cire d'abeille a tendance à se désagréger malgré sa bonne mouillabilité, d'où le choix d'utiliser du vernis à ongle.

Pour gainer la pointe on prend un petit tube rempli de vernis, puis on plonge la pointe dedans (figure 34-a). En observant la pointe au microscope optique on constate que l'ensemble de la partie plongée est gainé sauf l'apex comme on le voit sur la (figure 34-b). Cela est due à la tension de surface du vernis qui impose un angle de mouillabilité minimum qui ne peut être atteint en bout de pointe.

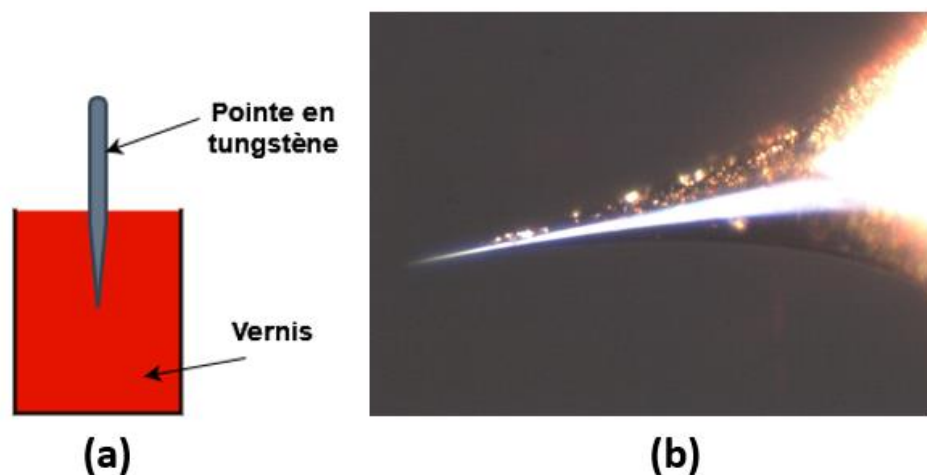


Figure 34 : -a-schéma montrant le gainage de la pointe, -b- image sous microscope optique de la pointe gainée.

Une fois que la pointe est gainée, elle est nettoyée à l'acide chlorhydrique HCl. On plonge la pointe de 25 Div => 625 μm , on règle la tension à -0.6V, et on fait le nettoyage pendant 3 minutes. Le nettoyage à l'acide chlorhydrique permet de dissoudre l'oxyde natif du tungstène pour garantir une meilleure adhésion entre le palladium et le tungstène.

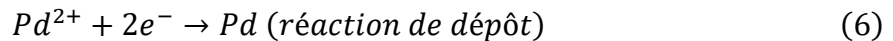
1.3.3 Dépôt de palladium :

Le dépôt de palladium se fait avec du PdCl₂, les réactions chimiques qui peuvent apparaître à l'anode (E_C), et à la cathode sur laquelle se fait le dépôt (E_T) sont les suivantes :

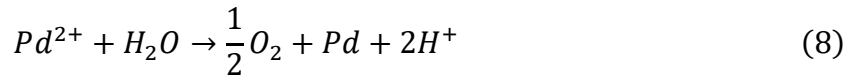
Anode (+) (E_C) :



Cathode (-) (E_T) :



L'oxydant le plus fort réagit avec le réducteur le plus faible, ce qui donne :



On souhaite obtenir un dépôt de quelques monocouches. Trouver les conditions idéales de dépôt relève de la capacité à trouver un équilibre sur le rapport tension de consigne/ temps.

Théoriquement, le calcul du temps de dépôt se fait selon la loi de l'électrolyse de Faraday :

$$t = \frac{\rho e S n F}{i M} \quad (9)$$

Les paramètres utilisés sont les suivants :

$\rho=12.02\text{g/cm}^3$, $n=2$, $M(\text{Pd})=106.42\text{g/mol}$, $F=96\,500\text{C/mol}$, $S=\pi r l=\pi l^2 \tan(\alpha)$ où $\alpha=6.5^\circ$ est le demi-angle de cône et $l=15\ \mu\text{m}$. On suppose que l'épaisseur visée est de $e=50\text{nm}$. Pour une tension de -0.6V , un courant utile de 3.8nA est mesuré, cela conduit à 10monocouches/sec . Nous devrions donc faire un dépôt de 23sec . En réalité, j'applique 8sec de temps de dépôt, nous allons voir pourquoi.

Une fois que le dépôt est fait, il peut être observé au microscope électronique à balayage. L'analyse chimique en spectroscopie à dispersion d'énergie de rayon X (EDX) est plus particulièrement utilisée.

Je montre sur la figure 35 des résultats obtenus avec les conditions suivantes : ($U=-0.6\text{V}$, $t=8\text{s}$).

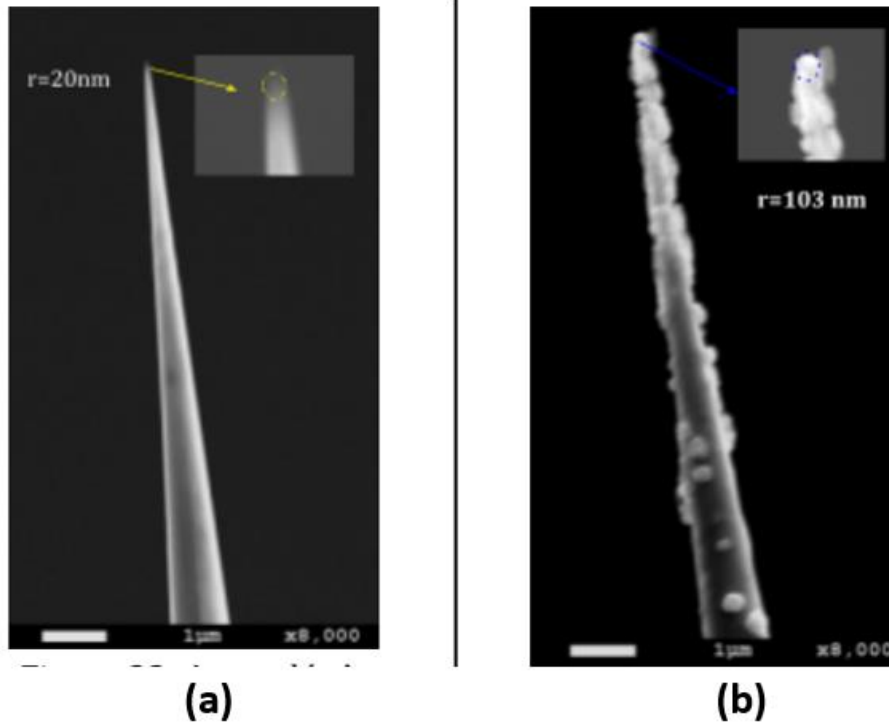


Figure 35 : -a- Pointe avant dépôt, -b- Pointe après dépôt.

La figure 35(a) montre la pointe avant dépôt avec un rayon de courbure de 20 nm, et la figure 35(b) montre l'image de la même pointe après dépôt avec un rayon de 103 nm. On voit bien que le dépôt ne se fait pas sous forme bidimensionnelle mais sous forme de cristallites et plus particulièrement en bout de pointe. Le temps de dépôt est dès lors plus difficile à maîtriser ! Cependant, ces conditions de dépôt bien que perfectibles s'accordent aux résultats souhaités : la nature chimique du matériau a été vérifiée par EDX comme on le voit sur la figure 36, et le rayon de courbure reste inférieur à 200nm.

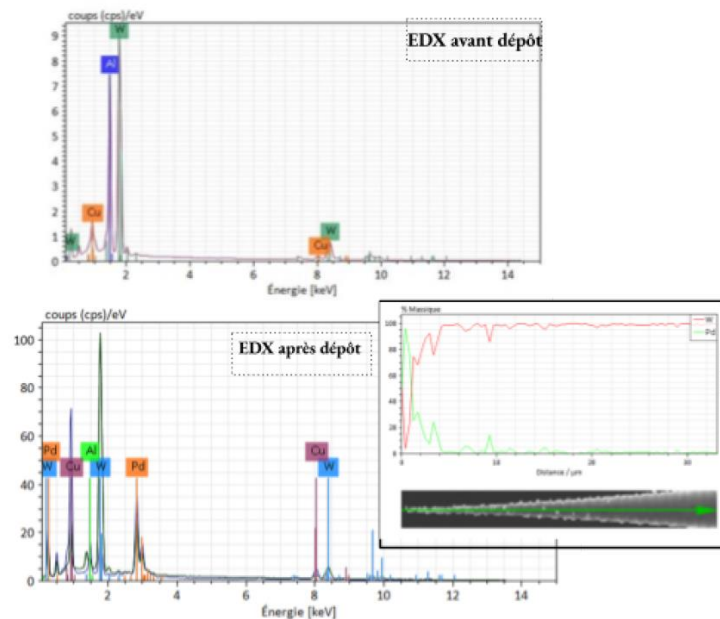


Figure 36 : Analyse chimique de la pointe par EDX

L'analyse chimique nous a permis de vérifier si l'élément déposé est bien présent (figure 36), il est possible de faire ce que l'on appelle un "Profil". Il nous permet de vérifier la proportion de palladium par rapport au tungstène et sur quelle longueur se fait le dépôt. Cette technique comporte des limites car la sensibilité au voisinage des bords et au milieu de la pointe du palladium par rapport au tungstène est différente.

Pour réaliser la structure coaxiale avec une pointe recouverte de palladium, j'insère le fil dans le manchon et le tube en inox, je prépare la pointe puis la recouvre de palladium. J'utilise les mêmes conditions de dépôt c'est-à-dire ($U = -0.6V$, $t = 8s$). Après avoir chauffé l'ensemble de la structure coaxiale au four pendant 24H à $145^{\circ}C$ je l'observe au MEB, la figure 37 montre l'image obtenue de la pointe après dépôt.

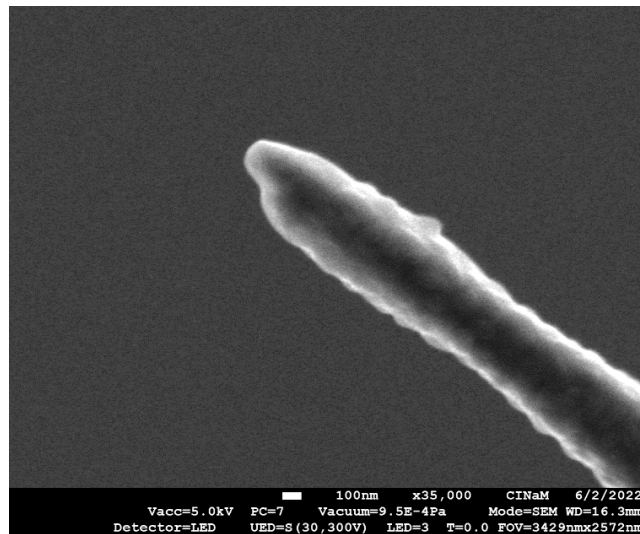


Figure 37: Image MEB d'une pointe recouverte de palladium.

Le rayon de courbure de la pointe est de 119 nm, on voit que le dépôt est un peu plus uniforme par rapport à celui qu'on voit sur la figure 35. On pense que cela est dû au chauffage. Les résultats d'ionisation de champ avec cette structure seront présentés dans le prochain chapitre.

1.3.4 Chauffage des pointes après recouvrement

Pour uniformiser le dépôt de palladium sur les pointes, on a choisi de chauffer les pointes après le dépôt. On a mis en œuvre une expérience à part dans une chambre sous vide pour chauffer la pointe par effet joule avant le collage de la structure coaxiale. La figure 38 montre le schéma du dispositif expérimental.

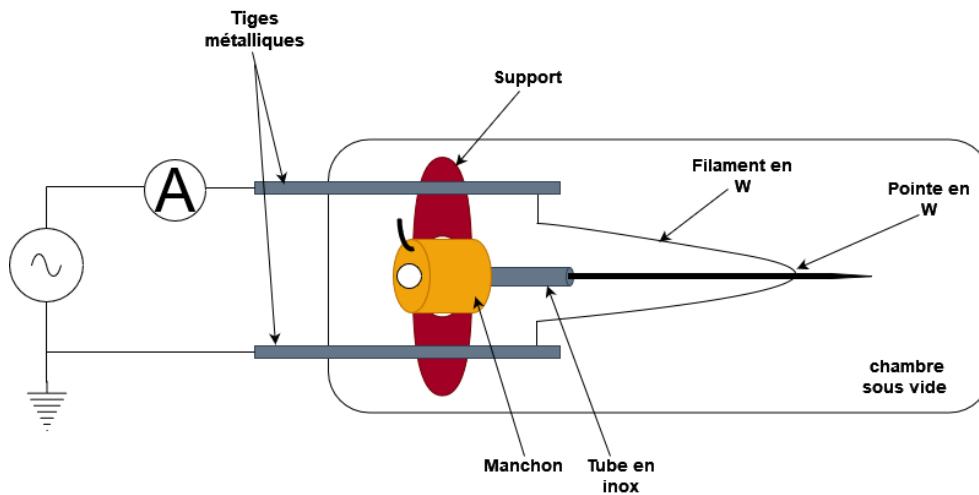


Figure 38: Dispositif expérimental qui permet de chauffer la pointe.

Comme on le voit sur la figure 38 l'ensemble (manchon, tube en inox, et pointe) est maintenu sur le support. Un filament en tungstène est soudé sur les deux tiges métalliques et le fil comportant la pointe est mis en contact avec le filament. Tout l'ensemble est vissé sur une bride CF38 comme sur la figure 39.

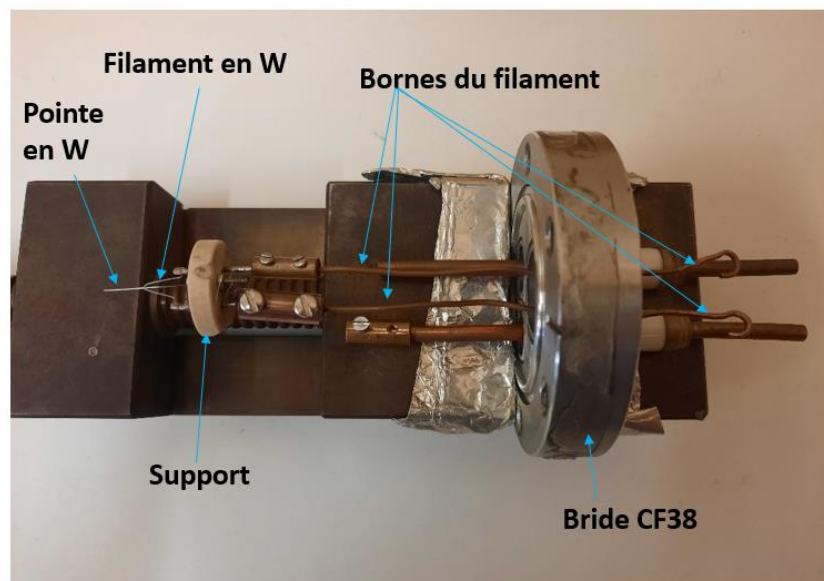


Figure 39: Photo du dispositif expérimental.

La pointe chauffe par conduction thermique, je monte petit à petit la tension aux bornes du filament en tungstène, qui chauffe la pointe. On mesure le courant débité dans le filament pour repérer les conditions de chauffage. Je monte en tension jusqu'à ce que le filament en tungstène devienne orange, cela signifie qu'on est à environ 700°C comme sur la figure 40, et je laisse une minute puis je redescends en tension à 0V.

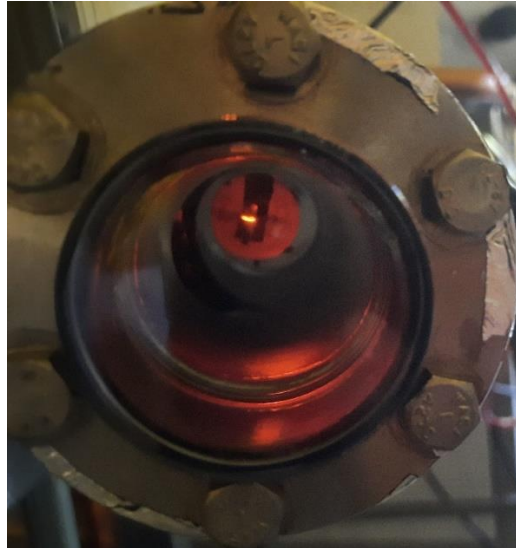


Figure 40: Photo du filament à son maximum de chauffage.

Plusieurs expériences ont été faites avec cette méthode. Bien que cette méthode de chauffage ne soit pas encore optimisée les résultats seront présentés dans le prochain chapitre. Pour optimiser la méthode il faut faire un suivi de la forme des pointes en fonction des paramètres de chauffage (Température de chauffage, et temps de chauffage).

2. Système de pompage et injection de gaz :

On a vu dans le premier chapitre que la structure coaxiale se trouve entre deux compartiments : un compartiment haute pression (P_{hp}) et un compartiment basse pression (P_{bp}). Avoir un vide poussé dans la chambre basse pression est primordial pour réduire les collisions entre les ions et les molécules de gaz.

Les deux chambres ont une même pression initiale, elles sont pompées avec une pompe primaire sèche type (Agilent IDP-7 Dry Scroll Pump) qui assure un vide primaire. L'ultravide ($10^{-9}mbar$) sera obtenu par un système de pompage qui comporte une pompe turbo-moléculaire (TwisTorr305. Agilent), et une pompe ionique après un étuvage. La connexion entre les deux compartiments et leurs systèmes de pompage se fait avec des vannes d'arrêt et des tubes métallique flexibles (soufflet ou tuyaux souples), comme on le voit sur la figure 41.

L'étuvage consiste à chauffer tout le système à environ $110^{\circ}C$ pour dégazer les parois et éliminer l'eau. Le chauffage est fait généralement pendant 24 à 48 heures. Lorsque le chauffage est arrêté, on laisse refroidir le système jusqu'à température ambiante, un vide de $10^{-9}mbar$ est ainsi obtenu. L'étuvage doit être renouvelé à chaque fois que le système est exposé à l'air.

La pression dans la partie haute pression est mesurée avec une Jauge à membrane Haenni (ED 510/421.411/025 from Haenni), dont la gamme de mesure s'étend de 0.5 à 999 mbar. La pression dans le compartiment basse pression est mesurée par une jauge à cathode froide (full range gauge de chez Varian).

Le gaz provient d'une bouteille sous pression de type 'minican' avec une pureté de 99.5%, à travers une ligne d'injection dont l'étanchéité est assurée avec des swagelok. Un sublimateur de titane pour piéger l'eau qui pourrait être présente dans le gaz est installé sur la ligne de gaz juste avant la vanne de fuite qui permet de contrôler la pression de gaz injecté (voir la figure 40).

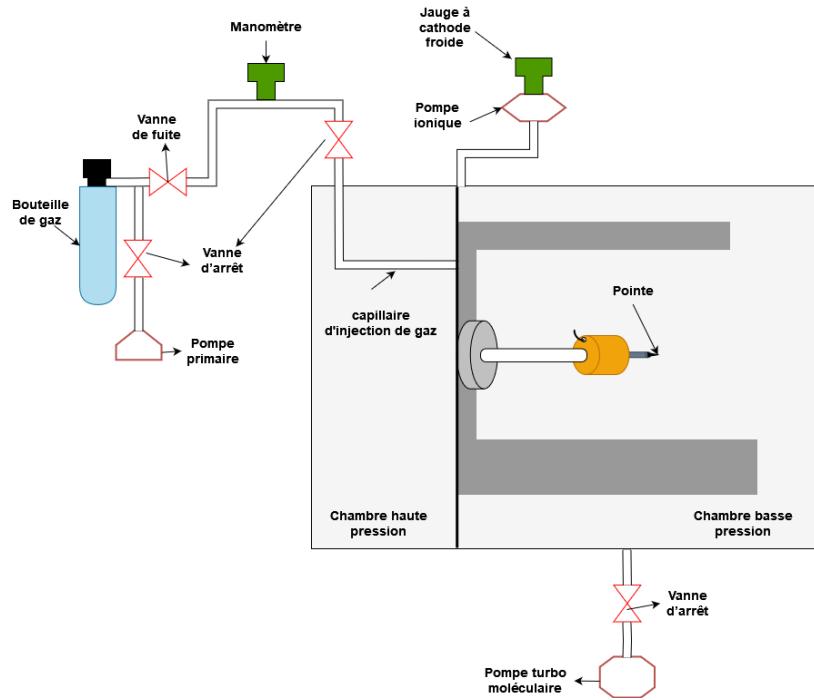


Figure 41: Schéma de l'ensemble du dispositif expérimental.

Ce dispositif expérimental nous a permis de mesurer la pression basse pression en fonction de la pression haute pression pour les différents gaz, et donc de caractériser les régimes d'écoulement de la structure coaxiale en calculant la conductance, comme on l'a vu dans le chapitre 1 (Conductances). Pour ce calcul, il faut connaître la vitesse de pompage effective de chaque gaz. Ces vitesses de pompage effectives sont mesurées avec un spectromètre de masse (QMG-064 from Balzers) dont la bande passante peut atteindre 20Hz. Il est installé dans la chambre basse pression. Je présenterai les résultats obtenus dans le chapitre « résultats et discussions ».

3. Mesures électriques :

3.1. Configuration initiale :

La figure 42 montre la configuration initiale de l'expérience à mon arrivée en thèse avec laquelle les premiers résultats ont été obtenus. La structure coaxiale est fixée avec la bride CF16 sur un plateau tournant, l'étanchéité est assurée par un joint viton placé entre la bride et le plateau. Une grille extractrice (ou diaphragme) est placée sur des micromanipulateurs (piézo-électrique), et tout l'ensemble est fixé sur le plateau tournant. À 25 cm de la source se trouve une cage de faraday avec un diaphragme d'entrée de diamètre $d = 3$ mm suspendu sur un micromanipulateur. À 40 cm de la source on a un ensemble « microchannel plate » (MCP) et écran fluorescent qui permet d'observer la projection de l'image de la grille extractrice. Une caméra placée devant un hublot permet d'enregistrer les images.

Pour faire de l'ionisation de champ on polarise la pointe positivement, on mesure la partie du courant détecté sur la grille avec un ampèremètre. La cage de faraday permet de mesurer un angle de 1° du faisceau total émis par la source.

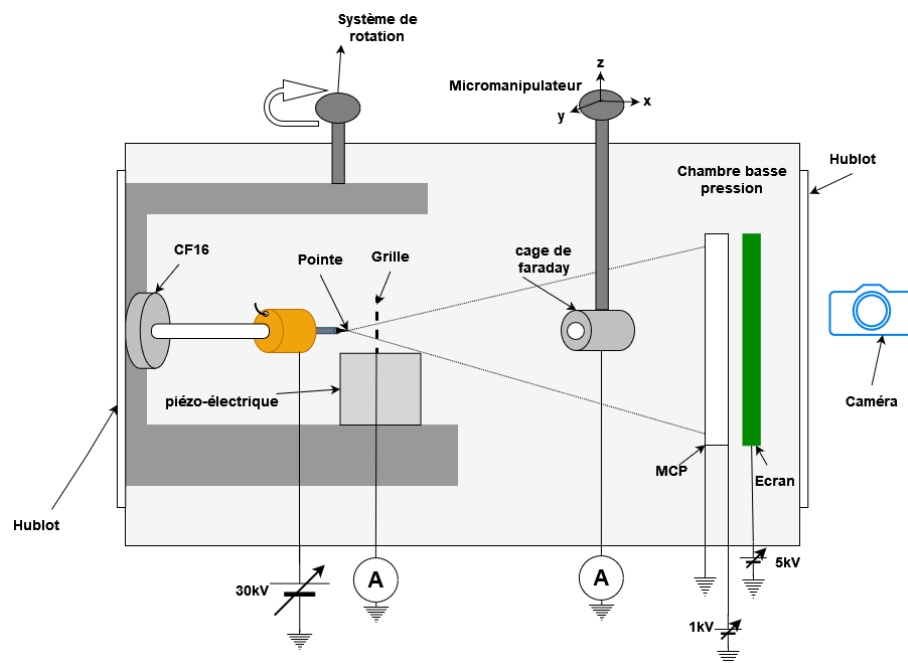


Figure 42 : schéma de la configuration de base.

