



Microscopie ionique à projection à partir d'une source à structure coaxiale

Marion Descoins

► To cite this version:

Marion Descoins. Microscopie ionique à projection à partir d'une source à structure coaxiale. Physique [physics]. Université Paul Cézanne - Aix-Marseille III, 2007. Français. NNT : . tel-00275122

HAL Id: tel-00275122

<https://theses.hal.science/tel-00275122>

Submitted on 22 Apr 2008

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

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

UNIVERSITE PAUL CEZANNE AIX-MARSEILLE III

N° attribué par la bibliothèque

TITRE :

**MICROSCOPIE IONIQUE A PROJECTION A
PARTIR D'UNE SOURCE A STRUCTURE COAXIALE**

THESE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE Paul CEZANNE

Faculté des Sciences et Techniques

Discipline : Sciences des matériaux

Ecole doctorale : Physique et sciences de la matière

Présentée et soutenue publiquement par :

Marion DESCOINS

Le 13 décembre 2007

Le Directeur de thèse : Roger MORIN

JURY

<i>Président :</i>	Ahmed Charai	Université Paul Cézanne, Marseille
<i>Rapporteurs :</i>	Amine Cassimi	GANIL, Caen
	Philippe Roncin	LCAM, Orsay
<i>Examineurs :</i>	Zoubida Hammadi	Université Paul Cézanne, Marseille (Tutrice)
	Pierre Sudraud	Orsay Physics, Fuveau
	Roger Morin	CRM-CNRS, Marseille

ANNEE : 2007

Thèse préparée au sein du Centre de Recherche en Matière Condensée et Nanosciences
CRM-CNRS, Campus de Luminy Marseille

Remerciements

Ce travail a été effectué au Centre de Recherche en Matière Condensée et Nanosciences. Je tiens à remercier les directeurs successifs, Messieurs Slava Safarov et Claude Henry de m'avoir accueillie dans leur laboratoire.

Mes respects et ma gratitude vont également aux membres du jury qui m'ont fait l'honneur de juger ce travail. Je remercie tout d'abord M. Ahmed Charai, Professeur à l'université Paul Cézanne, pour avoir présidé le jury de cette thèse. Je remercie M. Amine Cassimi, Ingénieur CEA au Grand Accélérateur National d'Ions Lourds (GANIL) ainsi que M. Philippe Roncin, Directeur de recherche au Laboratoire des Collisions Atomiques et Moléculaires (LCAM) pour avoir accepté de rapporter ce manuscrit, ainsi que pour l'intérêt qu'ils ont manifesté à l'égard de ce travail de thèse.

Je remercie également Pierre Sudraud de m'avoir accueillie pendant le déroulement de cette thèse au sein de son entreprise et d'avoir suivi l'avancement de mes travaux en restant en contact étroit avec les problématiques industrielles. Je le remercie d'avoir accepté d'être examinateur de cette thèse et ainsi d'enrichir le jury.

Je remercie très vivement Roger Morin, mon directeur de thèse, pour m'avoir accueillie et encadrée au cours de ces 3 années. Je lui suis reconnaissante pour la confiance qu'il m'a accordée ainsi que pour les nombreux conseils et explications scientifiques qu'il m'a donnés. J'ai énormément appris à ses côtés et ce fut pour moi un honneur et un grand plaisir de travailler avec lui. Enfin, je n'oublierai pas son soutien et ses précieuses critiques envers le manuscrit.

Je suis très reconnaissante à Zoubida Hammadi de m'avoir supervisée tout au long de ma thèse. Zoubida a su me motiver et a fait en sorte que je dispose des moyens nécessaires au bon déroulement de ma thèse. Qu'elle soit assurée de ma gratitude pour m'avoir donné la possibilité d'évoluer dans de si bonnes conditions.

J'ai eu un vif plaisir à travailler au sein de l'équipe sources ponctuelles et holographie et je tiens à saluer ses membres que j'ai côtoyés au cours de ma thèse, qui m'ont écoutée, conseillée et aidée et avec qui j'ai appris et travaillé au quotidien, en particulier : Alain Degiovanni, Laurent Lapena et plus récemment Evelyne Salançon.

La construction du dispositif expérimental a nécessité la réalisation de pièces délicates qui ont été fabriquées à l'atelier par les mécaniciens du laboratoire, qui allient un grand professionnalisme à une grande sympathie. Pour ces raisons tous mes remerciements vont à Brice Detailleur et Gilles Artaud.

Mes remerciements à Isabelle Berbezier, Antoine Ronda et Franck Bassani grâce à qui j'ai fait mes premiers pas dans le monde de la recherche et qui ont su me faire confiance. Merci à Damien Chaudanson et Serge Nitsche pour m'avoir transmis leur savoir-faire en microscopie électronique à transmission.

Je remercie ensuite les « matinaux » du café de 8h : Francis, Jean-Jacques, Georges, Christopher, Nathalie et Daniela pour leur bonne humeur nécessaire au bon déroulement de la journée.

Je remercie ensuite les « sportifs » du midi : Jean-Pierre, Damien, Martiane, Georges, Fabien, Lisa et Dominique grâce à qui la pause nécessaire est aussi plaisante.

Pour tous les moments passés ensemble, pour leur amitié et leur soutien au quotidien, je tiens à remercier chaleureusement Véronique et Georges.

Merci à Sion et Mahfoudh avec qui ce fut un vrai plaisir de partager le bureau et qui ont été d'un réel soutien durant ma thèse et surtout durant la rédaction.

L'ambiance générale dans le laboratoire a été particulièrement agréable grâce à l'ensemble de ses membres, permanents et non-permanents, que je tiens donc à remercier très chaleureusement : Olivier, Fred, Stéphane, Maxence, Alain, Cyril, Alina, Marco, Alim, Valérie, Sophie, Michèle, Christel, Thirou et tous les autres que j'oublie...

Je remercie également toute l'équipe d'Orsay Physics pour leur accueil notamment Arnaud, Olivier, Bernard...

Mon travail de recherche a été complété par des activités d'enseignements dans le cadre de vacances que j'ai eu la chance de pouvoir mener en parallèle à l'IUT d'Aix-Marseille III qui m'ont réellement passionnée. Ce fut un réel plaisir de travailler avec Michel Moulin, Caroline Mauriat et Claude Alasia que je remercie chaleureusement.

Je souhaite adresser un merci à François Arnaud d'Avitaya, Professeur à l'Université de la Méditerranée avec qui j'entreprends maintenant mes recherches post-doctorales et qui m'a permis de préparer ma soutenance dans les meilleures conditions.

J'ai une pensée particulière pour toutes les personnes qui n'ont que peu, ou rien à voir avec ce travail, mais dont la présence m'a été indispensable pendant les passages difficiles, et tout aussi indispensable le reste du temps d'ailleurs : Stéphane, Hélène, Julie, Kjen, Charly, Patrick, Marie-Jo, Madame Conte et Véronique, Ara, Martine, Luce et Jean-Claude, Tatie Nicole et Tonton Charly, Audrey, Manue, Charles, Laurent et Caroline. Ces brèves lignes ne peuvent que maladroitement rendre compte de ce que je vous dois à tous...

Enfin, je voudrais remercier, du plus profond du cœur, mes parents, mon frère et modèle, Hervé, qui a su me guider depuis le plus jeune âge dans mes études, ma belle-sœur et amie, Delphine et bien-sûr Pierre-Emmanuel, pour leur amour, leur soutien sans faille, leur confiance et leur expérience. Cette thèse concrétise un parcours qui n'aurait pu avoir lieu sans eux. C'est tout naturellement que je la leur dédie.

Je ne peux pas terminer sans penser à Mamie. Mon plus grand regret est qu'elle ne soit plus là aujourd'hui pour être fière de moi. J'écirai donc les derniers mots de ce manuscrit pour elle, pour lui dire merci. J'aimerais pouvoir lui dire beaucoup plus.

Sommaire

Introduction.....	6
Chapitre I : Source d'ions et microscopie ionique à projection	10
I- Caractéristiques d'une source.....	10
I-1- Taille et accessibilité de la source.....	10
I-2- La brillance.....	11
I-3- La dispersion en énergie.....	12
I-4- La durée de vie et la stabilité.....	12
II- Sources à émission de champ.....	12
II-1- Emission d'électrons.....	12
II-2- Emission d'ions.....	15
II-2-1- Ionisation de champ.....	15
II-2-2- Désorption et évaporation par effet de champ.....	18
II-3- Comparaison entre les sources d'ions et les sources d'électrons.....	19
II-3-1- Les champs d'émission	19
II-3-2- Les longueurs d'onde.....	19
II-3-3- Diversité des particules dans le cas des sources d'ions.....	20
III- Problématique des sources d'ions à effet de champs.....	21
III-1- Les sources d'ions à métal liquide (LMIS).....	21
III-2- Les sources d'ions gazeux à structure conventionnelle.....	23
III-3- La source à structure coaxiale.....	24
IV- Le microscope ionique à effet de champ (FIM : Field Ion Microscopy).....	24
V- Le microscope à projection.....	28
VI- Conclusion	31
VII- Références bibliographiques.....	33
 Chapitre II : Le dispositif expérimental.....	37
I- Architecture du montage expérimental.....	37
II- Aspect technique.....	38
II-1- Le système de pompage.....	39
II-1-1- Les pompes à vide	40
II-1-2- Obtention du vide dans les différents compartiments du dispositifs.....	40
II-2- Introduction de gaz.....	41
III- La source d'ions.....	42
III-1- Le montage de base.....	42
III-2- La nouvelle source à structure coaxiale.....	43
III-2-1- Préparation des pointes.....	45
III-2-2- Fiabilité des collages.....	48
IV- Le microscope à projection.....	49
IV-1- L'ensemble source-objet.....	49
IV-2- Description de la partie détection.....	50
V- Le spectromètre de masse.....	52
V-1- Conception d'un spectromètre.....	52
V-2- Calcul de la déflexion.....	54
VI- Références bibliographiques.....	58

Chapitre III : Résultats expérimentaux et interprétations.....	61
<i>I- Courbes en pression.....</i>	<i>61</i>
I-1- Conductances.....	63
I-1-1- Détermination expérimentale.....	63
I-1-2- Interprétations.....	66
i- Régime moléculaire.....	67
ii- Régime laminaire.....	68
iii- Régimes de transition.....	69
I-2- Pression en bout de pointe.....	71
<i>II- Emission ionique de champ- Résultats expérimentaux.....</i>	<i>72</i>
II-1- Pointes en tungstène.....	73
II-1-1- Ionisation de l'hydrogène.....	73
II-1-2- Ionisation de l'eau.....	90
II-2- Pointes en platine.....	96
II-2-1- Ionisation de l'hydrogène.....	96
II-2-2- Ionisation de l'eau.....	103
II-3- Pointes en palladium.....	105
II-3-1- Ionisation de l'hydrogène.....	105
II-3-2- Ionisation de l'eau.....	106
II-3-3- Ionisation du mélange hydrogène-eau.....	107
<i>III- Références bibliographiques.....</i>	<i>111</i>
Conclusion.....	114

Introduction

Essayer d'observer ce que l'œil ne voit pas est l'une des manifestations de la curiosité inévitable de l'homme. Que ce soit l'infiniment grand ou l'infiniment petit, dès que les avancées techniques l'ont permis, il a élaboré des outils pour découvrir ce que la nature s'efforçait de lui cacher.

Pour s'affranchir des limites physiques de l'œil humain, qui ne lui permettent pas de distinguer des objets de dimension inférieure à environ $10\text{ }\mu\text{m}$, l'homme inventa au XV^{ème} siècle la loupe, puis au XVII^{ème} siècle le microscope optique.

Au début du XX^{ème} siècle, les recherches dans le domaine de la physique des particules ont conduit à développer des outils dont la résolution dépassait celle du microscope optique. En effet accéder au niveau atomique présente bien davantage d'obstacles que pour des entités plus macroscopiques comme souligné par Louis de Broglie ^{[ref]1} qui en 1923 émet l'hypothèse que toute particule en mouvement a un comportement ondulatoire et qui donc leur associe une onde dont la longueur d'onde est de la taille de l'atome. Pourtant, M. Knoll et E. Ruska fabriquent le premier microscope électronique à transmission, en 1931. Son principe est proche du microscope optique, l'éclairage lumineux étant remplacé par une source d'électrons. Le faisceau d'électrons ayant une longueur d'onde beaucoup plus faible (10^4 fois inférieure) que celle d'un faisceau de lumière, ces microscopes ont fini par atteindre la résolution atomique grâce en particulier à l'utilisation de sources à émission de champ en remplacement des traditionnelles sources d'électrons à cathode chaude.

Un montage expérimental reposant pour l'essentiel sur les propriétés de la source est la microscopie à projection. En 1989, Stocker et al ^{[ref]2} eurent l'idée d'introduire une source d'électrons, émettant à faible tension, dont la zone émissive est limitée à quelques atomes, dans un microscope à projection. Ils utilisèrent des techniques de micro-déplacements issues de la microscopie à effet tunnel. Le faisceau électronique émis est cohérent et permet notamment de réaliser un microscope holographique de très grande résolution. Ce montage expérimental a largement été développé dans notre laboratoire ^{[ref]3}. L'utilisation d'une source d'ions ouvrirait la porte d'une nouvelle microscopie qui permettrait en particulier d'améliorer la résolution. S'en suit alors l'idée de remplacer la source d'électrons par une source d'ions

« gazeux » à l'intérieur d'un microscope à projection. C'est autour de cette problématique que les recherches se sont orientées vers la source à structure coaxiale.

D'autre part, il s'est avéré que ces sources d'ions pouvaient également présenter de l'intérêt pour les systèmes à faisceaux d'ions focalisés (F.I.B. pour Focussed Ion Beam). L'amélioration des caractéristiques des sources ponctuelles d'ions intéresse les fabricants de colonne FIB. La société Orsay Physics, spécialiste en conception et fabrication de colonnes FIB, a alors développé un partenariat privilégié avec notre laboratoire. C'est dans ce contexte que s'inscrit le travail de cette thèse.

Dans la première partie, nous allons présenter les propriétés et les caractéristiques générales des sources. Nous discuterons des mécanismes d'émission des sources reposant sur le principe de l'effet de champ. Ensuite, nous décrirons quelques sources d'ions basées sur ce principe pour terminer par la source à structure coaxiale. Dans la deuxième partie, nous décrirons le dispositif expérimental comportant en particulier le microscope à projection. Les résultats et leurs interprétations seront détaillés dans la troisième partie.

Références bibliographiques :

^{[ref]1} L. de Broglie, “Recherches sur la théorie des quanta”, Faculté des Sciences de Paris, 1924, Thèse de doctorat soutenue à Paris le 25 novembre 1924

^{[ref]2} W. Stocker, H.W. Fink and R. Morin, “Low-energy electron and ion projection microscopy”, Ultramicroscopy 31, p379, 1989

^{[ref]3} J. Bardon, A. Degiovanni, V. Georges and R. Morin, “Conducting, semi conducting and insulating objects observed by low energy electron holography”, Ultramicroscopy 92 (2002), 133-142.

Chapitre I : Sources d'ions et microscopie ionique à projection	10
I- Caractéristiques d'une source.....	10
I-1- Taille et accessibilité de la source	10
I-2- La brillance	11
I-3- La dispersion en énergie	12
I-4- La durée de vie et la stabilité.....	12
II- Sources à émission de champ	12
II-1- Emission d'électrons.....	12
II-2- Emission d'ions	15
II-2-1- Ionisation de champ.....	15
II-2-2- Désorption et évaporation par effet de champ.....	18
II-3- Comparaison entre les sources ions et les sources d'électrons	19
II-3-1- Les champs d'émission.....	19
II-3-2- Les longueurs d'onde.....	19
II-3-3- Diversité des particules dans le cas des sources d'ions	20
III- Problématique des sources d'ions à effet de champ	21
III-1- Les sources d'ions à métal liquide (LMIS)	21
III-2- Les sources d'ions gazeux à structure conventionnelle	23
III-3- La source à structure coaxiale	24
IV- Le microscope ionique à effet de champ (FIM : Field Ion Microscopy)	24
V- Le microscope à projection	28
VI- Conclusion.....	31
VII- Références bibliographiques.....	33

Chapitre I : Sources d'ions et microscopie ionique à projection

On observe depuis longtemps un regain d'intérêt pour le développement de nouvelles sources de particules, principalement dans la seconde moitié du XX^{ème} siècle, pour leurs applications dans de nombreux domaines. En ce qui concerne les électrons, nous pouvons citer toute l'imagerie (oscilloscope, téléviseur, microscopes..), les circuits électroniques ; pour les ions : le domaine de la physique (plasma, accélérateurs...), les composants électroniques (implantation, micro-usinage...). A une application correspond un type de source. Nous allons nous intéresser aux sources dont le fonctionnement fait appel au principe de l'effet de champ ainsi qu'à leurs applications.

I- Caractéristiques d'une source

Par définition, une source ^{[ref]1} est un lieu à l'origine d'une production de fluide et, par extension, de particules ou d'énergie.

Il est nécessaire de définir les différentes caractéristiques requises pour obtenir une « bonne » source d'ions. Une source d'ions est définie suivant différentes grandeurs physiques :

- la taille de la source virtuelle,
- la durée de vie et la stabilité,
- la dispersion en énergie,
- la brillance.

I-1- Taille et accessibilité de la source

Une des caractéristiques de la taille de la source est d'être la plus petite possible, nous verrons les raisons par la suite. Dans notre cas, la source est représentée par une pointe métallique de faible rayon de courbure. Il faut distinguer le concept de taille réelle de la zone émissive du concept de taille virtuelle de la source. On considère le prolongement des trajectoires qui sont

supposées rectilignes, loin de la source. Le plus petit volume commun à ces trajectoires est la source virtuelle. Ce volume peut être bien plus petit que la source réelle et positionné relativement loin de la zone émissive.

Par exemple dans le cas qui nous intéresse, la dimension et le positionnement de la source virtuelle dépendent du rayon de courbure de la pointe et du champ. La taille virtuelle de pointes ultra-fines est un problème actuellement ouvert. Ce problème de positionnement de la source virtuelle nous ramène au concept d'accessibilité de la source. En effet, il existe de nombreux cas où on désire placer un dispositif (objet en microscopie à projection, diaphragme, lentilles...) proche de cette source.

I-2- La brillance

L'intensité I délivrée par la source est un premier paramètre caractérisant la source.

La densité de courant I/A , où A est la taille de la zone émissive, est également un paramètre important souvent conditionné par le mécanisme d'émission. Cependant pour des applications optiques, un autre paramètre est important : la brillance. La brillance est définie comme étant le débit de particules créées par une source de taille virtuelle, S , sous un angle solide, Ω , à une énergie E . Pour des sources d'ions, on considèrera plutôt l'intensité électrique ^{[ref]11} :

$$B = \frac{I}{S\Omega}$$

avec I l'intensité en ampère, S la section de la source d'où semblent provenir les ions, i.e la source virtuelle, en cm^2 , sous un angle solide Ω , en stéradian, à une énergie donnée E , exprimée en $\text{A/cm}^2.\text{sr}$. La brillance moyenne fait intervenir l'angle d'ouverture, mais la brillance dans certaines directions particulières peut être plus importante.

L'importance de la brillance vient du fait que c'est une grandeur conservatrice tout au long du faisceau de particules. Intuitivement, s'éloigner ou diaphragmer ne change pas la brillance d'une source.

J.F. Mahoney et al ^{[ref]2} ont montré que les sources à décharges électriques dans un gaz ont une brillance de $10^3 \text{ A/cm}^2.\text{sr}$ (pour une intensité angulaire de 6 mA/sr , une source de taille géométrique de $25 \mu\text{m}$ et une tension d'émission de 6.5 kV). Alors que pour les sources à métal liquide, qui sont des sources à émission de champ, la brillance est augmentée d'un facteur mille et est d'environ $10^6 \text{ A/cm}^2.\text{sr}$ ^{[ref]3} (pour une intensité angulaire de $20 \mu\text{A/sr}$, une source de taille géométrique de 30 nm et une tension d'émission de l'ordre de 5 kV).

Notons qu'il est possible d'obtenir une forte brillance même avec un faible courant d'émission, si la taille de la source virtuelle est petite. Notons qu'une source vraiment ponctuelle aurait une brillance infinie.

I-3- La dispersion en énergie

La distribution de vitesse des particules émises est également un paramètre important. Une distribution étroite, qui correspond à une dispersion en énergie faible, favorise un fonctionnement performant d'un dispositif optique. Pour les sources thermoélectroniques, elle varie de 0.25 à 2eV, alors que pour les sources à métal liquide elle est de 5 à 40eV et pour les sources d'ions gazeux de 1eV.

I-4- La durée de vie et la stabilité

La durée de vie de la source sera définie comme étant son temps de fonctionnement dans des situations bien déterminées, comme la conservation de l'intensité au cours du temps.

En microscopie électronique à balayage, le filament de tungstène porté à 2700°C a une durée de vie entre 40 et 100 heures. Les sources à métal liquide ont des durées de vie qui excèdent les 4000 heures de fonctionnement pour des courants d'environ 5μA. Dans ces cas là, la durée de vie est essentiellement contrôlée par l'évaporation des matériaux et est donc relativement prédictible. Par contre, dans d'autres sources une durée de vie finie est définie par des phénomènes parasites difficilement contrôlables.

II- Sources à émission de champ

II-1- Emission d'électrons

Nous nous intéressons tout d'abord à l'extraction des électrons à partir d'un solide. Le mécanisme qui régit le passage des électrons, de ce solide vers le vide, s'appelle l'émission électronique. A 0 K, seuls les niveaux d'énergie inférieurs au niveau de Fermi (E_F) sont occupés par les électrons dans le métal. En effet, au repos, les électrons sont confinés dans le solide car leur énergie est plus faible que s'ils se trouvaient dans le vide. On appelle travail de sortie du métal ou barrière de potentiel de surface du solide, Φ_0 , la différence entre l'énergie potentielle d'un électron isolé dans le vide et le niveau de Fermi, Figure 1.

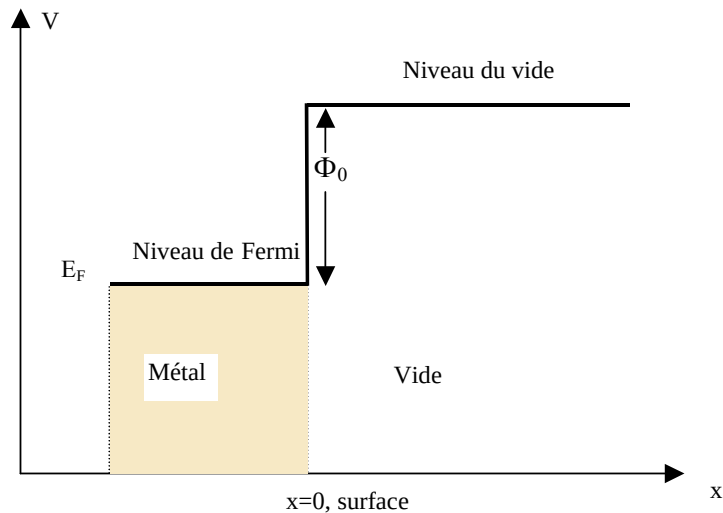


Figure 1 : Diagramme représentant les états d'énergie occupés dans le métal, à proximité de la surface métallique. En l'absence de champ, la barrière que doivent franchir les électrons est de largeur infinie

Plusieurs mécanismes sont à la base de l'extraction des électrons de la matière vers le vide. Un moyen est de fournir un supplément d'énergie aux électrons du niveau de Fermi supérieur à la hauteur de la barrière de potentiel de surface du solide. Cet apport peut être d'origine thermique, on parle d'émission thermoélectronique. Un autre mécanisme, dans lequel on n'apporte pas ce supplément d'énergie, résulte de l'application d'un champ électrique intense au voisinage de la surface : c'est l'émission de champ. C'est sur ce dernier mécanisme que nos études reposent.

L'émission électronique sous fort champ électrique ou émission par effet de champ a été décrite pour la première fois par R. W. Wood en 1897 ^{[ref]4}. Une forte tension appliquée entre une cathode en forme de pointe et une anode plate produit un flux électronique. Schottky, en 1923, a tenté d'interpréter classiquement l'émission comme le résultat de l'abaissement de la barrière de potentiel. Gossling, en 1926, montre que lors de cette émission d'électrons, le courant ne dépend que du champ électrique appliqué et plus de la température. Les deux phénomènes, émission thermoélectronique et émission de champ, sont donc bien distincts. En 1928, Fowler et Nordheim posent les bases théoriques de l'émission à effet de champ. Leur théorie est basée sur le modèle des électrons libres proposé par Sommerfeld (1928) qui repose sur l'idée que les électrons de la bande de conduction se comportent comme des particules libres (gaz d'électrons). Ils développent cette théorie pour des surfaces métalliques planes et décrivent correctement le passage des électrons du métal au vide comme un effet quantique :

l'effet tunnel. C'est en 1937 qu'Erwin W. Müller^{[ref]5} met au point le premier microscope à émission de champ s'appuyant sur cette théorie^{[ref]6}.

Sous l'effet du champ électrique intense, la barrière de potentiel de surface, vue par les électrons, se déforme et devient triangulaire, Figure 2. D'un point de vue quantique, les électrons peuvent traverser cette barrière, lorsque sa largeur est suffisamment étroite (de l'ordre du nm), ce qui conduit à l'arrachement des électrons du métal sans adjonction d'énergie.

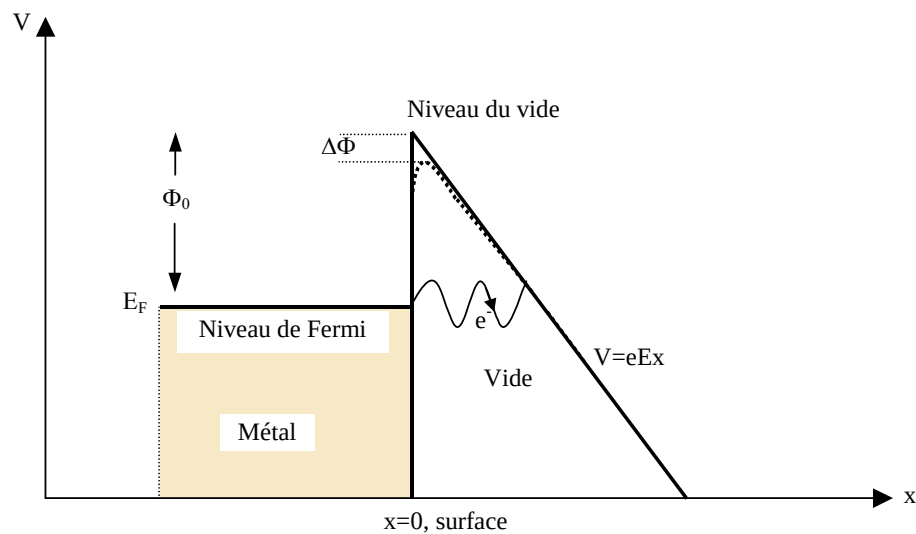


Figure 2 : Diagramme représentant la barrière de potentiel sous l'effet du champ électrique, lorsque le champ est suffisamment élevé, les électrons du métal franchissent la barrière de potentiel par effet tunnel.