Avant toute expérience en ionisation de champ, une émission en électron est d'abord faite pour voir à quelle tension notre source commence à émettre. L'émission en électron est faite en polarisant la pointe négativement et la mesure du courant se fait sur la grille. Cette tension d'extraction permet d'estimer à quelle tension la source va commencer à émettre en ionisation de champ (il y a un rapport 10 entre les deux généralement). Cette première émission de champ permet de savoir si notre pointe est fine ou pas.

Avec cette configuration j'ai pu faire quelques expériences, notamment en polarisant la pointe et la grille négativement et faire la mesure du courant sur la cage de faraday en mettant un multimètre en série. Mais les micromanipulateurs vieillissants devaient être changés et nous voulions pouvoir polariser l'extracteur. J'ai donc travaillé avec différents porte-échantillons que j'ai fabriqués au laboratoire. Je montre un montage parmi les autres sur la figure 43.

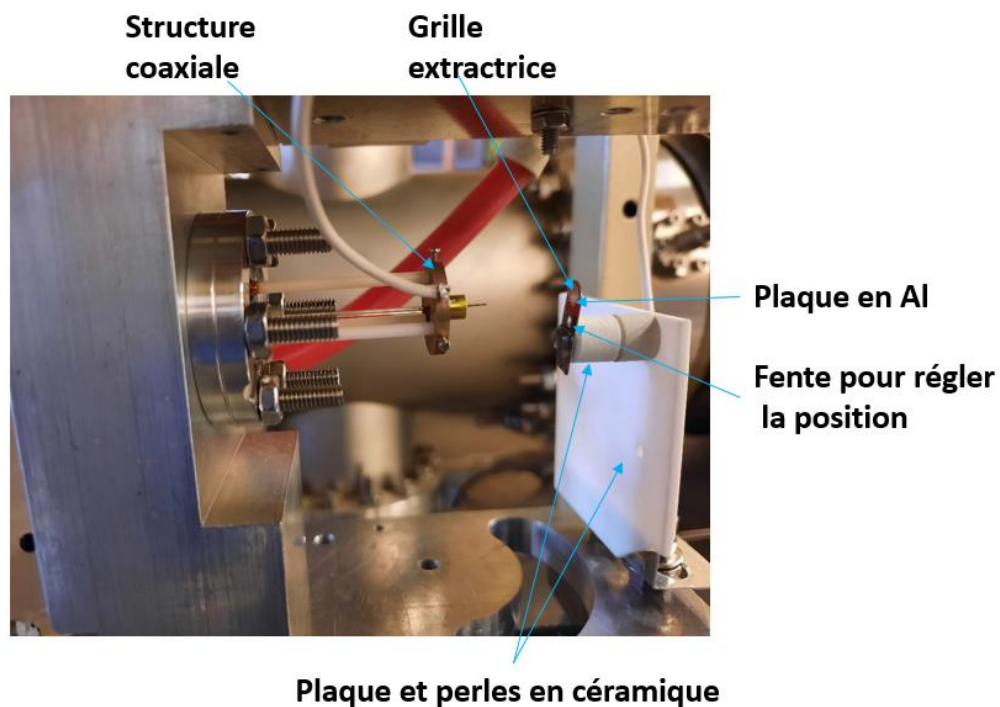


Figure 43: Photo du montage expérimental.

Pour pouvoir caractériser la source d'ions à structure coaxiale dans toutes les gammes de pression et de tension souhaitées, et éviter les arcs au niveau du tube en céramique on a décidé de polariser l'extracteur négativement. Avec ce montage je ne pouvais pas monter à plus de 13 kV sur le porte échantillon à cause des arcs électriques qui se formaient entre la plaque en aluminium et les perles en céramiques.

Je tiens à préciser que toutes les expériences faites avec cette configuration initiale ont été faites avec une alim haute tension réversible type (bertan_ powersupply_230) allant de 0 à ± 30 kV avec un ripple de 5V. Le courant débité par l'alim va de 0 à 0.4mA.

3.2. Nouvelle configuration :

Pour améliorer le porte échantillon, on a envisagé un montage qui permet d'éliminer tous les points triples isolant/conducteur/pression partielle et qui permet de monter plus haut en tension sur le porte échantillon. Le nouveau montage est représenté sur la figure 44. Le nouveau porte échantillon est placé sur des micromanipulateurs (piézo-électrique) qui permettent de déplacer la grille (ou diaphragme) sur les axes (x,y,z).

On a fait un « conditionnement » du porte échantillon, en polarisant l'extracteur positivement et négativement en pression partielle. À la fin de ce conditionnement, on a pu monter jusqu'à 27kV. Au-delà, on commence à avoir des arcs au niveau du porte échantillon, donc on a décidé de monter la tension à 25 kV maximum en manipulation. Nous verrons que pour éviter l'évaporation de champ, nous avons souvent limité cette valeur maximale à 12 ou 16kV.

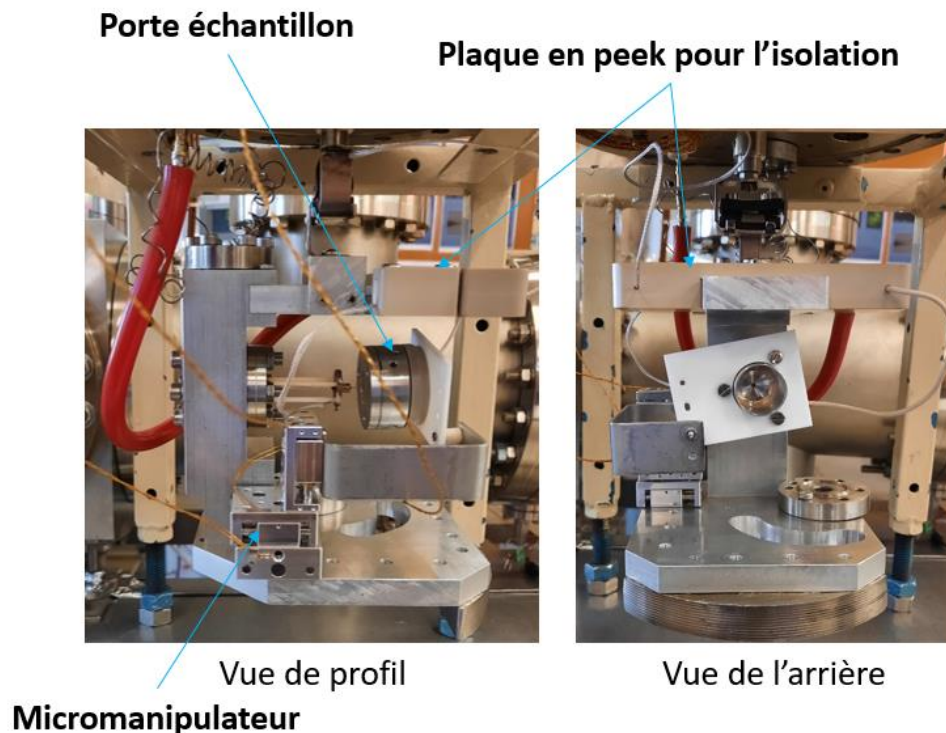


Figure 44: Photos du nouveau montage expérimental.

Pour éviter le vieillissement rapide des pointes, on a choisi de faire les expériences en un temps minimum. Pour cela on fait des rampes de tension (aller-retour) qui vont de 0 à 16 kV comme on le voit sur la figure 45. Un programme LabVIEW permet de piloter l'alimentation haute tension. Selon le modèle d'alimentation utilisé, ce pilotage se fait soit avec une carte d'acquisition (USB-6009) qui génère la tension pilote (Alim bertan), soit avec le protocole RS232 (Alim Spellmann) qui va de 0 à ± 30 kV. Cette alimentation Spellman (MPS30) permet d'atteindre ± 30 kV avec un courant débité max de $330\mu\text{A}$, avec un ripple $< 250\text{mV}$. Le programme permet aussi d'enregistrer le courant total sur la

pointe mise à la masse à travers un ampèremètre (Keithley 427). Le Keithley 427 permet d'amplifier l'intensité d'un facteur $K = 10^{11} V/A$, avec des temps de montée minimum de $\Delta t = 1.5ms$, et une résolution de $10^{-13} A$, c'est-à-dire qu'un courant $< 0.1pA$ se trouve dans le bruit de la mesure, dans notre cas nous avons 4 pA de bruit lié à notre montage expérimental.

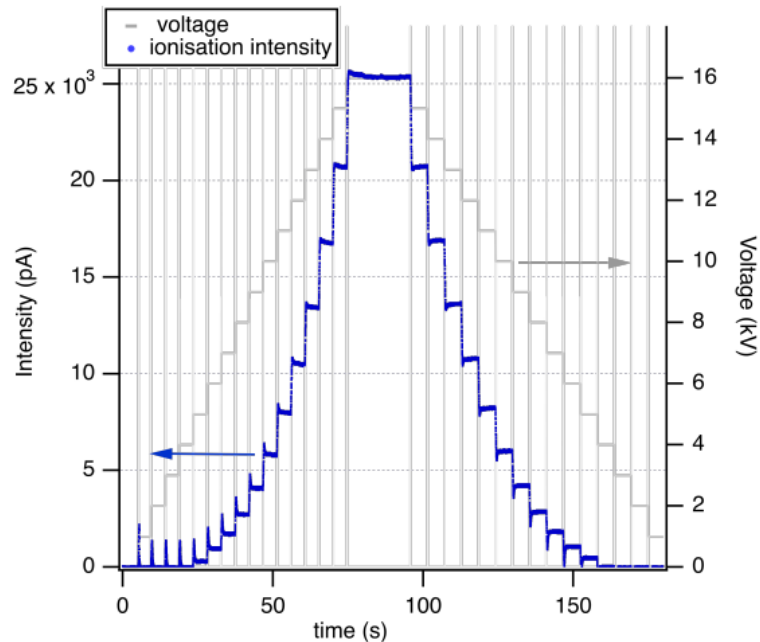


Figure 45: Intensité en fonction de la tension. $F = 100 \text{ Hz}$, $\Delta V = 1\text{kV}$, $t/\text{palier} = 5 \text{ s}$, excepté le dernier à 16 kV qui est le plus long.

La figure 45 montre la mesure du courant en fonction du temps pour chaque palier de tension, avec de l'argon à une pression de 30 mbar dans le compartiment haute pression. Les pics qu'on voit entre les paliers sont simplement dû au couplage capacitif lié à la géométrie du montage. Ils sont pris en compte durant le traitement des données. La mesure du courant pendant un aller-retour en fonction de la tension permet de vérifier que l'apex de la pointe n'évolue pas au cours de l'expérience. C'est-à-dire que cela permet de vérifier la stabilité de la source sur le temps de l'expérience. Les résultats obtenus seront présentés dans le prochain chapitre.

Conclusion :

Dans ce chapitre j'ai présenté les différentes conditions de préparation des pointes en tungstène. On a vu la méthode de recouvrement des pointes avec du palladium mise en œuvre dans ce travail.

Le nouveau montage du porte échantillon permet de monter à haute tension, et donc permet de balayer toute la gamme de tension souhaitée. La caractérisation complète du courant en fonction de la tension et de la pression $I(V, P)$ pour la structure coaxiale est l'objectif principal de ce travail. Ce montage permet d'y parvenir. Les résultats sont présentés dans le prochain chapitre.

Le pilotage de l'alimentation haute tension et l'enregistrement du courant avec une carte d'acquisition a été effectué dans cet objectif. Cela nous permet de caractériser la structure coaxiale en un temps minimum pour éviter le vieillissement des pointes. Faire la mesure du courant pendant un aller-retour en tension nous permet de suivre l'évolution du courant en fonction du temps.

Le montage de la structure coaxiale présenté dans ce chapitre n'est valable que dans le montage expérimental du laboratoire. Dans le dernier chapitre je présenterai les modifications apportées à la structure coaxiale pour son utilisation dans tous les régimes de pression dans une colonne à faisceaux d'ions focalisé.

Dans le chapitre qui suit je présente les résultats obtenus avec les différents montages expérimentaux présentés ci-dessus.

Chapitre 3 : Résultats et discussions

Dans ce chapitre je vais présenter tous les résultats que j'ai obtenus durant ma thèse. La première partie traite les différents régimes d'écoulement de la structure coaxiale avec différents gaz, et différentes géométries. La deuxième partie concerne la caractérisation du faisceau, elle comporte les premiers résultats obtenus avec la configuration initiale, dans cette deuxième partie je vais expliquer comment on a fait la mesure de l'angle de cône, et l'estimation de la brillance de la structure CIS. La troisième partie concerne la caractérisation du courant dans toute la gamme de pression et de tension. Et enfin la dernière partie porte sur l'étude de l'évolution du courant ionique en fonction de la forme de la pointe.

1. Régimes d'écoulement et conductances :

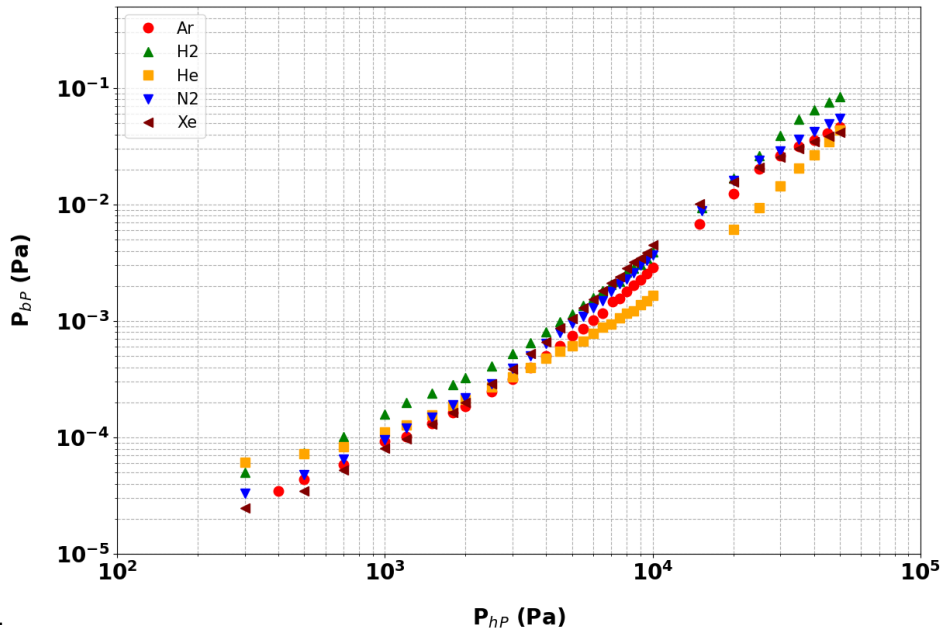
Comme je l'avais expliqué dans le deuxième chapitre (partie 2), la structure coaxiale se trouve entre 2 compartiments, un compartiment haute pression et un compartiment basse pression.

Pour caractériser les régimes d'écoulements de la structure coaxiale, on a commencé par l'étude de l'évolution de la pression basse pression en fonction de la pression du gaz injecté à température ambiante. J'ai fait les mesures avec différents gaz : Argon, hélium, hydrogène, azote, et xénon. Les mesures que je vais présenter dans cette partie ont été faites avec deux structures de dimensions géométriques différentes.

La figure 46 montre les mesures faites pour la pression basse pression en fonction de la pression haute pression pour différents gaz, et deux structures de géométries différentes. La longueur du capillaire en inox est $L = 6 \text{ mm}$, et le diamètre du fil de tungstène est $d = 125 \text{ }\mu\text{m}$ pour les deux structures, le seul paramètre qui change est le diamètre intérieur du capillaire en inox ainsi la surface de section ouverte est différente pour les deux structures. La figure 46-a- montre les mesures pour la structure nommée S_7 avec un diamètre intérieur $D = 150 \text{ }\mu\text{m}$, alors $S = \pi \frac{D+d}{2} \times \frac{D-d}{2} = a \times b = 432 \times 12.5 \text{ }\mu\text{m}^2$, et la figure 46-b- montre les mesures pour la structure nommée S_8 avec un diamètre intérieur $D = 170 \text{ }\mu\text{m}$, alors $S = \pi \frac{D+d}{2} \times \frac{D-d}{2} = a \times b = 463 \times 22.5 \text{ }\mu\text{m}^2$.

On voit que la pression basse pression augmente en augmentant la pression du gaz injecté pour les deux structures. L'ordre de grandeur de $10^{-7} \leq \frac{P_{bP}}{P_{hP}} \leq 10^{-6}$,

-a-



-b-

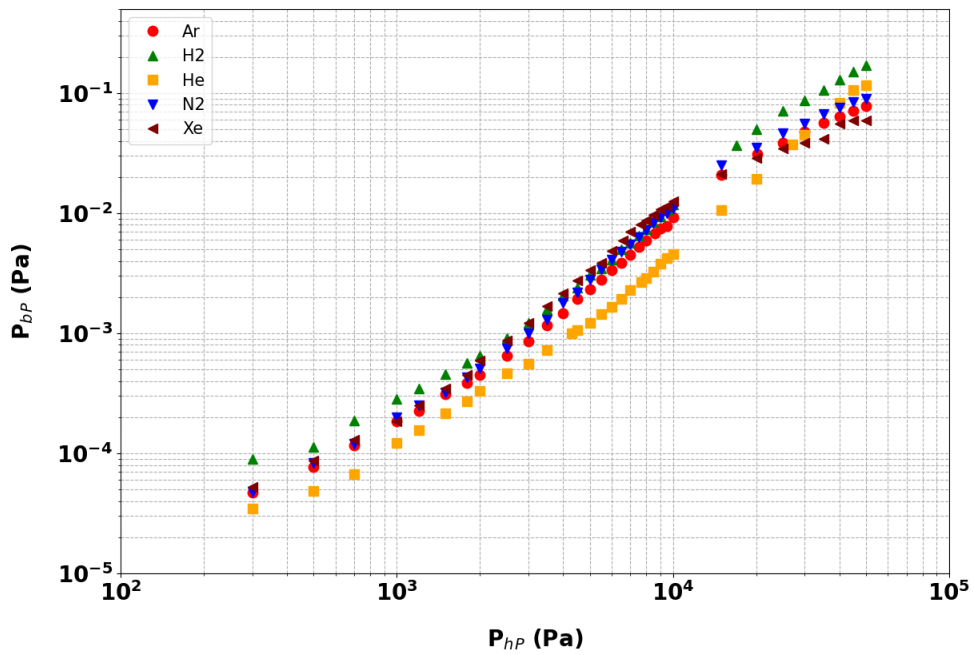


Figure 46 : la pression dans la chambre basse pression P_{bP} vs. La pression dans la chambre haute pression P_{hP} pour 5 gaz différents. -a- pour la structure nommée S7, -b- pour la structure nommée S8.

Les régimes d'écoulements sont décrits dans la littérature par la conductance C définie comme suit :

$$C = \frac{Q}{P_{hP} - P_{bP}} \approx \frac{S_e P_{bP}}{P_{hP}} \quad (1)$$

Avec S_e la vitesse de pompage effective de chaque gaz qu'on a mesuré en utilisant le spectromètre de masse. La mesure des vitesses de pompage est contenue dans le taux d'amortissement de la décroissance exponentielle de la pression dans la chambre basse pression.

$$P_{bP} = P_{bP_0} e^{\frac{-S_e t}{V}} \quad (2)$$

P_{bP_0} est la pression basse pression mesurée à $t = 0s$, $P_{bP_0} \approx 10^{-3} Pa$ pour tous les gaz, $V \approx 67 L$, est le volume de la chambre basse pression. La figure 47 montre la mesure des vitesses de pompage pour 4 gaz, on a représenté P_{bP}/P_{bP_0} en fonction du temps pour faciliter la comparaison des courbes.

La vitesse de pompage du xénon n'a pas été mesurée avec le spectromètre de masse, car la masse maximale qu'il peut détecter est de 64uma. On verra plus tard comment on a déduit la vitesse de pompage du xénon.

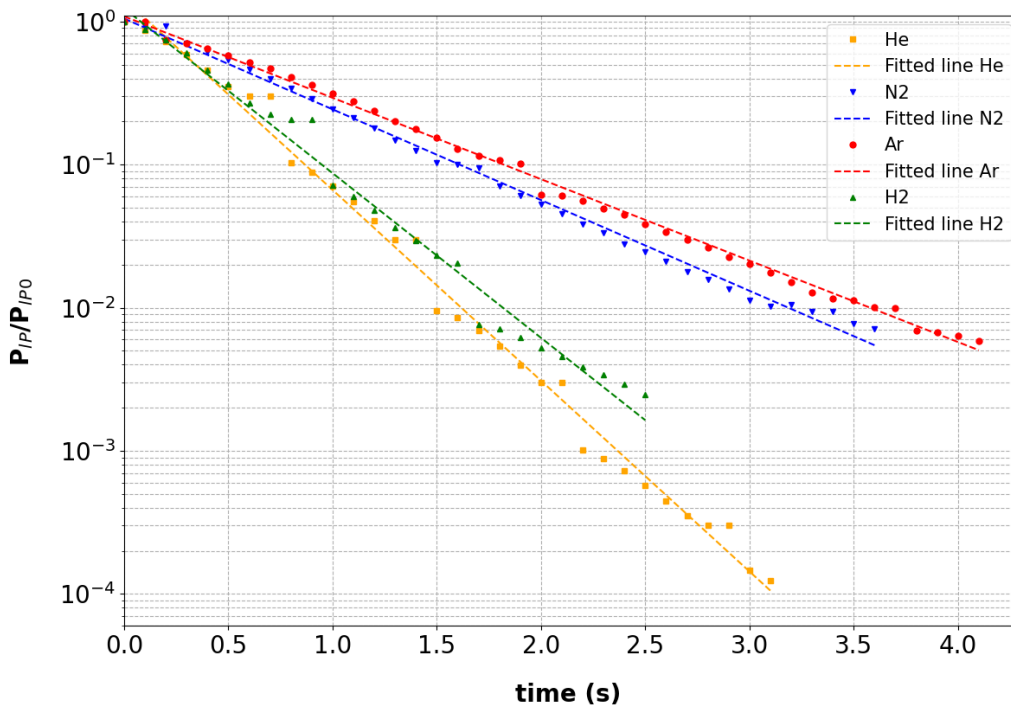


Figure 47: Mesure de la vitesse de pompage effective. La diminution (exponentielle) de la pression P_{IP} dans la chambre basse pression est enregistrée au cours du temps t à l'aide du spectromètre de masse.

Les discontinuités sur les courbes ne reflètent pas des changements de pression rapides mais la bande passante limitée de la sortie du spectromètre de masse lorsque la gamme de mesure est automatiquement changée à chaque décade de pression.

Les vitesses de pompages de tous les gaz ainsi que les facteurs de jauge sont donnés dans le tableau 2.

Gaz	N ₂	He	H ₂	Ar	Xe
Vitesse de pompage ($\times 10^{-3} m^3 \cdot s^{-1}$)	98	206	177	88	65
Facteur de jauge	1	0.18	0.46	1.29	2.87

Tableau 2 : Vitesse de pompage effective et facteur de jauge pour tous les gaz sauf pour le xénon pour lequel la vitesse de pompage a été déduite.

Maintenant que les vitesses de pompages sont mesurées on peut représenter les conductances en fonction de la pression haute pression pour déterminer les régimes d'écoulements comme ça avait été fait par Descoins et al²⁴, en 2008.

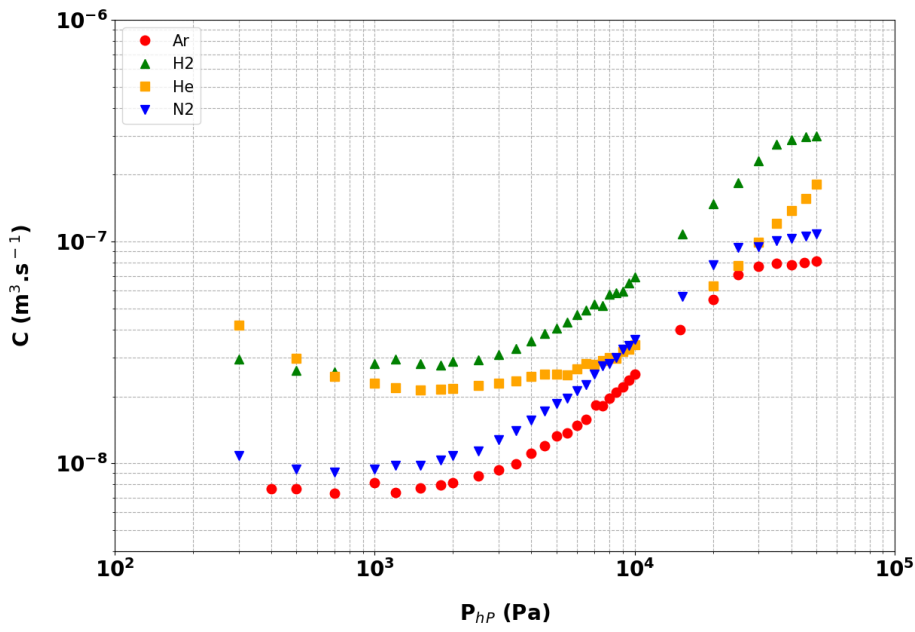
Pour calculer la conductance on utilise l'équation (1). La figure 48 montre les conductances pour tous les gaz sauf le xénon, en fonction de la pression haute pression pour les deux structures. Toutes les courbes sont en forme de S. On retrouve les trois régimes d'écoulements pour les deux structures.

- Le premier « plateau » représente le régime moléculaire où le libre parcours moyen est supérieur à la caractéristique géométrique de la structure CIS.
- Le deuxième régime est le régime visqueux où la conductance augmente en fonction de la pression du gaz, ce régime se situe $2 \times 10^3 < P_{hp} < 2 \times 10^4 Pa$ pour la structure S₇, et pour la structure S₈ il est $10^3 < P_{hp} < 10^4 Pa$.
- Le troisième « plateau » représente le régime exit-loss, dans ce régime la conductance est limitée par la section ouverte de la structure CIS.

Les résultats obtenus ici sont similaires à ceux obtenus par Descoins et al²⁴, en 2008.

Avec ces résultats on a pu déterminer les régimes d'écoulement mais on ne peut pas faire une comparaison entre les différents gaz, car la transition d'un régime d'écoulement à un autre est différente pour tous les gaz.

-a-



-b-

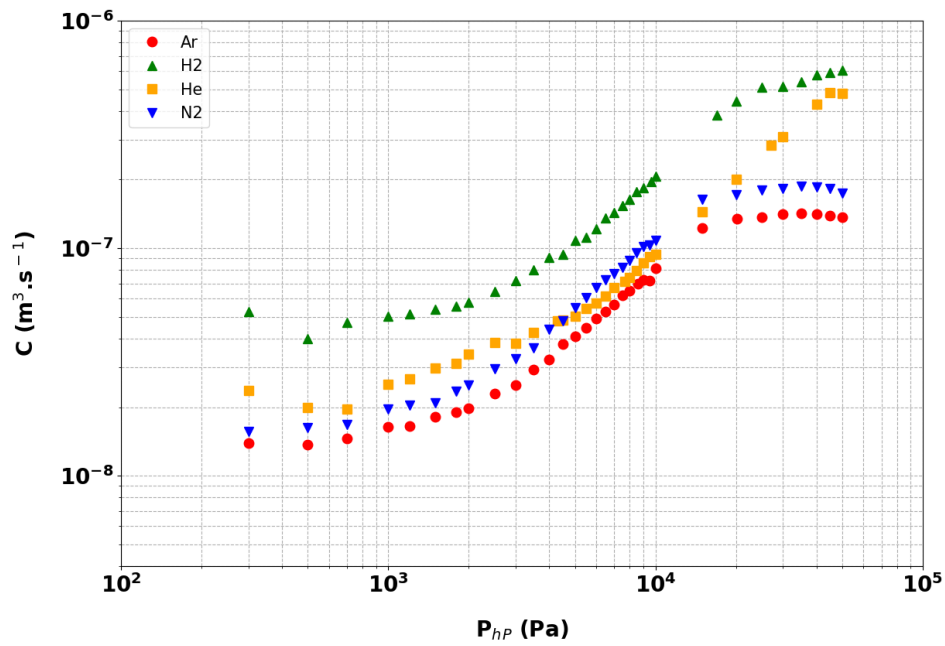


Figure 48: Conductance vs. Pression haute pression pour deux structures. -a- structure S7, -b- structure S8.

Comme mentionné dans le chapitre 1 (partie 7) de nombreux auteurs^{37-40,42} ont dérivé des expressions analytiques et/ou semi-empiriques de la conductance C dans divers régimes d'écoulement et géométries de canaux différentes. Pour notre cas on va s'intéresser à la géométrie rectangulaire qui semble la plus proche de la géométrie de la structure coaxiale²⁴.

Pour tous les régimes d'écoulements la conductance $C_{régime}$ peut-être écrite avec deux termes, le premier $C_{régime,géométrie}$ qui n'est liée qu'à la géométrie de la structure CIS, le second $C_{régime,gaz}$ qui dépend seulement des paramètres du gaz, donc on peut écrire :

$$C_{régime} = [C_{régime,géométrie}] \times [C_{régime,gaz}]$$

Pour la géométrie rectangulaire les expressions des régimes d'écoulements sont les suivantes :

Régime moléculaire :

$$C_{mol} = \left[\left(\frac{ab^2}{8L} \right) \left(1 + 2 \ln \left(\frac{2a}{b} \right) \right) \right] \times \left[\sqrt{\frac{8kT}{\pi m}} \right] \quad (3)$$

Régime visqueux :

$$C_{visq} = \left[\left(\frac{\pi ab^3}{96L} \right) \right] \times \left[\frac{1}{\lambda} \sqrt{\frac{8kT}{\pi m}} \right] \quad (4)$$

Régime exit-loss :

$$C_{exit-loss} = \left[C_0 \sqrt{\frac{\pi}{8}} ab \right] \times \left[\Gamma \sqrt{\frac{8kT}{\pi m}} \right] \quad (5)$$

Le premier terme des équations est $C_{régime,géométrie}$, et le second terme est $C_{régime,gaz}$. Le terme $\sqrt{\frac{8kT}{\pi m}}$ est la vitesse moyenne du gaz selon la théorie cinétique des gaz, λ c'est le libre parcours moyen des molécules de gaz qui dépend de la viscosité du gaz η . Γ est une constante qui est de 0.725 pour les gaz monoatomiques, et de 0.685 pour les gaz diatomiques⁴⁰. C_0 est le coefficient d'orifice, une correction empirique qui dépend de la géométrie et qui ne devrait pas varier de manière significative pour nos différentes structures CIS. Son ordre de grandeur est de 0,1^{24,38}.

On a séparé la conductance C en tant que produit de fonctions dépendantes soit des paramètres géométriques seuls, soit des paramètres du gaz seul, pour nous permettre de tracer les mêmes données et comparer directement différents gaz. Pour pouvoir comparer les différents gaz on va tracer la conductance réduite $C^* = C \sqrt{\frac{m}{m_{N_2}}}$ en fonction de $\frac{1}{\lambda}$.

On a choisi l'expression de conductance réduite C^* par rapport à la dépendance en $1/\sqrt{m}$ de la conductance du régime moléculaire et du régime exit-loss. On a choisi de normaliser par rapport à la masse de l'azote pour faciliter la comparaison avec la littérature. Pour l'axe horizontal, guidé par l'expression de la conductance en régime visqueux, compte tenu de l'expression de C^* , le paramètre approprié devient l'inverse du libre parcours moyen avec :

$$\frac{1}{\lambda} = \left(\frac{P_{hP}}{\eta} \right) \times \sqrt{\frac{2m}{\pi kT}} \quad (6)$$

La figure 49 montre les conductances réduites en fonction de l'inverse du libre parcours moyen pour les deux structures. Toutes les courbes sont regroupées en une seule courbe générique en forme de S.

C'est à partir de ces courbes de conductances réduites qu'on a pu déduire la vitesse de pompage effective du xénon, et cela en superposant la courbe du xénon sur la courbe des autres gaz. La vitesse de pompage effective du xénon est donnée dans le tableau 1.

Les variations qu'on voit dans le régime moléculaire peuvent être interprétées par le fait qu'il existe toujours des régimes en série dans le capillaire et cela a déjà été vu dans la littérature³⁷.

En comparant les résultats expérimentaux avec les résultats obtenus en utilisant les équations des différents régimes d'écoulements, on peut revenir à la longueur caractéristique d'écoulement au sens de Knudsen.

Le rapport des deux plateaux de conductance en régime exit-loss de la figure 49, est de 0.60 ± 0.08 . En égalisant l'équation (5) pour les deux structures, ce rapport devrait être égal à $\frac{a_7 b_7}{a_8 b_8}$. Les rapports géométriques réels fournissent $\frac{a_7 b_7}{a_8 b_8} = 0.52$. Cela confirme que notre analyse des régimes d'écoulement n'est pas exubérante et, par ailleurs, que la valeur de C_0 reste une constante pour une géométrie équivalente. Pour examiner d'autres régimes, la valeur expérimentale $\frac{1}{\lambda}$ à la transition entre le régime visqueux et le régime exit-loss devrait avoir la même valeur que le calcul $\frac{b^2}{\lambda_{tr}}$ obtenu par les équations (4) et (5).

En égalisant les équations (4) et (5) on obtient :

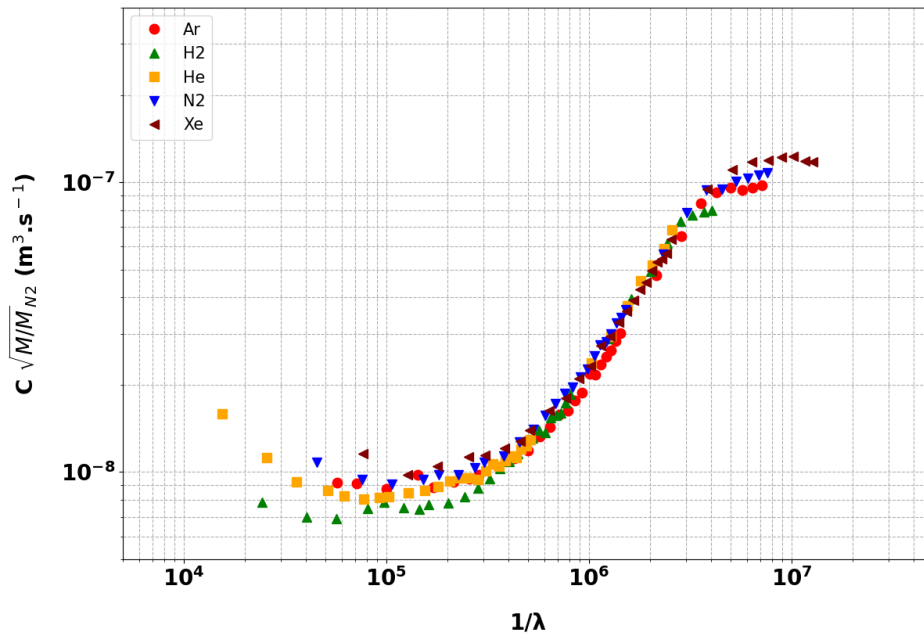
$$\left(\frac{b^2}{\lambda_{tr}} \right) = 48 \sqrt{\frac{1}{2\pi}} C_0 \Gamma L \quad (7)$$

De la figure 49, on observe que la transition entre le régime visqueux et le régime exit-loss est de $\left(\frac{1}{\lambda_{tr}} \right)_{S_7} = (4 \pm 1) \cdot 10^6 \text{ m}^{-1}$, et $\left(\frac{1}{\lambda_{tr}} \right)_{S_8} = (2.5 \pm 1) \cdot 10^6 \text{ m}^{-1}$. En utilisant les équations (4) et (5) on trouve : $\left(\frac{b^2}{\lambda_{tr}} \right)_{S_7} = 625 \mu\text{m}$ pour la structure S_7 , et : $\left(\frac{b^2}{\lambda_{tr}} \right)_{S_8} =$

1265 μm pour la structure S_8 . On voit que les valeurs expérimentales sont très loin des valeurs calculées avec la caractéristique géométrique b de la structure coaxiale, cela veut dire que la géométrie de la structure coaxiale n'est pas parfaitement rectangulaire, et que le passage du fil de tungstène à l'intérieur du capillaire en inox ne forme pas une section parfaitement annulaire.

Dans la géométrie de la structure coaxiale, la caractéristique géométrique du capillaire de conductance que nous appellerons b_{eff} , sera plus grande que b . Les valeurs sont présentées dans le tableau 3.

-a-



-b-

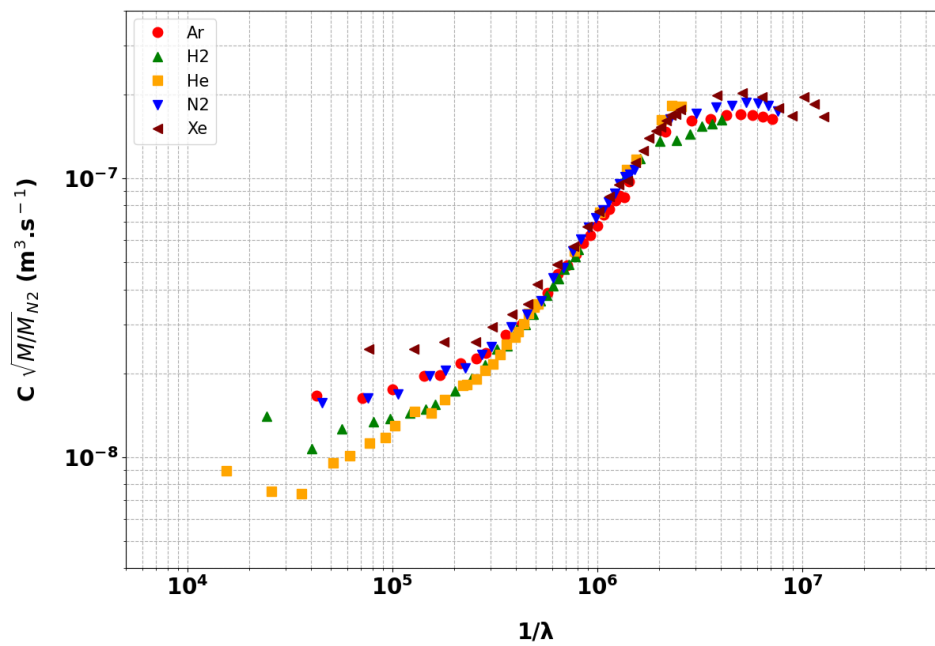


Figure 49: Conductance réduite vs. L'inverse du libre parcours moyen pour les deux structures. -a- structure S_7 , -b- structure S_8 .

Structure	$1/\lambda_{tr} (m^{-1})$	$b (\mu m)$	$b^2/\lambda_{tr} (m^{-1})$	$b_{eff} (\mu m)$
S_7	$(4 \pm 1) \cdot 10^6$	12.5	625	(45 ± 8)
S_8	$(2.5 \pm 1) \cdot 10^6$	22.5	1265	(57 ± 9)

Tableau 3 : l'inverse du libre parcours moyen à la transition entre le régime visqueux et l'exit-loss ($1/\lambda_{tr}$) pour les structures S_7 et S_8 ; la largeur b de la structure ; (b^2/λ_{tr}) ; et la longueur caractéristique effective (b_{eff}) calculée à l'aide de l'équation 7.

L'équation (7) nous permet de calculer cette grandeur caractéristique effective de notre canal : b_{eff} qui est obtenue par la valeur du libre parcours moyen à la transition Elle est plus que 2 fois plus grande que b . Nous soupçonnons que la position du fil et ses courbes le long du canal sont les clefs de ces profils. Mais, à partir de ces résultats on peut utiliser b_{eff} pour calculer le nombre de Knudsen $K = \lambda/b_{eff}$, qui est souvent utiliser dans la littérature^{37,39,40}. En utilisant cette grandeur, nos courbes sont parfaitement comparables avec celles présentées par Hanlon (figure 27 page 53).

2. Caractérisation du faisceau

La caractérisation des régimes d'écoulements de la structure coaxiale est un paramètre important pour la caractérisation du faisceau ionique, cela nous permet de savoir dans quel régime d'écoulement on se situe au moment de faire la mesure du courant ionique. Dans cette partie je vais présenter les résultats de l'ionisation de champ obtenue à partir du dispositif expérimental initial.

2.1. Courant ionique :

Comme je l'avais expliqué dans le chapitre 2 les premières mesures que j'ai obtenues ont été faites avec la configuration initiale du montage expérimental.

Avant d'effectuer les premiers essais en ionisation, je polarise la pointe négativement pour vérifier que les pointes émettent en émission de champ, et aussi pour avoir une idée de la tension à partir de laquelle les pointes commencent à émettre en ionisation de champ. Un facteur 10 est généralement obtenu entre les deux potentiels. En émission de champ généralement les pointes commencent à émettre entre -300 V et -700V.

La figure 50 présente plusieurs mesures du courant ionique en fonction de la tension, les mesures ont été faites à des endroits différents et avec des configurations différentes.

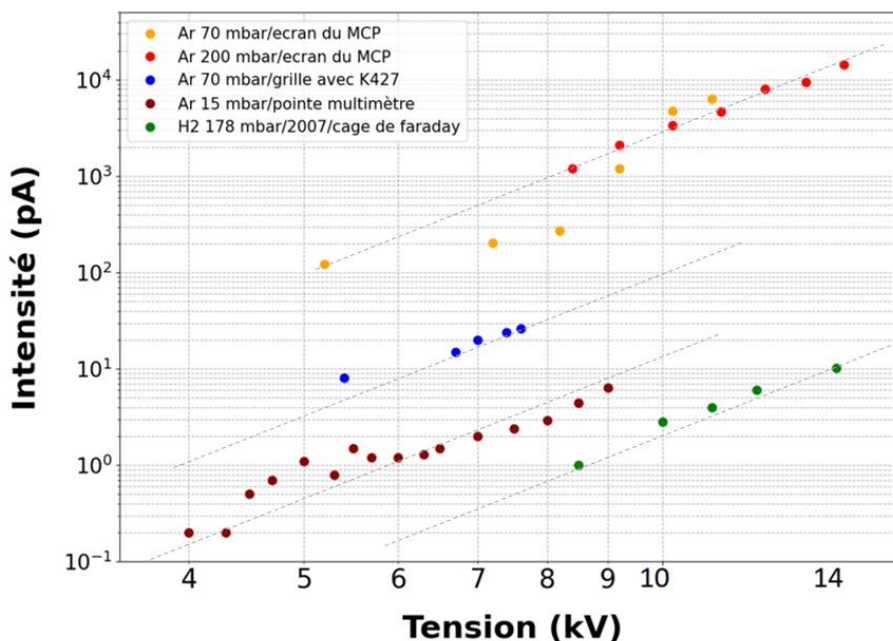


Figure 50: Intensité à différents endroits de mesure vs. Tension appliquée sur la pointe.

- **Mesures sur la pointe :** La mesure représentée par des cercles marrons sur la figure 50 a été faite en polarisant la pointe positivement et en mettant un multimètre en série avec la pointe pour mesurer le courant total. La mesure a été faite avec de l'argon à $P_{hP} = 15 \text{ mbar}$, et $P_{bP} = 10^{-6} \text{ mbar}$. Je ne pouvais pas monter au-delà de 9 kV car j'avais des arcs au niveau du capillaire en quartz.
- **Mesures sur la grille :** La mesure représentée en cercles bleu sur la figure 50 a été faite avec la même configuration, c'est-à-dire en polarisant la pointe positivement, mais cette fois on mesure le courant sur la grille avec un ampèremètre en série. La mesure est faite avec de l'argon à $P_{hP} = 70 \text{ mbar}$, $P_{bP} = 2 \times 10^{-5} \text{ mbar}$. On mesure un ordre de grandeur sur le courant entre la mesure sur la grille et la mesure sur la pointe, sachant que sur la grille on ne prend que 70% du signal, la comparaison est difficile car la pression du gaz à laquelle on mesure n'est pas la même. Même en augmentant la pression je ne pouvais pas monter au-delà de 8 kV.
- **Mesures sur l'écran du MCP :** Les mesures représentées par des cercles orange et rouge sur la figure 50 ont été faites en polarisant la grille négativement et la pointe positivement, pour pouvoir éviter les arcs au niveau du tube en quartz, avec $4.2 \text{ kV} < V_p < 6.8 \text{ kV}$, et $-1 \text{ kV} < V_G < -4.2 \text{ kV}$, et on a mesuré le courant sur l'écran du MCP (on ne mesure que 30% du signal) qui capte un angle d'ouverture de 5° , avec une amplification de 10^3 . L'entrée du MCP est à -4kV, la sortie à -3kV, et l'écran fluorescent en série avec l'ampèremètre. $P_{hP} = 70 \text{ mbar}$, et $P_{bP} = 3.5 \times 10^{-5} \text{ mbar}$ pour les cercles orange, et $P_{hP} = 200 \text{ mbar}$, et $P_{bP} = 9.5 \times 10^{-5} \text{ mbar}$ pour les cercles rouges. Le courant à 200 mbar est inférieur au courant à 70 mbar car la pointe a vieilli entre les deux expériences.
- **Mesures dans la cage de faraday :** Les mesures avec des cercles verts ont été faites en 2007 par Descoins avec de l'hydrogène en polarisant la pointe positivement, et en mesurant le courant dans la cage de faraday, donc ils ont mesuré 1° du faisceau émis.

On voit que l'intensité augmente en fonction de la tension. Toutes les mesures évoluent de la même façon que celle mesurée avec l'hydrogène en 2007 par Descoins.

Je mesure plus de courant par rapport à la mesure de 2007 car eux ils ont fait la mesure sur la cage de faraday, et donc ils ne mesurent que 1° du faisceau ionique, tandis que nous pour les endroits où on fait la mesure on capte un angle du faisceau plus important par rapport au 1° de la cage de faraday. On a vu dans le chapitre 1 que Jousten³⁰, annonce un rapport de 3.75 entre le courant d'hydrogène et le courant d'argon. En estimant le courant d'hydrogène sur la pointe (16° d'angle d'émission au lieu de 1° de la cage de faraday) on trouve par exemple à $V = 8.5\text{kV}$ et un courant de 16 pA, donc on a un rapport (4 ± 1.5) entre le courant hydrogène et le courant argon ce qui est en accord avec les rapports annoncés par Jousten.

La comparaison entre les différentes expériences présentées ci-dessus est possible mais on ne peut pas s'appuyer à 100% dessus car les conditions de travail ne sont pas pareilles d'une expérience à une autre.

Les arcs au niveau de capillaire en quartz nous limitent au niveau de la tension appliquée sur la pointe. Même en polarisant la grille et la pointe négativement et en augmentant la pression du gaz injecté, on ne gagne pas plus que 5 kV. On a essayé de polariser la grille négativement mais comme je l'ai mentionné dans le chapitre 2, cette fois des arcs se produisaient au niveau du porte échantillon.

Avec cette configuration on ne pouvait pas monter plus haut en tension donc on ne peut pas caractériser la structure coaxiale dans l'ensemble des gammes de pression et de tension. À partir de ces résultats nous avons décidé de concevoir un porte échantillon adapté pour polariser la grille négativement pour pouvoir caractériser la structure coaxiale dans son intégralité quelles que soient les pressions ou les tensions. Je présenterai ces résultats un peu plus loin.