La présence du champ électrostatique a donc pour effet :

- de réduire l'épaisseur de la barrière de potentiel,
- de réduire la hauteur de la barrière de surface d'une quantité $\Delta\Phi$, c'est l'effet Schottky.

Concrètement, pour qu'une émission électronique soit observable dans un microscope à émission de champ, pour une hauteur de barrière de quelques eV, qui est de l'ordre de grandeur du travail de sortie des matériaux, la largeur de barrière doit être de quelques nm. Il faut donc un champ électrique d'une fraction de volt par Å.

Pour le tungstène, la hauteur de la barrière est de 4.5eV, la largeur de 1.5nm, le champ électrique sera alors de 0.3 V/Å

II-2- Emission d'ions

II-2-1- Ionisation de champ

L'ionisation de champ (Field Ionization, FI) est le phénomène inverse de l'émission de champ, dans la mesure où un électron est absorbé par le métal, qui constitue l'anode. On considère un atome libre au voisinage d'une surface métallique. On applique un champ électrique sur cette surface métallique. Le but est alors de créer des ions suite à ce champ.

Un électron de l'atome libre se trouve dans un état lié dans un puits de potentiel. L'ensemble des Figure 3 représente le diagramme de l'énergie potentielle d'un électron de l'atome de gaz au voisinage d'une surface métallique soumis à un champ électrique. On définit alors l'énergie d'ionisation, I , comme étant l'énergie requise pour libérer l'électron le moins lié qui est absorbé par le métal. Cette ionisation transforme l'atome neutre en un ion positif. Tous les états électroniques du métal sont occupés jusqu'au niveau de Fermi. Il existe une distance critique x_0 , au-dessous de laquelle l'électron ne trouve plus d'état libre dans le métal. Cette épaisseur critique correspond au passage d'un électron au niveau de Fermi, telle que ^{[ref] 7} :

$$x_0 = (I - \Phi) / eE$$

I : énergie d'ionisation,

Φ : travail de sortie,

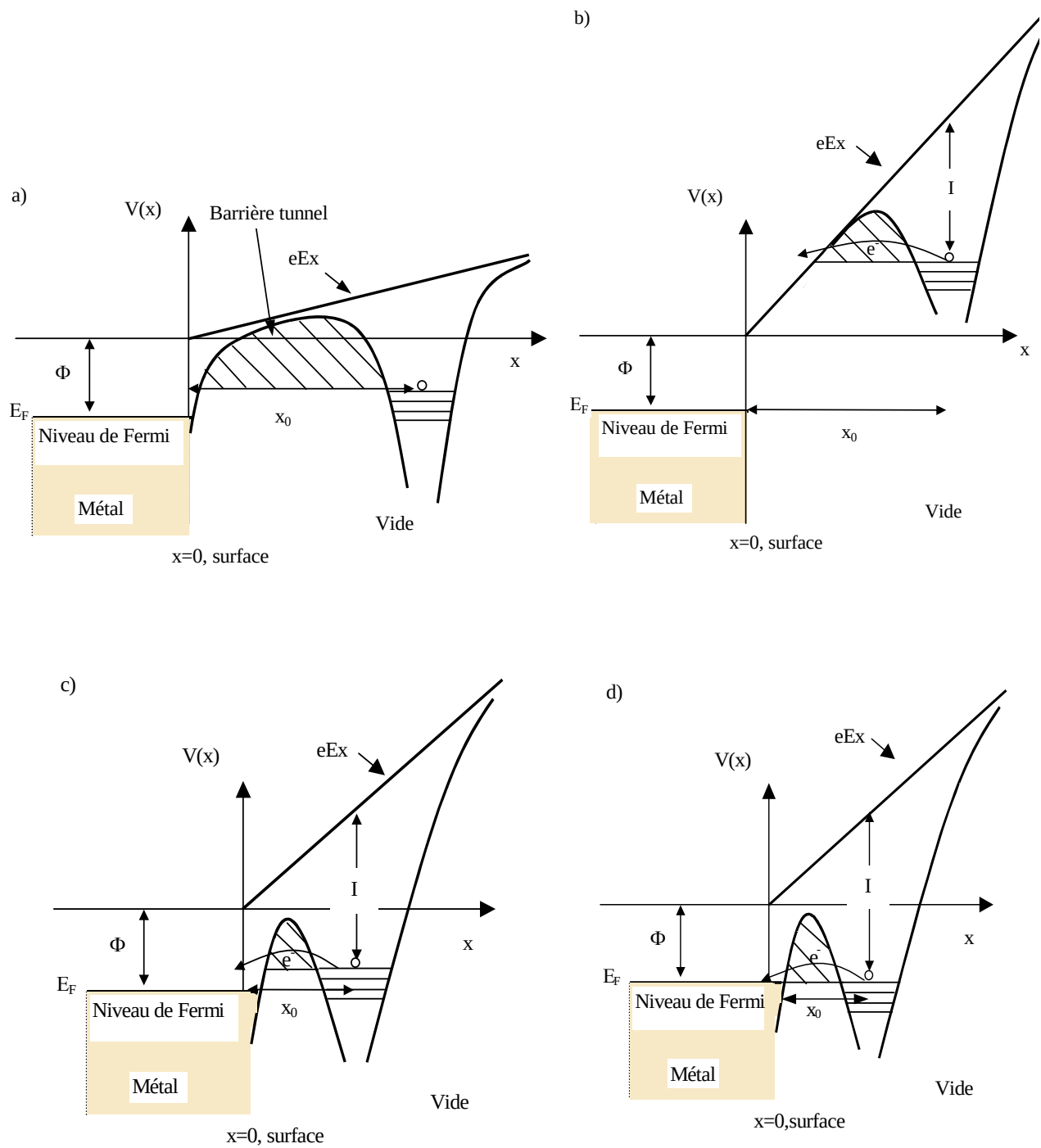
e : charge de l'électron.

Figure 3-a), si le champ électrique est trop faible, l'ionisation ne se produit pas.

Figure 3-b), pour des valeurs élevées du champ électrique, le champ régnant loin de la surface est suffisant pour permettre l'ionisation d'un atome de gaz dans l'état libre, les atomes de gaz sont majoritairement ionisés loin de la surface.

Figure 3-c), lorsque le champ E diminue, l'ionisation a lieu majoritairement très près de la surface.

Figure 3-e), pour une distance x_0 inférieure à une distance critique x_c (pour l'hélium $x_c \sim 4.5 \text{ \AA}$), par le principe d'exclusion de Pauli, un électron lié à l'ion ne peut pas passer dans le métal par effet tunnel car son énergie est en dessous du niveau de Fermi, il n'y a pas d'ionisation.



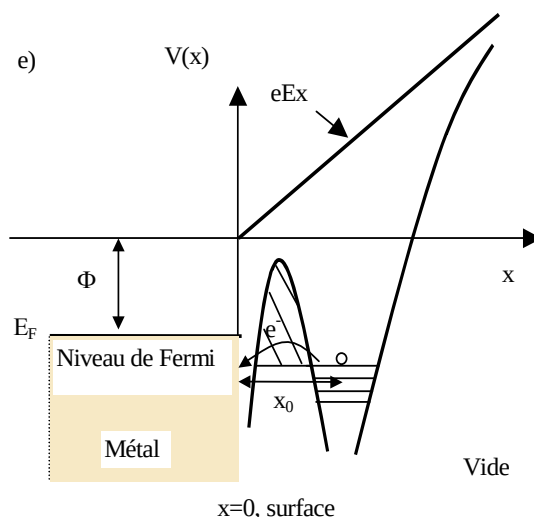


Figure 3 : Courbe de l'énergie potentielle dans le cas de l'ionisation par effet de champ d'un électron lié à un ion situé en x_0 , I est le potentiel d'ionisation de l'atome de gaz.

La courbe eEx représente l'énergie potentielle d'un électron en fonction de sa distance à la surface;

- a) cas d'un champ faible, b) cas d'un champ très fort,
c) cas d'un champ fort, $x_0 > x_c$, d) cas d'un champ fort à la distance x_c ,
e) cas d'un champ fort $x_0 < x_c$.

Dans les conditions du microscope à émission de champ, les énergies d'ionisation étant d'une dizaine d'eV ou plus, la largeur de la barrière est d'une fraction de nm correspondant à un champ électrique de quelques volts par Å.

Le Tableau 1 renvoie aux différentes énergies d'ionisation selon les gaz mis en jeu.

Nature du gaz	$H \rightarrow H^+$	$H_2 \rightarrow H_2^+$	$N_2 \rightarrow N_2^+$	$O_2 \rightarrow O_2^+$	$He \rightarrow He^+$
Energie d'ionisation (eV)	13.59	15.4	15.6	12	24.48

Tableau 1 : Energies d'ionisation pour différents gaz

En microscopie ionique de champ, on définit la valeur optimale du champ électrique (BIF Best Image Field) comme étant celui fournissant la meilleure image (meilleur contraste). Il correspond à la valeur la plus élevée du champ pour laquelle l'ionisation a lieu majoritairement près de la surface et non dans l'espace libre.

Pour des valeurs au dessus du BIF, c'est à dire à très fort champ, l'ionisation des atomes superficiels de l'échantillon se produit au détriment du contraste, au contraire pour des valeurs au dessous du BIF, à faible champ, le courant d'ions n'est pas assez élevé pour permettre la visualisation d'une image. La valeur du BIF dépend de la nature des gaz et de la température, le Tableau 2 donne les valeurs du BIF suivant le gaz révélateur utilisé.

Gaz	He	Ne	Ar	H ₂	N ₂	O ₂
BIF (V/Å)	4.4	3.5	2.2	2.2	1.7	1.5

Tableau 2 : Valeurs du BIF en fonction des gaz ^{[ref]6}

Cette condition, fort champ électrique, est obtenue en préparant l'échantillon sous la forme d'une pointe métallique très fine (cf. Chap II-III-2-1), de quelques dizaines de nm de rayon de courbure et en lui appliquant un potentiel de quelques kV. L'ionisation de champ intervient au voisinage de la pointe conductrice renforçant localement le champ. Ce type d'ionisation produit de faibles courants d'ions mais des densités de courant très élevées et est à la base du microscope à ionisation de champ, développé en 1951 par Erwin Müller, dont nous discuterons le principe par la suite.

II-2-2- Désorption et évaporation par effet de champ

Outre l'ionisation de champ, l'application d'un fort champ électrique à la surface d'une pointe métallique peut provoquer l'évaporation ou la désorption par effet de champ des espèces superficielles sous formes d'ions.

La désorption de champ est l'ionisation d'une phase étrangère liée au métal par chimisorption, en appliquant un champ électrique. La désorption de champ est un processus en deux étapes ^{[ref] 7} : tout d'abord les liaisons chimiques de la surface sont rompues conduisant ensuite à l'ionisation de champ. En ce qui concerne l'évaporation de champ, on observe le retrait d'atomes superficiels de l'échantillon sous forme ionisée. Le champ électrique pour lequel l'évaporation est observée est appelé champ d'évaporation, dont la valeur dépend de la nature du métal et de la température. Deux modèles ^{[ref]14} diffèrent dans l'interprétation du processus d'ionisation. Selon E.W. Müller, il se produit d'abord l'ionisation de l'atome neutre qui franchit ensuite la barrière de Schottky, alors que pour R. Gomer, l'évaporation et l'ionisation ont lieu en même temps.

Dans le Tableau 3 sont reportées les valeurs du champ d'évaporation pour différents métaux, à 77K.

Nature du métal	W	Ir	Pt	Pd
Champ d'évaporation (V/Å)	5.5	5.03	4.42	3.63

Tableau 3 : Champs d'évaporation, à 77K, pour différents métaux ^{[ref]6}

Notons que l'observation d'une pointe par microscopie ionique de champ requiert que ces champs d'évaporation (Tableau 3) soient supérieurs aux champs d'ionisation (Tableau 2). C'est ce qui restreint la microscopie ionique de champ à des matériaux « résistants ».

II-3- Comparaison entre les sources d'ions et les sources d'électrons

II-3-1- Les champs d'émission

La probabilité qu'un électron franchisse la barrière de potentiel lors de l'émission de champ classique ^{[ref] 7} peut être exprimée par :

$$D_e \propto \exp(-6,8 \cdot 10^7 \cdot \frac{\phi^{\frac{3}{2}}}{F_e})$$

avec ϕ , en volt, le travail de sortie du métal utilisé pour la fabrication de la pointe,

F_e , en V/cm, le champ appliqué.

De la même manière, la probabilité pour une molécule de gaz d'être ionisée, i.e pour qu'un électron de la molécule tunnèle vers la pointe, est exprimée par :

$$D_i \propto \exp(-6,8 \cdot 10^7 \cdot \frac{I^{\frac{3}{2}}}{F_i})$$

avec I , en eV, l'énergie d'ionisation du gaz considéré,

F_i , V/cm, le champ électrique appliqué.

Pour des probabilités de tunneling identiques, si on prend l'exemple de l'hydrogène où $I=13.6$ eV et pour des pointes en tungstène où $\phi=4.5$ eV, on trouve :

$$\frac{F_i}{F_e} = \left(\frac{I}{\phi} \right)^{\frac{2}{3}} \approx 5.25$$

Il faudra donc appliquer un champ ionique 5 fois supérieur au champ nécessaire à l'émission électronique.

II-3-2- Les longueurs d'onde

La longueur d'onde associée à une particule est donnée par la relation de De Broglie :

$$\lambda = \frac{h}{mv}$$

avec h la constante de Planck,

m la masse de la particule,

v la vitesse de l'électron.

Si les électrons sont accélérés par une différence de potentiel U , nous savons que :

$$\frac{1}{2}mv^2 = eU = E \text{ où } E : \text{énergie cinétique des particules.}$$

On en déduit que :

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2meU}} = \frac{h}{\sqrt{2mE}}$$

La longueur d'onde est liée à l'énergie cinétique et à la masse de la particule émise.

Le rapport des longueurs d'onde associées aux ions et aux électrons, λ_i et λ_e respectivement donne :

$$\frac{\lambda_i}{\lambda_e} = \frac{h}{\sqrt{2m_i E_i}} \times \frac{\sqrt{2m_e E_e}}{h}$$

$$\text{avec } m_i = 1,67.10^{-27} \text{ kg,}$$

$$m_e = 9,1.10^{-31} \text{ kg.}$$

L'énergie cinétique de l'électron est cinq fois supérieure à celle du proton suite à l'application d'un champ électrique. Les vitesses acquises seront évidemment différentes. On en déduit que :

$$\lambda_e \approx 100 \lambda_i \quad (1)$$

Ce résultat met en évidence un rapport cent entre les longueurs d'onde des ions et des électrons. Pour les électrons, $\lambda_e \sim 5.10^{-11} \text{ m}$, pour une émission électronique se produisant autour de 500V, pour les ions H_2 , $\lambda_i \sim 4.10^{-13} \text{ m}$ pour une émission ionique autour de 2kV.

II-3-3- Diversité des particules dans le cas des sources d'ions

Une autre caractéristique des sources d'ions par rapport aux sources d'électrons réside dans le fait que l'on peut changer la nature des ions en changeant le gaz, ou sa composition dans le cas d'un mélange. Dans notre cas, au laboratoire, les gaz utilisés seront essentiellement l'hydrogène, l'hélium, l'eau et les mélanges eau-hydrogène. L'ionisation de l'hydrogène, par exemple, se produisant à un champ électrique plus faible, s'avère très utile pour l'observation de la pointe, dont la valeur basse du champ d'évaporation ionique empêche l'emploi de gaz rares comme gaz révélateur (cf. Tableau 1 et Tableau 3). Par contre, la réactivité de l'hydrogène avec certains métaux (formation d'hydrures) peut être un inconvénient. La production de différents ions avec un même gaz peut être un avantage ou un inconvénient suivant l'application envisagée.

III- Problématique des sources d'ions à effet de champ

Il existe différentes sources qui permettent de produire des ions. Nous allons nous intéresser à deux types de sources en particulier, les sources à métal liquide LMIS (Liquid Metal Ion Source) et les sources d'ions gazeux GFIS (Gas Field Ion Sources), avant de présenter la source à structure coaxiale.

III-1- Les sources d'ions à métal liquide (LMIS)

Les sources à métal liquide sont constituées d'ions de métaux à faible point de fusion et à tension de vapeur relativement peu élevée, comme l'indium et principalement le gallium. Ces sources sont formées par un enroulement de fil de tungstène constituant le réservoir à métal et supportant une pointe de tungstène (de haut point de fusion). L'ensemble est plongé dans du gallium liquide qui mouille le tungstène, remplit le réservoir et mouille la pointe sans la dissoudre par tension superficielle. La fusion est obtenue par effet Joule suite au passage d'un courant électrique dans une boucle supportant la pointe, ou sans chauffage dans le cas de métaux liquides à la température ambiante. La pointe est polarisée positivement par rapport à une électrode extractrice. Soumis aux forces de tensions superficielles, une goutte de métal liquide se forme en bout de pointe. A partir d'un champ électrique critique cette goutte prend la forme d'un cône appelée « cône de Taylor » ^{[ref]13}, Figure 4, à partir duquel les ions sont émis, et qui résulte de l'équilibre entre l'énergie électrostatique et l'énergie de surface.

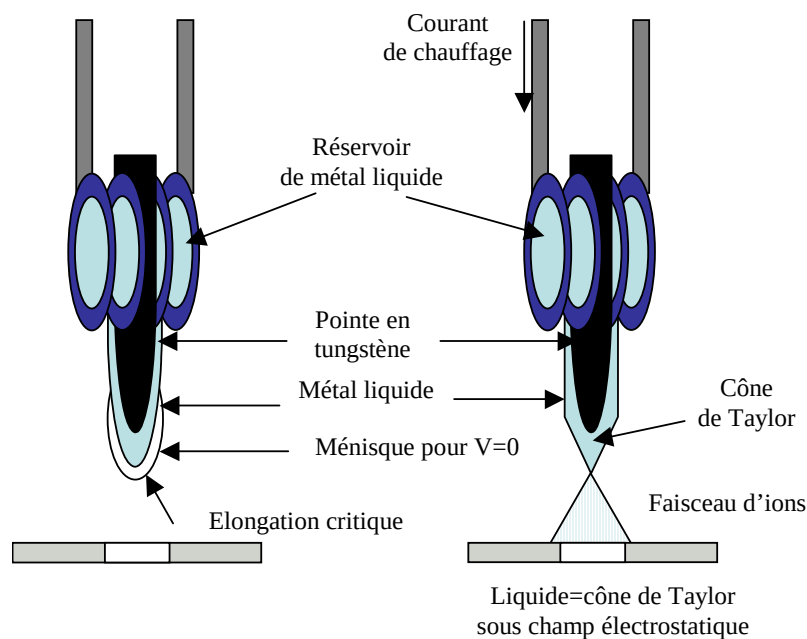


Figure 4 : Formation du cône de Taylor

Le mécanisme d'émission est complexe. Il est lié à l'évaporation de champ à l'extrémité d'un jet. Les atomes de la surface sont arrachés directement sous forme ionisée par un champ électrique intense (3 à 5V/Å) et une dispersion en énergie plus élevée que lors de l'ionisation de champ est observée. Ces sources produisent des courants de l'ordre de 1 à 500 μA ^{[ref]14}. Les phénomènes physiques mis en jeu sont cependant complexes et encore mal connus ^{[ref]15}. Les caractéristiques des sources à métal liquide sont regroupées dans le Tableau 4.

Tension d'extraction	Courant d'ions	Durée de vie	Dispersion énergétique	Taille virtuelle	Brillance
5 à 10kV	1 à 10 μA	4000 heures	5 à 40eV	<50 nm	10 ⁶ A/cm ² .Sr

Tableau 4 : Caractéristiques des sources à métal liquide

La mise au point de ces sources résulte d'études menées à la fin des années 70 et au début des années 80 ^{[ref]12}. La maîtrise de ces sources a conduit aux machines à faisceaux d'ions focalisés (FIB) actuelles qui constituent, grâce à leurs capacités ablatives ou additives très locales, l'un des outils industriels majeurs d'analyse de défaillance, de conception ou de modification des circuits intégrés. Elles permettent également la préparation d'échantillons en microscopie électronique à transmission. La technologie FIB constitue aussi un outil fantastique pour les nano-technologies, par sa capacité à intervenir au niveau de la dizaine de nanomètres tant en abrasion qu'en dépôt, tant à deux qu'à trois dimensions.

Cependant, il existe un verrou qu'il serait hautement souhaitable de faire sauter. Celui-ci concerne la nature des ions du faisceau et essentiellement le gallium, constituant le matériau de prédilection avec des durées de vie de sources excédant les 4000 heures. Les ions produits par toutes les LMIS sont malheureusement des éléments contaminants pour les semi-conducteurs. Il serait particulièrement intéressant de pouvoir disposer d'ions de gaz rares (Ar par exemple) pour l'abrasion, du fait de la faible réactivité chimique de ces gaz. Disposer de telles sources d'ions constituerait un saut technologique majeur à la fois pour les fabricants de semi-conducteurs, pour les intégrateurs de machines FIB, et particulièrement pour la société Orsay-Physics qui développe les colonnes ioniques, cœur des machines FIB. Les applications plus amont, telles que la création ou la modification d'objets nanométriques bénéficieraient aussi de sondes d'ions non réactifs, car à cette échelle, les effets contaminant des ions implantés deviennent préoccupants. Ainsi, un effort important a été consenti dans le développement de sources d'ions gazeux (GFIS : Gas Field Ion Sources) dans les années 80.

III-2- Les sources d'ions gazeux à structure conventionnelle

A la différence des LMIS, les sources d'ions gazeux, GFIS, opèrent sur le principe de l'ionisation de champ d'un gaz au bout d'une pointe solide : un atome de gaz transfère son électron le plus externe dans la pointe suite à l'amincissement de la barrière d'ionisation résultant du champ appliqué (cf. Tableau 2).

Les précurseurs sont Orloff et Swanson^{[ref]16}, qui en 1975 ont étudié une source à ionisation de champ pour la microfabrication. Mais une des contraintes forte de cette approche réside dans la faible pression, inférieure à quelques 10^{-3} mbar, requise dans la chambre pour permettre une libre propagation du faisceau d'ions. Cette condition remplie, le seul moyen d'obtenir des courants d'ions intéressants s'appuyait sur deux effets : 1) diminuer la température; 2) fabriquer une nanopointe sur une pointe plus grosse,^{[ref]17 [ref]18 [ref]19}. L'abaissement de la température de la pointe (et du gaz au travers d'une paroi refroidie autour de la pointe) permet une meilleure condensation du gaz sur la pointe^{[ref]6 [ref]20}. Le rôle de la grosse pointe est d'augmenter le nombre d'atomes de gaz capturés par la surface, atomes qui migrent alors vers le bout de la nanopointe par diffusion de surface pour y être ionisés. Les résultats de K. Horluchi et al.^{[ref]21} en laboratoire ont démontré de bonnes performances de ces sources : tension d'extraction de l'ordre de 5 kV, courants de quelques nA compensés en partie par un angle d'ouverture du faisceau d'ions émis beaucoup plus petit (de l'ordre du degré) que celui des LMIS. Les caractéristiques sont répertoriées dans le Tableau 5. Cependant, du fait du caractère ponctuel de la source, certaines données sont difficiles à déterminer, comme la brillance ou la taille de la source virtuelle et sont données à titre indicatif. En effet, la taille des sources virtuelles n'est pas vraiment connue mais estimée petite en relation avec le faible nombre d'atomes apparaissant dans le diagramme ionique d'émission.

Tension d'extraction	Courant d'ions	Durée de vie	Dispersion énergétique	Taille virtuelle	Brillance
5 kV	1 à 10 μ A	150 heures	1 eV	quelques nm	10^8 A/cm ² .Sr

Tableau 5 : Caractéristiques des sources d'ions gazeux à basse température

Cependant, les contraintes conjointes de maintien de la pointe à très basse température d'une part et de stabilité d'un édifice atomique d'autre part réduisent les durées de vie effectives de ces sources à quelques dizaines d'heures. Cependant, des progrès très récents semblent avoir été apportés par la société A.L.I.S^{[ref]29[ref]30}.

III-3- La source à structure coaxiale

Une nouvelle idée a vu le jour au début des années 2000 au CRM-CN (alors CRM-C2) à Marseille, dans le groupe « Sources Ponctuelles et Holographie ». L'idée de base est d'utiliser une structure coaxiale constituée d'une pointe à émission de champ placée à l'intérieur d'un capillaire de faible diamètre. Une structure de ce type avait déjà été fabriquée pour réaliser un micro-canon à électrons à source ponctuelle ^{[ref]22}. Le principe de cette nouvelle source d'ions ^{[ref]23} consiste à se servir du capillaire pour injecter localement du gaz à l'extrémité de la pointe et ceci à température ambiante. L'injection localisée du gaz permet de n'introduire que peu de gaz dans l'enceinte où les ions pourront donc se propager sans collision, même avec une forte pression dans le capillaire. Des calculs préliminaires aux expériences semblaient démontrer la faisabilité d'une source d'ions basée sur ces idées.

Les premières expériences ont été menées par E. Salançon ^{[ref]24} durant sa thèse. Elles ont permis de résoudre un certain nombre de problèmes techniques en particulier les problèmes de dimensionnement des tubes capillaires ainsi que la méthode de polarisation de la pointe. Ce dernier point était critique en raison de la coexistence de la haute tension et de la haute pression favorisant la création de décharges. Les premiers résultats ont permis d'estimer la taille apparente de la source, inférieure à 50 nm. A basses pressions, des courants de l'ordre de la dizaine de nA (courants mesurés à la haute tension) pour des tensions d'extraction de quelques kV ont été mesurés pour des durées de vie d'une semaine.

IV- Le microscope ionique à effet de champ (FIM : Field Ion Microscopy)

Le microscope ionique à effet de champ a été mis au point en 1951 par Erwin W. Müller, à l'Université de Berlin puis de Pennsylvanie. Utilisé dans un premier temps pour des problèmes liés à la physique des surfaces et à la cristallographie, il fut rapidement amélioré pour devenir une technique d'investigation à part entière dans la science des matériaux.

Le microscope ionique permet, grâce à l'utilisation de l'effet de champ, de visualiser à l'échelle atomique l'extrémité hémisphérique d'une pointe métallique (l'échantillon) dont le rayon de courbure peut varier d'une centaine de nanomètres, pour les pointes les plus grosses, à quelques nanomètres, pour les plus fines. La pointe est ensuite placée dans une enceinte à vide, dans laquelle on a introduit une faible pression de gaz, et est portée à un potentiel positif intense de plusieurs kilovolts tel que le champ électrique sera d'environ 3 à 4 V/Å (selon le gaz utilisé), suivant la formule : $F = \frac{V}{k.R_c}$ où V est la tension appliquée sur la pointe, k est le

facteur géométrique adimensionnel dépendant de la forme de la pointe, R_c est le rayon de courbure de la pointe. La Figure 5 représente le microscope ionique à effet de champ classique développé par E.W. Müller. La pression de gaz introduite est faible, environ 10^{-3} mbar, pour permettre la libre propagation des ions, sans collision. A l'aide d'un doigt froid rempli d'un liquide cryogénique, l'échantillon est refroidi.