Comme on l'a vu dans le chapitre 2, le dispositif expérimental est composé d'une caméra qui nous permet de prendre des images de la projection de la grille sur l'écran du MCP. Le tableau 4 regroupe quelques images prises sous différentes conditions.

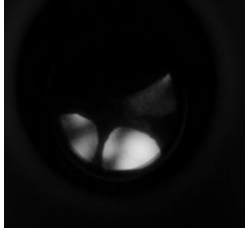
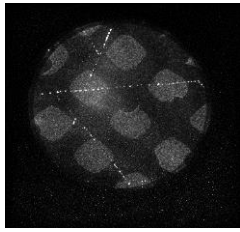
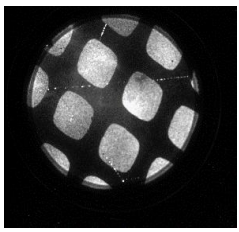
Structure	S_1	S_2	S_3
Début émission(kV)	2.3	3.1	1.8
Image			
Conditions	$P_{hP} = 190 \text{ mbar}$ $P_{bP} = 2.7 \times 10^{-5} \text{ mbar}$ $V = 11 \text{ kV}$	$P_{hP} = 100 \text{ mbar}$ $P_{bP} = 8 \times 10^{-5} \text{ mbar}$ $V = 7.2 \text{ kV}$	$P_{hP} = 70 \text{ mbar}$ $P_{bP} = 3.5 \times 10^{-5} \text{ mbar}$ $V = 11 \text{ kV}$

Tableau 4 : Différentes images pour différentes conditions en ionisation d'argon.

Si on compare l'image de la structure S_3 à celle de la structure S_2 qui est prise à une pression de 100 mbar, plus élevée que l'autre, on a moins d'intensité avec la structure S_2 que la structure S_3 car la tension est plus faible pour cette dernière (l'amplification du MCP est la même). Donc pour avoir une intensité élevée il faut trouver le bon compromis entre la pression du gaz injecté et la tension d'extraction, c'est pour cela qu'il faut caractériser toutes les gammes de tension et de pression, et faire des mesures $I(V, P)$ complètes et comparables (effectuées dans les mêmes conditions de mesure !).

2.2. Angle de cône :

Comme je l'ai mentionné dans le chapitre 2, la structure coaxiale est montée dans un microscope à projection, elle se trouve à quelques millimètres d'une grille extractrice. L'ensemble de la structure coaxiale et de la grille extractrice se trouve à 40 cm en face d'un ensemble MCP/écran fluorescent. Ce dispositif expérimental a permis de mesurer la taille de la source virtuelle², qui est de $2nm$. La structure coaxiale est polarisée positivement, la grille est à la masse, et l'entrée de l'ensemble MCP/écran fluorescent est mise à la masse, ce qui permet aux ions de se propager librement sans collision.

Pour maintenir un champ électrique constant à la pointe lorsque l'extracteur est approché, la tension est diminuée pour maintenir le courant d'émission d'ions constant. La structure coaxiale et la grille extractrice sont installées sur le même plateau rotatif devant l'écran pour permettre de balayer l'ensemble du faisceau d'émission, l'angle de détection est de 5° .

Pour observer l'ensemble du faisceau d'émission, nous tournons le plateau en enregistrant l'image sur l'écran. L'intensité lumineuse enregistrée sur l'image est proportionnelle à l'intensité du faisceau d'ions détecté sur l'écran, car la tension d'extraction est fixe, donc les ions sont à énergie fixe. La valeur de l'intensité lumineuse peut être tracée en fonction de l'angle de rotation comme on le voit sur la figure 51, la mesure est faite à $V=12$ kV, et à une pression basse pression $P_{bp} = 2.7 \times 10^{-3} Pa$.

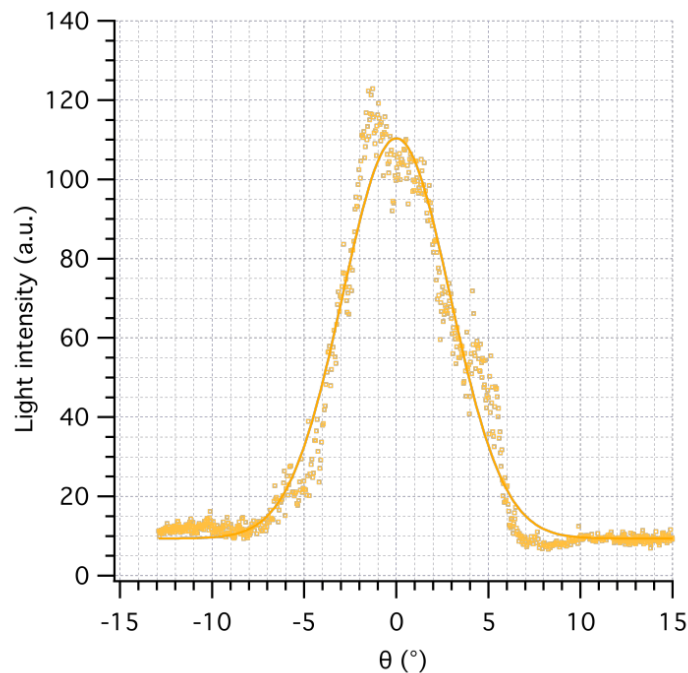


Figure 51: Angle de cône du faisceau. L'intensité lumineuse moyenne est enregistrée sur l'écran de 4 cm tandis que la structure est tournée d'un angle θ .

La mesure de l'angle de cône nous donne l'angle solide $\Omega = 0.024 \text{ sr}$. A partir de ces mesures on a pu estimer la valeur de la brillance qui est de $B \approx 3 \times 10^7 \text{ A.cm}^{-2}.\text{sr}^{-1}$ à $V = 12 \text{ kV}$ pour la source CIS.

3. Courant en fonction de la tension et de la pression :

La caractérisation complète du courant ionique de la source d'ion à structure coaxiale (CIS) dans toute la gamme de pression et de tension n'avait pas été faite auparavant. Dans le chapitre 1 partie 5 j'ai présenté l'historique de la caractérisation du courant en fonction de la tension et de la pression pour d'autres sources que la CIS. Durant ma thèse j'ai pu caractériser la source CIS dans toute la gamme de pression et de tension et c'est ce que je vais présenter dans cette partie. Ces résultats ont été obtenus avec des pointes en tungstène recouvertes de palladium pour éviter la corrosion des pointes.

3.1. Courant en fonction de la tension :

En faisant des rampes de tension aller-retour, allant de 0 à -16 kV en polarisant la grille négativement, je mesure le courant total sur la pointe pour chaque palier. La figure 52 présente le courant en fonction de la tension pour une structure à $P_{hP} = 5 \text{ mbar}$, et $P_{hP} = 30 \text{ mbar}$ d'argon coté haute pression, ce qui donne $P_{bP} = 1.2 \times 10^{-6} \text{ mbar}$, et $P_{bP} = 1.3 \times 10^{-5} \text{ mbar}$ coté basse pression.

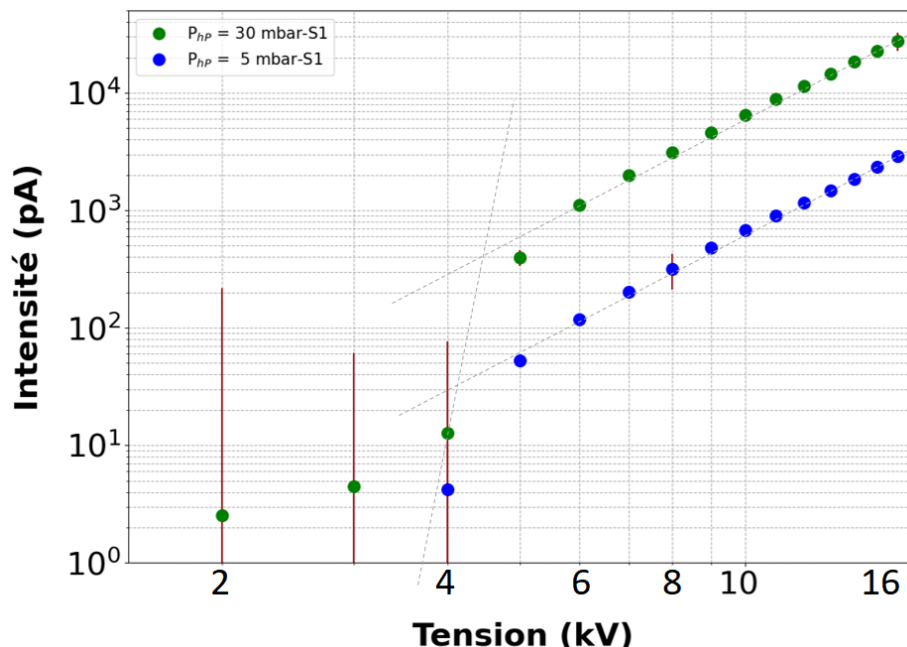


Figure 52: Courant en fonction de la tension avec de l'argon à deux pressions différentes.

Chaque point sur la courbe représente la moyenne d'un aller-retour pour chaque palier à une tension donnée. On voit que le courant augmente avec la tension selon deux pentes différentes : cette évolution est connue dans la littérature pour des expériences faites en pression partielle^{27,30}.

- Dans le régime de basse tension, en dessous de $V \approx 5kV$, l'ionisation est limitée par le champ électrique. En augmentant la tension appliquée, le champ électrique augmente, et cela augmente considérablement la probabilité d'ionisation, donc le courant augmente exponentiellement selon $I = c e^{-\frac{F_0}{F}} e^{\Phi}$. En le traçant en échelle log-log, on voit que le courant évolue selon une pente de l'ordre de plusieurs dizaines.
- Dans le régime de haute tension, au-dessus de $V \approx 5kV$, la probabilité d'ionisation d'une molécule proche de l'apex atteint 100 %. Le taux d'ionisation est limité par l'alimentation en gaz, qui augmente cependant aussi avec la tension, comme on l'observe à travers l'augmentation du courant. On voit que le courant évolue selon une pente $\alpha \approx 3.3$.

Les résultats obtenus ici sont en accord avec la littérature^{27,28,30}. On a vu dans le chapitre 1 que :

$$I = Zq_{gaz} = q_{gaz} \frac{dN}{dt} \quad (8)$$

$$I = \frac{P}{\sqrt{2\pi mkT}} A_{tip} q_{gaz} S P_c \sigma(\Phi) \quad (9)$$

Avec :

$$f_0 = \frac{P}{\sqrt{2\pi mkT}} \quad (10)$$

f_0 s'exprime en nombre de molécules $.s^{-1}.m^{-2}$, c'est la fonction d'apport au niveau de la pointe. Leurs expériences ont été faites à des pressions partielles, ce qui n'est pas le cas pour nos expériences. Avec la structure coaxiale on travaille à pression locale donc on a un flux de gaz $Q = S_e P_{bp}$ qui arrive en bout de pointe. Descoins et al.²⁴ en se basant sur le taux de collision à une pression donnée estime la pression en bout de pointe par l'équation (11) :

$$P_{tip} = S_e P_{bp} \times 6 \sqrt{\frac{\pi m}{8kT}} \times A_{tube} \quad (11)$$

En remplaçant dans l'équation (10) la pression P par P_{tip} , dans notre cas le courant I pourrait être exprimé par :

$$I \approx \frac{S_e P_{bp}}{kT} \frac{A_{tip}}{A_{tube}} q_{gaz} S P_c \sigma(\Phi) \quad (12)$$

Avec S_e la vitesse de pompage effective du gaz, P_{bp} la pression dans la chambre basse pression, k la constante de Boltzmann, T la température du gaz en kelvin. A_{tip} , la surface d'émission sur la pointe en m^2 , A_{tube} , la surface de l'orifice du capillaire en inox. q_{gaz} , la

charge de l'ion en Coulomb, s , est appelé le « shank », c'est la diffusion de surface sur la « tige » de la pointe (le long du corps) qui contribue d'une manière considérable à l'apport de gaz en bout de pointe. $\sigma(\Phi)$ décrit l'accommodation entre l'énergie thermique et l'énergie de polarisation suivant la forme de la pointe, comme on l'a vu dans le chapitre 1.

De l'équation (12), la fonction d'apport f_0 dans notre cas est donnée par :

$$f_0 = \frac{S_e P_{bP}}{kT} \frac{A_{tip}}{A_{tube}} \quad (13)$$

On voit que la fonction d'apport dans notre cas est directement liée au flux de gaz arrivant en bout de pointe.

Les mêmes expériences ont été faites avec d'autres structures recouvertes de palladium, on a décidé de ne pas monter plus haut que 12 kV sur la pointe. La figure 53 montre la pointe avant et après émission en polarisant la pointe positivement. L'intensité en fonction de la tension de la figure 52 a été obtenue 16 fois d'affilé, et la modification observée dans la figure 53(b) a été obtenue après une polarisation positive de la pointe pendant 30 minutes.

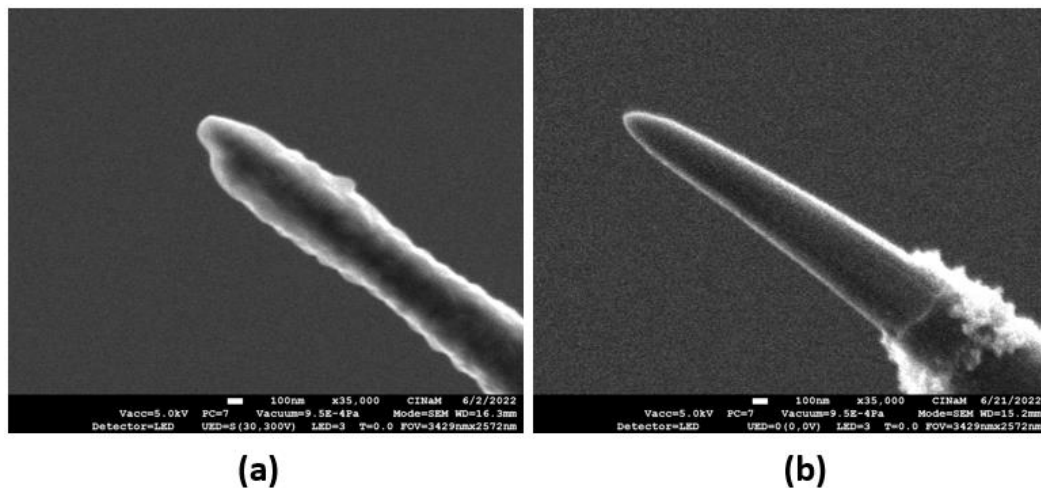


Figure 53: Images sous microscope électronique à balayage de la pointe. (a) pointe avant émission, (b) pointe après émission.

La figure 53 (a) montre la pointe avant émission, le dépôt de palladium a l'air uniforme. La figure 53 (b) est la même pointe après émission observée sous MEB, on voit sur le bout qu'une partie du palladium a disparu, on pense que la grille émet des électrons secondaires en polarisant la pointe positivement qui viennent chauffer la pointe par bombardement électronique et qui font que le palladium déposé sur la pointe dé-mouille, ensuite, la pointe se corrode. La figure 54 montre les résultats du courant en fonction de la tension pour deux autres structures recouvertes de palladium.

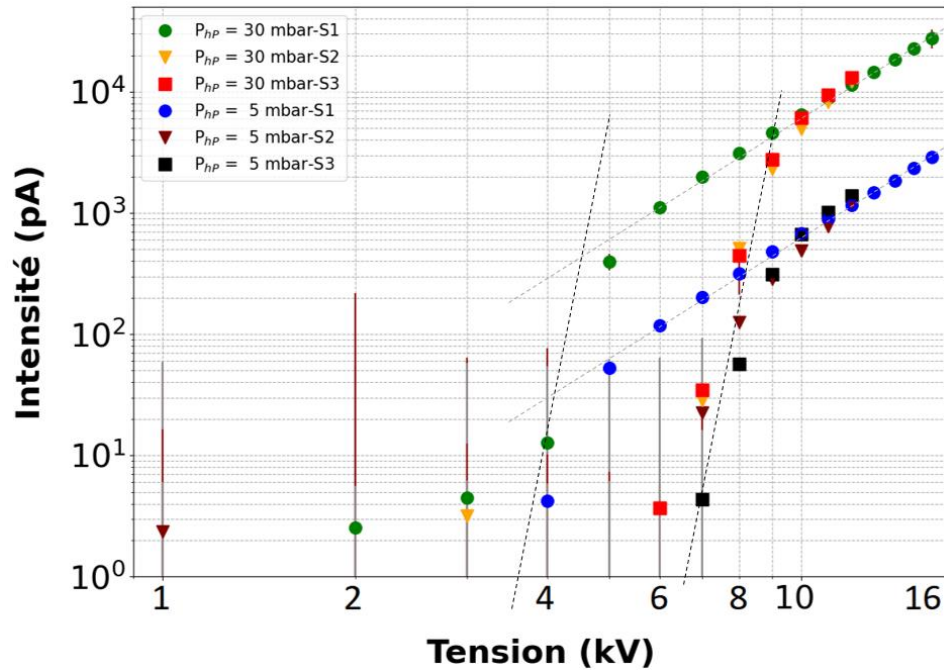


Figure 54: Courant en fonction de la tension à deux pressions différentes, pour trois structures coaxiales.

La structure S1, et S3 ont été faites sous les mêmes conditions de dépôt :

- 3 minutes sous HCl seul, à $V = -0.6V$.
- 8 secondes sous $PdCl_2$, à $V = -0.6V$.

La structure S2 est faite sous les conditions suivantes :

- 3 minutes sous HCl seul, à $V = -0.45V$.
- 8 secondes sous $PdCl_2$, à $V = -0.45V$.

On a diminué la tension de dépôt pour la structure S2, car on voulait essayer un dépôt plus fin.

Sur les courbes de la figure 54 on voit que le courant a la même évolution pour les structures S2, et S3 que la structure S1. Donc les résultats sont reproductibles pour toutes les structures. Il n'y a que la tension d'extraction qui diffère d'une pointe à une autre, et à partir de 10kV le courant est le même pour les trois structures donc la fonction d'apport est la même pour les trois structures, ce qui veut dire que les pointes ont la même forme. Je reviendrai plus tard sur la question de la forme des pointes.

3.2. Courant en fonction de la pression :

On a vu dans le chapitre 1, que le courant est proportionnel à la pression basse pression^{4,30}, sachant que les expériences ont été faites pour la plupart en pression partielle, excepté les expériences menées par Konishi et al⁴. Dans cette partie je vais présenter les résultats du courant en fonction de la pression basse pression de la structure CIS. On a vu que la fonction d'apport est directement liée au flux de gaz qui arrive en bout de pointe. Donc, il est directement lié à la pression de gaz en bout de pointe.

La figure 55 montre les résultats du courant en fonction de la pression basse pression pour les structures S1, S2 et S3 en utilisant la structure coaxiale en injection de gaz à $V = 12kV$. Pour la structure S4, les expériences ont été faites en pression partielle à $V = 12.2kV$.

On voit que le courant augmente proportionnellement avec la pression basse pression pour toutes les structures.

À partir de ces résultats, nous pouvons écrire l'équation du courant I en fonction de la pression mesurée dans la chambre basse pression P_{bP} et de la tension appliquée V .

$$I = K \times P_{bP} V^\alpha \quad (14)$$

Avec $K \approx 1000 \text{ pA/Pa/kV}^\alpha$ pour la structure S1, et $\alpha \approx 3,3$ lorsque $I, P_{bP},$ et V sont respectivement en pA, Pa et kV. K dépend de la géométrie de la structure étudiée, donc on peut augmenter l'intensité en jouant sur la géométrie de la structure.

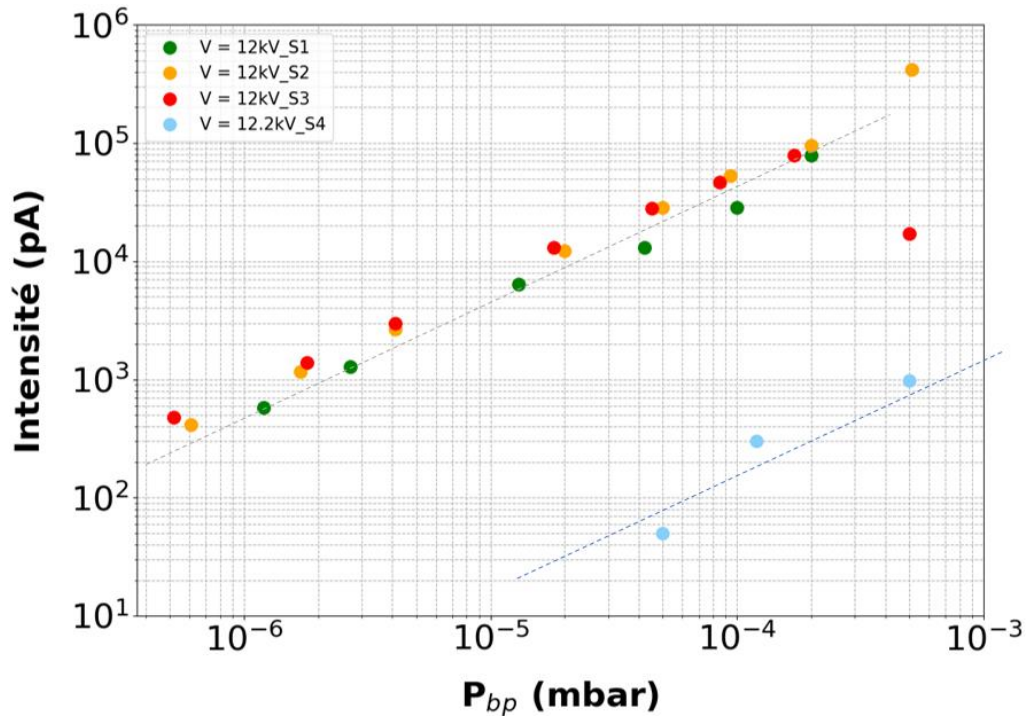


Figure 55: courant en fonction de la pression basse pression pour différentes structures. S1, S2, S3 à pression locale, et S4 à pression partielle.

3.2.1. Avantage de la structure coaxiale :

La courbe en cercle bleu de la figure 55, montre les résultats du courant en fonction de la pression basse pression en pression partielle. Dans ces expériences, le gaz est fourni par une pression partielle statique P_{bp} , plutôt que de manière dynamique à travers la structure CIS.

Pour la même pression P_{bp} , les courants observés sont inférieurs de plus de deux ordres de grandeur à ceux obtenus lorsque le gaz est injecté à travers la structure CIS. Pour $P_{bp} = 10^{-4} \text{ mbar}$, les valeurs de courant de lecture pour les lignes pointillées grises (structure CIS) et bleu (pression partielle) sont respectivement de 45000pA et 150pA, ce qui donne un rapport de courant d'environ 300. Cela veut dire que la pression P_{tip} à proximité de la pointe est environ 300 fois plus élevée que P_{bp} . En injectant des gaz localement, la géométrie CIS permet donc d'obtenir des courants d'ions beaucoup plus élevés tout en préservant le vide dans la chambre à basse pression. Un gain d'au moins deux ordres de grandeur est obtenu en injectant localement le gaz avec une structure CIS.

3.2.2. Efficacité d'ionisation :

À partir de nos résultats on peut estimer l'efficacité d'ionisation pour les trois structures CIS présentées précédemment. L'efficacité d'ionisation se calcule comme suit :

$$Y = \left(\frac{I}{q}\right) \times \left(\frac{k_B T}{Q}\right) \quad (15)$$

Avec I , le courant en ampère, q , la charge élémentaire, k_B , la constante de Boltzmann, T , la température du gaz en Kelvin, et $Q = S_e P_{bp}$ le flux de gaz en $m^3 Pa/s$, l'efficacité d'ionisation ne pourrait être calculée en pression statique. La figure 56 montre l'efficacité d'ionisation pour les trois structures S1, S2 et S3.

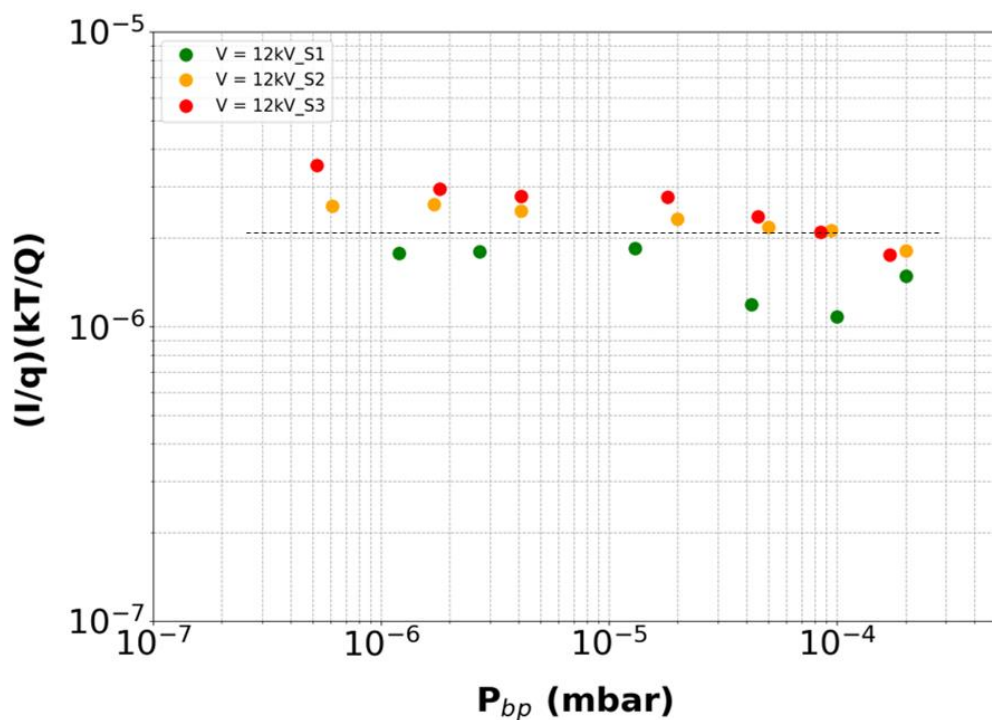


Figure 56: efficacité d'ionisation pour trois structures en fonction de la pression basse pression.

- On voit sur la figure 56 que l'efficacité d'ionisation Y est presque constante sur trois décades de pressions différentes. L'ordre de grandeur de ce rapport est de $Y \approx 2 \times 10^{-6}$ ion/molécule pour 12 kV. Cela signifie qu'il y a deux ions argon formés pour un million de molécules d'argon entrant dans la chambre à travers la structure CIS. L'efficacité d'ionisation Y reflète le rapport de la surface d'émission (surface de la pointe) sur la surface de l'orifice du capillaire en inox, donc $Y = (100 \text{ nm}/85 \mu\text{m})^2 = 1,4 \times 10^{-6}$ pour cette géométrie utilisée. L'amélioration de cette efficacité d'ionisation est envisageable en optimisant la géométrie de la source CIS, notamment en réduisant le diamètre du fil de tungstène et celui du tube en inox. Par exemple, utilisé un fil de tungstène de $25 \mu\text{m}$ de diamètre, et un tube

en inox de 50 μ m de diamètre intérieur permettrait de gagner un ordre de grandeur sur l'efficacité d'ionisation Y.

3.3. Dépôt de palladium :

Sur la figure 55 on a vu que le courant est proportionnel à la pression basse pression, si on regarde la structure S3 on voit que la dernière mesure de courant a diminué, ceci est dû au fait qu'il n'y a plus de palladium sur la pointe et que la pointe en tungstène seul se corrode. La figure 57 montre des images sous microscope électronique à balayage de la structure S3 avant et après émission.

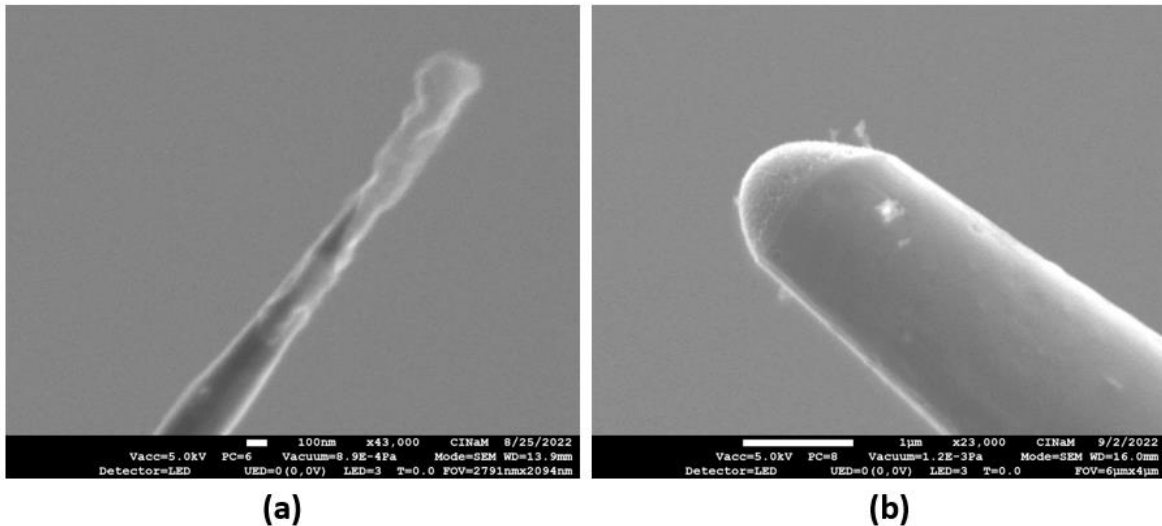


Figure 57: Structure S3 observé sous MEB avant et après émission.

On voit sur la figure 57 (a), que le dépôt de palladium n'est pas uniforme sur la pointe, le rayon de la pointe avant émission est $r \approx 140 \text{ nm}$. Après émission je l'ai observée au MEB (figure 57(b)), le rayon est de $r \approx 700 \text{ nm}$, donc la pointe s'est corrodée, ce qui explique la chute du courant sur la figure 55. On peut en conclure que pour le moment, on n'a pas encore trouvé la méthode adéquate pour une tenue du palladium sur les pointes dans le temps.

4. Corrosion :

Plusieurs auteurs^{25,34} ont vu que le rayon de courbure des pointes en tungstène augmente sous l'effet d'un champ électrique intense et en présence d'eau. C'est le phénomène de corrosion comme on l'a vu dans le chapitre 1. Grâce à cette corrosion j'ai fait un suivi de l'évolution du courant ionique en fonction de la forme de la pointe. Dans cette partie, je présente les résultats obtenus.

J'ai fait un suivi de deux structures avec deux pointes en tungstène préparées exactement dans les mêmes conditions. Les expériences ont été faites avec le nouveau porte échantillon en le polarisant négativement et en faisant des allers-retours de 0 à -16kV, la mesure du courant se fait sur la pointe.

Pour faire ces expériences, je suis passée par plusieurs étapes qui sont les suivantes :

- En premier lieu je fabrique la structure coaxiale, c'est-à-dire la pointe en tungstène dans la structure coaxiale.
- Une fois que la structure est faite, je la mets au four pendant 24 H à 145°C pour faire évaporer l'eau qui reste sur les parois mais surtout pour dégazer la colle époxy pour avoir un bon vide dans la chambre basse pression.
- Une fois que la structure est chauffée, je vais l'observer au microscope électronique à balayage pour mesurer le rayon de la pointe avant émission. Quand je mets l'ensemble de la structure coaxiale au MEB je n'arrive pas tout le temps à avoir de belles images avec une bonne résolution. Du fait de son encombrement, la source est positionnée à la plus basse position dans le microscope, cette position n'est pas optimale car cela amplifie l'impact des vibrations, parfois les images sont floues.
- Une fois que j'ai observé la pointe au MEB, je mets la structure coaxiale sous vide et je laisse étuver l'enceinte à 110°C pendant 24 à 48 H.
- Après l'étuvage je laisse refroidir jusqu'à température ambiante et je commence les mesures.
- Je fais une mesure à $P_{hp} = 0 \text{ mbar}$, puis à $P_{hp} = 5 \text{ mbar}$, et enfin à $P_{hp} = 30 \text{ mbar}$, en appliquant les paliers d'aller-retour de 0 à -16 kV comme on l'a vu sur la figure 45 du chapitre 2. Je refais la boucle N fois comme on le voit sur le schéma de la figure 58.

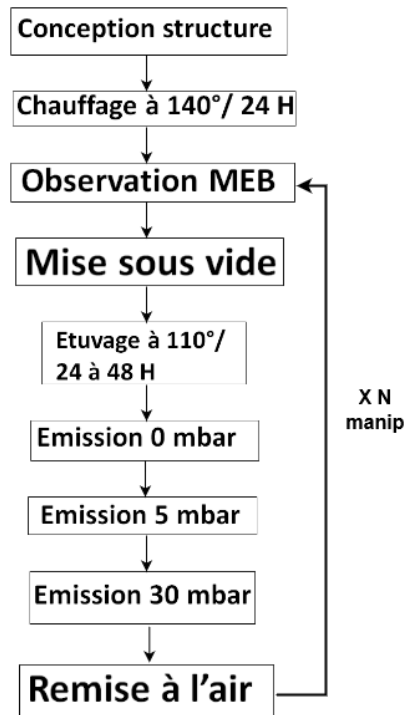


Figure 58: schéma montrant les étapes à suivre pour les expériences.

Je fais un spectre avec le spectromètre de masse avant chaque mesure pour pouvoir suivre la quantité d'eau dans la chambre basse pression comme on le voit sur la figure 59.

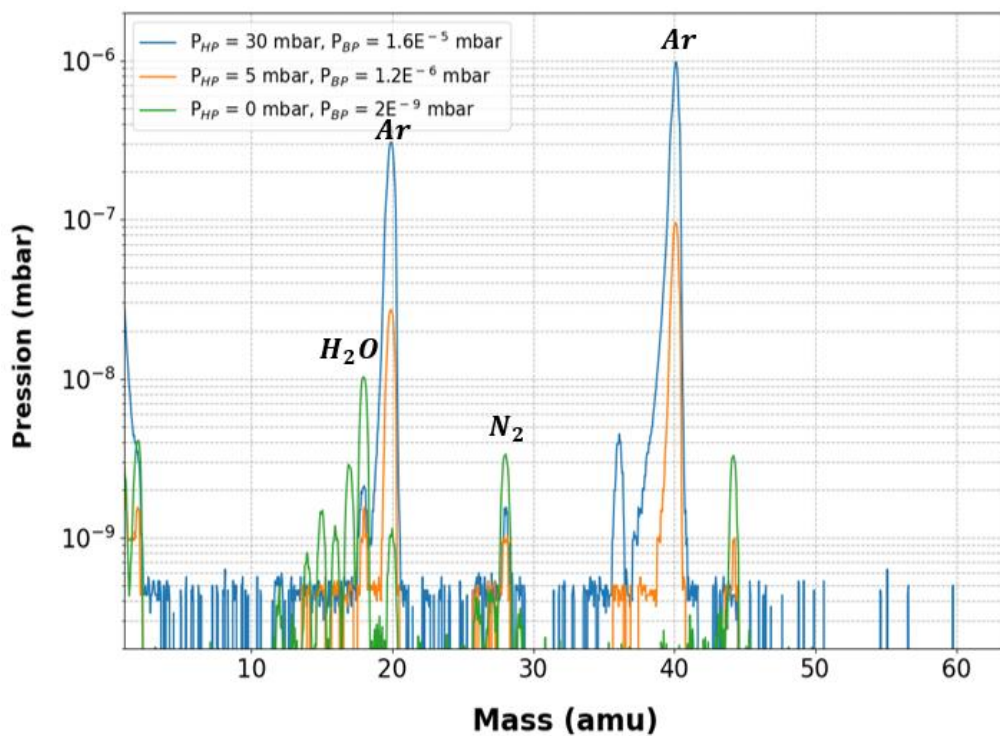


Figure 59: spectromètre de masse pour trois pressions d'argon différentes.

On voit qu'on a pratiquement la même quantité d'eau, une pression d'eau de 10^{-9}mbar , à une pression d'argon de $1.2 \times 10^{-6} \text{mbar}$, et $1.6 \times 10^{-5} \text{mbar}$. Cela veut dire que la quantité d'eau qui se trouve dans la chambre basse pression ne vient pas du flux de gaz, c'est juste l'eau qui se trouve adsorbée sur les parois de la chambre basse pression donc aussi sur la pointe. L'étuvage à 110°C pendant 24H ou 48H n'est pas suffisant pour enlever toute l'eau dans la chambre basse pression.

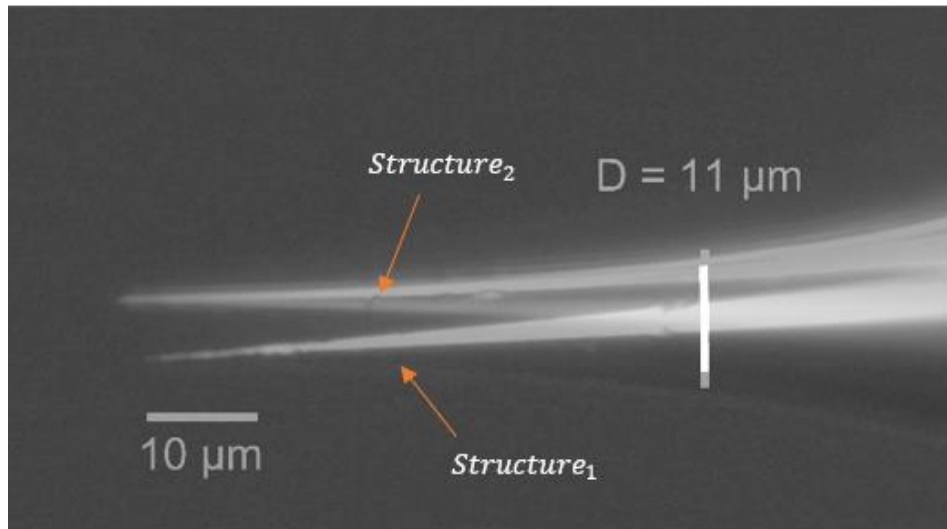


Figure 60: Image sous microscope optique de la structure₁ et la structure₂.

La figure 60 montre les images des deux pointes sous microscope optique. On voit que la structure₂ est plus longue que la structure₁ de $(2.6 \pm 0.5 \mu\text{m})$. L'angle de cône mesuré de la structure₁ est $\alpha_1 = 13.4^\circ$, et de la structure₂ est $\alpha_2 = 10.5^\circ$.

4.1. Structure₁ :

Les mesures du courant en fonction de la tension pour la structure₁ sont représentées sur la figure 61. On voit que la pointe commence l'émission à $V = 8 \text{kV}$, le courant augmente en fonction de la tension. Le 2^{ème} jour de manip (cercles orange) on voit que le courant a diminué par rapport au premier jour de manip (cercles vert). À partir du 3^{ème} jour de manip on voit que le courant augmente pour des tensions élevées et que la tension de première émission augmente. C'est-à-dire que la pointe émet à une tension plus importante par rapport à sa tension d'émission du premier jour, et ceci est valable pour les 5 jours. La pointe n'émet plus après le 5^{ème} jour car il y a eu un arc qui a dû l'endommager.

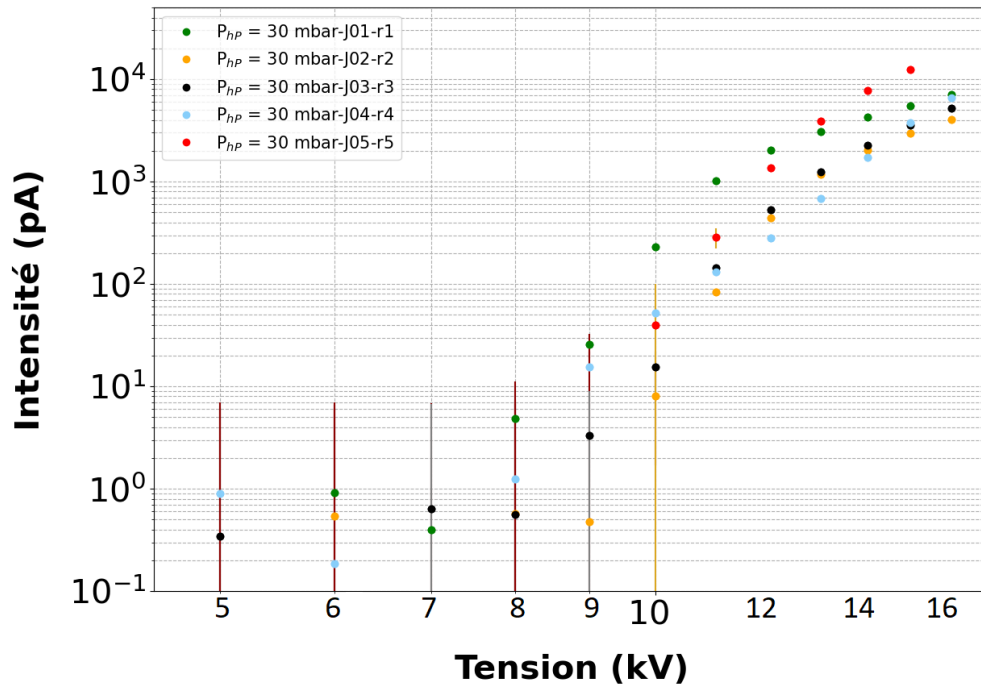


Figure 61: Courant en fonction de la tension à $P_{hp} = 30 \text{ mbar}$, avec de l'argon pour la structure₁ après 5 jours de manip.

La figure 62 représente le schéma qui montre la reconstruction des pointes. Après chaque jour d'émission j'observe la pointe au MEB et je mesure le rayon de la pointe en faisant un cercle autour du bout de la pointe. Pour suivre l'évolution de la pointe je superpose les images après chaque émission pour essayer de reconstruire la pointe, pour cela je me base sur la superposition des diamètres des pointes comme on le voit sur la figure 63.

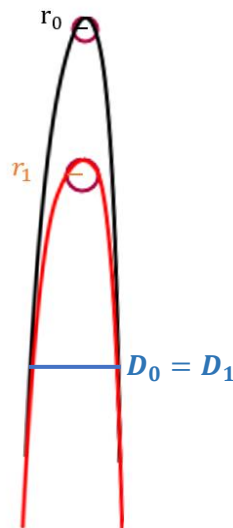


Figure 62: schéma montrant la reconstruction des pointes.

La figure 63 montre la superposition du bout de la pointe de la structure₁ après chaque jour de manip, le rayon r_0 est le rayon de la pointe avant émission, et le rayon r_5 est le rayon de la pointe après émission au 5^{ème} jour. On voit que le rayon de courbure de la pointe augmente après chaque émission : la pointe se corrode et rétrécit au fur et à mesure.

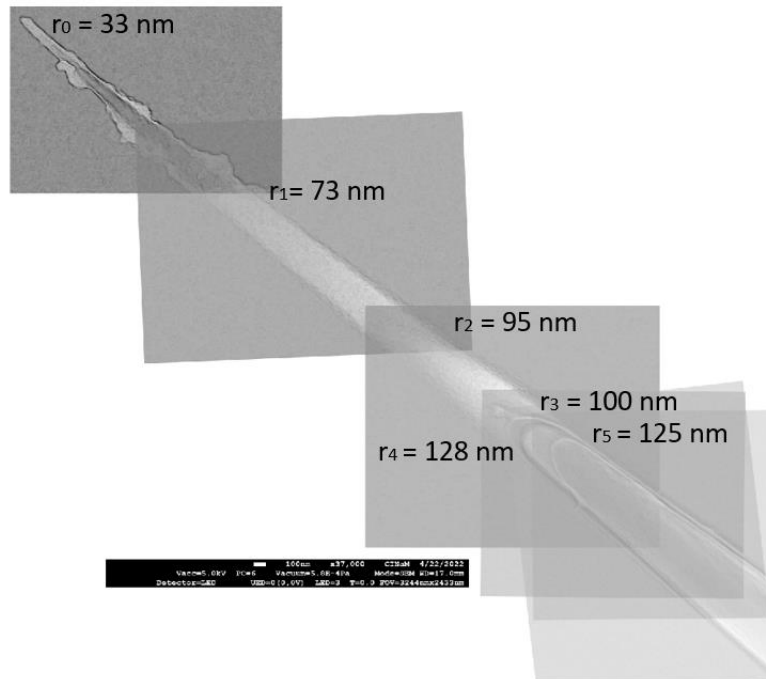


Figure 63: Images MEB montrant l'évolution du rayon de courbure de la pointe après chaque jour de manip.

4.2. Structure₂ :

La mesure du courant en fonction de la tension pour la structure₂ est représentée sur la figure 64. On voit que le courant augmente en fonction de la tension, la pointe commence l'émission à $V = 5 \text{ kV}$. Les cercles verts représentent le courant du 1^{er} jour de manip, le courant a baissé pour le 2^{ème} jour (cercle orange), puis il a encore diminué un peu pour le 3^{ème} jour de manip (cercles noire). Le 4^{ème} jour de manip on voit le courant augmenter (cercles bleu), puis il diminue encore le 5^{ème} jour (cercles rouge). Pour le 6^{ème} jour le courant augmente jusqu'à dépasser le courant du 1^{er} jour (cercles jaune foncé), et à la fin pour le 7^{ème} jour (cercles marron) le courant s'écroule, la pointe n'émet plus.

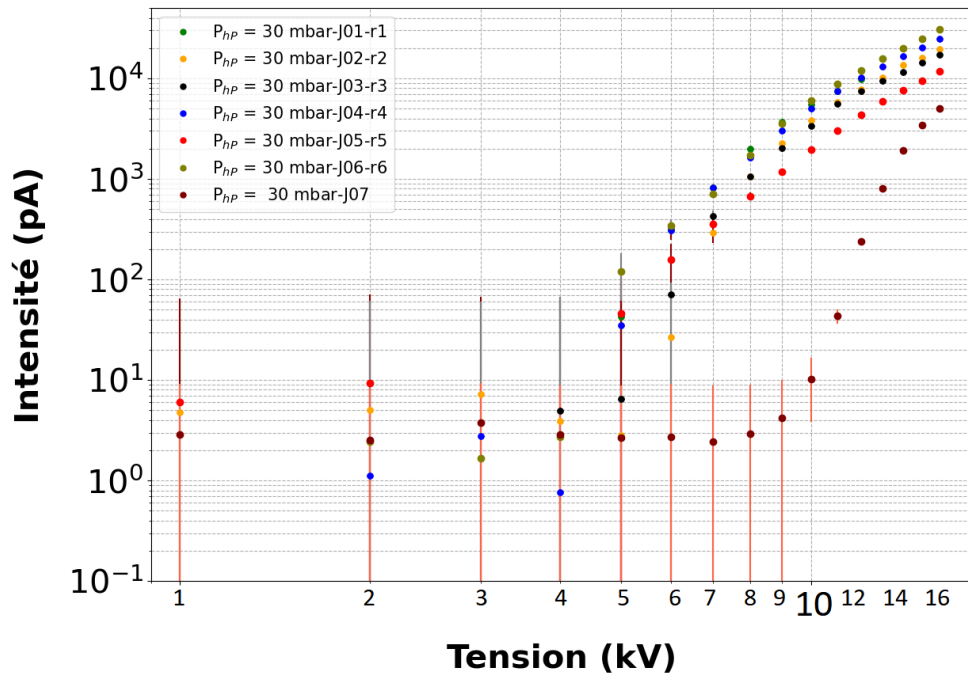


Figure 64: Courant en fonction de la tension à $P_{hp} = 30 \text{ mbar}$, avec de l'argon pour la structurez après 7 jours de manip.