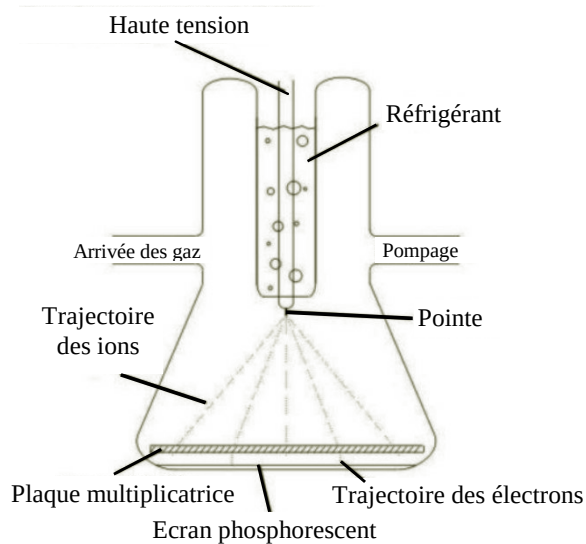


Figure 5 : Microscope ionique à effet de champ dans sa configuration classique ^{[ref]6}

Ainsi, en introduisant sous faible pression un gaz (hydrogène, hélium ou néon), cette technique consiste à ioniser par effet de champ, au voisinage de la pointe chargée positivement, les atomes de ce gaz sous l'effet du champ électrique intense. Un électron peut être arraché de l'atome de gaz et transféré à la pointe. Il ne reste plus qu'un ion gazeux chargé positivement sur la surface de l'échantillon. L'image des atomes les plus proéminents de la pointe est formée par projection vers un écran de visualisation. La Figure 6 illustre le principe de formation de l'image par ionisation de champ.

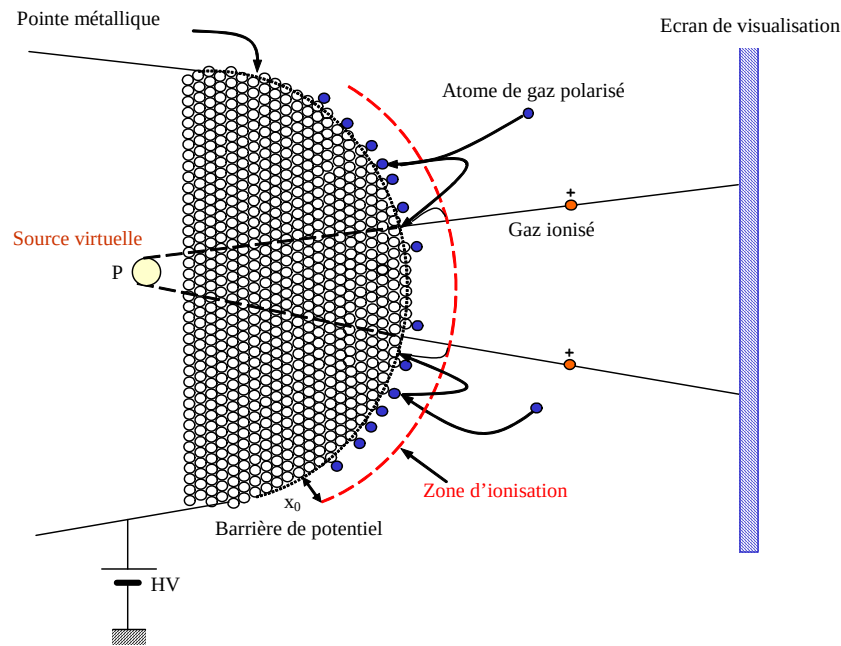


Figure 6 : Principe de formation de l'image par ionisation à effet de champ

On observe alors, sur l'écran, une image ionique agrandie qui est le reflet des variations du rayon de courbure local et donc des modulations du champ électrique présent à la surface de l'échantillon. On obtient ainsi une « photographie » des impacts des ions, dont un exemple est donné sur la Figure 7 et à partir des leurs positions on détermine la trajectoire de l'ion et son point de départ, P. Comme nous l'avons vu précédemment, les faisceaux d'ions proviennent de la source virtuelle située en amont de la source réelle. La Figure 7-b) est donc une projection stéréographique (i.e un point commun de projection) de la surface de la pointe résolue à l'échelle atomique. Chaque point sur l'image est un atome pris individuellement (schématisé par la Figure 7-a)). Une caractéristique de l'image est le dessin en cercles concentriques. Ces cercles sont provoqués par l'intersection des plans atomiques du cristal avec la surface de l'échantillon hémisphérique.

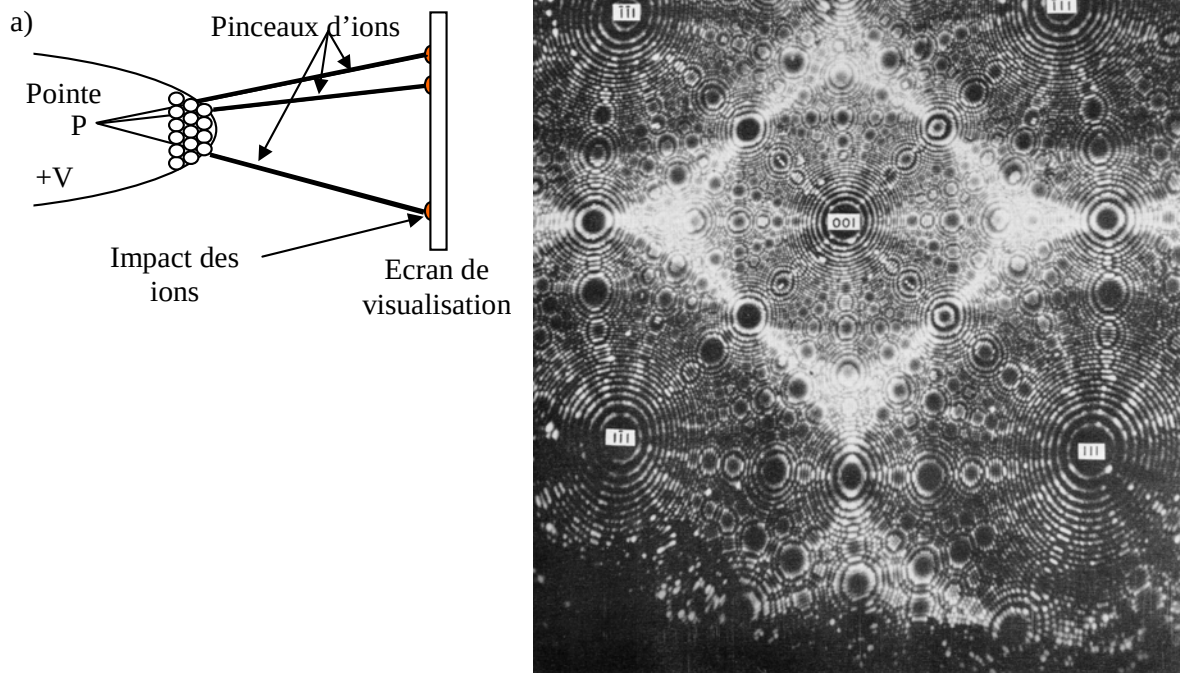


Figure 7-b) : Pointe d'Iridium mise en image par FIM^{[ref]6} sous He à 21K, $P_{He}=2.10^{-3}$ Torr, $V=22kV$

Ces images sont obtenues pour des pointes grosses à des tensions relativement élevées, en général 20kV. Le faisceau d'ions émis provient de plusieurs dizaines de milliers d'atomes. Un pas significatif a été apporté dans la réalisation de pointes ultra-fines. Sur la Figure 8 est reportée une micrographie ionique de champ d'une telle pointe, réalisée par R. Morin. Chaque tache représente l'émission d'un seul atome. On peut reconstituer la structure du cristal. Chaque bille est un atome de l'échantillon mais seules les billes peintes en noir seront mises en image. Elles correspondent aux régions de la pointe où le champ électrique local est le plus intense, c'est-à-dire les régions où la probabilité d'ionisation du gaz révélateur est grande.

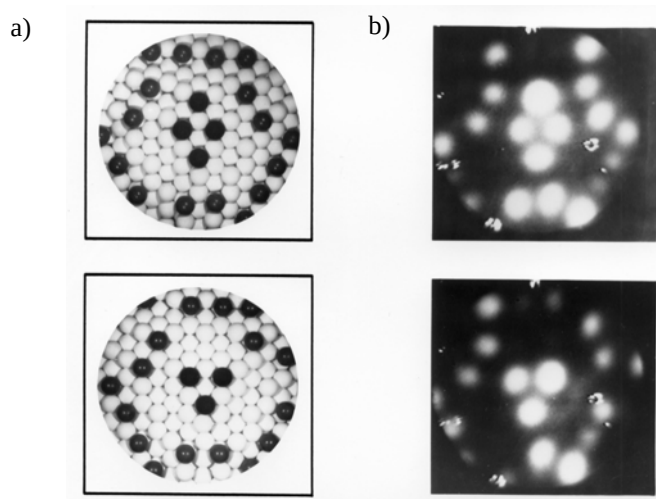


Figure 8 : a) Reconstruction du cristal, b) Image en microscopie ionique d'une pointe de tungstène de faible rayon de courbure sous hélium, $V=5kV$

Le microscope ionique permet d'obtenir des grossissements d'au moins 10^6 et d'observer la surface de la pointe avec une résolution proche de l'atome. Chaque point émissif de la surface représente une source ponctuelle. L'obtention d'une telle résolution provient d'une faible dispersion en énergie latérale du faisceau ionique issu de chaque site.

V- Le microscope à projection

Dans le cadre de cette étude, le microscope à projection constitue à la fois le développement d'un nouveau microscope en lui-même et un des rares moyens, sinon le seul, à pouvoir déterminer la taille de la source virtuelle et donc la brillance d'une source « ponctuelle ».

La microscopie à projection permet d'imager la forme d'un objet par l'ombre qu'il produit par une illumination. Un microscope à projection utilisant une source d'électrons à émission de champ fut proposé en 1939 par Morton et Ramberg^{[ref]25}, auteurs du Point Projector Electron Microscope, des grossissements de 3000 ont été obtenus. Boersch, en focalisant le faisceau d'un microscope électronique accède à une résolution de 25 nm. Müller et Tsong^{[ref]6} donnent un exemple de l'ombre d'un objet, une grille de cuivre, obtenue en microscopie ionique à projection, Figure 9. L'objet est ainsi placé entre la pointe et l'écran. Le grossissement est limité à 1000 à cause de problèmes de vibrations de l'objet par rapport à la pointe émettrice. Les bords de la grille sont piqués, cependant ils démontrent que la résolution de l'ombre de l'image, qui peut être définie comme étant la possibilité de distinguer des points rapprochés comme des objets distincts, est de l'ordre de grandeur du diamètre de la source et espéraient atteindre des résolutions de 2 à 3 Å.

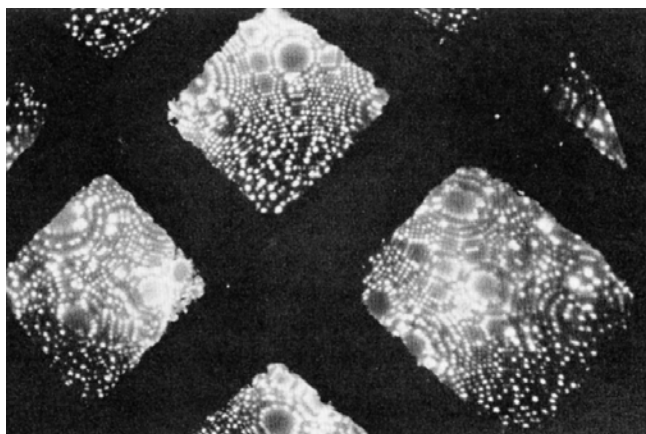


Figure 9 : Ombre d'une grille de cuivre obtenue en microscopie ionique de champ

Puis, il faudra attendre 1989 avec Stocker et al ^{[ref]26} pour que les pointes ultra-fines, émettant à faible tension, soient introduites dans un système à projection utilisant des techniques de positionnement par céramiques piezo-électriques. Cependant les tensions d'ionisation pour l'hélium étant trop élevée, ces études n'ont pas permis d'obtenir des grossissements excédant 3000. Depuis, au sein du laboratoire, le montage du microscope électronique à projection a été repris et développé ^{[ref]27}.

Le microscope à projection est constitué d'une source ponctuelle : une pointe, d'un objet et d'un détecteur. Une tension électrique est appliquée entre l'objet et la pointe de manière à induire l'émission d'un faisceau d'électrons ou d'ions à partir de l'extrémité de la pointe. Le principe du microscope consiste alors à projeter sur le détecteur une ombre agrandie de l'objet étudié, en le plaçant aussi près que possible de la pointe à l'intérieur du faisceau électronique/ionique.

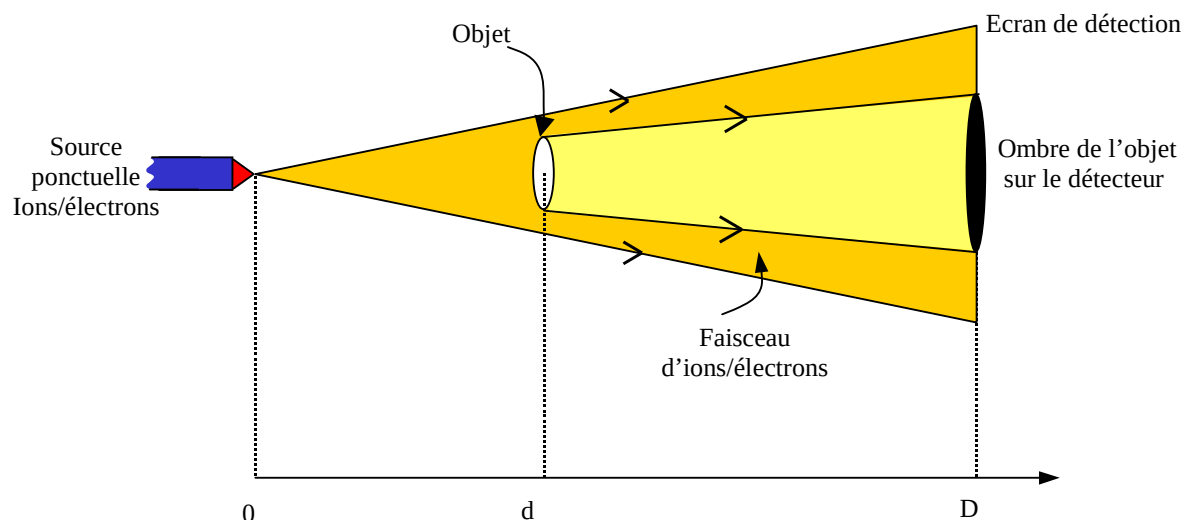


Figure 10: Principe du microscope à projection à partir d'une source ponctuelle

Comme l'illustre la Figure 10, le faisceau d'ions ou d'électrons issu de la pointe illumine l'objet. On peut décomposer le faisceau en plusieurs parties :

- une partie passe dans les zones sans objet,
- une partie est diffusée par l'objet,
- une partie est arrêtée par l'objet.

Le grandissement, G , de l'ombre de l'objet sur l'écran est défini comme le rapport de la distance source-image D sur la distance source-objet d , tel que $G = \frac{D}{d}$.

Pour une distance objet-écran donnée, le grandissement est d'autant plus important que la source d'ions ou d'électrons est proche de l'objet et l'ombre est d'autant mieux définie que la source est petite.

Pour une source ponctuelle, l'ombre est nette. Si maintenant on considère une source étendue, de largeur a , Figure 11, la source ne peut plus être confondue avec un point et chaque point de la source produit son propre système de cône et sa propre ombre sur l'écran. Ces ombres peuvent être plus ou moins nette à cause de la présence d'une pénombre, due aux ombres voisines. Cette pénombre de largeur A introduit un flou au niveau de l'observation des objets observés et $A = \frac{(D-d)}{d} \cdot a$.

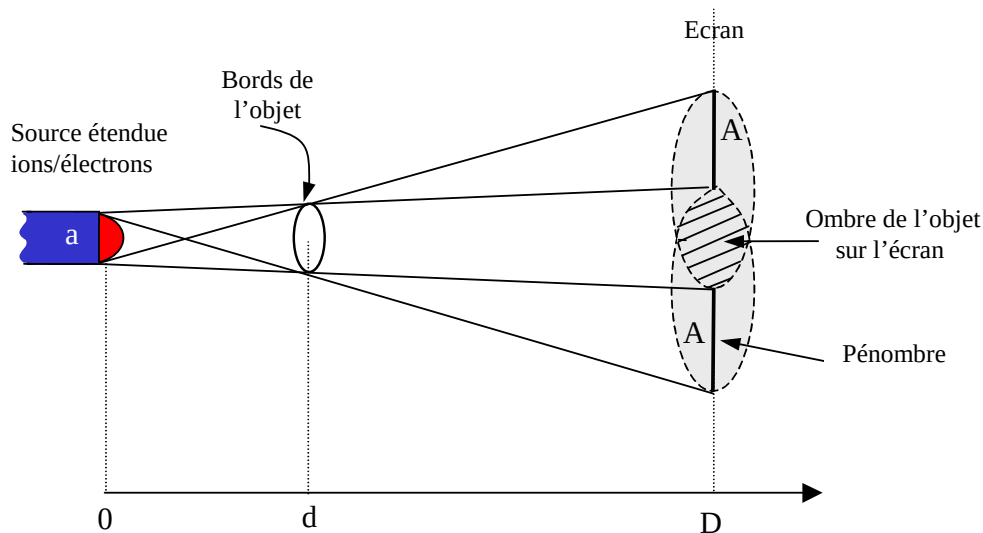


Figure 11 : Formation de l'ombre et de la pénombre d'un objet à partir d'une source étendue

Pour déterminer la résolution géométrique, r , il suffit de ramener la taille de la pénombre dans le plan de l'objet, on obtient alors :

$$r = \frac{D-d}{d} \cdot a \cdot \frac{1}{G} = \frac{D-d}{D} \cdot a$$

Si $D \gg d$, $r \approx a$. On en déduit que la résolution ne dépend pas du grandissement mais seulement de la taille de la source. On comprend l'utilité du microscope à projection dont la résolution est intimement liée à la taille de la source, en supposant aucun phénomène parasite comme par exemple une vibration de la pointe ou de l'objet, ou un champ déviateur. Dans les conditions expérimentales, la résolution du détecteur peut être une limitation. Par exemple, si elle est de 0.1 mm à un grandissement de 100000, tant la résolution sur l'objet que sur la taille de la source virtuelle seront limitées à 1 nm.

La discussion précédente repose sur un comportement classique des particules. Lorsqu'on prend en compte l'aspect ondulatoire la notion de trajectoire disparaît et les phénomènes d'interférences apparaissent. L'introduction des pointes ultra-fines a conduit à l'observation de ces phénomènes dans le cas des électrons^{[ref]10}. L'image en projection apparaît comme un hologramme qui est le cliché d'interférences du faisceau émis par la source et de celui diffusé par l'objet. A partir de cet hologramme, l'image de l'objet^{[ref]31} ou la taille de la source peuvent être déterminée^([ref]27, [ref]32).

Vu leur courte longueur d'onde la microscopie à projection ionique devrait être abordée d'un point de vue classique.

Le microscope à projection sera utilisé dans ce travail pour caractériser la taille de la zone émissive et définir les différentes caractéristiques propres à une source. Cependant, en plus d'être un outil de caractérisation, il représente un nouveau dispositif pour la microscopie. Présentant l'avantage de fonctionner aussi bien avec une source d'électrons qu'avec une source d'ions, nous nous sommes focalisés, tout de même, sur les faisceaux ioniques.

VI- Conclusion

Dans cette partie, nous avons mis en évidence les différents processus d'ionisation reposant sur l'effet de champ ainsi que les propriétés relatives au bon fondement d'une source.

L'intérêt de la source à structure coaxiale a été posé : amener une forte pression de gaz en bout de pointe tout en conservant une faible pression dans l'enceinte permettant la libre propagation du faisceau d'ions et ceci à température ambiante. Pour ce faire, la source est constituée d'une pointe émettrice de faible rayon de courbure, polarisée positivement. Celle-ci est introduite à l'intérieur d'un capillaire qui permet de guider le gaz près de la pointe. Le but est ainsi d'augmenter la fonction d'apport en atome de gaz au voisinage de la pointe afin d'obtenir un meilleur rendement et ainsi un courant d'ions le plus élevé possible.

Le microscope ionique à projection, décrit dans ce chapitre, va être utilisé par la suite aussi bien en tant qu'outil de caractérisation pour connaître la taille de la source virtuelle qu'en tant que nouveau procédé de microscopie.

VII- Références bibliographiques

- [ref]1 Dictionnaire de physique, J.P. Mathieu, A. Kastler et P. Fleury, Dictionnaire de physique, Ed. Masson, Eyrolles, 1991
- [ref]2 J.F. Mahoney, J. Perel, and A.T. Forrester, Appl. Phys. Lett. 38(5), March 1981, p320-322
- [ref]3 Thèse de Laurent Roussel, « Evaporation de champ d'ions Césium sur une surface liquide : approche physique dans le cas métallique et non métallique », université Paris XI-Orsay, 2001.
- [ref]4 R. W. Wood, "A new form of cathode discharge and the production of X-rays, together with some notes on diffraction", Phys. Rev. 5 (1897) 1
- [ref]5 Biographical Memoirs, Erwin W. Müller, by Allan J. Melmed, <http://www.nap.edu/readingroom/books/biomems/emueller.html>
- [ref]6 Field Ion Microscopy, E.W. Müller, T.T. Tsong, Ed. Elsevier, American Elsevier Publishing Compagny, Inc., New York 1969 (1969)
- [ref]7 Field Emission and field ionization, R. Gomer, 1961
- [ref]8 Alain Gargani, "Microscopie à projection utilisant une source à émission de champ", Thèse Université Aix-marseille III, 15 octobre 2003
- [ref]9 Habilitation à diriger les recherches de Alain Degiovanni, Université d'Aix-Marseille III, 2000
- [ref]10 H.W. Fink, W. Stocker and H. Schmid, "Holography with low-energy electrons", Phys. Rev. Lett. 65 (1990) 1204-1206.
- [ref]11 J. Melngailis, "Ion Sources for Nanofabrication and High Resolution Lithography", Proceedings of the 2001 Particle Accelerator Conference, p76-80, Chicago.
- [ref]12 P. Sudraud, "Etude des mécanismes de champ responsables de l'émission de particules chargées à partir d'une surface et conception d'une source d'ions de grande brillance", Thèse Université Paris-Sud Orsay, 28 Juin 1979.
- [ref]13 R.G. Forbes, "Understanding How the Liquid Metal Ion Source Works", Vacuum, 48(1), (1997), p85-97
- [ref]14 G. Ben Assayag « Etude du mécanisme de champ responsables de l'émission de particules chargées à partir d'une surface et conception d'une source d'ions de grande brillance », Thèse Université Paris Sud, centre d'Orsay, 1979

- [ref]15 R. Gomer, Appl. Phys. 19,(1979), 365
- [ref]16 J.H. Orloff and L.W. Swanson, “Study of a field-ionization source for microprobe applications”, J.Vac.Sci.Technol. 12(6), Nov./Dec. (1975) , p1209
- [ref]17 R. Borret, K. Jousten, K. Boehringer, and S. Kalbitzer, “Long time current stability of a gas field ion source with a supertip”, J. Phys. D 21, (1988), p1835
- [ref]18 S. Kalbitzer, “Bright ion beams for the nuclear microprobe”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 158 (1999) 53-60
- [ref]19 A. Knoblauch, Th. Miller, Ch. Klatt, S. Kalbitzer, “Electron and ion emission properties of iridium supertip field emitters”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 139 (1998) 20-27
- [ref]20 J.H. Orloff and L.W. Swanson, “Angular intensity of a gas-phase field ionisation source”, J.Appl. Phys. 50(9), Sept. 1979, p6026
- [ref]21 K. Horiuchi, T. Itakura and H. Ishikawa, “Emission characteristics and stability of a helium field ion source”, J.Vac.Sci.Technol. B6 (3), (1988), 937.
- [ref]22 Z. Hammadi, M. Gauch and R. Morin, “Microelectron gun integrating a point-source cathode”, J.Vac.Sci.Technol. B 17 (1999) 1390-1394.
- [ref]23 E. Salançon, Z. Hammadi and R. Morin, “A new approach to gas field ion sources” Ultramicroscopy 95 (2003) 183-188
- [ref]24 E. Salançon, « Source Ponctuelle d'Ions à Structure Coaxiale » Thèse Université Aix-Marseille III, 29 Nov. 2002
- [ref]25 G.A. Morton and E.G. Ramberg, “Point projector electron microscope”, Phys. Rev. 56, 705 (1939)
- [ref]26 W. Stocker, H.W. Fink and R. Morin, “Low-energy electron and ion projection microscopy”, Ultramicroscopy 31, p379, 1989
- [ref]27 R. Morin and A. Degiovanni, “Interferometry with low-energy electrons”, J. Vac. Sci. Technol. B 13(2), Mar/ Apr 1995
- [ref]28 High Voltage Engineering, J R Lucas, 2001
- [ref]29 <http://www.aliscorporation.com/>
- [ref]30 J. Morgan, J. Notte, R. Hill, B. Ward, “An introduction to the helium ion microscope”, Microscopy Today, 14 (4), July 2006.

[ref]³¹ J. Bardon, A. Degiovanni, V. Georges, R. Morin, “Conducting, semiconducting and insulating objects observed by low-energy electron holography ” *Ultramicroscopy* 92 (2002) 133-142

[ref]³² A. Degiovanni, W. Lai and R. Morin, “Electron Sources of Atomic Size”, Invited conference, Proceedings of the Symposium on Advanced Surface Analytical Technique, Kyoto, Nov. 1996, The Japan Society for the Promotion of Science.

Chapitre II : Le dispositif expérimental.....	37
I- Architecture du montage expérimental	37
II- Aspect technique.....	38
II-1- Le système de pompage.....	39
II-1-1- Les pompes à vide	40
II-1-2- Obtention du vide dans les différents compartiments du dispositif.....	40
i- Mise en œuvre du système de pompage du dispositif.....	40
ii- L'étuvage.....	41
II-2- Introduction de gaz.....	41
III- La source d'ions	42
III-1- Le montage de base	42
III-2- La nouvelle source à structure coaxiale	43
III-2-1- Préparation des pointes.....	45
i- Pointes en tungstène	45
ii- Pointes en platine et en palladium.....	47
III-2-2- Fiabilité des collages	48
IV- Le microscope à projection	49
IV-1- L'ensemble source-objet.....	49
IV-2- Description de la partie détection	50
V- Le spectromètre de masse.....	52
V-1- Conception d' un spectromètre	52
V-2- Calcul de la déflexion théorique	54
VI- Références bibliographiques.....	58

Chapitre II : Le dispositif expérimental

La conception du dispositif expérimental s'est avérée être un point essentiel dans le travail de recherche que j'ai effectué durant ces trois années de thèse. Le point de départ du dispositif expérimental s'est appuyé sur le travail de thèse d'E. Salançon ^{[ref]1}. Depuis, de nombreuses améliorations ont été réalisées. La première concerne des améliorations directement au niveau de la source et sa fabrication, l'autre concerne la réalisation d'un microscope à projection performant. D'autre part, un système d'analyse par spectrométrie de masse des ions émis a été développé.