J'ai utilisé la même méthode que pour la structure₁ pour la mesure du rayon de la pointe, et la reconstruction de la pointe après chaque jour de manip. J'ai superposé tous les bouts de la pointe après chaque jour de manip en me basant sur le diamètre à chaque fois comme on le voit sur la figure 65. Pour la structure₂ je n'ai pas mis d'image MEB avant émission car l'image était floue.

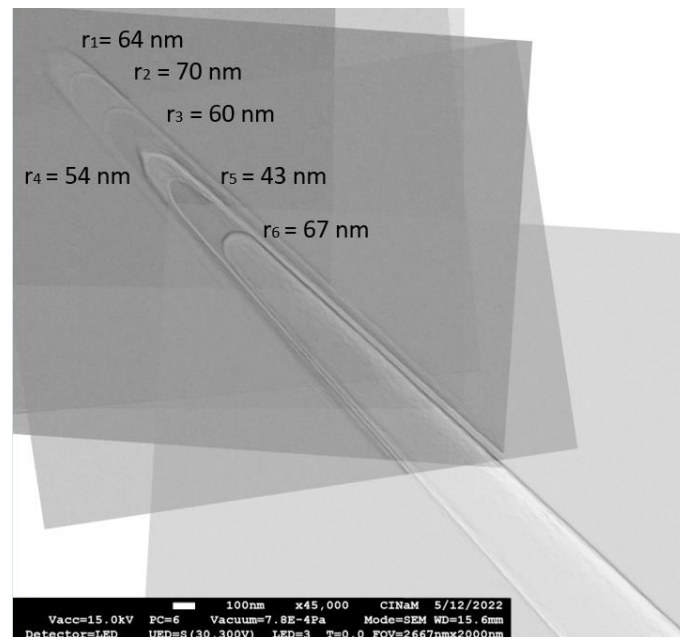


Figure 65: Images MEB montrant l'évolution du rayon de courbure de la pointe après chaque jour de manip.

Sur la figure 65, l'observation au MEB se faisant sous un angle différent entre chaque mesure, et parce que la pointe est dissymétrique, on a l'impression que la pointe s'est corrodée sur les côtés. Donc, même si la corrosion ne se fait qu'en bout de pointe, on peut avoir l'impression qu'elle est corrodée sur le côté. Par ailleurs, le facies du bout de pointe évolue ; il peut présenter des angles de cônes plus ou moins ouverts selon les cas. D'ailleurs, le rayon a commencé par augmenter après le 1^{er} jour de manip, puis a diminué après les autres jours de manip jusqu'au 6^{ème} jour où on le voit ré-augmenter.

4.3. Discussion :

L'augmentation de la tension d'extraction pour la structure₁ montre que le champ électrique en bout de pointe n'est pas constant avec la tension. Pour rappel, avec ce type de pointe, $F=V/kr$. Pour obtenir le même courant ionique, le même champ électrique est requis ; si la tension augmente, cela indique que le rayon de courbure de la pointe augmente. De fait c'est ce qu'on mesure sur les images vues au MEB.

Pour confirmer la formule du champ électrique $F = \frac{V}{kr}$ j'ai tracé sur la figure 66, la tension en fonction du rayon pour les deux structures. J'ai fixé le courant à 1nA, donc le champ électrique F est supposé être constant pour différentes tensions ($V = (kF) \times r$). La ligne en pointillé correspond à la pente de la courbe $kF = (0.120 \pm 0.007) \text{ kV/nm}$, pour ce type de pointe $k = 5$, alors le champ électrique appliqué ici est $F \approx (24 \pm 2) \text{ V/nm}$.

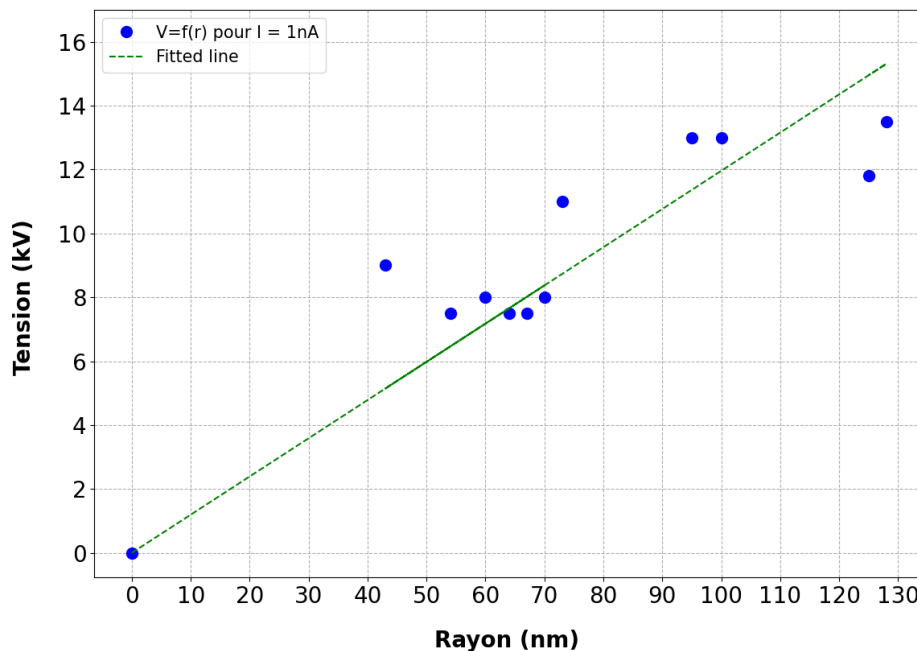


Figure 66: Évolution de la tension en fonction du rayon pour la structure₁, et la structure₂.

En intégrant chaque courbe $I(t)$ (type figure 45 page 77), on calcule le nombre de charges d'argon émises pour chaque jour de manip. On peut voir l'évolution du nombre de charges d'argon émises en fonction du rayon (voir la figure 67).

La reconstruction des pointes nous permet de revenir à la hauteur corrodée de la pointe entre chaque jour. Au total $h_{corrodée} \approx 6.4 \mu m$ pour la structure₁, et $h_{corrodée} \approx 2.25 \mu m$ pour la structure₂. À partir des images MEB on peut revenir au nombre d'atomes provenant du tungstène pour chaque structure. Le calcul du nombre d'atomes provenant du tungstène se fait comme suit :

$$N_{provenant\ du\ W} = \frac{m_W(kg)}{M(kg)} \quad (16)$$

$$m_W = V_{cor} \times \rho_W \quad (17)$$

$$V_{cor} = [\pi \times r_0^2 \times h] + \left[\frac{1}{3} \times \pi \times h \times (r_1 - r_0)^2 \right] \quad (18)$$

Avec r_0 le rayon avant émission, et r_1 le rayon après émission. La figure 67 montre l'évolution du nombre d'atomes provenant du tungstène en fonction du rayon. Cela montre que la hauteur corrodée est quasi constante puisque l'évolution se fait en r^2 .

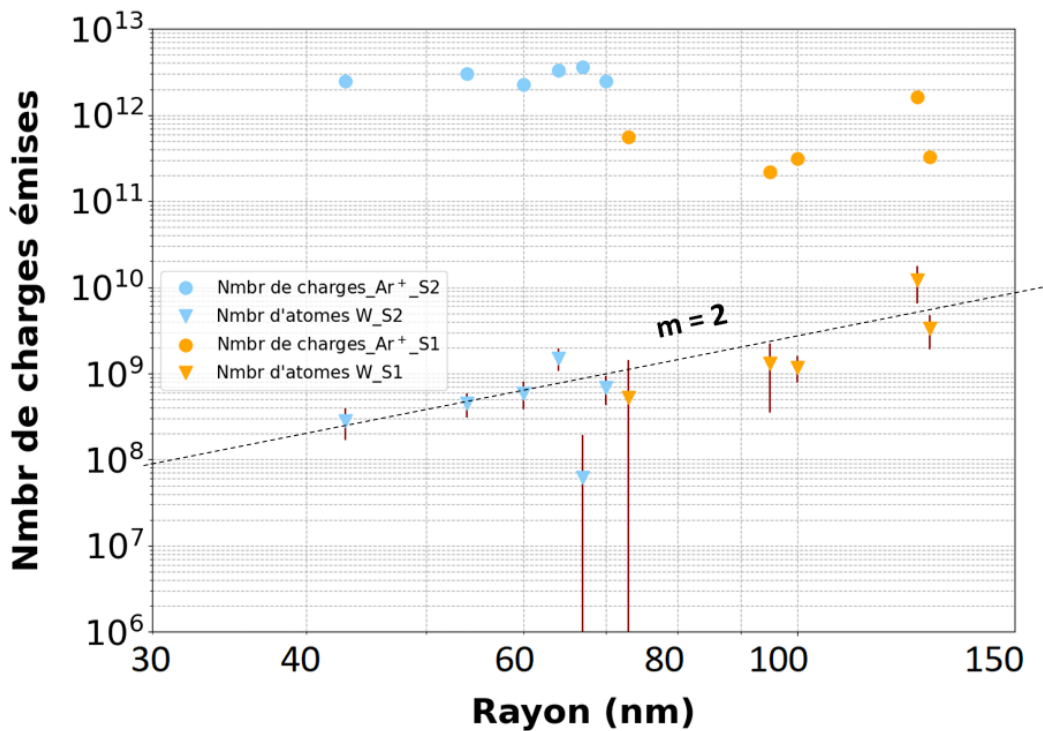


Figure 67: Nombre de charges d'argon émises, et d'atomes de W corrodés en fonction du rayon de la pointe pour les 2 structures

On voit que le nombre de charges d'argon émises pour les deux structures est constant en fonction du rayon (cercles orange pour la structure₁, et cercle bleu pour la structure₂).

Le temps d'expérience est le même pour chaque expérience. En sommant les charges, la majorité du signal provient des courants les plus forts. Dans ce régime, la fonction d'apport gouverne l'évolution de l'intensité. Une structure qui maintient une fonction d'apport à peu près constante reste stable en termes de nombre de charges émises.

On voit aussi que le nombre de charges d'argon émises avec la structure₂ dont l'angle de cône est inférieur à celui de la structure₁, est supérieure au nombre de charges d'argon émises par la structure₁. Une pointe plus effilée, et cylindrique, est favorable et permet d'augmenter le nombre de charges émises. On peut expliquer ça par le fait qu'un petit angle de cône favorise la diffusion des atomes de gaz sur la surface. Cela a déjà été observé par Kobayashi et al⁴⁴. Dans cet article, ils indiquent que le gradient du champ est plus faible dans le cas d'une pointe quasi-cylindrique, ce qui augmente la fonction d'apport en bout de pointe selon la polarisabilité de la molécule. Cela permet d'obtenir un courant plus important, et indique que le rayon de la pointe n'a que peu d'influence sur le courant ionique lui-même.

Les expériences présentées plus haut dans la figure 54 montre des résultats reproductibles d'une structure à une autre, pour la même tension on a le même courant pour les trois structures ce qui confirme qu'on a la même fonction d'apport, et donc la même forme de pointe pour les trois structures.

Maintenant, sur la figure 67, on va s'intéresser au nombre d'atomes provenant du tungstène (triangles orange pour la structure₁, et triangles bleus pour la structure₂). On voit que le nombre d'atomes provenant du tungstène semble proportionnel à r^2 , la hauteur h étant quasi-constante, c'est la surface qui fixe le nombre d'atomes corrodés, ce qui laisse supposer que c'est un processus de surface, comme l'adsorption d'eau. On voit que la quantité d'atomes de tungstène « corrodés » avec la structure₁ est supérieure à celle mesurée avec la structure₂. Les rayons du bout de la pointe de la structure₁ sont supérieurs aux rayons du bout de la pointe de la structure₂. Les surfaces sont plus grandes et la structure est plus vite corrodée. Donc plus le rayon est grand, plus la surface du bout de la pointe est grande, plus l'adsorption de l'eau est importante, plus la corrosion est importante.

Durant ma thèse, je n'ai pu faire le suivi de l'évolution du courant en fonction de la forme de la pointe qu'avec deux structures. Ce sont des expériences qui demandent beaucoup de temps. Bien que semblant assez robustes, les enseignements de ces expériences restent à confirmer dans le cadre d'un développement industriel.

5. Durée de vie des structures :

On a vu dans le chapitre 1 que la durée de vie d'une source est très importante, elle est définie comme étant son temps de fonctionnement, c'est-à-dire le temps de conservation de l'intensité au cours du temps. Dans le cas de sources fonctionnant avec des régimes d'intensités variées, cette durée de vie peut être exprimée en termes de nombre de charges émises en fonction du temps.

J'ai calculé le nombre de charges émises pour différentes structures avec des pointes en tungstène seul, et avec des pointes en tungstène recouvertes de palladium, comme suit :

$$I = \frac{dq}{dt} = \frac{Ne}{\Delta t} \quad (19)$$

Avec N, le nombre de charges émises, I, le courant en A, e, la charge élémentaire, et Δt , le temps de manip en secondes.

La figure 68 montre le nombre de charge émises en fonction du temps pour une source avec une pointe en tungstène seul et une source avec une pointe en tungstène recouverte de palladium avec de l'argon en faisant un aller-retour entre 0 et 12 kV, et de six manips à $P_{hP} = 5\text{mbar}$.

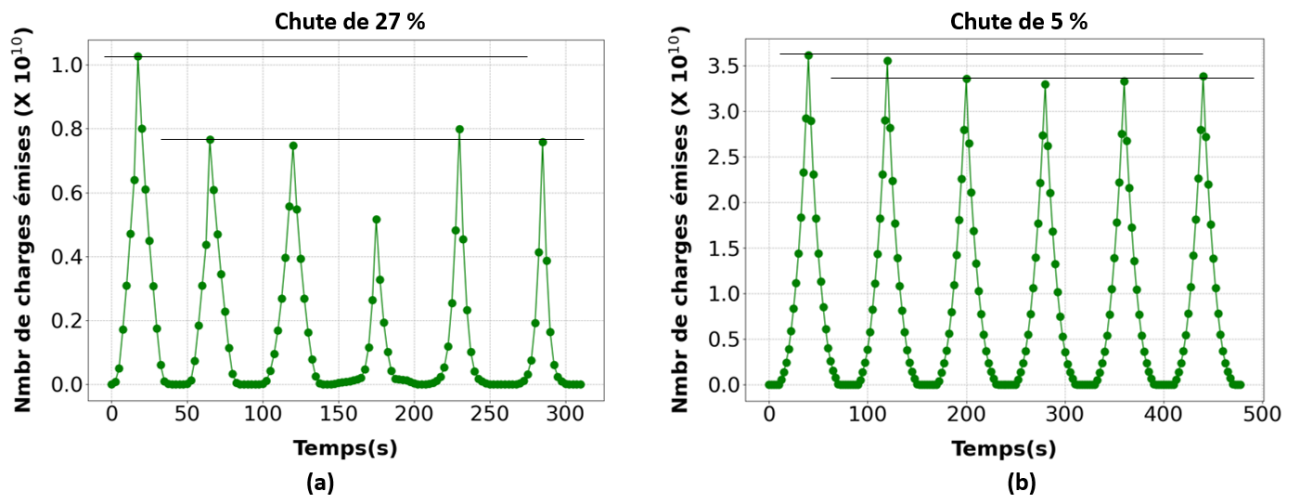


Figure 68: Nombre de charges émises en fonction du temps, -a- pointe en tungstène seul, -b- pointe en tungstène recouverte de palladium.

On voit que le nombre de charges émises chute de 27% avec les pointes en tungstène seul, tandis qu'avec les pointes recouvertes de palladium le nombre de charges émises chute de 5% seulement.

Avec cette méthode de calcul on revient au nombre de charges en fonction du temps, donc ça nous permet de quantifier la durée de vie de la source, mais cela ne nous permet pas de conclure sur sa stabilité.

Le tableau 5 montre les résultats obtenus en nombre de charges émises avec des pointes en tungstène seul, et les pointes recouvertes de palladium.

Structure	Nombre de charges émises	Temps d'émission (min)
S_W_01	6.77×10^{11}	17
S_W_02	2.43×10^{11}	6.53
S_W_03	1.19×10^{11}	15
S_W_04	1.1×10^{12}	19.83
S_W_05	1.63×10^{13}	58.66
S_W_06	6.44×10^{13}	102
S_W/Pd_01	1.36×10^{14}	2 H 15
S_W/Pd_02	3.92×10^{14}	58.33
S_W/Pd_03	4.83×10^{13}	49

Tableau 5: Nombre de charges émises en fonction du temps pour différentes structures. S_W (structure avec des pointes en tungstène seul). S_W/Pd (structure avec des pointes en tungstène recouverte de palladium).

On voit que pour le nombre de charges émises, on a en moyenne un ordre de grandeur entre les pointes en tungstène seul, et les pointes recouvertes de palladium. Le fait de recouvrir les pointes avec du palladium nous aide à améliorer la durée de vie des sources. Comme je l'ai mentionné plus haut, pour le moment cette méthode de dépôt de palladium n'est pas encore parfaite mais on sait que le palladium améliore la durée de vie des sources.

Conclusion :

Les régimes d'écoulement de la source d'ions à structure coaxiale sont caractérisés. On a vu que tous les gaz se rassemblent en une seule courbe en forme de S. En utilisant les résultats expérimentaux et les expressions théoriques des régimes d'écoulements on a pu calculer le b_{eff} qui est la caractéristique géométrique la plus appropriée pour la géométrie CIS.

L'angle de cône a été mesuré, et la brillance de la source CIS est estimée à $B \approx 3 \times 10^7 A.cm^{-2}.sr^{-1}$, qui dépasse la brillance des LMIS d'un ordre de grandeur.

La caractérisation du courant dans toute la gamme de pression et de tension a été effectuée pour 3 structures. On a vu que nos résultats s'accordent avec ceux obtenus dans la littérature à pression partielle. C'est-à-dire que le courant évolue selon deux pentes, la première qui est limitée par le champ et la seconde qui est limitée par la fonction d'apport. On a vu aussi que le courant est proportionnel à la pression basse pression P_{bp} , donc au flux de molécules $Q = S_e P_{bp}$, pour une vitesse de pompage donnée S_e .

La géométrie de la source CIS nous permet d'avoir un courant 300 fois plus grand qu'avec des pointes en pression partielle, donc la pression en bout de pointe est au moins 300 fois plus grande que la pression basse pression. L'efficacité d'ionisation peut être améliorée en changeant la géométrie de la source CIS.

Des améliorations pour un dépôt uniforme de palladium doivent être apportées, pour éviter le risque de perdre la couche de palladium pendant l'émission. Mais le dépôt a permis d'augmenter la durée de vie des structures d'un ordre de grandeur en ce qui concerne le nombre de charges émises. Cela a permis de faire des mesures à la fois stables et reproductibles. La forme des pointes obtenues est stable pour des conditions de dépôt équivalentes.

L'évolution du courant en fonction de la forme de la pointe a été étudiée grâce au phénomène de corrosion du tungstène sous champ électrique en présence d'eau. On a vu qu'utiliser des pointes avec un petit angle de cône permet d'augmenter le courant mesuré, car la fonction d'apport augmente.

Tous les résultats que j'ai présentés dans ce chapitre ont été obtenus en polarisant le porte échantillon négativement, non pas la pointe positivement à cause des arcs au niveau du capillaire en quartz. Dans le prochain chapitre je présenterai les modifications apportées à la structure coaxiale (CIS) pour l'intégrer dans un faisceau d'ion focalisé (FIB).

Chapitre 4 : Intégration de la source CIS dans le FIB.

Ce chapitre comporte les solutions apportées pour pouvoir intégrer la source d'ions à structure coaxiale dans une colonne à faisceau d'ions focalisés. La première partie va résumer la partie du travail expérimental : les modifications apportées au montage de la structure coaxiale qui permettent de polariser la pointe positivement et de caractériser la source dans toutes les gammes de pression et de tension souhaitées sans avoir d'arc au niveau du tube en quartz. La deuxième partie présentera les résultats expérimentaux en termes de conductances et de régimes d'écoulements, et aussi les résultats du courant en fonction de la tension et de la pression. Enfin, la dernière partie porte sur le nouveau montage de la source CIS pour pouvoir l'intégrer dans une colonne à faisceau d'ions focalisé.

1. Modifications apportées :

On a vu dans le chapitre 3 que la caractérisation de la source d'ion à structure coaxiale CIS dans toutes les gammes de pression et de tension souhaitées a été faite. J'ai pu faire la caractérisation dans le microscope à projection au laboratoire du CINaM. Ces expériences sont faites en polarisant le porte échantillon (la grille ou le diaphragme) négativement et en mesurant le courant sur la pointe.

Pour pouvoir intégrer la source CIS dans les faisceaux d'ions focalisés, la polarisation doit se faire dans l'autre sens, c'est-à-dire, polariser la pointe positivement, pour cela il faut limiter les arcs au niveau du tube en quartz.

La figure 69 montre les courbes de Paschen pour différents gaz. Les arcs se produisent à partir de 10 kV quand on se trouve dans la partie entre les deux lignes verticales en pointillés pour l'argon.

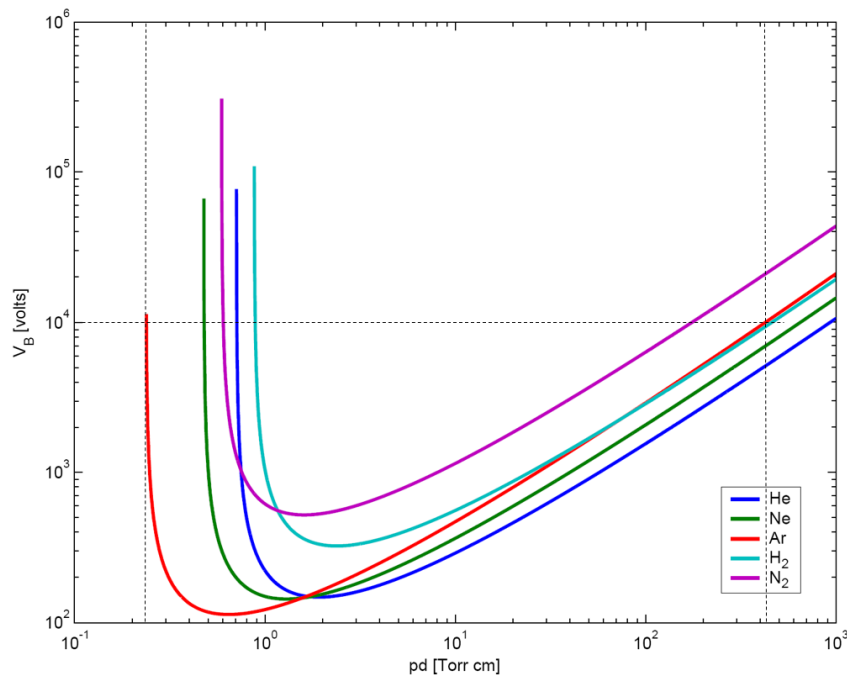


Figure 69: courbes de Paschen pour différents gaz (extrait de Wikipédia).

Pour limiter les arcs au niveau du tube en quartz, il faut soit diminuer la pression pour être dans la partie de gauche sur la courbe, soit augmenter la pression pour se retrouver dans la partie de droite de la courbe. Pour notre cas on a choisi de se mettre dans la partie de droite, c'est-à-dire augmenter la pression haute pression. Pour cela, on a ajouté une pièce où on met un diaphragme avec un trou de 10 μm ou 20 μm juste après le tube en quartz pour augmenter la pression dans le tube en quartz tout en garantissant un flux de gaz important dans le tube en inox.

La figure 70 (a) montre le diaphragme sous microscope optique, et la figure 70(b) montre l'image du dessus de la pièce en laiton avec le diaphragme collé à l'intérieur, on appellera cette pièce le porte manchon.

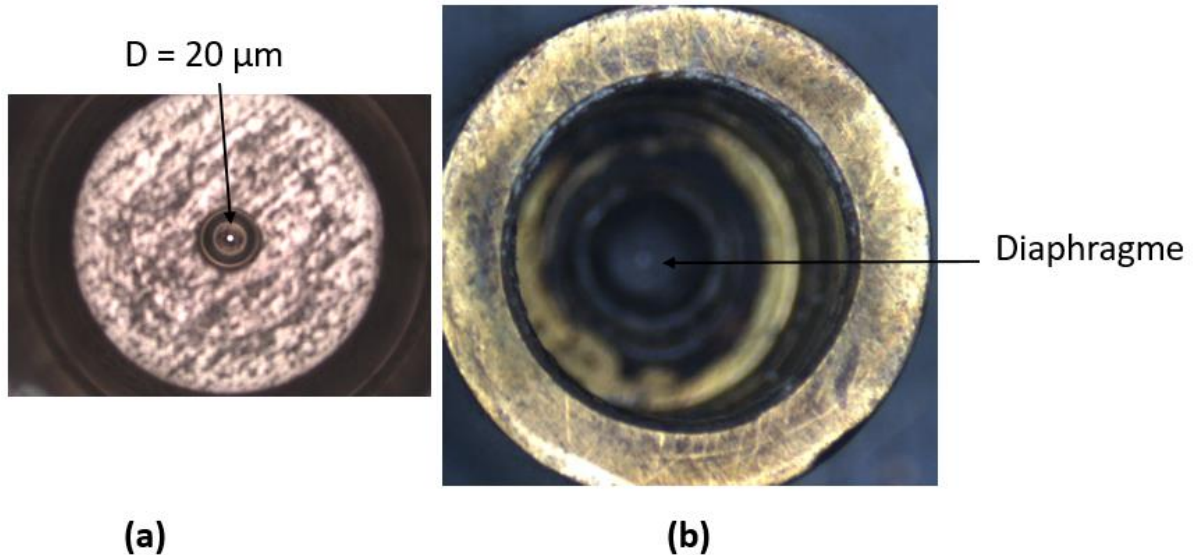


Figure 70: Image sous microscope optique du diaphragme et du porte manchon

Les expériences faites avec le diaphragme dont le diamètre du trou est de 10 μm n'ont pas donné les résultats attendus : Pour le premier test, la structure était bouchée car le diaphragme n'était pas troué à l'usinage ; pour le second test, la structure était bouchée, cette fois parce que la colle époxy a migré au niveau du trou et l'a bouché. Dans les deux cas la structure était bouchée.

Avec le diaphragme dont le diamètre du trou est de 20 μm, j'ai pu balayer différentes pressions et tensions en polarisant la pointe positivement, mais pas dans toutes les gammes souhaitées, ces résultats seront présentés plus tard.

Ces expériences ont confirmé qu'un diamètre de trou entre 10 et 20 μm peut résoudre le problème des arcs. On a décidé d'étirer les capillaires en quartz pour avoir des trous de diamètre entre 10 et 20 μm en sortie de tube, et remplacer le tube en quartz suivi d'un diaphragme par un capillaire étiré qui sera collé au niveau du porte manchon en laiton vu sur la figure 70(b). Le porte manchon accueille l'ensemble manchon, tube en inox et fil de tungstène taillé en pointe.

La figure 71 montre le montage porte manchon de la structure coaxiale.

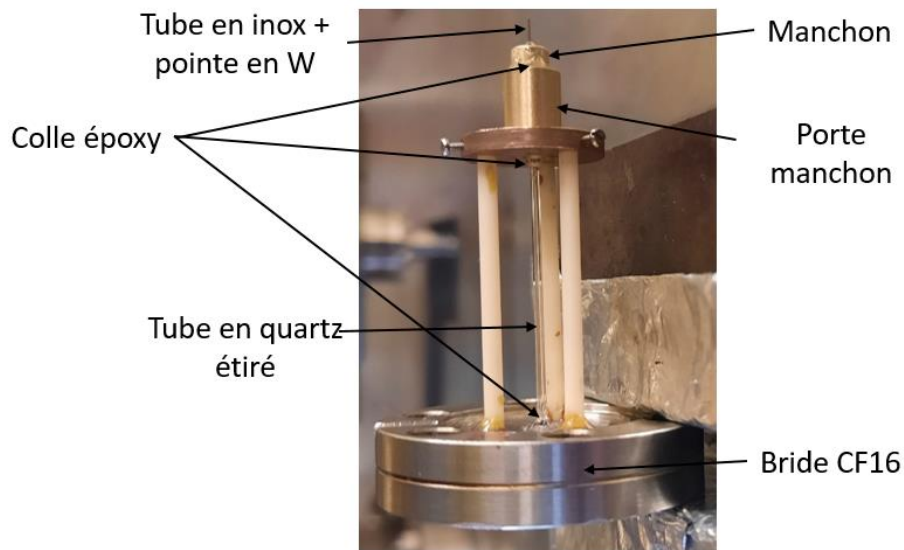


Figure 71: Photo du nouveau montage de la structure coaxiale.

J'étire les tubes en quartz avec une étireuse de type P2000 de chez Sutter Instruments. Je pars d'un tube avec un diamètre extérieur de 1mm et un diamètre intérieur de 500 μm . J'applique les conditions d'étirage suivantes : Heat = 500 ; filament= 0 ; delay= 20 ; speed= 160 ; pull= 125. Généralement j'arrive à obtenir des tubes avec des diamètres intérieurs entre 12 et 18 μm . Différentes expériences ont été faites avec ce montage, en utilisant des pointes en tungstène seul, et en polarisant la pointe positivement, et je n'ai pas eu de problème d'arcs au niveau du tube en quartz, les résultats obtenus seront présentés au paragraphe suivant. La figure 72 montre l'image sous microscope optique d'un capillaire étiré.

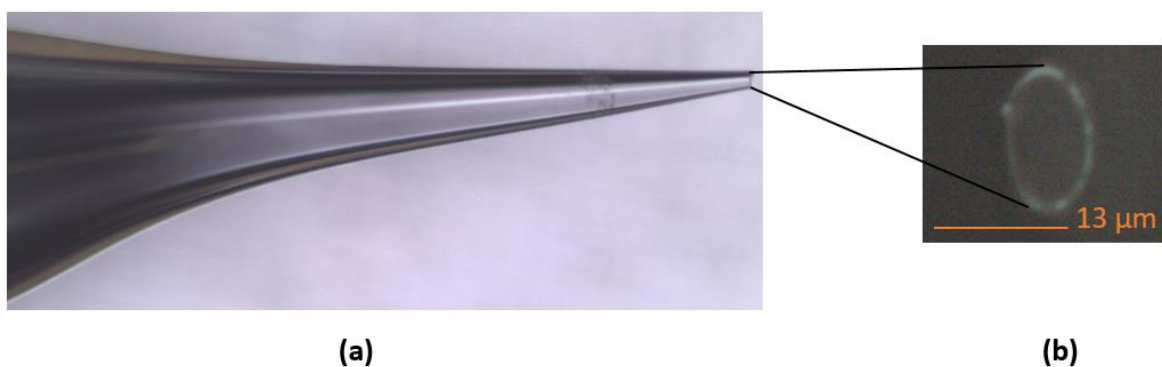


Figure 72: (a) vue de la partie étirée du tube en quartz. (b) vue du dessus du diamètre du tube en quartz.

Les conditions utilisées pour étirer les tubes sont constantes mais la dispersion des diamètres obtenus avec cette étireuse est de l'ordre de 30%. Donc les diamètres varient légèrement à chaque fois : je sélectionne les capillaires après visualisation au microscope optique.

2. Résultats expérimentaux :

2.1. Conductances :

Avant de caractériser le courant dans toute la gamme de tension et de pression avec le montage porte manchon de la source CIS, j'ai d'abord caractérisé ses régimes d'écoulements. Pour la caractérisation des régimes d'écoulements on a commencé par l'étude de l'évolution de la pression basse pression en fonction de la pression haute pression. La mesure est faite avec la même méthode que celle présentée au chapitre 3.

La figure 73 montre les mesures de la pression basse pression en fonction de la pression haute pression, avec de l'azote et quatre structures différentes. Le diamètre intérieur du tube en inox $D = 170 \mu\text{m}$ est le même pour toutes les structures, et le diamètre du fil de tungstène $d = 125 \mu\text{m}$ est le même aussi pour toutes les structures.

- S8 est faite avec la source CIS de base, c'est celle présentée dans le chapitre 3.
- S12 est faite avec un diaphragme dont le diamètre du trou est de $20 \mu\text{m}$.
- S13, et S14 sont faites avec des tubes en quartz étiré, $D_{13} \approx 13 \mu\text{m}$, et $D_{14} \approx 12.8 \mu\text{m}$.

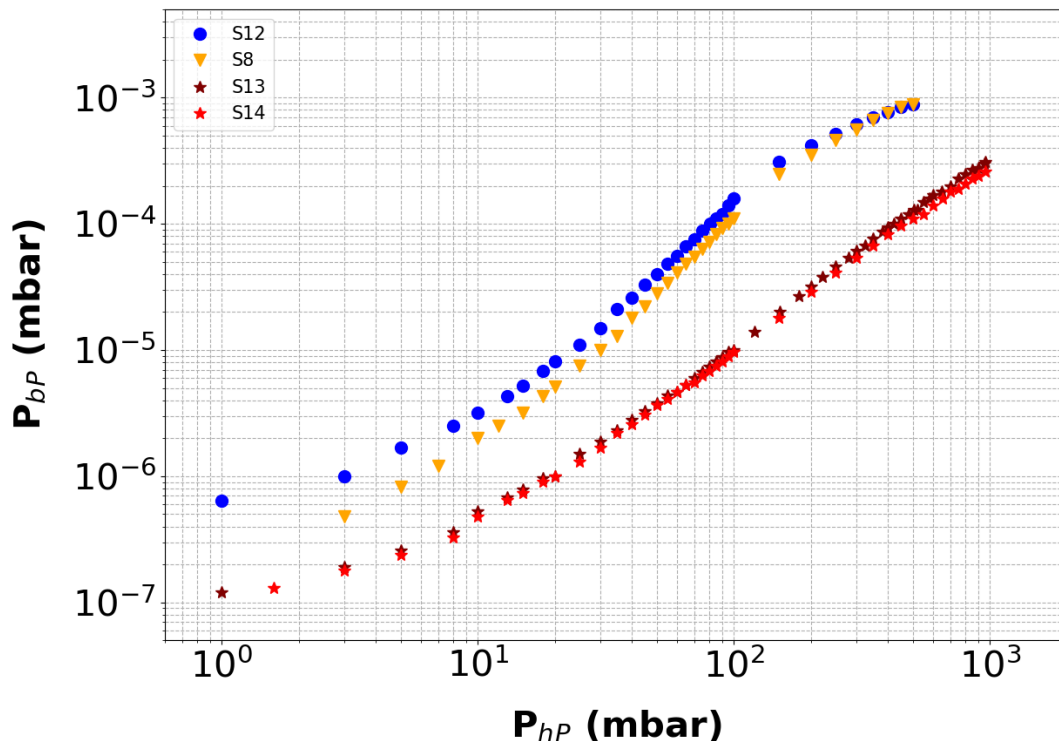


Figure 73: Pression basse pression P_{bP} en fonction de la pression haute pression P_{hP} , avec de l'azote, et avec quatre sources CIS de géométrie différente.

La pression basse pression augmente en fonction de la pression haute pression pour toutes les sources ce qui indique que la structure est ouverte. Les pressions pour la source S12 faite avec un diaphragme dont le diamètre du trou est de $20\mu\text{m}$ sont du même ordre de grandeur que les mesures avec la source S8 qui est faite avec le montage initial de la source CIS. On voit qu'on a un ordre de grandeur entre les mesures de pression basse pression P_{bp} pour les sources S13, et S14, et les pressions basse pression des source S8, et S12. $P_{bp}/P_{hp} \approx 3 \times 10^{-7}$ pour les sources avec tube en quartz étiré, ce rapport est inférieur à 10^{-6} de S8, et S12.

Maintenant que les mesures de pression basse pression sont faites on peut caractériser les régimes d'écoulements pour les différentes sources en traçant la conductance réduite C^* en fonction de l'inverse du libre parcours moyen $1/\lambda$ comme on l'a vu dans le chapitre 3.

La figure 74 montre les conductances en fonction de l'inverse du libre parcours moyen pour les quatre structures.

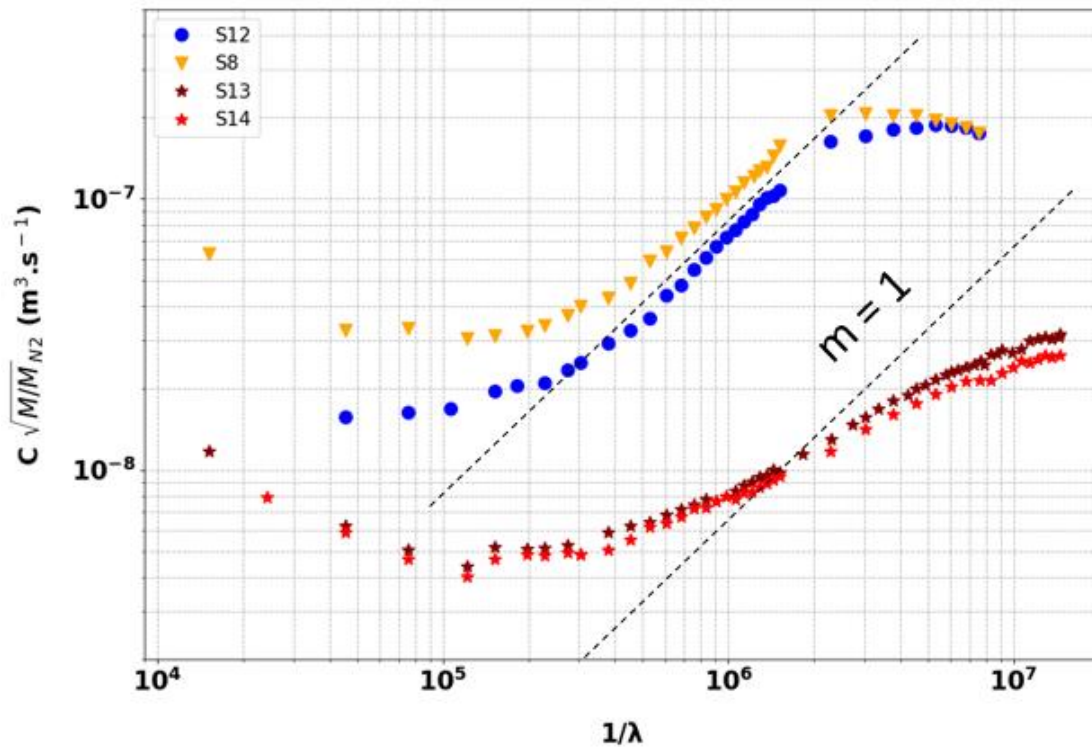


Figure 74: conductance en fonction de l'inverse du libre parcours moyen avec de l'azote, pour quatre structures différentes.

On voit que pour les structures S8, et S12 on retrouve les trois régimes d'écoulements :

- Le premier plateau $10^4 < 1/\lambda < 10^5 \text{ m}^{-1} \Rightarrow$ régime moléculaire.
- La pression basse pression augmente en fonction de la pression haute pression $10^5 < 1/\lambda < 1.5 \times 10^6 \text{ m}^{-1} \Rightarrow$ régime visqueux.
- Deuxième plateau \Rightarrow régime exit-loss.

Pour les structures S13, et S14 :

- Le premier plateau $10^4 < 1/\lambda < 3 \times 10^7 \text{ m}^{-1} \Rightarrow$ régime moléculaire.
- Le deuxième plateau $\Rightarrow 1/\lambda < 10^7 \text{ m}^{-1}$ début du régime exit-loss.

Le régime moléculaire est plus long pour les structures S13, et S14 avec tube étiré, on passe directement du régime moléculaire au régime exit-loss, à première vue le régime visqueux n'est pas mesuré, cela peut être expliqué par le fait qu'il y a différents régimes d'écoulement en série. Comme on l'a vu tout à l'heure, les régimes d'écoulement n'ont pas d'influence sur l'efficacité d'ionisation, donc le fait de ne pas mesurer ici le régime visqueux n'a aucun impact sur l'ionisation.

On voit qu'en utilisant des tubes en quartz étirés avec un diamètre de $13\mu\text{m}$ on augmente la pression haute pression tout en gardant le même flux que d'habitude en bout de pointe puisque la pression basse pression P_{bp} atteint les mêmes valeurs ($Q = S_e P_{bp}$).

2.2. Courant en fonction de la tension et de la pression :

2.2.1. Source CIS avec diaphragme :

Le montage avec le diaphragme dont le diamètre du trou est de $20\mu\text{m}$ m'a permis de polariser la pointe positivement. Les résultats obtenus avec la structure S12 sont présentés dans le tableau 6. Les mesures du courant sont faites sur la grille avec de l'argon.

Régime d'écoulement	Moléculaire	Visqueux	Exit-loss
P_{hp} (mbar)	5	50	200
P_{bp} (mbar)	2.2×10^{-6}	4.5×10^{-5}	4.9×10^{-4}
Tension (kV)	7	8.2	7.9
Courant mesuré sur la grille (pA)	Arcs (pas de mesure)	50	500

Tableau 6: tableau résumant les résultats obtenus avec la structure S2.

Le tableau 6 montre qu'avec un diaphragme dont le diamètre du trou est de $20\mu\text{m}$, on arrive à polariser la pointe positivement dans une gamme couvrant un ordre de grandeur en pression sans avoir d'arcs au niveau du tube en quartz. Mais ce n'est pas possible de polariser la pointe positivement dans le régime moléculaire. Un trou de diamètre $\geq 20\mu\text{m}$ ne nous permet pas de polariser la pointe positivement dans tous les régimes d'écoulements.

2.2.2. Source CIS avec tube en quartz étiré :

Comme avec le diaphragme on ne pouvait pas polariser la pointe positivement dans tous les régimes d'écoulements, on a essayé avec des tubes en quartz étirés dont le diamètre est entre 12 et $13\mu\text{m}$. La figure 75 montre la mesure du courant sur le porte

échantillon (diaphragme) en polarisant la pointe positivement dans toute la gamme de pression avec de l'argon. La pointe utilisée est une pointe en tungstène seul.

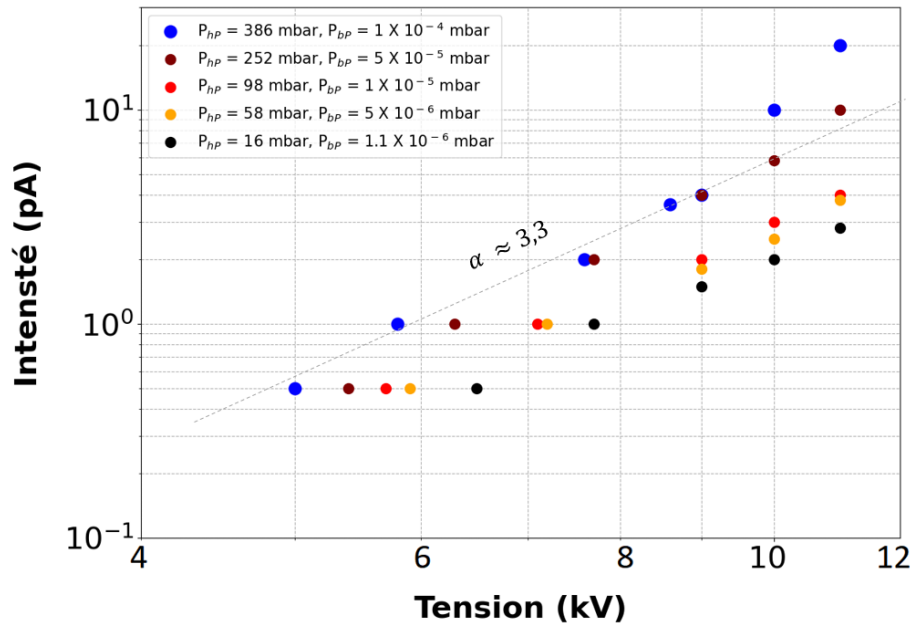


Figure 75: courant en fonction de la tension pour différentes pressions de gaz.

On voit que le courant augmente en fonction de la tension, et aussi on a pu polariser la pointe positivement sur une gamme de pression qui couvre plus de deux ordres de grandeurs pour différentes tensions sans avoir d'arc. On a mesuré le courant sur le porte échantillon, ici un diaphragme, donc on n'a mesuré qu'une partie du faisceau. Le diaphragme a été choisi en lieu et place d'une grille pour éviter le bombardement électronique des pointes pendant l'émission. Il a été choisi pour éviter de « recevoir » des ions, donc on est loin de mesurer le courant total. En mettant un multimètre en série sur la pointe, j'ai pu mesurer le courant total, les résultats sont présentés sur la figure 76.

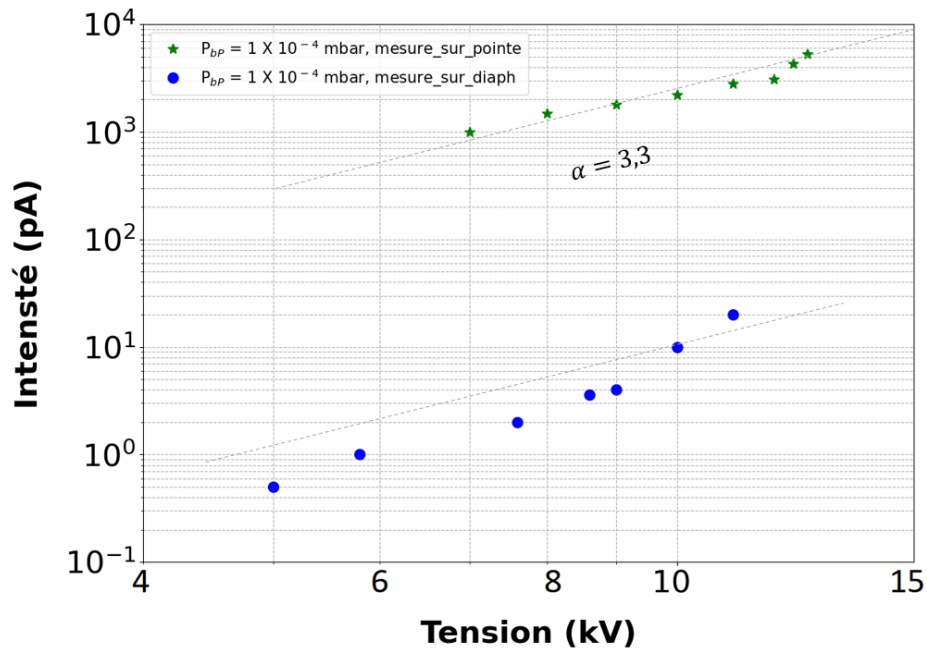


Figure 76: courant en fonction de la tension à deux endroits différents, à $P_{hp} = 386 \text{ mbar}$.

On voit qu'il y a presque 3 ordres de grandeur entre les deux mesures. Le courant suit la même évolution que les résultats obtenus avec les structures initiales c'est-à-dire que le courant $I \propto V^\alpha$, avec $\alpha = 3.3$.

Le courant mesuré sur la pointe est 200 fois plus grand que le courant mesuré sur le diaphragme, donc en faisant la mesure sur le diaphragme on ne mesure que 0.6% du courant total sur le diaphragme.

La figure 77 montre l'évolution du courant en fonction de la pression basse pression avec de l'argon, à $V = 11 \text{ kV}$. Sur cette figure l'axe de gauche présente le courant mesuré sur le diaphragme, et l'axe de droite présente le courant estimé sur la pointe.