J'exposerai donc dans ce chapitre, les différents appareillages qui ont été mis en œuvre pour développer un dispositif expérimental fiable.

I- Architecture du montage expérimental

Le montage expérimental réalisé dans ce travail s'appuie sur :

- le principe du microscope à émission de champ qui va permettre la visualisation des atomes présents à la surface de l'échantillon : diagramme d'émission,
- le principe du microscope à projection qui va permettre l'observation de l'image agrandie d'un objet et l'obtention de la taille virtuelle de la source,
- le principe du spectromètre de masse qui va permettre l'identification des ions produits lors de l'émission.

Le principe architectural du dispositif expérimental est basé sur une platine tournante sur laquelle est fixée l'ensemble source-objet. Celui-ci est suspendu à une bride CF160. La réalisation de ce montage a été effectuée au laboratoire. Les difficultés ont été la connexion de gaz jusqu'à la pointe tout en conservant le mouvement de l'ensemble, le refroidissement de la source et la résolution des problèmes de vibrations de l'ensemble. Un tel montage va permettre des études en microscopie ionique à projection, d'étudier les propriétés du faisceau en effaçant ou non l'objet, d'effectuer la mesure du courant et la possibilité de pouvoir sélectionner différents détecteurs en tournant la platine, Figure 1.

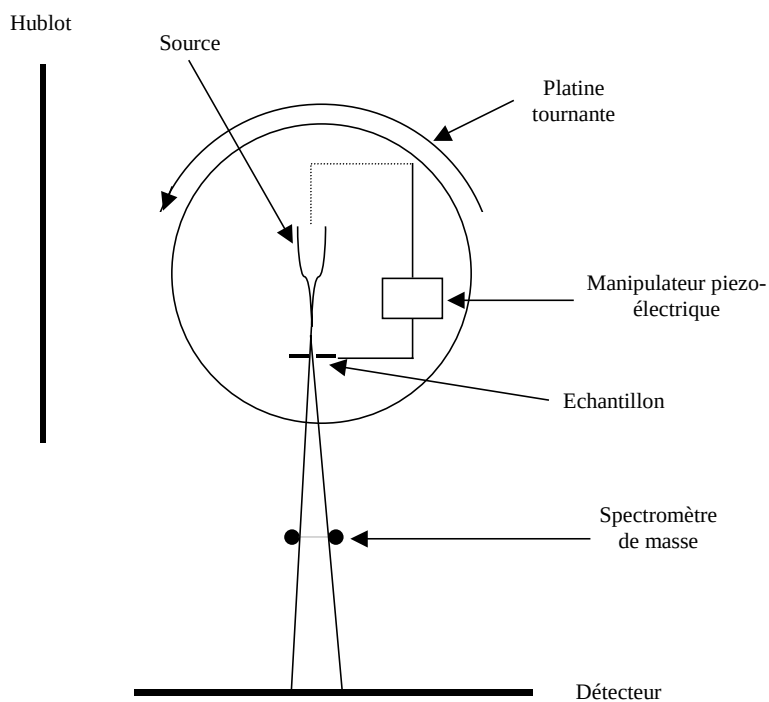


Figure 1 : Schéma de la platine tournante

II- Aspect technique

Le montage expérimental est divisé en deux compartiments : un compartiment haute pression où est injecté le gaz et un compartiment basse pression où se forment les ions. Un capillaire, permettant la liaison entre les deux compartiments, offre la possibilité d'acheminer une grande quantité de gaz directement à l'extrémité de la pointe. Les ions produits pourront grâce à un pompage adéquat se propager librement vers le système de détection.

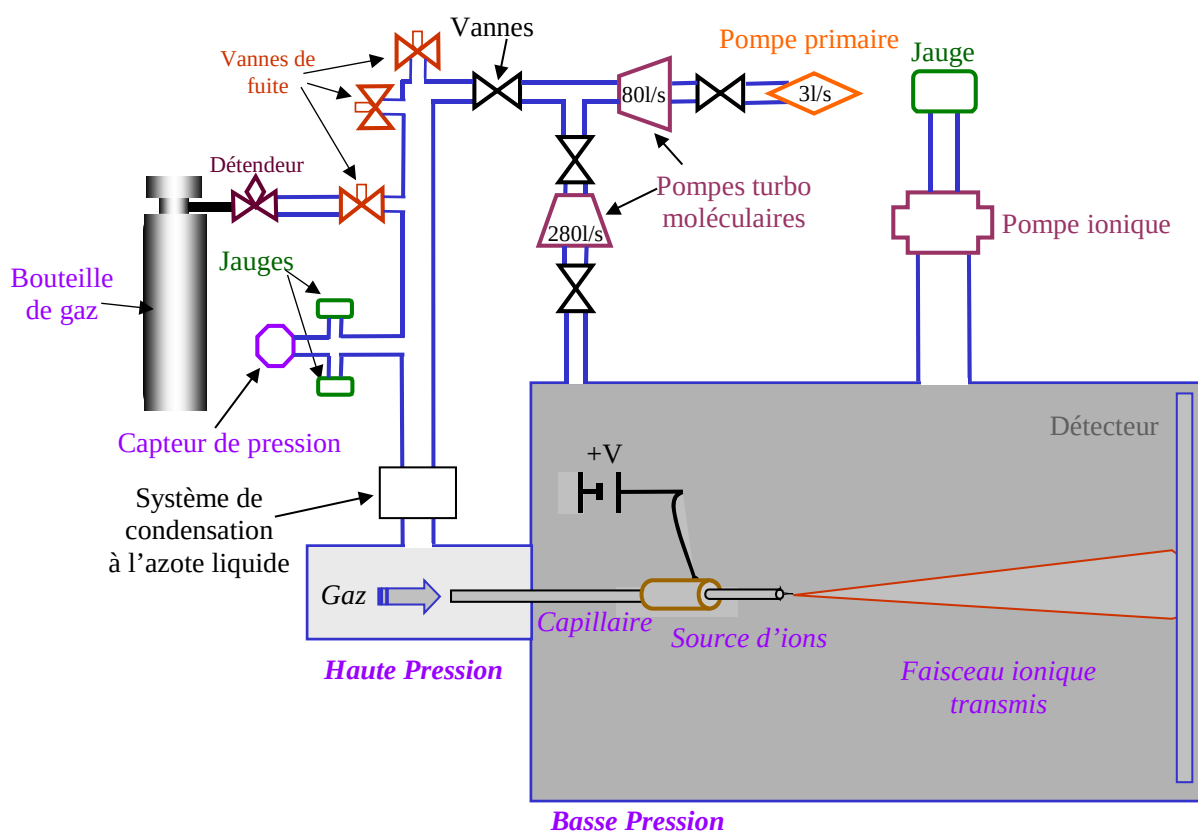


Figure 2 : Schéma du système de pompage

II-1- Le système de pompage

Les informations recueillies sur le détecteur (les images) seront exploitables dans la mesure où l'intégrité du flux d'informations est respectée. Dans un dispositif où l'information est contenue dans la trajectoire de particules (chargées), il est essentiel de limiter au maximum les collisions responsables de la déviation des particules. Pour cela un bon vide est indispensable. Plus la pression est faible et plus le trajet parcouru par les particules entre deux chocs successifs sera grand. La valeur moyenne de cette distance est le libre parcours moyen λ et le Tableau 1 donne une indication sur le libre parcours moyen en fonction du domaine de pression.

	Vide primaire	Vide secondaire	Ultra-vide
Domaine de pression en mbar	10^3 à 10^{-2}	10^{-2} à 10^{-7}	$<10^{-7}$
Libre parcours moyen en m air 20 °C	10^{-6} à 10^{-3}	10^{-3} à 10^2	$>10^2$

Tableau 1 : Le libre parcours moyen en fonction du domaine de pression.

L'obtention d'un vide poussé permet aussi le bon fonctionnement du système de détection basé sur une galette à microcanaux dont je discuterai le principe plus loin.

II-1-1- Les pompes à vide

Le système de pompage englobe non seulement les différentes pompes présentes sur un système, mais aussi leurs liaisons avec les différentes enceintes ainsi que les liaisons entre elles. Pour concevoir un système de pompage adapté, il faut tenir compte des gammes de pressions voulues dans les différentes sections et du débit gazeux. Ces considérations conduisent à déterminer les types de pompes à employer, leurs tailles et leurs positions relatives.

Le vide poussé sera obtenu en combinant deux types de pompes, l'une permettant d'atteindre des pressions de 10^{-4} mbar à partir de la pression atmosphérique et l'autre qui permet d'obtenir des pressions réduites de l'ordre 10^{-9} mbar à partir de quelques 10^{-4} mbar.

II-1-2- Obtention du vide dans les différents compartiments du dispositif

Pour réduire les interactions des ions avec les molécules de gaz, l'ultra-vide s'avère nécessaire, nous viserons alors un vide de 10^{-9} mbar. Ce vide poussé sera obtenu par un système de pompage qui permettra d'obtenir 10^{-7} mbar, puis 10^{-9} mbar en y ajoutant un étuvage.

i- Mise en œuvre du système de pompage du dispositif

La Figure 2 montre l'interconnexion réalisée entre les enceintes et les pompes. On utilisera une cascade de trois pompes : une pompe primaire à palettes puis deux pompes secondaires turbomoléculaires pour atteindre un vide poussé. L'utilisation des deux pompes turbomoléculaires en cascade va permettre de faciliter le pompage des gaz, en particulier les gaz légers comme l'hydrogène.

Dans le compartiment haute pression, le vide primaire est obtenu grâce à une pompe à palettes à joint d'huile dont la vitesse de pompage est de 3 l/s associée à une pompe turbomoléculaire dont la vitesse de pompage est de 80 l/s afin d'obtenir le vide secondaire. L'ultra-vide, dans le compartiment basse pression, est assuré grâce à une pompe turbomoléculaire dont la vitesse de pompage est de 280 l/s (pour l'azote). Cette dernière pompe a été choisie parce qu'elle pompait préférentiellement les gaz légers. Pour connecter chaque module aux différents niveaux de pompage, nous avons réalisé un réseau de distribution composé de vannes et de tubes métalliques flexibles appelés tombacs.

La pression obtenue doit être mesurée pour contrôler précisément la quantité de gaz injectée. Il est indispensable de noter que la mesure, pour des raisons pratiques, s'effectue au niveau d'une bride de raccordement sur laquelle est montée la jauge qui se trouve relativement loin de la source. Quel que soit le principe de mesure retenu, la pression déterminée sera celle au niveau de la jauge et non celle régnant très précisément dans la zone considérée. L'écart peut être considérable (un facteur 10 est possible). Nous disposons également de courbes de correction (Annexe 1) en fonction du gaz utilisé afin de déterminer le vide réel.

La mesure des pressions dans l'enceinte - compartiment haute pression - est assurée par une jauge Penning (CF2P, alimentation : FA111) dont la gamme de mesure s'étend de 10^{-2} à 10^{-7} mbar et par une jauge primaire type Piranni (PI3C, alimentation : CN111) dont la gamme de mesure s'étend de 10^{-3} à 100 mbar. Elle est associée à un capteur de pression à membrane Haenni, dont sa gamme de mesure s'étend de 10^{-1} à 999 mbar. Le compartiment basse pression est équipé d'une jauge Penning (CF2P, alimentation : FA111) dont la gamme de mesure s'étend de 10^{-2} à 10^{-7} mbar associée à une pompe ionique.

ii- L'étuvage

Afin d'obtenir une meilleure pression limite dans l'enceinte, nous procédons à un étuvage. Cela implique de chauffer le système jusqu'à environ 100°C pour dégazer les parois et éliminer principalement l'eau. Une fois le temps de chauffage terminé, on laisse le système se refroidir jusqu'à la température ambiante. On obtiendra ainsi un vide de 10^{-9} mbar. Cette opération doit être renouvelée à chaque fois que l'enceinte est exposée à l'air, comme lors du changement de la source.

II-2- Introduction de gaz

L'introduction d'un gaz se fait par une ligne tirée de la bouteille et reliée à la source par une vanne de fuite. Notre appareillage offre la possibilité d'utiliser trois lignes de gaz différentes :

- une ligne d'hydrogène de pureté 99,999%,
- une ligne d'hélium de pureté 99,996%,
- une ligne d'introduction supplémentaire que l'on a utilisée pour introduire de l'oxygène, de l'azote et même de l'eau.

Sur la ligne d'introduction de gaz, nous avons installé un piège refroidi à l'azote liquide (température d'ébullition de 77.3K (-195.8°C)). A l'intérieur du piège, on plonge une partie du tuyau du système d'arrivée de gaz pour permettre au gaz d'avoir le temps de se refroidir

puis il se connecte à l'enceinte. Ce système permet ainsi de condenser les espèces lourdes provenant du gaz qui viendraient polluer la pointe.

III- La source d'ions

Par rapport au montage réalisé par E. Salançon durant sa thèse, nous avons développé un nouveau dispositif. Le principe de la source d'ions ^{[ref]2} reste cependant le même. Il consiste à se servir d'un capillaire pour injecter localement du gaz à l'extrémité de la pointe. Ce capillaire réalise l'interface entre le compartiment haute pression et le compartiment basse pression.

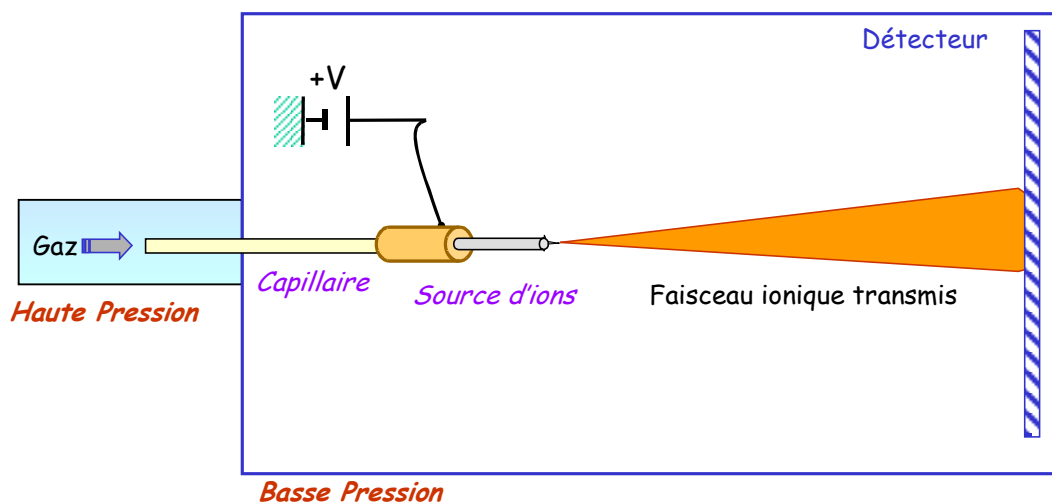


Figure 3 : Schéma de base du montage expérimental

Ce dispositif comporte cependant plusieurs améliorations, en particulier la possibilité de refroidir la pointe, une facilité et une fiabilité accrues dans le montage ainsi que la faculté à s'adapter directement sur une colonne à faisceau d'ions focalisé. Il dispose également d'un système de centrage par rapport à un disque d'extraction.

III-1- Le montage de base

L'idée principale reste la même, elle consiste toujours à utiliser une structure coaxiale constituée d'une pointe à émission de champ placée à l'intérieur d'un capillaire de faible diamètre. La source d'ions de base peut être décomposée en trois parties, comme illustré sur la Figure 4 :

- un tube en céramique permet de traverser la paroi séparant le compartiment haute pression du compartiment basse pression,
- un tube en inox, au bout duquel se trouve le fil taillé en pointe, permet l'acheminement du gaz vers la pointe,

- un manchon en laiton permet d'insérer le fil de tungstène ainsi que de raccorder les deux tubes.

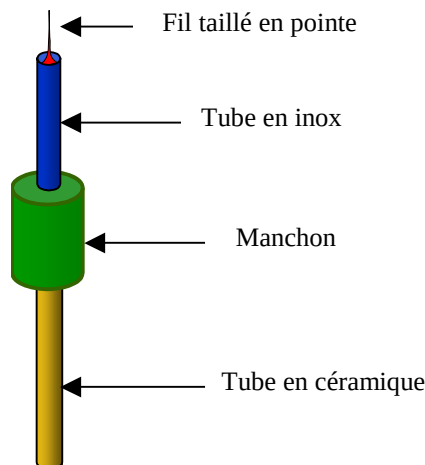


Figure 4 : Montage de base de la source d'ions

III-2- La nouvelle source à structure coaxiale

La Figure 5 montre l'évolution qu'a subi le montage de la source à structure coaxiale qui est maintenant directement adaptable à un canon FIB Orsay Physics.

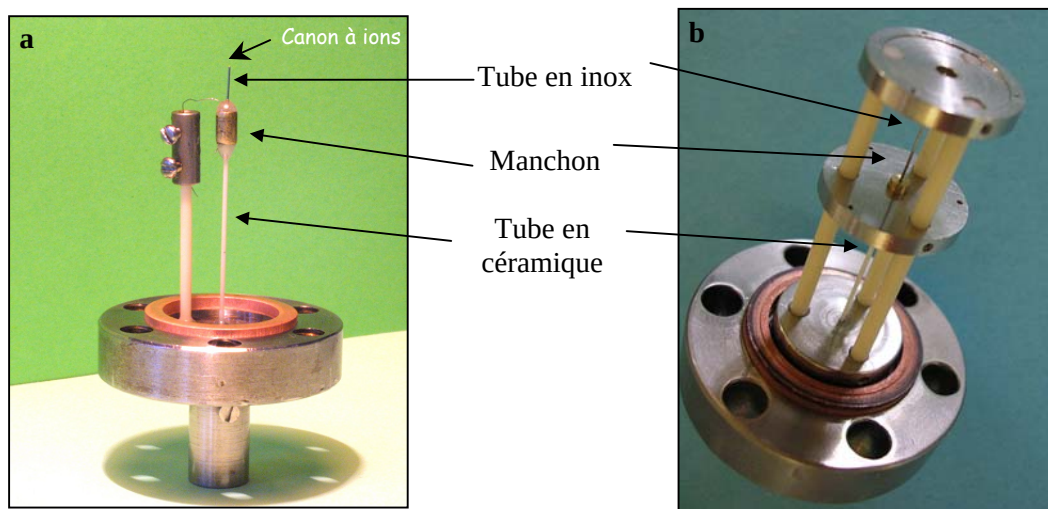


Figure 5-a : Ancien montage de la source d'ions Figure 5-b : Nouveau montage de la source d'ions

Dans la nouvelle version, le manchon est fixé sur un disque, en cuivre ou en inox, qui lui-même est maintenu par trois céramiques permettant ainsi un bon maintien de l'ensemble monté sur une bride ultra vide CF16. De plus ce montage présente un disque supérieur d'extraction avec son diaphragme qui va permettre de centrer parfaitement la pointe ainsi que de fixer la tension en bout de pointe. Le montage est schématisé sur la Figure 6 et ses caractéristiques sont regroupées dans Tableau 2.

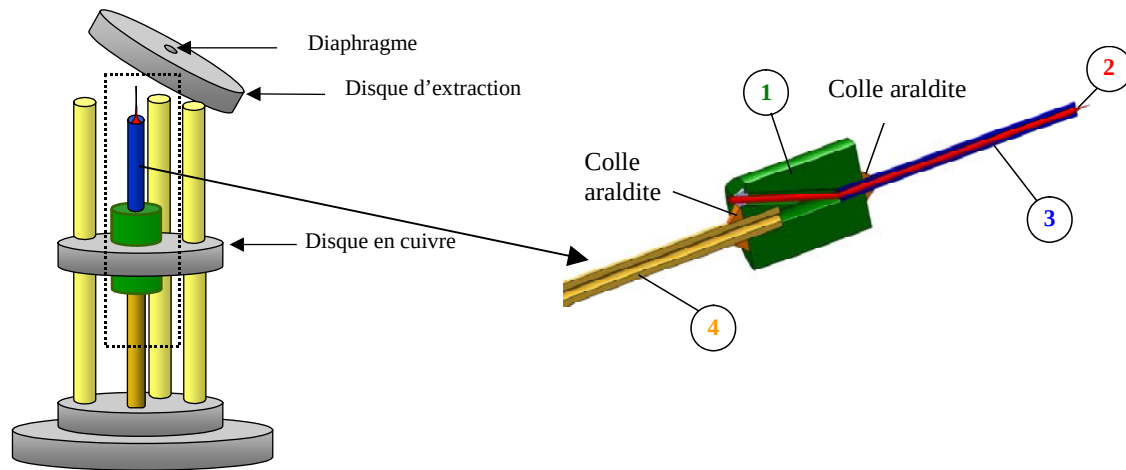


Figure 6 : Schéma du montage de la source

Numéro	Désignation	Matériau	Dimensions	Spécifications
1	manchon	laiton	$\phi=2 \times 2.5 \text{ mm}$	-
2	pointe	fil métallique	$\phi = 125 \text{ } \mu\text{m}$	Obtenue par attaque électrolytique (soude) Rayon de courbure $\sim 10 \text{ à } 50 \text{ nm}$
3	tube	inox	$\phi_{\text{ext}}=300 \text{ } \mu\text{m}$ $\phi_{\text{int}}=150 \text{ } \mu\text{m}$	Acheminement du gaz
4	tube	Al_2O_3	$\phi_{\text{ext}}=500 \text{ } \mu\text{m}$ $\phi_{\text{int}}=300 \text{ } \mu\text{m}$	Isolation électrique Acheminement du gaz

Tableau 2 : Caractéristiques des éléments de la source

La connexion à la haute tension de la pointe se fait du côté basse pression grâce au disque de maintien du manchon. L'alimentation utilisée est une alimentation positive, modèle HV 10, dont la tension est ajustable entre 0 et 30 kV.

Le refroidissement de la pointe est rendu possible par un dispositif constitué de deux parties. La première est un petit cylindre en cuivre de quelques centimètres cubes dans lequel une circulation d'azote liquide est effectuée, l'arrivée et la sortie se faisant par deux tubes en cuivre. La deuxième consiste en une tresse en cuivre de diamètre important reliant le cylindre

cité ci-dessus au disque inférieur, l'isolation électrique étant assurée par un saphir et la bonne conduction thermique du cuivre assurant l'évacuation de la chaleur de la pointe. Le système permet encore quelques améliorations pour descendre plus bas en température qui n'ont pas pu être réalisées par manque de temps.

III-2-1- Préparation des pointes

i- Pointes en tungstène

Les pointes sont obtenues à partir d'un fil commercial de grande pureté du métal choisi. Un grand nombre d'expériences ont été effectuées avec des pointes de tungstène. L'intérêt de ce matériau réside dans sa dureté et dans la possibilité d'en tailler des pointes très fines sur lesquelles un savoir considérable a été accumulé pendant des études antérieures par la communauté scientifique de l'émission de champ ^{[ref]4}.

Les pointes sont usinées par polissage électrolytique. Initialement un fil de tungstène, de 125 µm de diamètre, est plongé dans un bain d'électrolyte, il constitue l'anode. On utilise un fil de molybdène comme cathode. Ces deux électrodes sont plongées verticalement dans une solution de soude à 20% contenue dans un bécher. Une plaque séparatrice permet de séparer les deux électrodes afin de faciliter le suivi de l'attaque du fil. En effet, lors de l'attaque avec une tension continue, des bulles se forment sur la contre-électrode et peuvent perturber la vision. La position du fil de tungstène est contrôlée par un micromanipulateur et l'évolution de son profil est suivie à l'aide d'un microscope optique de faible grossissement. On applique en premier lieu un courant alternatif qui va permettre de nettoyer le fil de tungstène. Ensuite, nous effectuons une attaque en courant continu. L'anode est portée à un potentiel positif (5 volts) qui correspond à un courant de 4 mA. Le fil de tungstène est aminci progressivement en formant un étranglement au niveau de l'interface électrolyte-air jusqu'à sa rupture finale, comme illustré sur la Figure 7. Cet étranglement produit une variation du courant, qui lors de sa rupture provoque l'interruption de la tension. Le fil taillé en pointe est rincé à l'eau distillée afin d'éliminer les produits résiduels obtenus après l'attaque. On obtient de façon reproductible des pointes dont le rayon de courbure varie de 10 à 50 nm.

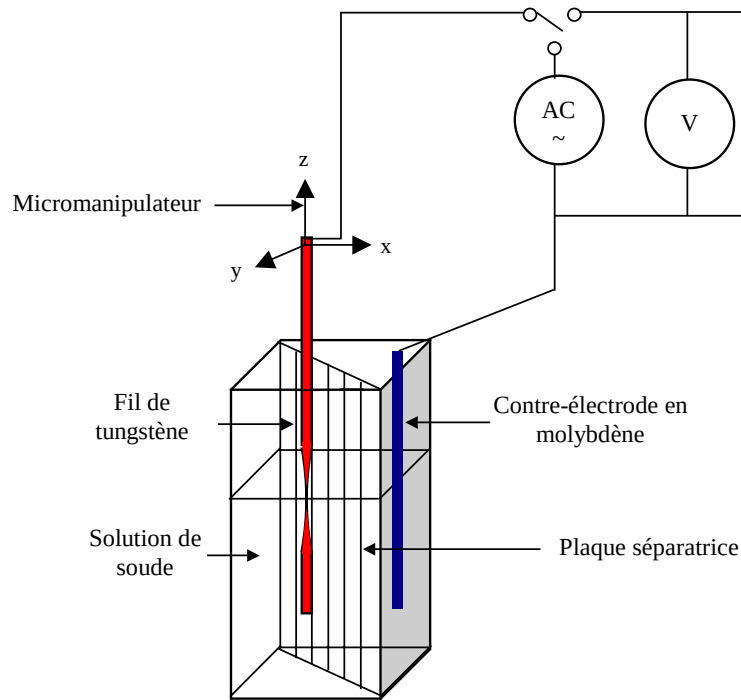


Figure 7 : Technique d'usinage électrochimique

Après l'usinage de la pointe, une estimation de sa taille est faite par microscopie optique au grandissement maximal, i.e 400. Si l'apex (l'extrémité de la pointe) échappe à la résolution limite du microscope, Figure 8, nous en déduisons que la pointe est assez fine pour être utilisée pour nos expériences.

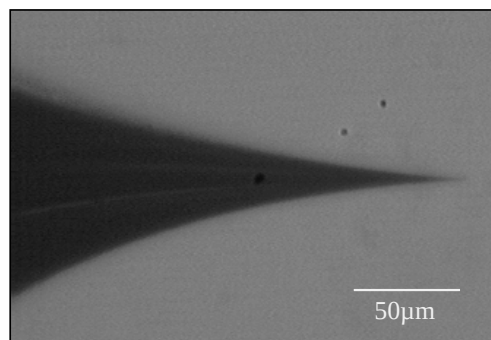


Figure 8 : Image d'une pointe de tungstène en microscopie optique (x400)

La Figure 9-a est une image prise en microscopie électronique à balayage et nous permet d'avoir une meilleure résolution. Cependant à plus fort grandissement, Figure 9-b, nous distinguons une enveloppe de carbone autour de la pointe. Le carbone provient d'une remontée d'huile des pompes du microscope électronique à balayage, venant recouvrir l'échantillon d'une fine pellicule, ne permettant pas de donner avec précision la taille réelle de la pointe ($< 15\text{nm}$).