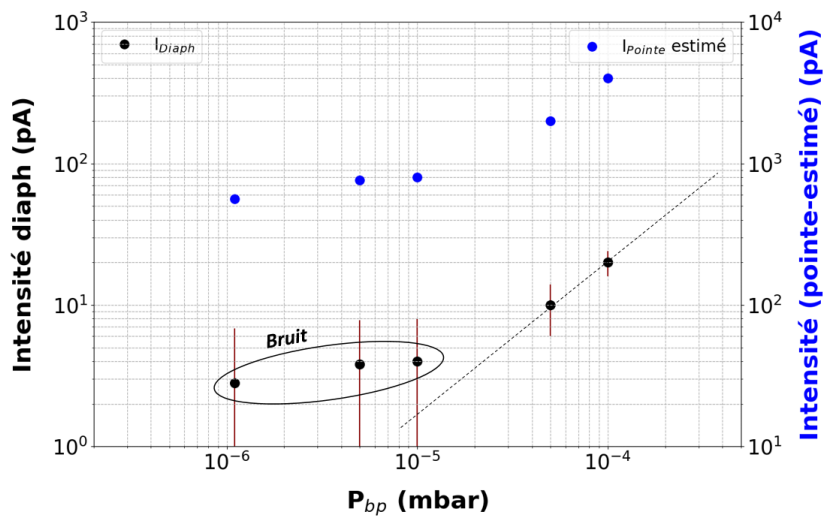


Figure 77: Courant en fonction de la pression basse pression, à gauche : mesuré sur le diaphragme, à droite estimé sur la pointe.

Les trois premiers points, on ne peut pas vraiment les prendre en considération car on a généralement un bruit lié à notre système qui est de 4 pA. À partir du quatrième point, on commence à voir la proportionnalité du courant en fonction de la pression basse pression. L'estimation du courant sur la pointe est correcte car on retrouve les mêmes valeurs que celles mesurées avec les structures précédentes. Elles sont indiquées ici pour comparaison.

La figure 78 montre l'efficacité d'ionisation estimée à $V = 11\text{kV}$. Les trois premières valeurs sont du bruit dont on ne va pas tenir compte. Pour les deux derniers points l'efficacité d'ionisation $Y = 1.5 \times 10^{-7}$ est constante, elle est d'un ordre de grandeur de moins que les résultats présentés dans le chapitre 3. Ici la tension $V = 11\text{kV}$ au lieu de $V = 12\text{kV}$ et la pointe n'est pas recouverte de palladium. Ces expériences confirment tout de même qu'avec les capillaires étirés on arrive à augmenter la pression haute pression P_{hp} dans le capillaire en quartz tout en gardant le même flux de gaz en bout de pointe.

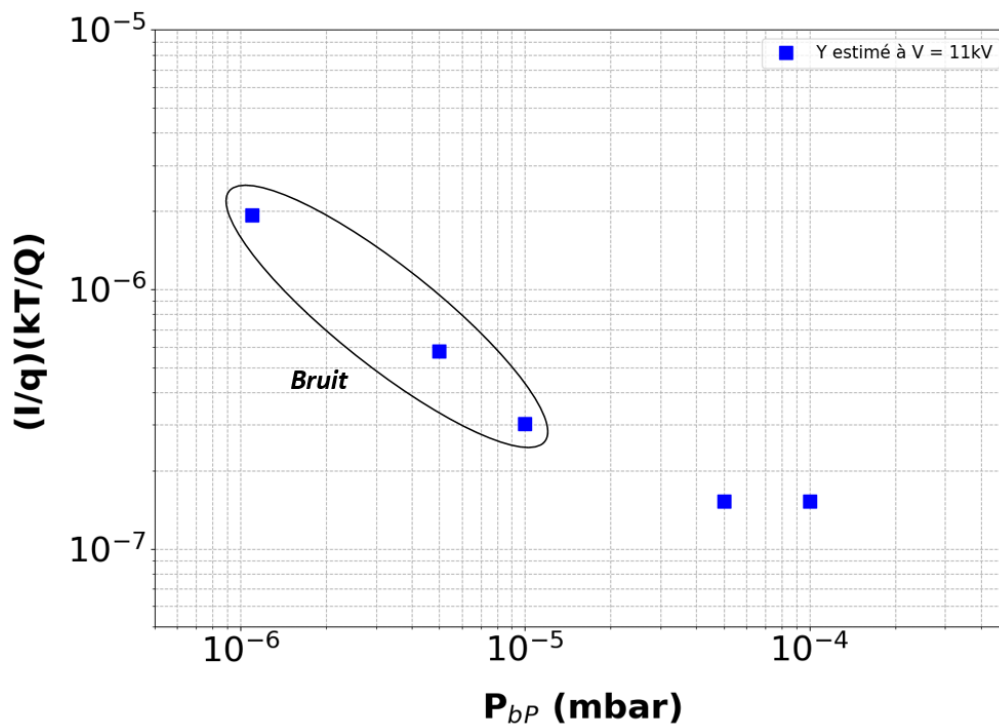


Figure 78: efficacité d'ionisation en fonction de la pression basse pression estimée à $V = 11\text{kV}$.

3. Intégration de la source CIS dans le FIB :

L'utilisation de tube en quartz étiré permet d'augmenter la pression dans le capillaire tout en garantissant un flux suffisant pour atteindre les courants d'ionisation mesurés au chapitre 3. Nous pouvons ainsi polariser la pointe positivement comme on l'a vu dans la partie précédente. Toutes les expériences sont faites au laboratoire dans le microscope à projection où le porte échantillon (l'extracteur) est monté à part sur les micromanipulateurs comme on l'a vu dans le chapitre 2. Pour pouvoir intégrer l'ensemble de la source et extracteur dans le FIB, nous avons d'abord envisagé un montage qui porte les deux sur la même bride.

On a fait un montage qui rassemble la source et l'extracteur comme on le voit sur la figure 79. Pour ce nouveau montage, l'idée était aussi de pouvoir changer facilement le manchon avec la pointe sans avoir à ré-étirer un capillaire à chaque fois. Un joint viton a été placé entre la pièce qui accueille le capillaire et le manchon qu'on appelle montage viton.

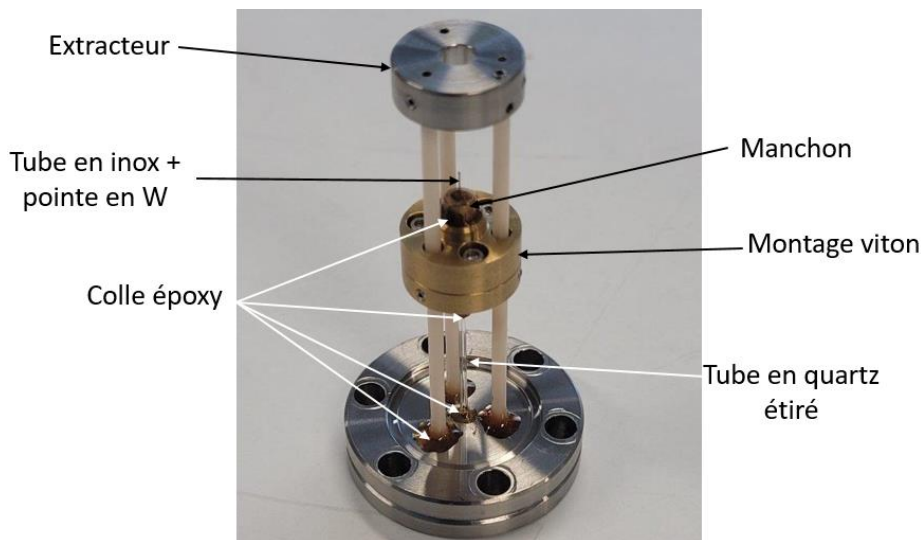


Figure 79: Montage viton de la source CIS.

J'ai préparé deux structures avec ce nouveau montage, en utilisant des pointes recouvertes de palladium. Je voulais d'abord faire des expériences en polarisant l'extracteur négativement en mesurant le courant sur la pointe pour m'assurer de la reproductibilité des résultats. Mais je ne pouvais pas monter en tension sur l'extracteur car des décharges électriques sur les barreaux en céramiques sont apparues, je mesurais un courant de fuite sur la pointe.

J'ai essayé de polariser la pointe positivement et à ce moment-là j'ai eu des arcs au niveau du tube en quartz étiré. J'ai mesuré la pression basse pression en fonction de la pression haute pression et les valeurs de pression avaient changé indiquant que le tube en quartz étiré s'était cassé pendant les expériences en tension.

- $P_{hP} = 27 \text{ mbar}$ pour $P_{bP} = 1.3 \times 10^{-6} \text{ mbar}$: avant de polariser la pointe positivement
- $P_{hP} = 27 \text{ mbar}$ pour $P_{bP} = 10^{-5} \text{ mbar}$: après avoir polarisé la pointe positivement.

On voit que la pression dans la chambre basse pression a augmenté pour la même pression « haute pression ». L'explication suggérée pour cet accident : deux objets isolants se retrouvent en contact avec la haute tension, le joint viton et le capillaire en quartz. Des charges s'accumulent de part et d'autre et lorsque la polarisation est inversée des forces électrostatiques importantes s'exercent sur le capillaire.

Pour éviter d'endommager à chaque fois le tube en quartz étiré, j'ai décidé de faire un mix entre le montage décrit au paragraphe précédent (porte manchon) et le nouveau montage (montage viton). C'est-à-dire, faire une structure où on garde la partie source et capillaire étiré dans un ensemble en laiton collé, et on garde la partie extraction du nouveau montage. Une expérience avec ce montage a été faite avec laquelle j'avais toujours le problème de décharges sur les barreaux en céramique et un courant de fuite entre l'extracteur et la pointe. Les mêmes tests ont été faits à Orsay Physics : les mêmes problèmes ont été observés en polarisant l'extracteur négativement. Cependant, aucun problème n'est apparu en polarisant la pointe positivement. Par ailleurs, le capillaire est resté intact en faisant des inversions de tensions.

Pour la fin de ma thèse, on a décidé de faire un montage de la source sans extracteur pour pouvoir faire les mesures au laboratoire en polarisant l'extracteur négativement de façon à caractériser la source dans les mêmes conditions qu'au chapitre 3. Puis, pour la mettre dans le FIB, on viendra coller l'extracteur porté par des céramiques sur le disque qui porte la source, avec ce montage on pourra polariser la pointe positivement dans le FIB ; on ne devrait pas avoir de problème de courant de fuite venant de l'extracteur qui lui sera à la masse. Ces essais seront effectués après la rédaction de ma thèse.

Conclusion :

On a vu dans ce chapitre que le problème des arcs au niveau du tube en quartz a été résolu en utilisant des tubes en quartz étiré, qui permettent d'augmenter la pression dans le capillaire à haute pression tout en maintenant un flux de gaz suffisant dans la chambre basse pression. La caractérisation des régimes d'écoulements avec les tubes en quartz étiré indique que l'écoulement visqueux n'est pas présent. Ces mesures doivent être répétées et confirmées.

L'intégration de la source CIS dans un FIB n'est pas encore tout à fait au point. J'ai rencontré des problèmes d'émission électronique provenant de l'extracteur. Cependant ces problèmes sont aujourd'hui résolus. Je ferai très vite les tests.

Conclusion générale et perspectives

Conclusion générale

Dans le premier chapitre bibliographique, j'ai abordé le principe physique de l'émission de champ. J'ai également expliqué les caractéristiques des sources d'ions, en mettant particulièrement l'accent sur les sources LMIS (liquid metal ion source), qui sont les plus couramment utilisées dans les Faisceaux d'Ions Focalisés (FIB). Diverses études dans la littérature ont démontré la corrosion du tungstène sous l'effet d'un champ électrique en présence d'eau. J'ai examiné les variations du courant en fonction de la tension et de la pression en utilisant des sources GFIS à pression partielle et à basse température, à l'exception des expériences de Konishi qui ont été réalisées en pression locale. J'ai également retracé l'historique des travaux menés avec les sources d'ions à structure coaxiale.

Mon objectif de thèse vise à caractériser la source d'ions à structure coaxiale à travers une large gamme de pressions et de tensions appliquées requises, tout en maintenant une température ambiante. Cette caractérisation est essentielle pour son intégration ultérieure dans le FIB. Pour atteindre cet objectif, j'ai entrepris diverses expériences de caractérisation de la structure coaxiale notamment en mesurant le courant en fonction de la tension et de la pression.

Initialement, j'ai réalisé des mesures de pression haute pression en fonction de la pression basse pression en utilisant différents gaz. Ensuite, j'ai procédé à la caractérisation des écoulements de la source d'ions à structure coaxiale en établissant des graphiques de conductance réduite par rapport à l'inverse du libre parcours moyen des molécules, pour divers gaz. Ces analyses ont permis de déceler la présence de trois régimes d'écoulement distincts : le régime moléculaire, le régime visqueux et le régime exit-loss.

Une fois les régimes d'écoulement correctement caractérisés, j'ai effectué des mesures de courant. Pour contourner les problèmes d'arcs au niveau du capillaire en quartz, j'ai appliqué une polarisation négative à l'extracteur. Cette approche m'a également permis de mesurer le courant total à la pointe.

La durée de vie des sources a été améliorée en recouvrant les pointes en tungstène de palladium par voie électrochimique. De plus, nous avons observé que les différents régimes d'écoulement n'avaient aucune influence sur l'efficacité d'ionisation, qui elle est constante.

En réalisant la caractérisation complète de la source CIS, j'ai été confrontée à la contrainte du vieillissement rapide des pointes en tungstène en raison de la corrosion. Afin de contourner ce problème de vieillissement, j'ai pris la décision de piloter l'alimentation haute tension avec une carte d'acquisition, ce qui nous a permis de réaliser rapidement les expériences avant que les pointes ne subissent une altération. Les mesures ont montré que le courant évolue en fonction de V^α avec $\alpha = 3.3$, et qu'il est proportionnel à la pression basse pression P_{bp} .

Afin de polariser positivement la pointe et d'éviter les arcs au niveau du capillaire en quartz, j'ai opté pour l'utilisation de capillaires en quartz étiré. Cette approche nous a permis d'augmenter la pression haute pression tout en maintenant un flux constant au niveau de la pointe, pour atteindre les courants d'ionisation mesurés au chapitre 3.

Les résultats obtenus avec la source d'ions à structure coaxiale sont très encourageants pour une application FIB.

Perspectives

Différentes perspectives peuvent être envisagées à l'issue de cette thèse :

- J'ai démontré que l'efficacité d'ionisation est révélatrice du rapport entre la surface émissive et la surface de la section ouverte, avec une valeur de $Y = (100nm/85\mu m)^2 = 1.4 \times 10^{-6}$ pour la géométrie utilisée dans les différentes expériences présentées. L'amélioration de cette efficacité d'ionisation est envisageable en optimisant la géométrie de la source CIS, notamment en réduisant le diamètre du fil de tungstène et celui du tube en inox, par exemple, utilisé un fil de tungstène de $25\mu m$ de diamètre, et un tube en inox de $50\mu m$ de diamètre intérieur permettrait de gagner un ordre de grandeur sur l'efficacité d'ionisation Y .
- Le recouvrement des pointes en tungstène avec du palladium améliore la durée de vie des sources, cependant des améliorations pour renforcer l'adhérence du dépôt sur les pointes devront être effectuées, comme le chauffage du fil de tungstène avant le dépôt pour le nettoyer de toute impureté, et permettre à la couche de palladium de bien adhérer, et aussi le chauffage sous champ en émission électronique pour pouvoir guider le bout de la pointe et ne pas avoir des pointes courbées.
- En étudiant la variation du courant en fonction de la forme de la pointe, j'ai mis en évidence que la fonction d'apport augmente avec des pointes plus longues et un angle de cône plus réduit. La réalisation de pointes allongées à partir d'un fil de palladium pourrait constituer une solution pour prévenir la corrosion, augmenter l'efficacité d'ionisation et la durée de vie des structures.

Références bibliographiques :

1. Bedrane D, Houël A, Delobbe A, et al. Coaxial ion source: Pressure dependence of gas flow and field ion emission. *Journal of Vacuum Science & Technology B*. 2023;41(4):042808. doi:10.1116/6.0002795
2. Lapena L, Bedrane D, Degiovanni A, Salançon E. Bright sources under the projection microscope: using an insulating crystal on a conductor as electron source. *Eur Phys J Appl Phys*. 2022;97:13. doi:10.1051/epjap/2022210260
3. Orloff J, Utlaut M, Swanson L. *High Resolution Focused Ion Beams: FIB and Its Applications*. Springer US; 2003. doi:10.1007/978-1-4615-0765-9
4. Konishi M. Characteristics of a helium field ion gun. *J Vac Sci Technol B*. 1988;6(1):498. doi:10.1116/1.584051
5. Thèse, Salançon E. Source ponctuelle d'ions à structure coaxiale, 2002.
6. Thèse, Descoins. M, Microscopie ionique à projection à partir d'une source à structure coaxiale, 2007.
7. Ward BW, Notte JA, Economou NP. Helium ion microscope: A new tool for nanoscale microscopy and metrology. *J Vac Sci Technol B*. 2006;24(6):2871. doi:10.1116/1.2357967
8. Smith, N.S, Présentation :Metrology for 3D Devices: Plasma-FIB for High Throughput Sectioning of Large Dimensions. Consulté le 06/2023, sur : https://www.nist.gov/system/files/documents/pml/div683/conference/Smith_2011.pdf. Presented at:
9. Tondare VN. Quest for high brightness, monochromatic noble gas ion sources. *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*. 2005;23(6):1498-1508. doi:10.1116/1.2101792
10. Mair GLR. Electrohydrodynamic instabilities and the energy spread of ions drawn from liquid metals. *J Phys D: Appl Phys*. 1996;29(8):2186-2192. doi:10.1088/0022-3727/29/8/019
11. Maisch T, Wilbartz C. Energy spread of a focused ion beam system with a suprtip. 1993;(80-81). p.1288-1291. doi:10.1016/0168-583X(93)90783-3
12. Disintegration of water drops in an electric field. *Proc R Soc Lond A*. 1964;280(1382):383-397. doi:10.1098/rspa.1964.0151
13. Jon Orloff, Mark Utlaut, and Lynwood Swanson. *High Resolution Focused Ion Beams : FIB and Its Applications*. Kluwer Academic/Plenum Publishers.; 2003.
14. fink1986, IBM Journal of Research and Development (Volume: 30, Issue: 5, September 1986), DOI : 10.1147/rd.305.0460.
15. Fu TY, Cheng LC, Nien CH, Tsong TT. Method of creating a Pd-covered single-atom sharp W pyramidal tip: Mechanism and energetics of its formation. *Phys Rev B*. 2001;64(11):113401. doi:10.1103/PhysRevB.64.113401
16. Kuo HS, Hwang IS, Fu TY, Wu JY, Chang CC, Tsong TT. Preparation and Characterization of Single-Atom Tips. *Nano Lett*. 2004;4(12):2379-2382. doi:10.1021/nl048569b
17. Itagaki T, Rokuta E, Kuo HS, et al. Stabilities in field electron emissions from noble-metal covered W nano-tips: apex structure dependence. *Surf Interface Anal*. 2007;39(4):299-303. doi:10.1002/sia.2437

18. Kuo HS, Hwang IS, Fu TY, Lu YH, Lin CY, Tsong TT. Gas field ion source from an IrW(111) single-atom tip. *Appl Phys Lett*. 2008;92(6):063106. doi:10.1063/1.2844851
19. Lai WC, Lin CY, Chang WT, et al. Xenon gas field ion source from a single-atom tip. *Nanotechnology*. 2017;28(25):255301. doi:10.1088/1361-6528/aa6ed3
20. Salançon E, Hammadi Z, Morin R. A new approach to gas field ion sources. *Ultramicroscopy*. 2003;95:183-188. doi:10.1016/S0304-3991(02)00315-7
21. Bautsch M, Varadinek P, Wege S, Niedrig H. Compact and inexpensive quartz capillaritron source. *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*. 1994;12(2):591-593. doi:10.1116/1.578839
22. Metrology for 3D Devices: Plasma-FIB for High Throughput Sectioning of Large Dimensions. Presented at: 2011.
23. Erwin W. Müller, Tien T. Tsong. *Field Ion Microscopy: Principles and Applications*. American Elsevier.; 1969.
24. Descoins M, Hammadi Z, Morin R. Local supply of gas in vacuum: Application to a field ion source. *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*. 2008;26(5):1331-1335. doi:10.1116/1.2968689
25. Hammadi Z, Descoins M, Salançon E, Morin R. Proton and light ion nanobeams from field ionization of water. *Appl Phys Lett*. 2012;101(24):243110. doi:10.1063/1.4770516
26. Southon M J, Ph. D. *Thèse*. (Cambridge, England, 1963).
27. Müller EW, Bahadur K. Field Ionization of Gases at a Metal Surface and the Resolution of the Field Ion Microscope. *Phys Rev*. 1956;102(3):624-631. doi:10.1103/PhysRev.102.624
28. Shichi H, Matsubara S, Hashizume T. Characteristics Comparison of Neon, Argon, and Krypton Ion Emissions from Gas Field Ionization Sources with a Single-Atom Tip. *Microsc Microanal*. 2019;25(1):105-114. doi:10.1017/S1431927618016227
29. Sato M. Ion current characteristics of an Ar field ionization source, [https://doi.org/10.1016/0039-6028\(93\)90425-J](https://doi.org/10.1016/0039-6028(93)90425-J).
30. Jousten K, Bohringer K, Kalbitzer S. Current-voltage characteristics of a gas field ion source. *Appl Phys B*. 1988;46(4):313-323. doi:10.1007/BF00686454
31. Lai WC, Lin CY, Chang WT, et al. Xenon gas field ion source from a single-atom tip. *Nanotechnology*. 2017;28(25):255301. doi:10.1088/1361-6528/aa6ed3
32. Chen YC, Seidman DN. The field ionization characteristics of individual atomic planes. *Surface Science*. 1971;27(2):231-255. doi:10.1016/0039-6028(71)90031-8
33. Cocke DL, Block JH. Field ion and field desorption mass spectrometry of inorganic compounds. *Surface Science*. 1978;70(1):363-391. doi:10.1016/0039-6028(78)90420-X
34. Anway AR. Field Ionization of Water. *The Journal of Chemical Physics*. 1969;50(5):2012-2021. doi:10.1063/1.1671324
35. Stintz A, Panitz JA. Cluster ion formation in isothermal ramped field-desorption of amorphous water ice from metal surfaces. *Surface Science*. 1993;296(1):75-86. doi:10.1016/0039-6028(93)90143-8
36. Amano J, Lawson RPW. Field ion microscopy of field corrosion of tungsten. *Electrochimica Acta*. 1975;20(12):1000-1001. doi:10.1016/0013-4686(75)85063-8
37. O'Hanlon JF. An analysis of equations for flow in thin, rectangular channels. *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*. 1987;5(1):98-100. doi:10.1116/1.574824

38. Santeler DJ. Gas-flow experiments in the transition region. *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*. 1994;12(4):1744-1749. doi:10.1116/1.579048
39. Steckelmacher W. Knudsen flow 75 years on: the current state of the art for flow of rarefied gases in tubes and systems. *Rep Prog Phys*. 1986;49(10):1083-1107. doi:10.1088/0034-4885/49/10/001
40. L. Holland, W. Steckelmacher, J. Yarwood. *Vacuum Manual*.; 1974.
41. New concepts in molecular gas flow Donald J. Santeler ,Citation: *Journal of Vacuum Science & Technology A* 4, 338 (1986); doi: 10.1116/1.573923 View online: <http://dx.doi.org/10.1116/1.573923>.
42. Tison S. Experimental data and theoretical modeling of gas flows through metal capillary leaks. *Vacuum*. 1993;44(11-12):1171-1175. doi:10.1016/0042-207X(93)90342-8
43. John F. O' Hanlon, *A Users Guide to Vacuum Technology*, Published by Jhon Wiley & Sons, DOI:10.1002/0471467162.
44. Kobayashi Y, Sugiyama Y, Morikawa Y, Kajiwara K, Hata K. Experimental evaluation of the influence of shank shape of field ion emitter on the angular current density. *Journal of Vacuum Science & Technology B, Nanotechnology and Microelectronics: Materials, Processing, Measurement, and Phenomena*. 2010;28(2):C2A90-C2A93. doi:10.1116/1.3360302