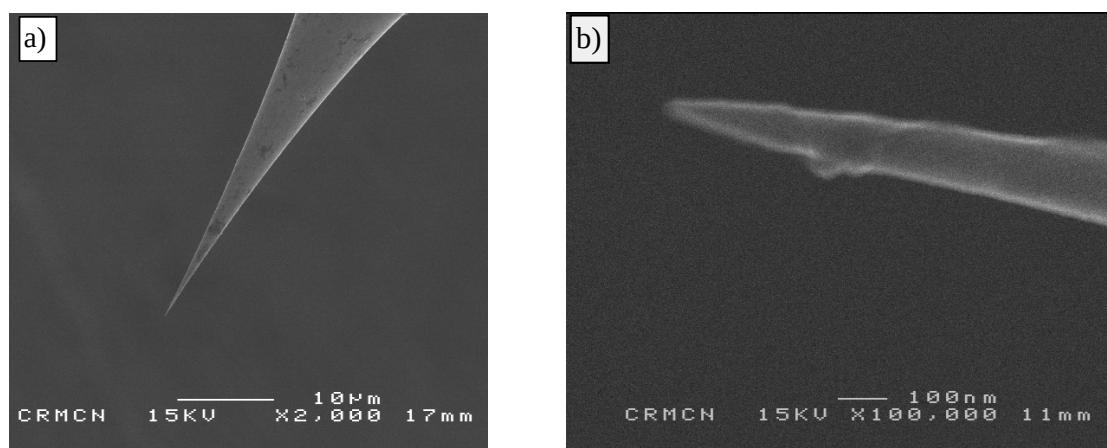


Figure 9 : Images d'une pointe de tungstène en microscopie électronique à balayage à deux grossissements différents

ii- Pointes en platine et en palladium

Utilisant le même procédé d'attaque, nous nous sommes tournés vers deux autres métaux pour fabriquer les pointes : le platine et le palladium. Cependant la fabrication de pointes dans ces matériaux est plus difficile et leur manipulation pour la fabrication des structures s'est avérée plus ardue qu'avec le tungstène. Nous sommes parvenus à franchir ces obstacles non sans difficulté et à obtenir l'émission d'ions à partir de ces sources dans les conditions de l'étude, i.e. température ambiante et forte pression de gaz. Un tableau résume les conditions de fabrication qui diffèrent sensiblement des valeurs données par A.J. Melmed et al. ^{[ref]8} et E.W. Müller et T.T. Tsong ^{[ref]4}, et qui se sont avérées être optimales après de nombreux essais.

Métal	Electrolyte	Contre électrode	Tension
Platine recuit	NaNO ₃ /NaCl (4 :1 en vol) + Glycérol + Chloroforme	Pt	30V en ac
Palladium	HNO ₃ /HCl/ H ₂ O (7:3:3 en vol)	Pd	2V en ac 0,4V en dc

Tableau 3 : Caractéristiques d'usinage pour différents matériaux

Un exemple de pointes de platine observées au microscope électronique à balayage est visible sur la Figure 10.

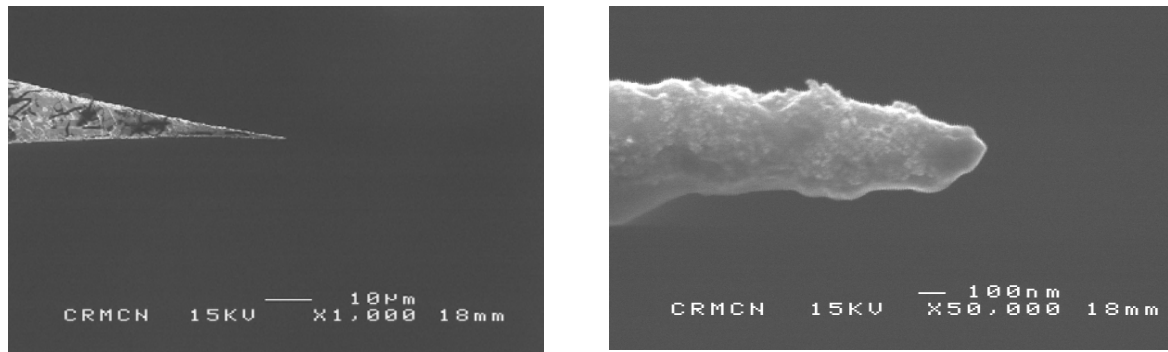


Figure 10 : Images d'une pointe en platine en microscopie électronique à balayage à deux grossissements différents

Cette pointe présente un rayon de courbure d'environ 100 nm, on observe une rugosité de la surface bien supérieure à celle observée sur le tungstène Figure 9.

Une observation en microscopie optique d'une pointe en palladium est reportée sur la Figure 11. Notons le très faible angle de cône obtenu par rapport à celui des pointes de tungstène, Figure 8. L'état de surface semble également plus rugueux que dans le cas du tungstène.

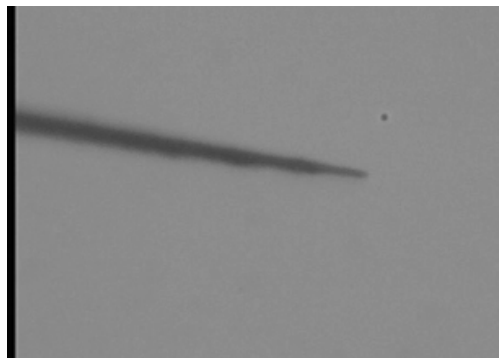


Figure 11 : Images d'une pointe en palladium en microscopie optique

III-2-2- Fiabilité des collages

Afin de maintenir le tube en céramique et le tube en inox de part et d'autre du manchon, nous utilisions au début de ma thèse une colle ultra-vidé (Torseal). Nous nous sommes rendus compte qu'au cours du temps, les composants de cette colle nuisaient au bon fonctionnement de la structure allant jusqu'à boucher le capillaire métallique. Nous avons analysé une de ces structures au bout de quatre mois. Le microscope optique nous a permis de constater qu'une matière granuleuse blanchâtre venait obstruer le tube inox, coté pointe, visible sur la Figure 12.

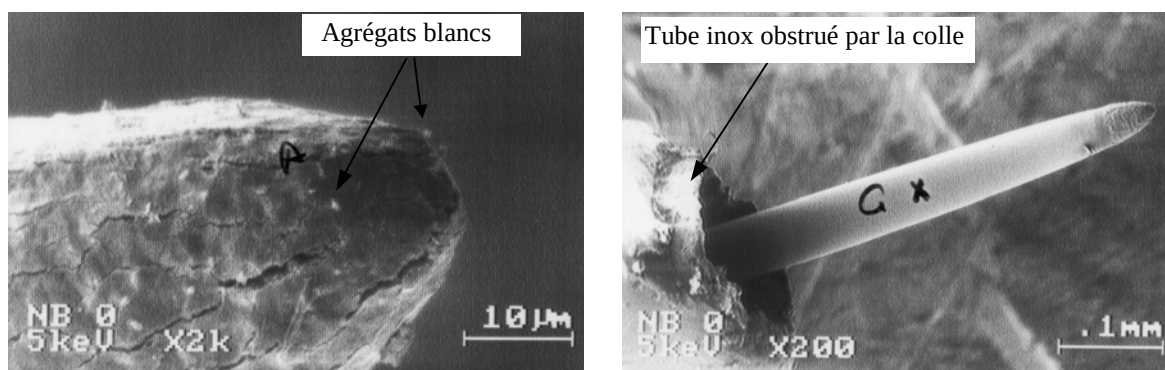


Figure 12 : Photos de la structure constituée du tube métallique et de la pointe en tungstène polluée par la colle ultra-vide, obtenues en microscopie électronique à balayage

Ces agrégats blancs sont présents tout le long de la structure, du tube en inox jusqu'à l'extrémité de la pointe. Avec une analyse Auger, nous avons décelé de la silice en bout de pointe dans les agrégats blanchâtres, provenant de la colle ultra-vide. La Torseal semblerait donc migrer, au cours du temps, vers la pointe et viendrait boucher le tube. On a alors décidé d'utiliser la colle époxy (Araldite) en remplacement de la Torseal.

IV- Le microscope à projection

IV-1- L'ensemble source-objet

L'objet observé en microscopie à projection est fixé sur une grille de microscopie. Dans notre approche, nous avons utilisé une membrane de carbone, partiellement transparente, déposée sur une grille d'or, dont une image en microscopie optique est montrée sur la Figure 13.

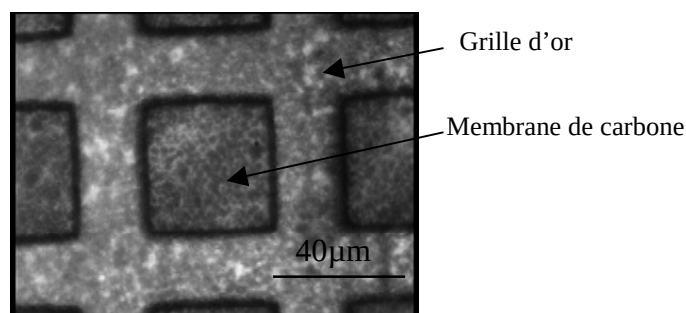


Figure 13 : Image en microscopie optique, x400, de la membrane de carbone

L'intérêt d'utiliser un tel objet est qu'il est constitué de filaments de carbone dont la taille, de quelques centaines d'angströms, va être utile dans la détermination de la résolution du microscope ionique à projection.

Cet objet est fixé sur un support. Le déplacement de l'objet est obtenu au moyen d'un manipulateur piézoélectrique de 8 mm de course et de 250 nm de résolution. Ce manipulateur est placé sur la platine tournante. L'objet peut alors se déplacer suivant les directions x, y et z.

On peut sélectionner l'objet ou bien l'effacer en le déplaçant suffisamment pour observer le diagramme d'émission seul. La Figure 14 montre l'ensemble source-objet du microscope en projection, il est suspendu et fixé sur un passage en rotation, lui-même monté sur une bride CF 160.

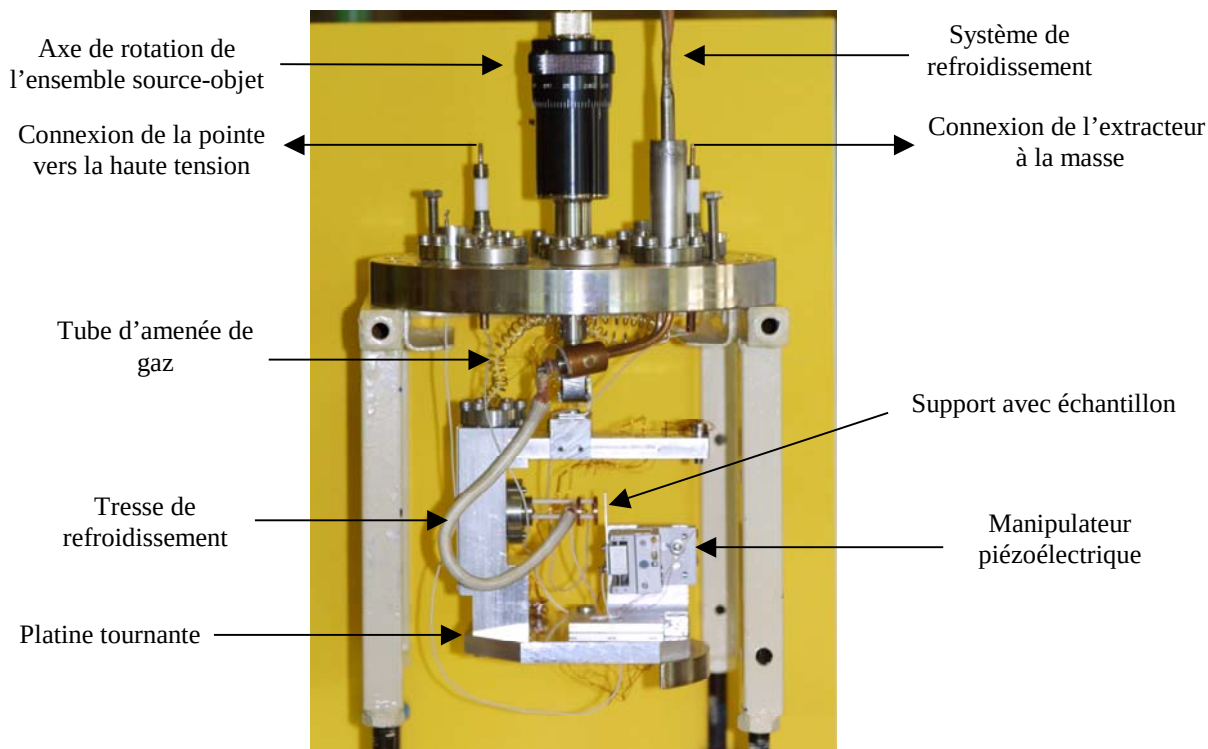


Figure 14 : L'ensemble source-objet

Le champ électrique diminue rapidement lorsqu'on s'éloigne de la pointe^{[ref]7}. Cependant, lorsqu'on approche l'objet progressivement de la pointe afin d'augmenter le grandissement, il faut diminuer le potentiel de la pointe pour ne pas saturer le détecteur (pour conserver un courant constant). Pour déterminer le grandissement, nous sommes partis de la connaissance de la dimension réelle d'un carreau de la grille d'or, 40 μm . De proche en proche, en suivant le grandissement d'un détail, nous pouvons facilement estimer les tailles réelles jusqu'à des grandissements de plusieurs centaines de milliers.

IV-2- Description de la partie détection

Afin de détecter et de localiser les particules (ions, neutres, électrons) du faisceau, nous avons utilisé un système de détection constitué d'une galette de micro-canaux couplée à un écran fluorescent placé initialement à 10 cm puis à 40 cm de la source. Nous rappelons que ce détecteur sert aussi bien à obtenir des images de la source en microscopie à émission que des images de l'objet en projection. Il est également utilisé dans le spectromètre de masse.

La galette de micro-canaux (« MCP pour Multiple Channel Plate ») se présente sous la forme d'une plaque de 46 mm de diamètre (40 mm de surface active), formée de tubes en verre biseautés uniformes, obtenus par étirage. Les parois intérieures de ces tubes, de 12.5µm de diamètre, sont recouvertes d'un dépôt à base de cuivre béryllium (CuBe). Une différence de potentiel de 1000 V aux bornes de la galette permet d'accélérer les électrons entre deux chocs. Une particule ayant une énergie suffisante arrive à l'entrée du canal, frappe sur la paroi et donne naissance à au moins un électron. Cet électron provoque par choc la production de plusieurs électrons : c'est l'émission d'électrons secondaires, dont le nombre augmente considérablement au fur et à mesure qu'ils progressent dans le tube, Figure 15.

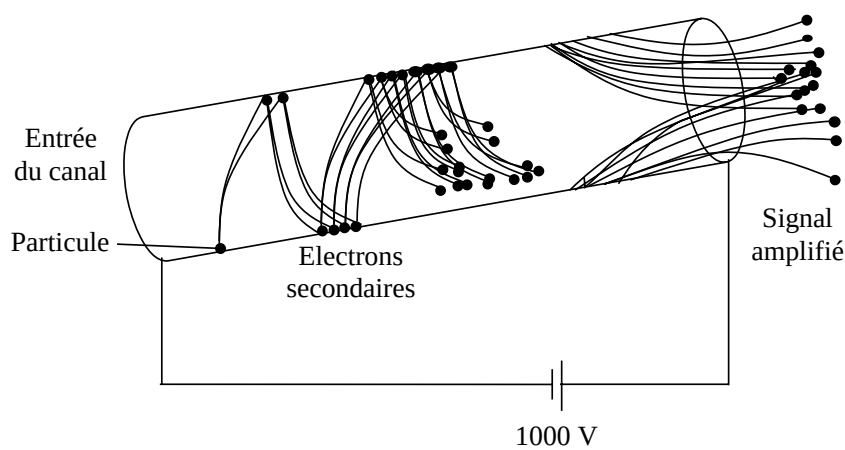


Figure 15 : Amplification du signal dans un canal

Cette cascade d'électrons est confinée à l'intérieur d'un canal. Les électrons sortant sont ensuite post-accélérés vers un écran fluorescent^{[ref]6} porté à 4000V. Grâce à ce système le signal est amplifié d'un facteur 10^3 . Bien que la position des électrons sortant du canal soit définie à 12.5µm près, le spot de photons obtenu sur l'écran fluorescent est de l'ordre de 100µm. Ceci détermine la résolution du détecteur. Ainsi à un grandissement de 100000, le plus petit détail observable serait de 10 Å. Sur la Figure 16, nous pouvons voir le dispositif, réalisé au laboratoire, qui supporte l'ensemble galette de micro-canaux – écran phosphorescent.

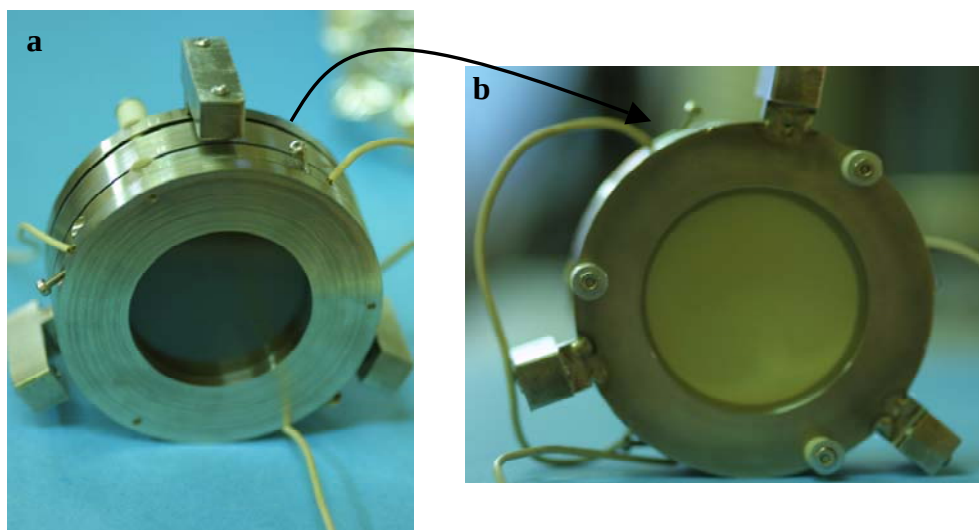


Figure 16 : Dispositif galette de micro-canaux – écran phosphorescent
a- côté galette de micro-canaux / b- côté écran phosphorescent

Nous disposons d'un système d'acquisition d'images constitué d'un appareil photographique numérique Canon EOS-D30 (3.25 millions de pixel). Les images prises avec cet appareil sont uniquement limitées par la résolution sur l'écran fluorescent. Le comportement dynamique est suivi par une caméra CCD Panasonic munie d'un zoom optique et est enregistré, depuis peu, sur un enregistreur numérique muni de deux disques durs de 300 Go dont la fréquence est de 30 images par seconde. Nous visualisons en temps réel les images sur un écran de téléviseur.

V- Le spectromètre de masse

V-1- Conception d' un spectromètre

Le spectromètre de masse va nous servir à séparer les ions produits en fonction de leur masse. Ce procédé repose sur la déviation de particules chargées après leur accélération par un champ électrique, dans une zone où règne un champ magnétique créé par un électroaimant. Nous avons alors conçu un spectromètre de masse permettant la mesure de la masse des ions tout en permettant l'observation du diagramme d'émission. La réalisation du montage est basée sur la nature ponctuelle de l'émission ainsi que sur l'insertion d'une fente de très faible largeur dans le faisceau. Un premier spectromètre de masse a d'abord été monté dans une chambre à vide à Orsay Physics. Il est constitué d'une fente formée par deux tiges de 1.5 mm distantes de 80 μm . L'ensemble est monté dans un tube qui présente une section rectangulaire de dimension : 60 mm x 24 mm, Figure 17, situé entre le canon à faisceau d'ions focalisé et l'enceinte. Du côté du canon à faisceau d'ions focalisé, on dispose de deux déflectrices dont le plan est parallèle à celui des fentes, qui sont placées à la sortie du tube. La distance source-

fente est de 125 μm , la distance source écran est de 345 mm. Un champ magnétique est établi parallèle à la fente. Dans une première version, étaient utilisés des aimants permanents, par la suite nous les avons remplacés par un électroaimant.

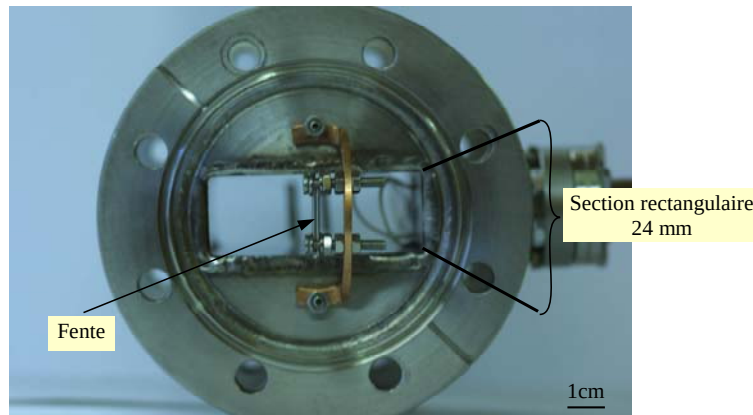


Figure 17 : Image du dispositif avec la fente sur le montage à Orsay Physics

Un second spectromètre de masse a été construit plus récemment au laboratoire. Cette fois la fente est formée par deux éléments : une plaque de 1 cm x 1cm et un fil de 1 mm d'épaisseur, distants de 150 μm . L'électroaimant est situé à 25 cm de la source. Il est constitué d'une bobine de fil de cuivre isolé enroulé autour d'un noyau de fer doux. On peut faire varier l'induction magnétique, B , i.e l'intensité du courant électrique qui alimente la bobine. On dispose de deux plaques déflectrices de 2cm x 2cm, isolées électriquement, dont le plan est parallèle à celui de la fente. Ces plaques permettent une déflexion électrostatique. On a donc exactement une structure du type filtre de Wien. L'avantage de ce dispositif, contrairement au premier modèle qui était fixe, est qu'il est disposé sur un carrousel permettant son effacement devant l'image d'émission ou de projection. Une cage de Faraday avec un diaphragme d'entrée de diamètre 3 mm est également rajoutée sur le carrousel, Figure 18, afin de mesurer des courants locaux correspondants à un angle de l'ordre de 1° .

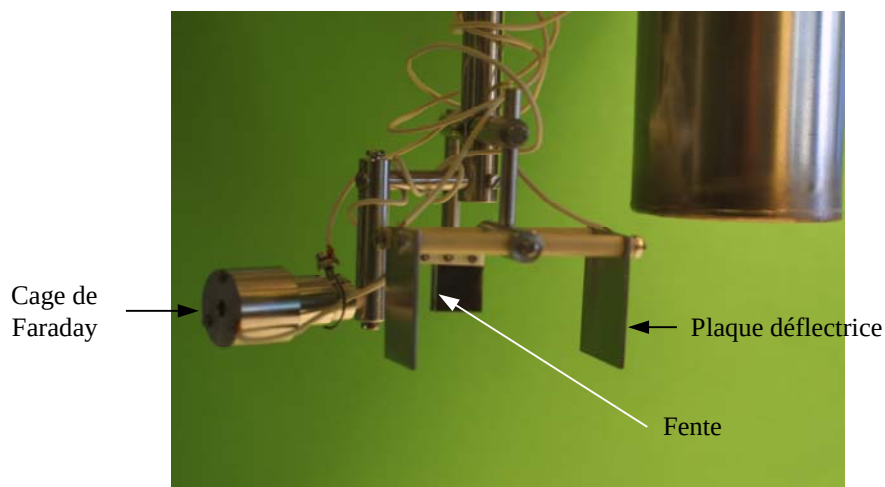


Figure 18 : Schémas du système : cage de faraday/ fente-plaques déflectrices

V-2- Calcul de la déflexion théorique

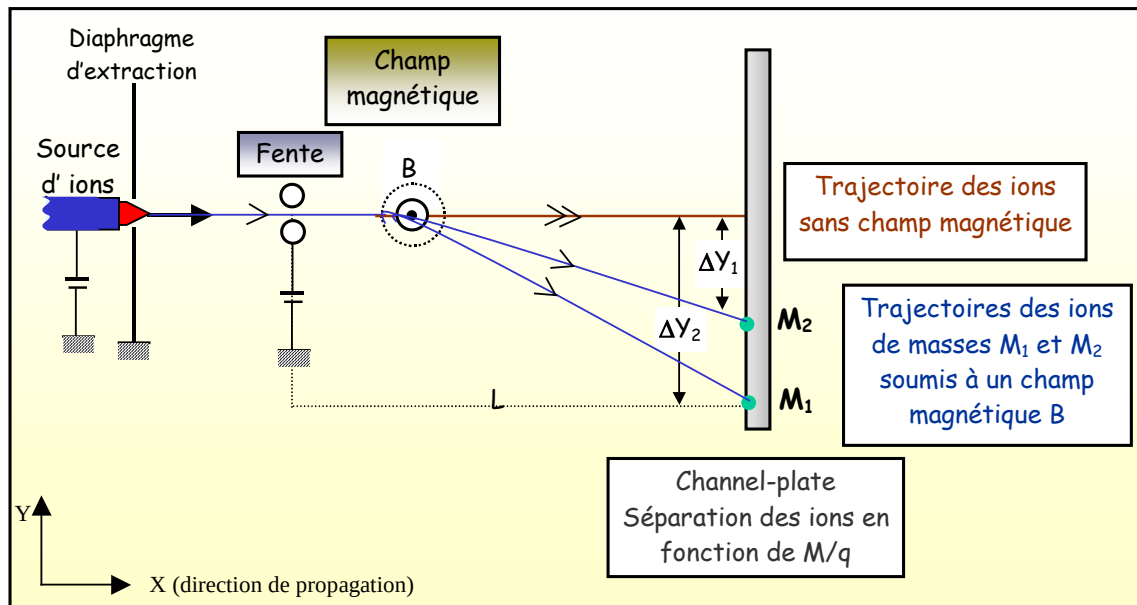


Figure 19 : Schéma du trajet des ions à travers le champ magnétique permettant de déterminer la déflexion ΔY

La source étant soumise à un potentiel électrique V , il se forme au voisinage de la pointe un champ électrique qui va accélérer les ions en leur conférant une énergie cinétique qV au niveau de la fente. Contrairement au spectromètre classique qui nécessite deux fentes pour sélectionner la direction de la vitesse, le caractère ponctuel de l'émission permet d'utiliser une seule fente. La vitesse des ions, v_0 , dépend, à V fixé, de leur masse M , telle que :

$$E = qV = \frac{1}{2} M v_0^2 \Rightarrow v_0 = \sqrt{\frac{2qV}{M}}$$

Les ions traversant la zone d'espace soumise au champ magnétique $\vec{B}$ subissent une force, dite de Lorentz, qui va dévier leur trajectoire. La force subie vaut : $q \vec{v} \wedge \vec{B}$ et l'accélération $\frac{d\vec{v}}{dt} = \frac{q\vec{v} \wedge \vec{B}}{M}$.

L'intégration des équations différentielles du mouvement permet de déduire la trajectoire de l'ion :

$$M \cdot \frac{dv_y}{dt} = q \cdot v_0 \cdot B$$

$$\frac{dy}{dt} = \frac{q}{M} \cdot v_0 \cdot \int_0^t B(t) \cdot dt$$

$$\frac{dy}{dt} = \frac{q}{M} \cdot \int_0^{v_0 t} B(x) \cdot dx$$

$$y(x) = \frac{q}{M} \cdot \int_0^t dt' \cdot \int_0^{v_0 t'} B(x) \cdot dx$$

$$y(x) = \frac{q}{M \cdot v_0} \cdot \int_0^x dx' \cdot \int_0^{x'} B(x'') \cdot dx''$$

$$y(x=L) = \frac{q}{M \cdot v_0} \cdot \int_0^L dx' \cdot \int_0^{x'} B(x'') \cdot dx''$$

$$y(x=L) = \frac{q}{M \cdot v_0} \cdot \left\{ \int_0^{x_m} dx' \cdot \int_0^{x'} B(x'') \cdot dx'' + \int_{x_m}^L dx' \cdot \int_0^{x'} B(x'') \cdot dx'' \right\}$$

En considérant comme négligeable l'action de B à l'extérieur du tube rectangulaire (zone d'action de B, $x'' > x_m$), la déviation peut se calculer explicitement :

$$y(x=L) = \frac{q}{M \cdot v_0} \cdot \int_{x_m}^L dx' \cdot \int_0^{x'} B(x'') \cdot dx''$$

$$\Delta Y = \frac{qL}{M \cdot v_0} \cdot B \cdot l$$

l : longueur de la zone d'action du champ magnétique

où q : le nombre de charge élémentaire,

L : la distance fente-détecteur (channel-plate),

v_0 : la vitesse initiale des molécules,

M : la masse de la molécule,

B : le champ magnétique.

Or $v_0 = \sqrt{\frac{2qV}{M}}$ donc (1) devient :

$$\Delta Y = \sqrt{\frac{q}{2MV}} L \cdot B \cdot l \quad (2)$$

où V : le potentiel de la pointe en volt.

Pour l'ionisation de H_2 à 5kV, on calcule une déviation de 1 cm, pour une distance source-détecteur de 22 cm, $l=3.5$ cm, on en déduit un champ magnétique, $B=1.32 \cdot 10^{-2}$ T.

Expérimentalement, le dépouillement d'un spectre nous permet de déterminer la déflexion comme étant la différence entre la position initiale de l'ombre de la fente sans champ magnétique et sa position lorsque les ions sont soumis au champ magnétique. Une illustration est donnée par les Figure 20 et Figure 21. La fente étant placée sur le trajet des ions, on observe sur le détecteur l'ombre de cette fente avec un grandissement de 10.

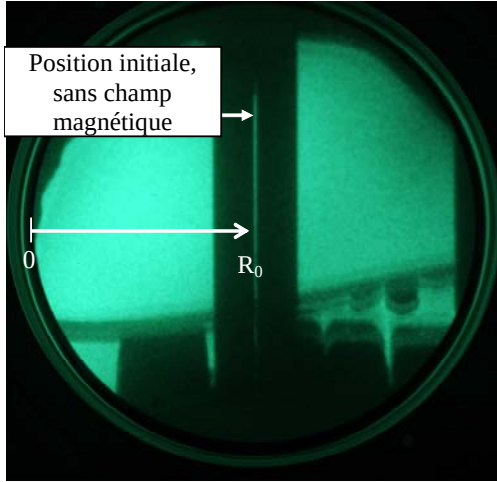


Figure 20 : Image de l'ombre de la fente sans champ magnétique.

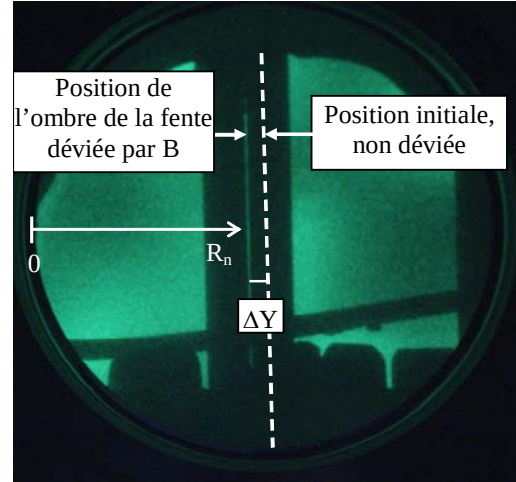


Figure 21 : Image de l'ombre de la fente, lorsque l'on applique un champ magnétique, B.

Afin de s'affranchir des grandissements des images lors d'expériences différentes, nous avons adopté la méthode de dépouillement qui consiste à normaliser la déflexion, ΔY , par rapport au diamètre du détecteur, que l'on sait égal à 4 cm.

$$\Delta Y = \frac{R_0 - R_n}{\Phi} \quad (3)$$

où :

R_0 : la position de la raie non déviée ($B=0$),

R_n : la position de la raie déviée par B, n indice de la raie correspondant à l'ion n,

Φ : le diamètre de l'écran d'observation.

De (2) et (3) on peut écrire que : $\frac{R_0 - R_n}{\Phi} = \frac{\sqrt{q}}{\sqrt{2M_n V}} \cdot L \cdot B \cdot l$

où M_n est la masse de l'ion n dévié.

On en déduit l'expression (4) :

$$\Delta Y^2 = S' \cdot \frac{B^2}{M_n V} \quad (4)$$

où $S' = qL^2l^2/2$.

La déflexion est donc linéaire en B. B étant proportionnel à l'intensité I du courant qui le crée, la déflexion est donc proportionnelle à l'intensité du courant, I, dans la bobine de l'électroaimant, tel que $B = \mu NI/R$ où μ est la perméabilité magnétique, N le nombre de spires qui constituent l'électroaimant et R le rayon des spires. L'expression (4) devient :

$$\Delta Y^2 = S'' \cdot \frac{I^2}{M_n V} \text{ où } S'' = S'(\mu N/R)^2.$$

Après avoir identifié toutes les masses à différents potentiels, on tracera le graphe $\Delta Y^2 = f(I^2/V)$. On pourra ainsi déterminer les différents ions produits durant l'expérience.

La Figure 22 est une vue d'ensemble du microscope ionique.

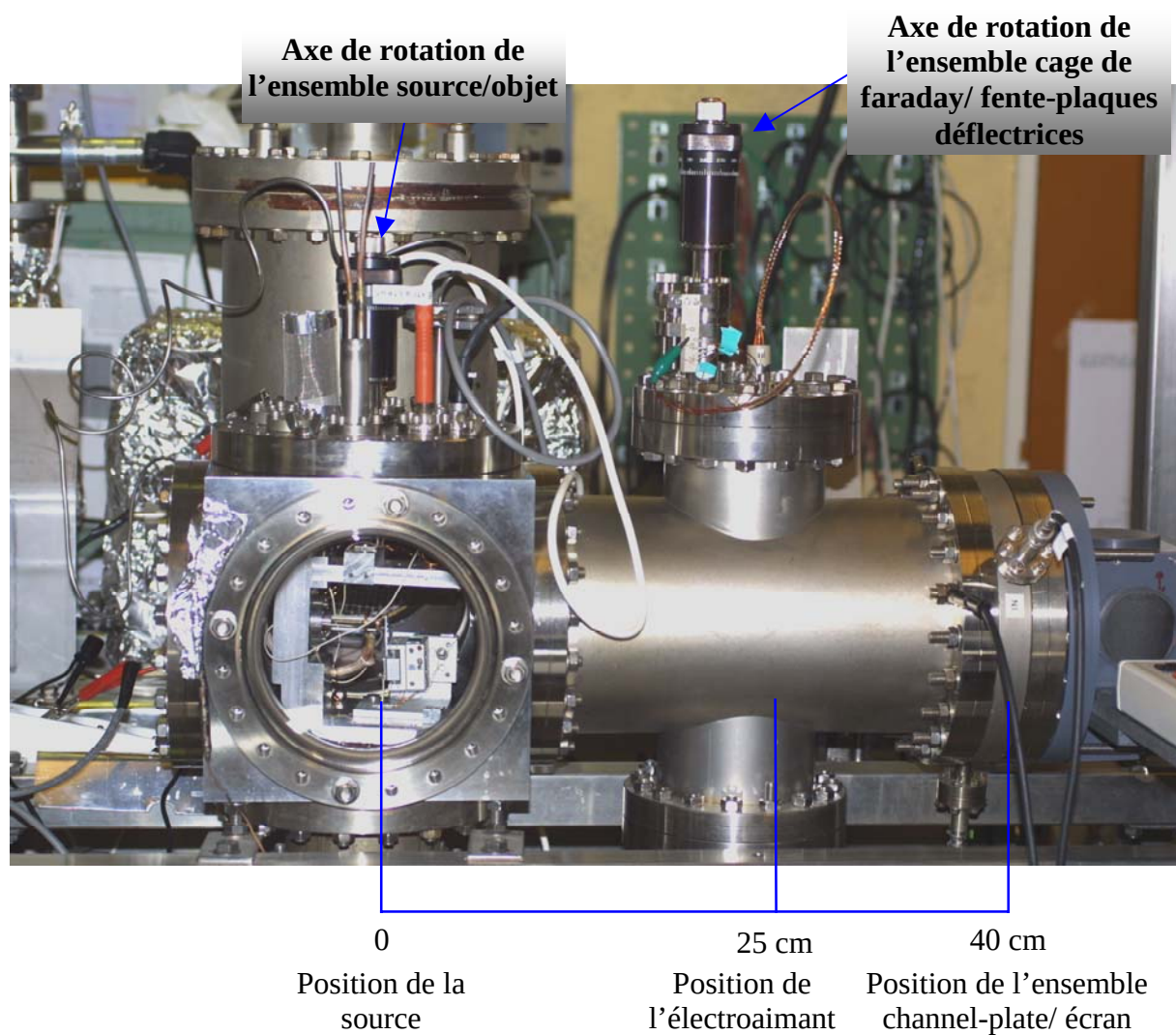


Figure 22 : Photographie du microscope ionique

VI- Références bibliographiques

- [ref]1 E. Salançon, « Source Ponctuelle d'Ions à Structure Coaxiale » Thèse Université Aix-Marseille III, 29 Nov. 2002
- [ref]2 E. Salançon, Z. Hammadi and R. Morin “ A new approach to gas field ion source”, Ultramicroscopy 95 (2003) 183-188
- [ref]3 Z. Hammadi, M. Gauch and R. Morin, “Microelectron gun integrating a point-source cathode”, JVST B 17 (1999) 1390-1394
- [ref]4 Field Ion Microscopy, E.W. Müller, T.T. Tsong, Ed. Elsevier, (1969) 119-120
- [ref]5 MCP, Selection guide, Photonis, February 2006
- [ref]6 www.proxitronic.de
- [ref]7 Field Emission and field ionization, R. Gomer, 1961
- [ref]8 A.J. Nam, A. Teren, T.A. Lusby and A.J. Melmed, “Benign making of sharp tips for STM and FIM: Pt, Ir, Au, Pd, and Rh,” J.Vac.Sci.Technol. B 13 (1995) 1556

Annexe 1 : courbe de correction de jauge

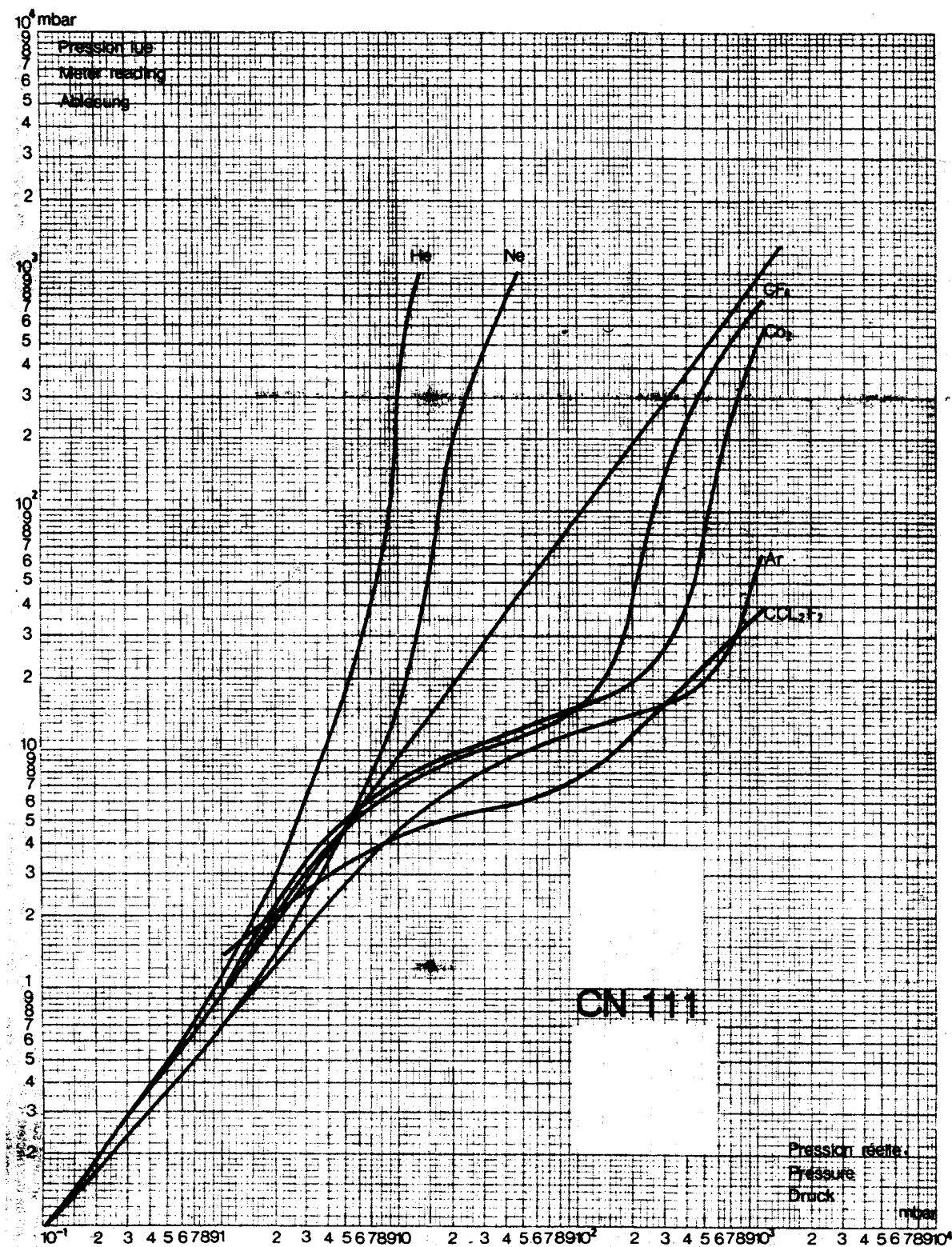


FIGURE 2 / ABBILDUNG 2

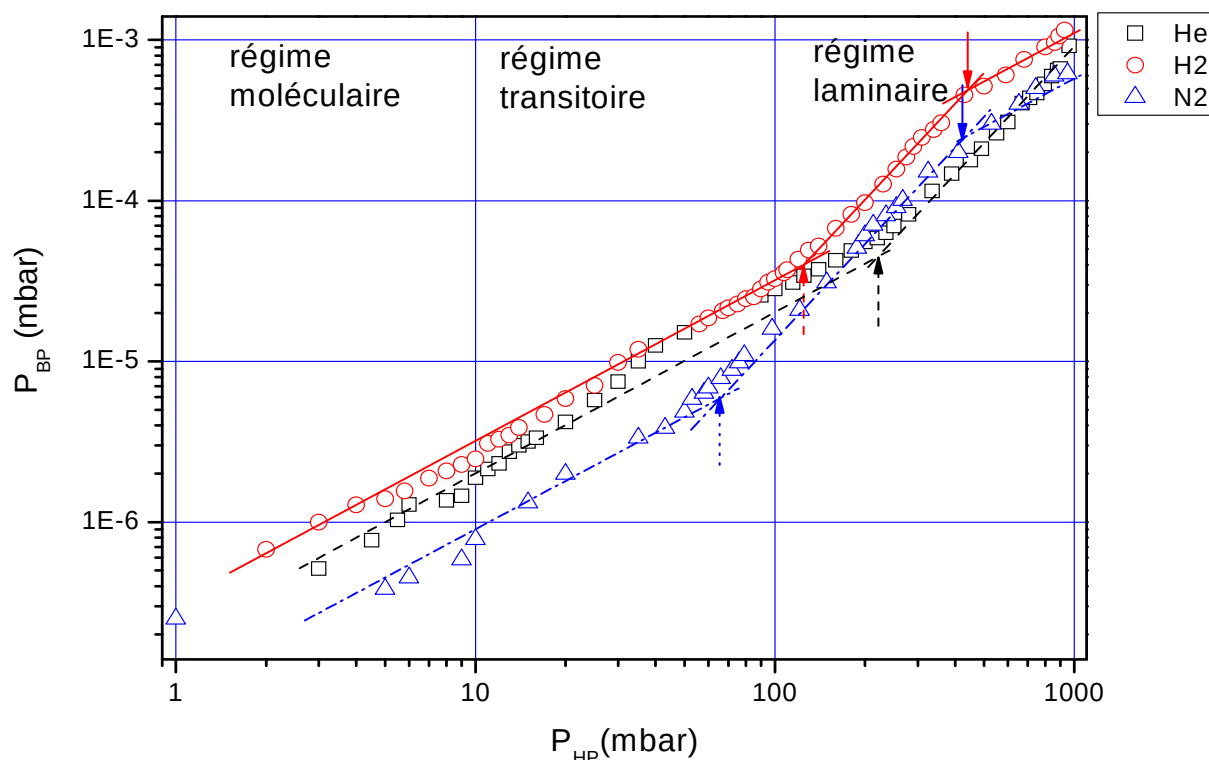
Chapitre III : Résultats expérimentaux et interprétations	61
I- Courbes en pression	61
I-1- Conductances.....	63
I-1-1- Détermination expérimentale	63
I-1-2- Interprétations	66
i- Régime moléculaire.....	67
ii- Régime laminaire	68
iii- Régimes de transition	69
I-2- Pression en bout de pointe.....	71
II- Emission ionique de champ – Résultats expérimentaux	72
II-1- Pointes en tungstène	73
II-1-1- Ionisation de l'hydrogène	73
i- Nature des ions.....	73
ii- Images en microscopie ionique à projection	77
iii- Le courant d'ions.....	83
a) Courant en fonction de la pression	83
b) Courant en fonction de la tension.....	84
c) Courant en fonction du temps	86
II-1-2- Ionisation de l'eau	90
II-2- Pointes en platine.....	96
II-2-1- Ionisation de l'hydrogène	96
II-2-2- Ionisation de l'eau	103
II-3- Pointes en palladium	105
II-3-1- Ionisation de l'hydrogène	105
II-3-2- Ionisation de l'eau	106
II-3-3- Ionisation du mélange hydrogène-eau.....	107
III- Références bibliographiques.....	111

Chapitre III : Résultats expérimentaux et interprétations

Apporter du gaz en bout de pointe et uniquement là est un des points clés du fonctionnement de la source. Ceci nécessite une reproductibilité des paramètres d'assemblage de la source d'une part et une capacité à caractériser ces paramètres d'autre part. Ces caractéristiques dépendent en partie de la pression de gaz injecté.

I- Courbes en pression

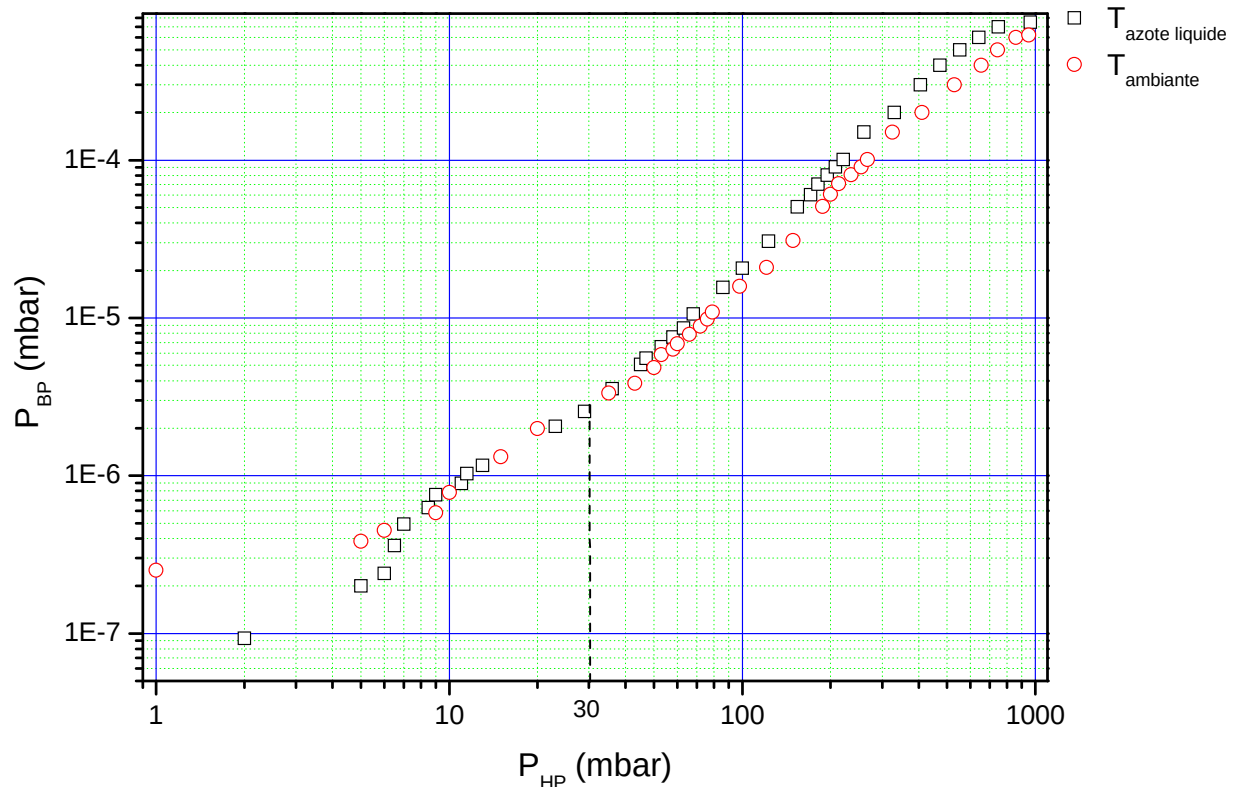
Nous avons étudié l'évolution de la pression dans l'enceinte en fonction de la pression de gaz injecté. Pour ce faire nous avons fait de nombreuses mesures en pression pour différents gaz : l'hydrogène, l'hélium et l'azote, à différentes températures. Le Graphe 1 reflète les courbes typiques en pression pour ces gaz. En abscisse est portée la pression de gaz injecté (haute pression, en amont de la structure) et en ordonnée la pression régnant dans l'enceinte (basse pression, en aval de la structure) pour l'hélium, l'hydrogène et l'azote. Aux faibles pressions, pour lesquelles le libre parcours moyen est plus grand que les dimensions du tube, le régime d'écoulement est moléculaire. Lorsque la pression augmente et que le libre parcours moyen devient de l'ordre de grandeur des dimensions transversales du tube, on se trouve dans un état intermédiaire, le régime transitoire. Dans le régime laminaire, aux fortes pressions, pour lesquelles le libre parcours moyen est inférieur au rayon du tube, le gaz s'écoule régulièrement suivant des filets parallèles aux parois.



Graph 2 : Courbe représentant la pression dans l'enceinte (P_{BP}) en fonction de la pression de gaz injecté (P_{HP}) pour différents gaz.

Nous déterminons graphiquement, sur le Graph 2, les pressions de transition d'un régime d'écoulement à l'autre, comme étant le point d'intersection (caractérisé par des flèches sur le graphe) entre les droites de changement de pente. Les valeurs sont présentées dans le Tableau 3. La reproductibilité de ces résultats a été obtenue au prix d'un travail important concernant en particulier la fiabilité dans l'assemblage de la source tant du point de vue mécanique que du point de vue collage. En retour, une seule mesure de conductance à la pression atmosphérique garantit un assemblage correct pour une nouvelle source. On peut constater que la pression aval reste faible ($<10^{-3}$ mbar) jusqu'à des pressions amont de l'ordre du bar même dans le cas d'un gaz très fugace comme l'hydrogène.

Au cours de ma thèse, le possible fonctionnement de la source à plus basse température a été envisagé. La problématique technique a été décrite dans le Chapitre II. L'approche envisagée a l'avantage de refroidir simultanément pointe et gaz. L'effet du refroidissement présentait un risque sur l'assemblage de la source d'une part et les résultats qui suivent démontrent à la fois un effet de refroidissement certain et une résistance de la source à ce refroidissement, Graph 3.



Graph 3 : Courbe représentant la pression dans l'enceinte (P_{BP}) en fonction de la pression de gaz injecté (P_{HP}).

Sur le Graphe 3, nous observons un effet de la température. Pour de faibles pressions de gaz injecté à basse température, la pression dans le compartiment basse pression est plus faible qu'à température ambiante. La tendance s'inverse pour des pressions plus élevées, au-delà de 30 mbar.

I-1- Conductances

I-1-1- Détermination expérimentale

Notre système est caractérisé par plusieurs paramètres :

- d'une part sa géométrie (diamètre des orifices, longueur et diamètre des tubes) qui détermine la conductance, C , de la source. La conductance d'une canalisation représente le volume qui peut être débité en une seconde, dans les conditions optimales.

- d'autre part la vitesse de pompage qui correspond au volume de gaz sortant de la chambre par seconde.

En régime permanent, le débit de gaz introduit dans la chambre au niveau de la source, Q_{source} , plus le débit relatif au dégazage des parois, Q_{parois} , est égal au débit de gaz pompé par les pompes, Q_{pompe} , tel que : $Q_{source} + Q_{parois} = Q_{pompe}$.

On définit le débit de gaz ^{[ref]2} à travers la source par :

$$Q_{source} = C \cdot (P_{HP} - P_{BP}) \text{ en Torr.l/s} \quad (1)$$

où : P_{BP} : Pression coté basse pression en Torr, à l'aval du tube,

P_{HP} : Pression coté haute pression en Torr, à l'amont du tube.

Des phénomènes de parois, dégazage de certains matériaux, peuvent retarder la descente en pression d'une enceinte. Cependant de nombreuses précautions sont prises avant le déroulement d'une expérience. En effet, nous utilisons de l'acier inoxydable, des joints en cuivre, des céramiques, tous ces matériaux ont des faibles pressions de vapeur saturante, à cela vient s'ajouter un étuvage qui permet le traitement de dégazage des parois. Lorsque la pression résiduelle est petite par rapport à l'augmentation de pression induite par la source, nous pouvons nous affranchir du terme Q_{parois} .

La vitesse de pompage, S , est définie par le volume de gaz qui, par unité de temps, franchit l'orifice d'aspiration de la pompe, et est exprimée selon :

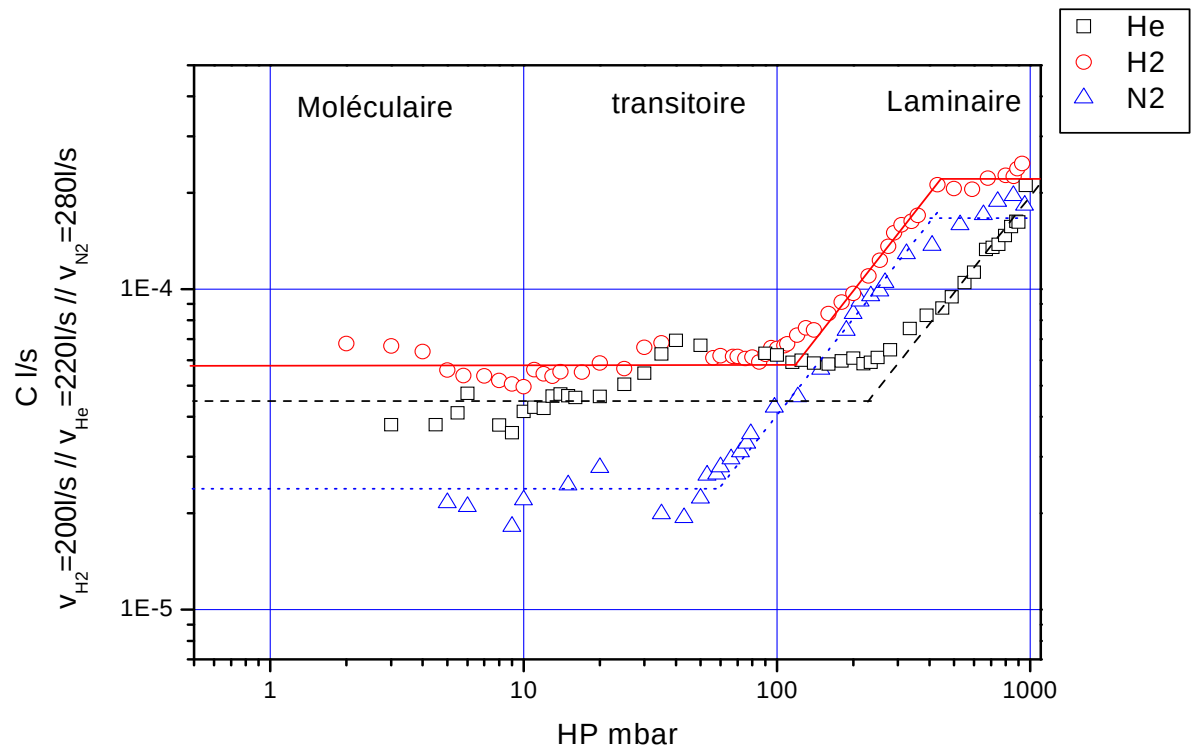
$$S = \frac{Q_{pompe}}{P_{BP}} \text{ en l/s} \quad (2)$$

Les données du fabricant donnent des vitesses de pompage constantes en fonction de la pression mais dépendantes du gaz.

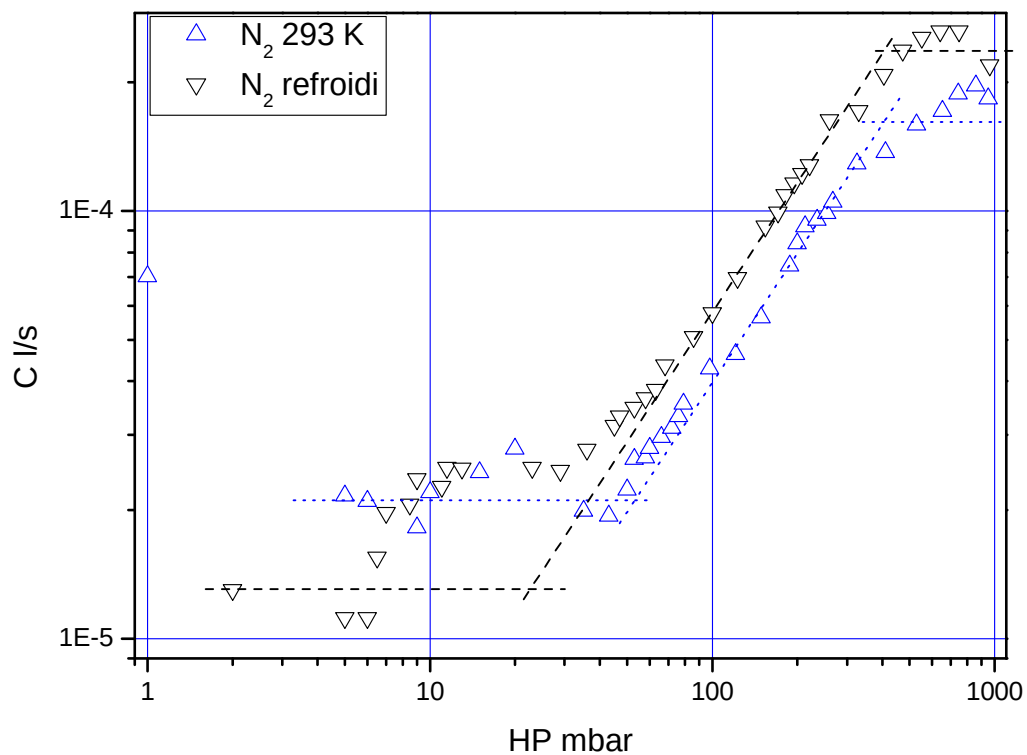
On en déduit de (1) et (2) que :

$$C = \frac{S \cdot P_{BP}}{P_{HP} - P_{BP}} \text{ en l/s} \quad (3)$$

Nous avons déterminé expérimentalement grâce à la relation (3) et aux Graphe 2 et Graphe 3, la conductance à travers notre structure pour différents gaz, l'hydrogène, l'azote et l'hélium, en fonction de la pression de gaz injecté à température ambiante, Graphe 4 et pour l'azote en faisant varier la température, Graphe 5.



Graphe 6 : Conductances pour différents gaz en fonction de la pression de gaz injecté à température ambiante



Graphe 7 : Conductances en fonction de la pression d'azote injectée pour une structure à température ambiante et une refroidie à l'azote liquide

Ces courbes montrent une conductance constante à basse pression pour un gaz donné et une croissance linéaire de la conductance avec la pression à plus haute pression. Une saturation de la conductance pour les très hautes pressions est visible.

Sur les courbes en fonction de la température, on observe un comportement différent suivant la pression. En deçà des 30 mbar, la courbe à basse température se trouve en dessous de la courbe à température ambiante. Cette situation s'inverse au delà des 30 mbar.

I-1-2- Interprétations

Les paramètres constituant le dispositif expérimental sont rappelés sur la Figure 1.

	Désignation	Dimensions
	Tube céramique	$D_{1interne}=300\mu\text{m}$ $L_1=5\text{cm}$
	Tube inox	$D_{2interne, \text{mesuré}}=180\mu\text{m}$ $L_2=1\text{cm}$
	Fil de tungstène	$D_3=125\mu\text{m}$
Figure 1 : Caractéristiques du dispositif expérimental		

Le système peut être découpé en deux parties principales : le tube coaxial (tube en inox-fil de tungstène) et la sortie du tube coaxial définie comme un orifice qui va limiter le débit. En effet, nous ne pouvons pas négliger l'effet de l'extrémité du tube compte tenu de sa faible longueur. Cependant, au vu des dimensions du tube en céramique (diamètre de 300 μm et longueur de 5 cm), la conductance relative à cette section sera négligeable devant les deux autres parties du système mentionnées ci-dessus. Nous allons alors calculer la conductance de notre source suivant les différents régimes d'écoulement définis par le libre parcours moyen, λ , qui représente la distance moyenne que peut parcourir une molécule quelconque d'un gaz entre deux chocs intermoléculaires. Le nombre de Knudsen, K_n , est défini comme le rapport du libre parcours moyen des molécules sur une longueur caractéristique de l'écoulement, généralement le diamètre interne de la section du capillaire D et permet de classer les différents régimes d'écoulement ^{[ref]1}.

- Pour le régime moléculaire : $\lambda > \frac{D}{3}$,
- Pour le régime transitoire : $\frac{D}{100} < \lambda < \frac{D}{3}$.
- Pour le régime laminaire : $\lambda < \frac{D}{100}$.

La grandeur que nous mesurons est la pression, P, et sa relation avec le libre parcours moyen

λ , est : $\lambda = 114.51 \frac{\eta}{P} \left(\frac{T}{M} \right)^{1/2}$ en mètre ^{[ref]25} où M : la masse molaire en g.mol⁻¹, T : la température du gaz en K, η : la viscosité dynamique du gaz en Pa/s, supposée constante pour un gaz donné.

Le Tableau 1 donne quelques caractéristiques des gaz utilisés durant nos études.

	Masse molaire M (10 ⁻³ kg.mol ⁻¹)	Diamètre moléculaire d (10 ⁻¹⁰ m)	Viscosité dynamique η (10 ⁻⁵ Pa.s)		Ratio des chaleurs spécifiques $\gamma = \frac{c_p}{c_v}$
			A 293 K	à 180 K	
H ₂	2,016	2,75	0,88	0,6	1.4
He	4,003	2.18	1,96	1,3	1.66
N ₂	28,02	3,70	1,75	1.1	1.4

Tableau 1 : Caractéristiques des différents gaz

i- Régime moléculaire

En régime moléculaire, la conductance est indépendante de la pression. Les molécules n'ont d'interaction qu'avec les parois de la canalisation et non plus entre elles. Le système peut être décrit par deux conductances en série : la conductance dans le tube coaxial C_m et celle définie par l'orifice du tube C_{om} ^{[ref]25}.

Dans le cas du tube coaxial, la conductance est définie par la relation (6) :

$$C_m = 36.4 \left(\frac{T}{M} \right)^{1/2} \left(1 + 2Ln \left(2 \frac{a}{b} \right) \right) \frac{ab^2}{2L} \text{ en m}^3/\text{s} \quad (6)$$

où : T : la température du gaz en K,

M : la masse molaire en g.mol⁻¹,

L : la longueur du tube en m,

$$b = \frac{(D_2 - D_3)}{2} \text{ et } a = \frac{\pi(D_2 + D_3)}{2}$$

D_2 : le diamètre interne du tube en inox en m,

D_3 : le diamètre interne du fil de tungstène en m.

➤ En ce qui concerne la conductance de l'orifice du tube coaxial dans le régime moléculaire, elle est définie par ^{[ref]5} :

$$C_{om} = 11,43 \sqrt{\frac{T}{M}} b^2 \text{ m}^3/\text{s}$$

Cette conductance est négligeable devant C_m .

ii- Régime laminaire

En régime laminaire, les forces qui limitent la valeur de la conductance sont les forces de frottement dues à la viscosité, η , du gaz. Là encore, deux conductances en série apparaissent ^{[ref]3} ^{[ref]4}, la conductance du tube, C_v , proprement dit et la conductance de l'orifice C_{or} .

➤ Pour le tube coaxial, il s'agit du tube en inox dans lequel le fil de tungstène est intégré. Nous assimilerons ce système à une fente. La conductance s'écrira alors (4) ^{[ref]3} :

$$C_v = K \frac{P_{HP}}{2} \text{ en m}^3/\text{s} \quad (4)$$

$$\text{avec } K = \frac{1}{12\eta} \frac{ab^3}{L}$$

$$b = \frac{(D_2 - D_3)}{2} \text{ et } a = \frac{\pi(D_2 + D_3)}{2}$$

D_2 : le diamètre interne du tube en inox en m,

D_3 : le diamètre interne du fil de tungstène en m,

L : la longueur du tube en inox en m,

P_{HP} : la pression coté haute pression en Torr,

η : la viscosité dynamique du gaz en Pa/s, supposée constante pour un gaz donné.

➤ La conductance de l'orifice du tube coaxial peut être exprimée par la relation (5) ^{[ref]4} :

$$C_{or} = C_o \Gamma \left(\frac{T}{M} \right)^{0.5} ab \text{ en m}^3/\text{s} \quad (5)$$

$$\text{avec } \Gamma = 28.6 \left[\gamma \left\{ 2/(\gamma+1) \right\}^{(\gamma+1)/(\gamma-1)} \right]^{0.5}$$

γ : le rapport des chaleurs spécifiques,

T : la température du gaz en K,

M : la masse molaire en g.mol^{-1} ,

C_o : appelé coefficient de l'orifice, est un facteur correctif inférieur à 1 non constant, dépendant des dimensions de l'orifice.

iii-Régimes de transition

Le régime de transition entre moléculaire et laminaire présente un comportement complexe^{[ref]26}. Nous nous restreindrons à la détermination d'une pression de transition, P_0 , du régime moléculaire au régime laminaire obtenue en égalisant les conductances définies par les relations (4) et (6). Le calcul donne :

$$P_0 = 36.4 \sqrt{\frac{T}{M}} \left[1 + 2 \ln \left(2 \frac{a}{b} \right) \right] \frac{12\eta}{b} \text{ en Pa (7)}$$

Nos résultats montrent une autre transition à haute pression que l'on peut penser être liée à l'effet de l'orifice dont la conductance est indépendante de la pression, alors que la conductance laminaire augmente avec la pression. La pression de transition, P_1 , du régime laminaire vers l'orifice est obtenue là encore en égalisant les conductances définies par les relations (4) et (5). On trouve alors :

$$P_1 = 12\Gamma \sqrt{\frac{T}{M}} \frac{\eta L}{b^2} \text{ en Pa (8)}$$

Ces déterminations théoriques sont reportées dans les Tableau 2 , Tableau 3 et Tableau 4 ainsi que les résultats expérimentaux correspondants.

	Régime moléculaire			Régime laminaire		
	C_m th. (10^{-5} l/s)	C_m exp. (10^{-5} l/s)	C_m Ratio th./exp.	C_v th. 200mbar (10^{-5} l/s)	C_v exp. 200 mbar (10^{-5} l/s)	C_v Ratio th./exp.
H ₂ , 293K	6.46	5.8	1.11	9.54	10	0.95
He, 293K	4.57	4.2	1.09	4.23	4	1.06
N ₂ , 293K	1.73	2.4	0.72	4.74	8	0.6
N ₂ , refroidi	1	1.3 (=>100K)	0.77	7.5	12 (=>175K)	0.6

Tableau 2 : Comparatif des conductances théoriques et expérimentales dans les régimes moléculaire et laminaire

	Pressions de transition		
	P ₀ th. (mbar)	P ₀ exp. (mbar)	P ₀ Ratio th/exp
H ₂ , 293K	135	120	1.125
He, 293K	215	220	0.98
N ₂ , 293K	73	65	1.12
N ₂ , refroidi	27	35 (=>180K)	0.77

Tableau 3 : Pressions de transition entre le régime moléculaire et le régime laminaire

	C _{or} /C ₀ th. (l/s)	C _{or} exp. (l/s)	C _{or} Ratio th./exp.	P ₁ th. (mbar)	P ₁ exp. (mbar)
H ₂ , 293K	3.9 10 ⁻³	2.2 10 ⁻⁴	17	6700	450
He, 293K	2.34 10 ⁻³	> 2 10 ⁻⁴	-	11000	> 1000
N ₂ , 293K	1.03 10 ⁻³	1.8 10 ⁻⁴	5,7	3500	400
N ₂ , refroidi	5.9 10 ⁻⁴	2.6 10 ⁻⁴	2.26	1700	405

Tableau 4 : Comparatif des conductances théoriques et expérimentales ainsi que les pressions de transition entre le régime laminaire et le régime régi par l'orifice

Dans le régime moléculaire, l'indépendance de la conductance avec la pression semble vérifiée et la valeur absolue des conductances pour les différents gaz en accord avec les déterminations théoriques, Tableau 2.

Dans le régime laminaire, la conductance est fonction de la viscosité du gaz (supposée constante pour un gaz et une température donnée) et de sa pression moyenne dans la canalisation, sa valeur augmente linéairement avec la pression. La courbe de conductance est une droite de pente 1, sur une échelle logarithmique. Les valeurs théoriques et expérimentales sont en relatif accord, Tableau 2. Pour l'azote, les conductances expérimentales moléculaire et laminaire diffèrent des valeurs théoriques d'environ 30%. Ceci pourrait être lié à un défaut de calibrage de la mesure des pressions.

Les données du Tableau 3 relatives aux pressions de transition entre le régime moléculaire et laminaire présentent un accord théorie-expérience satisfaisant, même pour l'azote. Ceci conforte notre sentiment d'erreur de calibrage de la jauge pour ce gaz.

En ce qui concerne les expériences à basse température, les effets observés sont en accord avec la théorie. Comme la valeur de la température n'est pas connue, les données expérimentales associées aux prédictions théoriques supportent un abaissement de température supérieur à 100K quel que soit le régime d'écoulement.

En ce qui concerne les données à haute pression, une conductance constante est clairement observée dans le cas de l'hydrogène et de l'azote, mais pas dans le cas de l'hélium. Bien qu'un tel comportement soit en accord avec le modèle théorique, l'accord quantitatif n'est pas satisfaisant, Tableau 4. Néanmoins, la variation de la pression de transition P_1 avec la nature du gaz semble suivre les prédictions théoriques.

I-2- Pression en bout de pointe

On s'intéresse à l'ionisation du gaz apporté en bout de pointe. Afin de rapporter notre situation expérimentale, correspondant à l'écoulement d'un gaz à la sortie d'un capillaire, aux expériences antérieures « conventionnelles » où le gaz est en équilibre dans la chambre à vide, nous voudrions ramener nos mesures de flux à une notion de pression équivalente en bout de pointe.

Pour cela on identifie le flux, Q , à la sortie du capillaire au flux de particules frappant une paroi de même aire, A , que celle du capillaire pour un gaz en équilibre, à une pression P_{pointe} .

$Q = A \cdot \left(\frac{1}{6} \cdot n \cdot \langle v \rangle\right)$ où n est la densité volumique du gaz et $\langle v \rangle$ la vitesse moyenne des

particules du gaz, à la pression cherchée P_{pointe} . En supposant le gaz parfait, $n = \frac{P_{\text{pointe}}}{kT}$ et

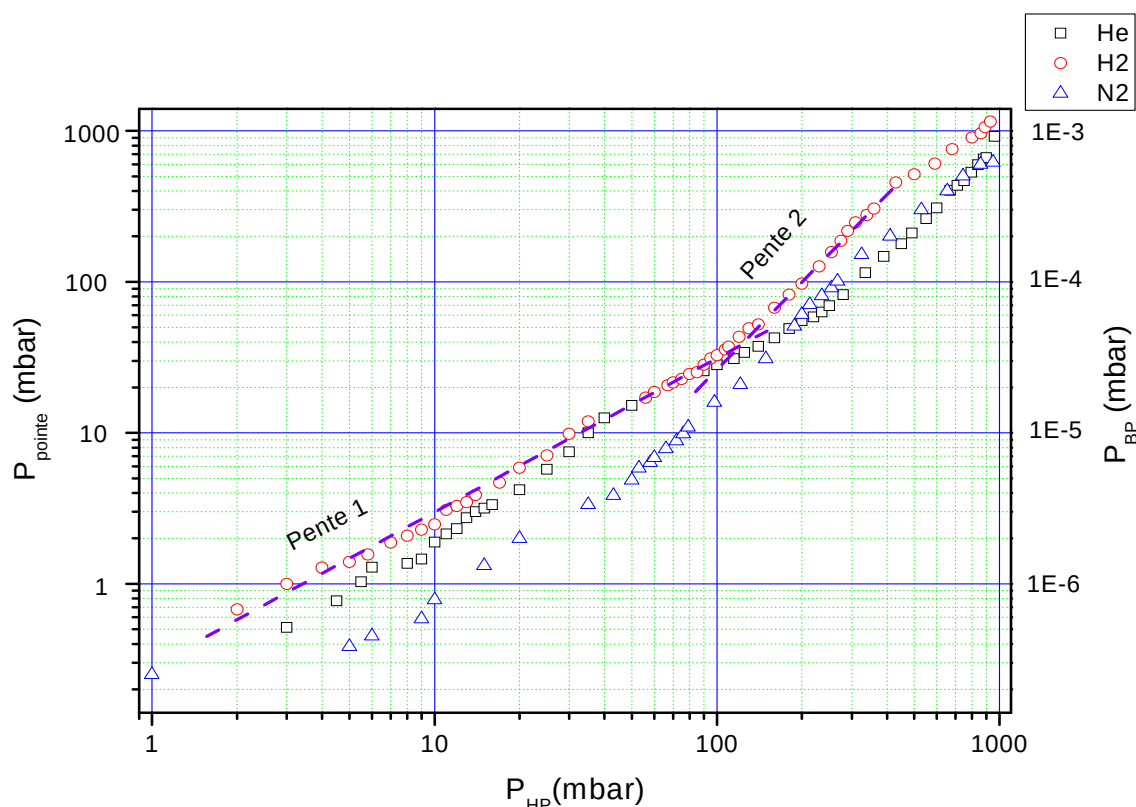
$$\langle v \rangle = \sqrt{\frac{2kT}{m}}, \text{ d'où } Q = \frac{1}{6} \cdot A \cdot \frac{P_{\text{pointe}}}{kT} \cdot \sqrt{\frac{2kT}{m}}.$$

En tenant compte de la relation (2) et en la ramenant en nombres de molécules dans 1 m^3 à 1 Pa,

$S = \frac{Q}{P_{BP}} \cdot \frac{1}{kT}$, on en déduit alors :

$$P_{\text{pointe}} \approx 6.10^{-2} S \frac{P_{BP}}{A \cdot v} \text{ en mbar (9)}$$

Ceci nous permet de graduer la pression locale vue par la pointe en fonction de la pression amont, Graphe 8.



Graph 8 : Pression mesurée en bout de pointe en fonction de la pression de gaz injecté dans le compartiment haute pression.

On constate que cette pression locale est de six ordre de grandeur supérieure à la pression dans la chambre basse pression. C'est ce point qui différencie grandement notre approche de source coaxiale de l'approche conventionnelle où le gaz à ioniser est à la pression de la chambre.

II- Emission ionique de champ – Résultats expérimentaux

Le plan que nous avons adopté pour cette partie est critiquable. Cependant après de nombreuses tentatives il s'est révélé être le plus clair et suit l'évolution dans le temps des expériences que nous avons effectuées pendant ces trois ans. Nous avons procédé à un découpage en trois parties en fonction des différents matériaux constituant la pointe.

II-1- Pointes en tungstène

II-1-1- Ionisation de l'hydrogène

i- Nature des ions

Cette identification est faite à l'aide du spectromètre de masse, décrit dans le chapitre II.

Sur ces premières expériences réalisées pendant la première partie de ma thèse, le champ magnétique est imposé par des aimants permanents.

La Figure 2 représente l'ombre de la fente sans application du champ magnétique. Ensuite l'aimant est positionné, on observe alors deux raies déviées, Figure 3, correspondant à deux images de la fente, mettant en évidence des ions de deux natures différentes, qui correspondent à H^+ et H_2^+ , pour de fortes pressions d'hydrogène, 340 mbar, et une faible tension appliquée sur la pointe, 2.39 kV. Ce résultat illustre un caractère reproductible, à savoir en présence d'une forte pression et une faible tension, deux ions sont présents dans le faisceau, les ions H^+ et H_2^+ .



Figure 2 : Image de référence de la fente sans champ magnétique, $V=2.5kV$ et $P_{H_2}=340mbar$

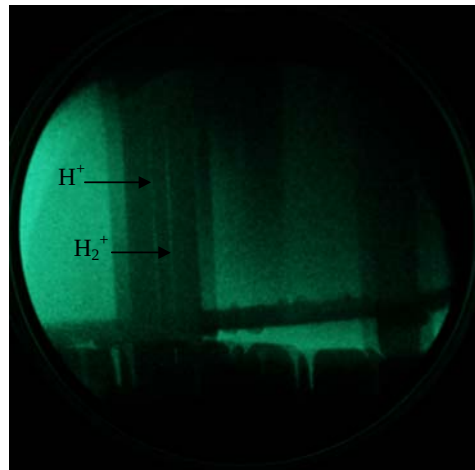
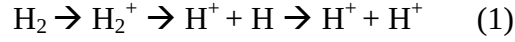


Figure 3 : Apparition de deux ions, $V=2.39kV$, $P_{H_2}=340mbar$, $I=1pA$

Cela est décrit sur le Graphe 9 qui représente les différents ions identifiés durant l'expérience, en reportant la déflexion au carré en fonction de l'inverse de la tension, $\Delta Y^2 = f(1/V)$. On peut alors déterminer le rapport de deux masses $\frac{M_i}{M_{i+1}}$ (cf. Chapitre II). Dans ces expériences ce rapport est de deux, correspondant aux ions H^+ et H_2^+ observés par d'autres auteurs^{[ref]12 [ref]11}. Cependant ces expériences antérieures étaient effectuées à une pression de cinq ordres de grandeurs inférieurs à la pression locale P_{pointe} de nos expériences.

La production des ions H^+ est probablement due, d'après T.C. Clements and E.W. Müller^{[ref]8}, à la dissociation d'un proton et d'un atome d'hydrogène provenant de l'ion H_2^+ , formé préalablement par ionisation de champ. L'ionisation de champ de l'atome d'hydrogène ayant lieu par la suite créant un nouvel H^+ :



Les ions H_2^+ sont prépondérants devant les ions H^+ à bas champ, mais avec l'augmentation du champ la contribution des protons par rapport au courant total augmente. Au-delà du champ de meilleure image de l'hydrogène ($2.2V/\text{\AA}$), la quantité de H^+ devient prépondérante devant les ions H_2^+ , jusqu'à environ $5.5V/\text{\AA}$, qui correspond au champ d'évaporation du tungstène.

Nous avons remarqué, lors d'une expérience en diminuant la pression d'hydrogène à 36 mbar pour une tension de 7.1 kV, la présence de trois images de la fente dues à la présence de trois ions de masses différentes, Figure 4. Ces trois ions correspondent à H^+ , H_2^+ et H_3^+ , Graphe 9.

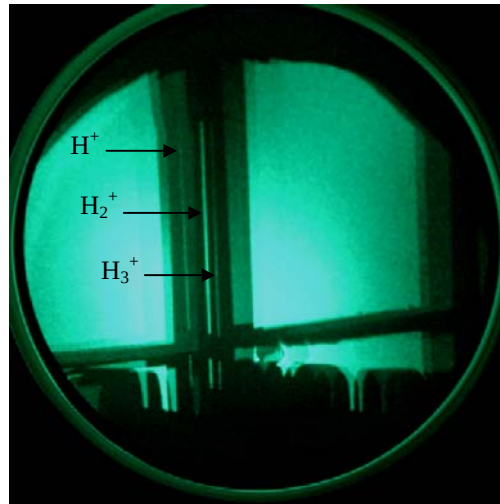
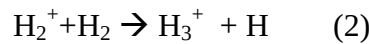


Figure 4 : Apparition des 3 ions hydrogène, $P_{H_2}=36$ mbar, $V=7.1$ kV et $I=18$ pA

Là encore à très basse pression, la formation d'ions H_3^+ a déjà été observée par Clements et Müller^{[ref]8}. Le processus généralement avancé pour la formation de H_3^+ est :

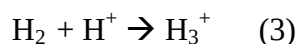


Mais, en ionisation de champ, cette réaction est instable. Clements et Müller mentionnent que d'après les énergies d'ionisation, l'atome d'hydrogène sera rapidement ionisé ainsi que la molécule d'hydrogène contrairement au processus (2).

Une autre hypothèse peut expliquer la présence de H_3^+ . Il a été montré^{[ref]9} que le champ électrique est localement plus intense au-dessus de toutes protubérances de surface soumises à

un champ électrique externe : ces protubérances peuvent être un site de marche, un adatome ou une particule de gaz adsorbée sur la surface sous l'effet du champ électrique.

Dans notre cas, la production des ions H_3^+ a lieu certainement au-dessus de ces atomes protubérants de surface, comme l'ont montré T.C. Clements et E.W. Müller ^{[ref]8}. Ces protubérances agissent comme catalyseurs en permettant la désactivation par collision suivant le processus (3) :



Cependant ces mécanismes sont purement spéculatifs du fait de la complexité des conditions dues au caractère inhomogène du champ local. La preuve en est que le processus (2) rejeté par Müller est approuvé par Cocke et Block ^{[ref]10}.

Mentionnons que l'ion H_3^+ a été également observé par Kellogg ^{[ref]27} par ionisation de champ assistée par laser sur des pointes de silicium uniquement en présence d'oxygène. L'effet « catalytique » de l'oxygène est avancé.

L'observation d'un ion lourd a été faite en augmentant la tension sur une pointe après une longue période d'ionisation de l'hydrogène, Figure 5. Après identification, Graphe 10, l'ion mis en évidence à forte tension correspond à $H^+ + H_2O$ (masse 19). Il traduit ainsi la présence d'eau due probablement à une contamination. L'autre déviation correspond aux ions H_3^+ .

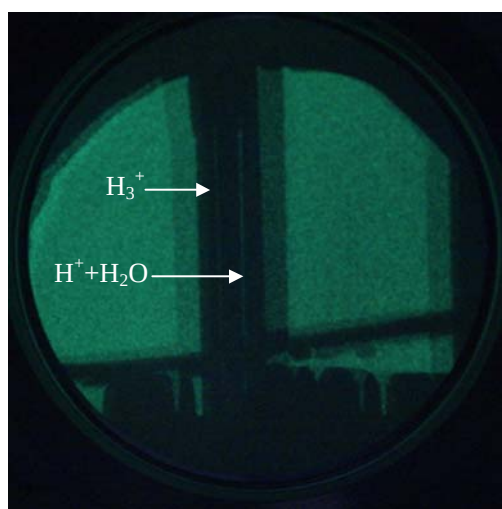
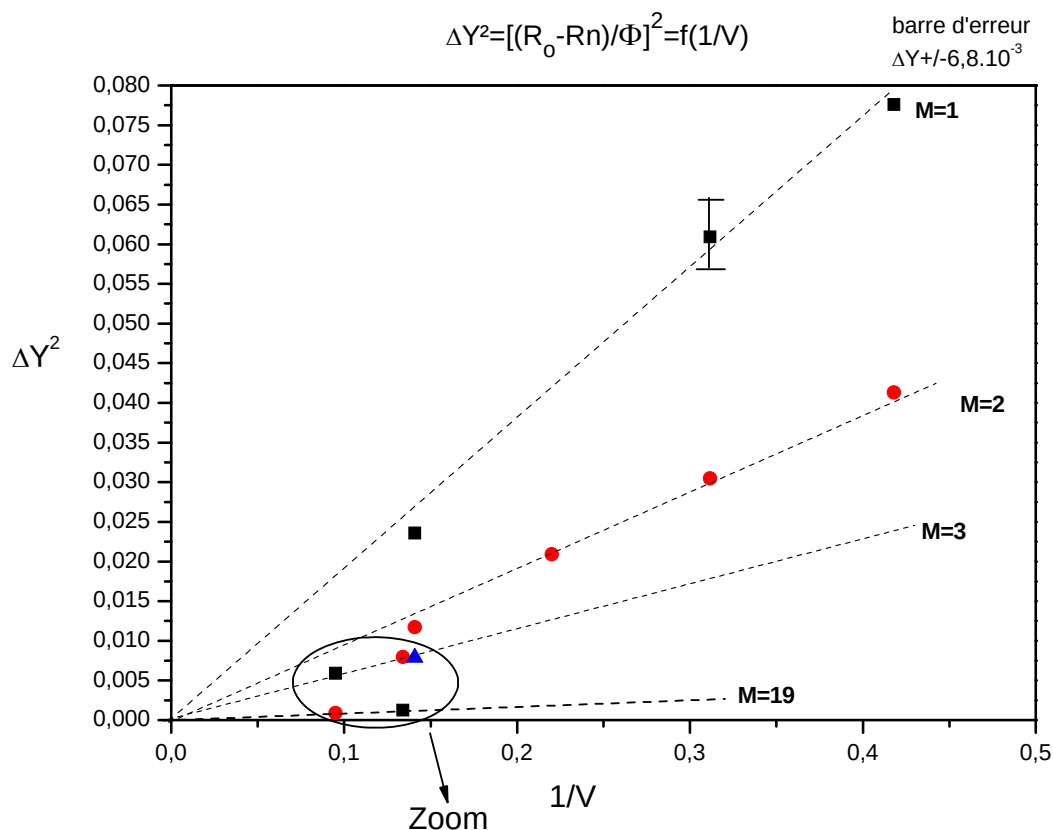


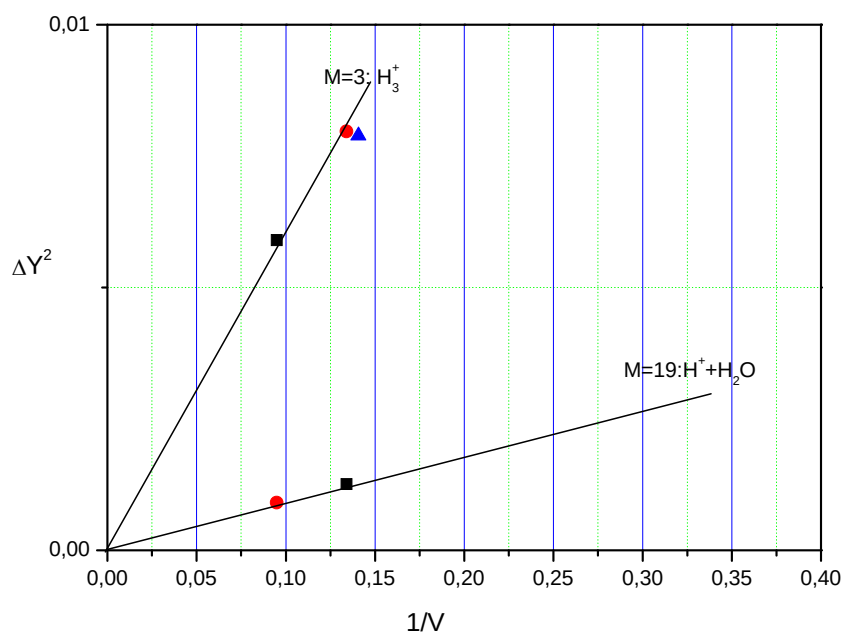
Figure 5 : Apparition de deux ions, H_3^+ et $H^+ + H_2O$ ($M=19$), $P_{H_2}=36\text{mbar}$, $V=7.44\text{kV}$

La production des ions $H^+ + H_2O$, sans introduction d'eau au préalable, provient certainement d'un oxyde de tungstène qui se dissocie sous l'effet du champ électrique intense. Cet oxyde peut s'expliquer par le fait que le gaz n'est pas totalement pur et que des traces d'eau seraient résiduelles. Comme nous le verrons plus loin, l'eau est à l'origine de l'érosion de la pointe en tungstène. De ce fait, nous pensons pouvoir expliquer pourquoi Gomer et Inghram ^{[ref]11}, qui

affirment travailler en milieu non pollué, n'observent pas de H_3^+ et leur désaccord avec Müller qui mentionne ces traces d'eau, dues à une pollution dans le microscope. Cette eau, en présence d'hydrogène, serait à l'origine de la production de H_3^+ (processus (3)). Dans notre cas, l'eau résiduelle produirait à la fois les ions H_3^+ et $H^+ + H_2O$.



Graphe 9: Identification des ions suivant la tension appliquée sur la pointe



Graphe 10: Zoom de la partie du graphe qui correspond aux ions lourds

ii- Images en microscopie ionique à projection

La Photo 1 illustre un exemple de l'image obtenue en microscopie ionique à projection de l'ombre de la membrane supportée par une grille d'or à pas connu. On en déduit un grandissement de 460, ce qui donne dans ce cas une distance source-objet de 0.8 mm (la distance source-écran est de 40 cm). Le contraste de l'image est donné par la plus ou moins bonne transparence de l'objet.

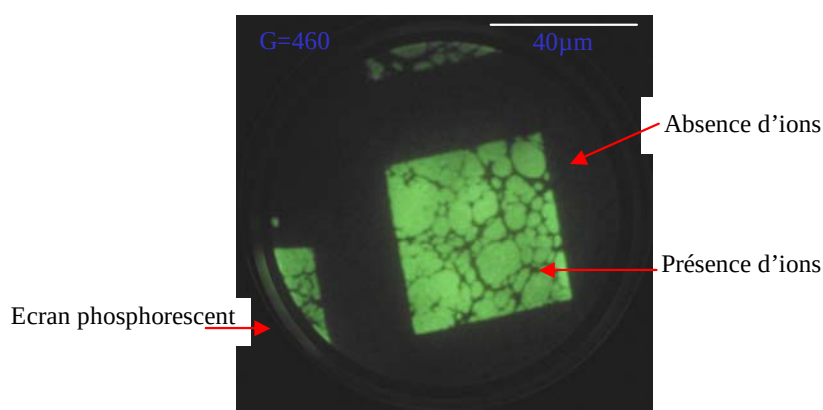


Photo 1 : Membrane de carbone déposée sur grille d'or en microscopie à projection à ions hydrogène, x460.

Il est fréquent que des échantillons manifestent des effets de charges sous l'irradiation d'un faisceau de particules chargées. Dans le cas de la microscopie à projection, ceci a été observé avec des électrons et la Photo 2 illustre cet effet avec des ions hydrogène. Sur cette photo, on peut constater que certains filaments apparaissent sur-brillants au lieu d'apparaître sombres. Ce phénomène s'explique par l'effet « bi-prisme » ^{[ref]28}, schématisé sur la Photo 2-b) . Ce phénomène apparaît lorsque l'objet observé se charge de façon attractive, pour le faisceau, par rapport à son environnement. Dans le cas de la Photo 2-a), cela signifie que les filaments brillants sont positifs par rapport aux filaments sombres. Ce phénomène de charge crée un champ attractif qui dévie le faisceau et conduit à un recouvrement des deux demi-faisceaux passant de part et d'autre du filament.

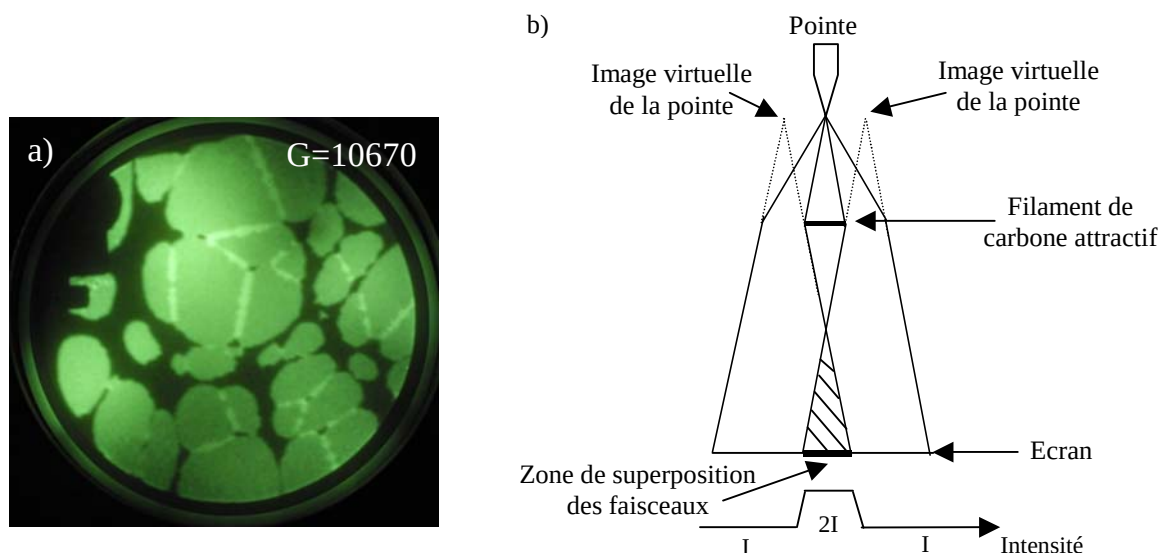


Photo 2 : a) Membrane de carbone déposée sur grille d'or en microscopie à projection à ions hydrogène, $P_{H_2}=60\text{mbar}$, $\times 10670$, b) schéma de l'effet « bi-prisme »

Afin de s'affranchir des effets de charge, les résultats qui suivent ont été obtenus sur une membrane recouverte d'une couche d'or de $100\text{\AA}$. Les dépôts ont été effectués à l'aide d'une cloche de métallisation du service de microscopie électronique du laboratoire. Sur les photographies qui suivent, nous avons présenté l'image de la membrane à plusieurs grossissements en commençant par les plus faibles grossissements jusqu'aux détails les plus fins de la membrane de carbone. La structure et le gaz sont refroidis. La température exacte atteinte n'est pas parfaitement connue mais est certainement inférieure à 200K (cf. Chapitre III-I). La pression d'hydrogène est de 54 mbar .

Sur la Figure 6, à faible tension 1.3 kV , on ne voit qu'une image, à 1.9 kV l'image se dédouble en deux images bien définies, à 2.5 kV trois images se superposent. Les mêmes observations sont faites lorsqu'on approche l'objet de la source, Figure 7, Figure 8 et Figure 9.

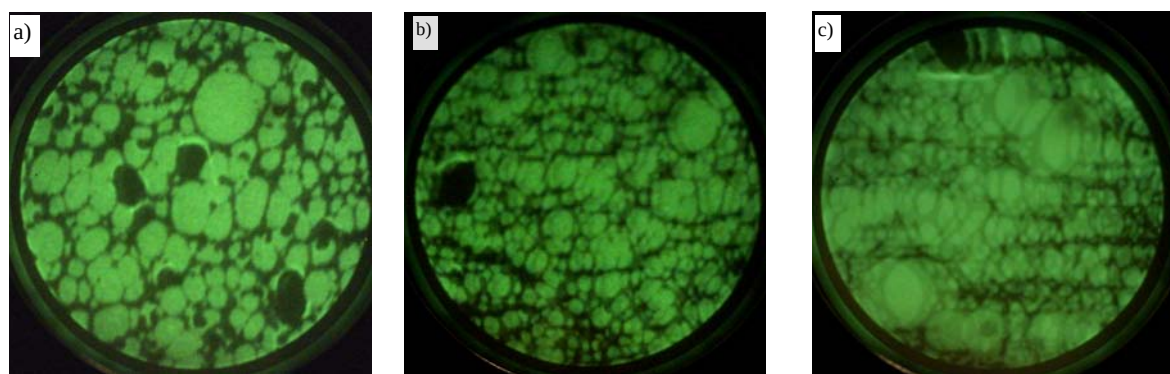


Figure 6 : Images de la membrane de carbone à différentes énergies, au même grossissement : $G=5500$, $d=70\mu\text{m}$, $P_{H_2}=54\text{ mbar}$, a) $V=1.3\text{ kV}$, b) $V=1.9\text{ kV}$, c) $V=2.5\text{ kV}$.

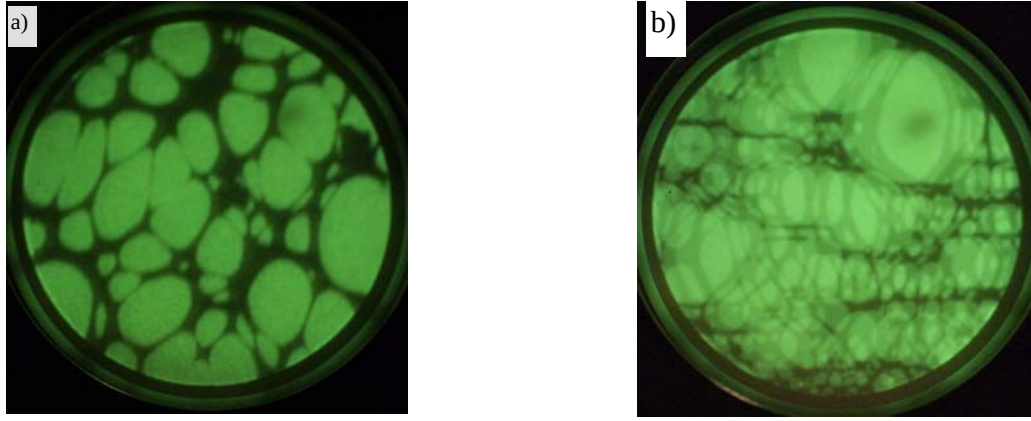


Figure 7 : Images de la membrane de carbone à différentes énergies, au même grandissement :
 $G=11200$, $d=36\mu\text{m}$, $P_{H_2}=54\text{ mbar}$,
a) $V=1.5\text{kV}$, b) $V=2.5\text{kV}$.

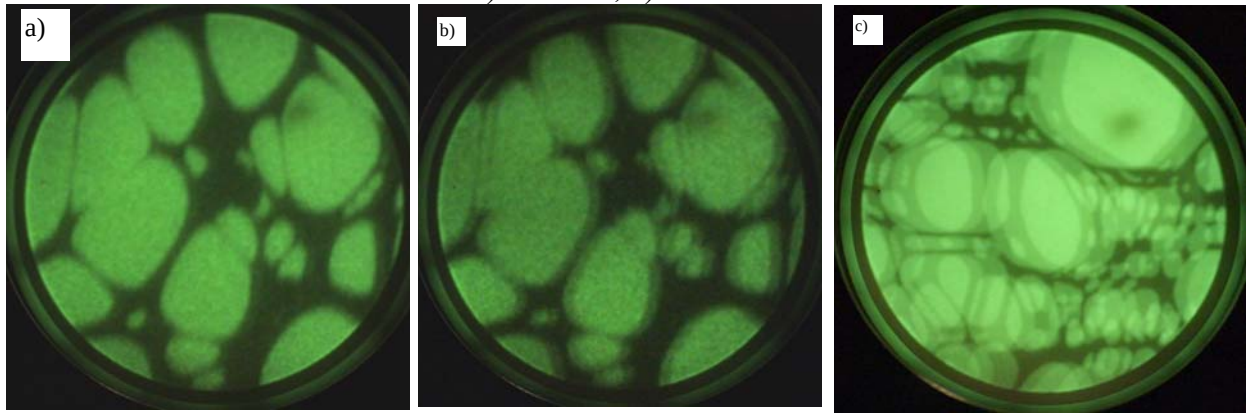


Figure 8 : Images de la membrane de carbone à différentes énergies, au même grandissement :
 $G=26000$, $d=15\mu\text{m}$, $P_{H_2}=54\text{ mbar}$,
a) $V=1.1\text{kV}$, b) $V=1.9\text{kV}$, c) $V=2.5\text{kV}$.

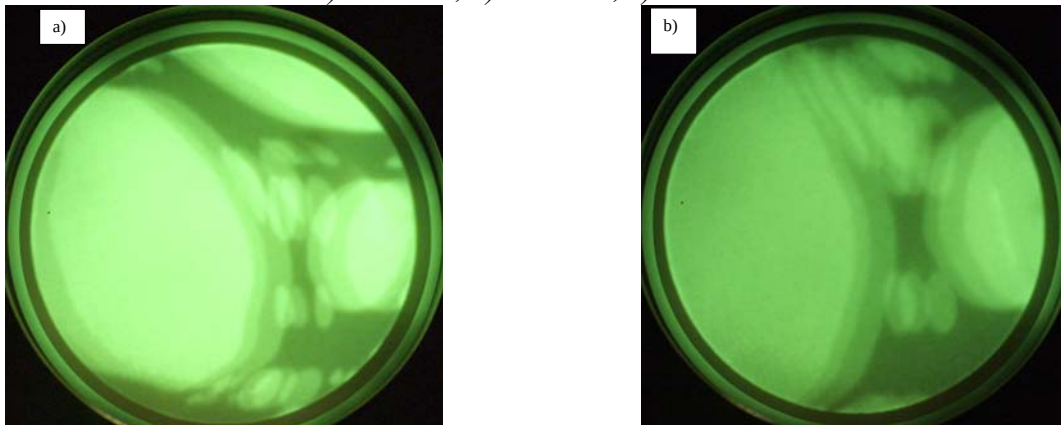


Figure 9 : Images de la membrane de carbone à deux grandissements différents, $P_{H_2}=54\text{ mbar}$,
a) $V=2\text{kV}$, $G=65400$, $d=6\mu\text{m}$, b) $V=2\text{kV}$, $G=261600$, $d=1.5\mu\text{m}$

Ces images sont reproductibles et parfaitement nettes indépendamment de leur superposition. Ceci exclut toutes vibrations ou problème d'instabilité électrique. On note aussi l'indépendance de la distance entre les différentes images dans le cas des images superposées. On a précédemment vu que la création d'ions de nature différente dépendait du champ sur la

pointe donc de sa tension. Nous pensons qu'un seul ion est produit à 1.3kV, deux ions à 1.9kV et trois ions à 2.5kV. Un champ magnétique résiduel, dont nous n'avons pas identifié la provenance, séparerait les images produites par les différents ions. Notons que si plusieurs ions étaient formés à basse tension, on les observerait plus aisément puisque la déflexion diminue avec l'énergie.

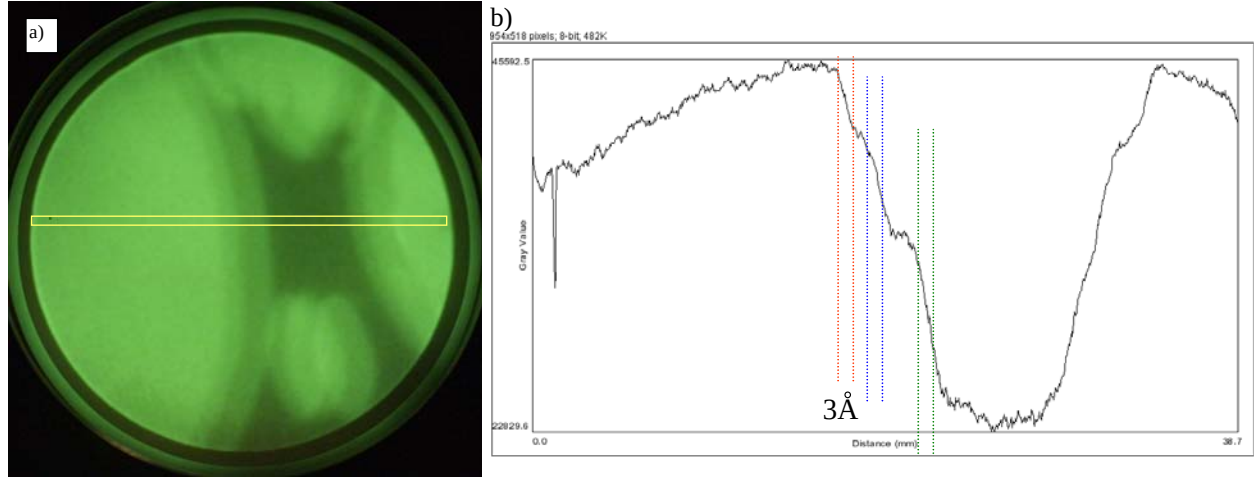


Figure 10 : a) Images de la membrane de carbone, $P_{H_2}=54$ mbar, $V=2$ kV, $G=545000$, $d=0.7\mu\text{m}$
b) Spectre donnant accès à la résolution de l'image, soit 3Å

La Figure 10-a) représente une image d'un détail de la membrane à très fort grandissement. Elle correspond à la superposition de trois images. Un profil sur cette image est présenté sur la Figure 10-b). Les sauts d'intensité correspondant au bord de la membrane sont obtenus sur une échelle spatiale d'environ 3Å . Cette distance est identique pour les différents ions. Ceci démontre que la taille virtuelle de la source pour les différents ions est certainement inférieure 3Å . Notons que la résolution de notre détecteur (de l'ordre de $100\mu\text{m}$) pour un grandissement de 500000 limite la résolution des images à environ 2Å . Cet élément pourrait être la cause essentielle à la résolution des images. Un tel grandissement et une telle résolution, en microscopie ionique à projection, n'ont jamais été atteints ^{[ref]12[ref]13}. Dans ce cas, si le courant $I=100\text{ pA}$ est émis par une faible surface circulaire de rayon $r=3\text{Å}$, à une tension appliquée de 2 kV , dans un cône de demi-ouverture dont l'angle est de l'ordre de $\beta=8^\circ$, nous pouvons estimer facilement la brillance :

$$\Omega=2\pi(1-\cos(\alpha/2))=1,5\cdot 10^{-2}\text{ Sr}, \alpha=\pi\beta/180=0.07\text{ rad}, S=2\pi r^2=5.65\cdot 10^{-15}\text{ cm}^2 \text{ à } E=q\cdot V=1.6\cdot 10^{-19}\text{ eV}, B=10^6\text{ A/cm}^2\cdot\text{Sr}.$$

Remarquons, qu'en microscopie à projection à électrons la résolution maximale atteinte est environ un ordre de grandeur plus grande (de l'ordre de $2\text{ à }3\text{nm}$) ^{[ref]30} et nécessite la reconstruction d'un hologramme. Aucun phénomène interférentiel n'est visible sur nos

images ioniques. A des grossissements de 10000 ces effets sont déjà largement visibles avec des électrons. Ceci est en accord avec la faible longueur d'onde des ions par rapport aux électrons (cf Chapitre II-II-3-2).

Des expériences similaires ont été effectuées sur un échantillon constitué d'une membrane de carbone non recouverte d'une couche d'or. Nous ne montrerons pas d'images de ces expériences car leurs enregistrements ont été perdus lors de la mise en œuvre du nouvel enregistreur numérique remplaçant l'ancien enregistreur analogique. De ce fait, les déterminations exactes du grossissement ont été perdues. Nous tenons à reporter les faits suivants à partir des résultats consignés sur le cahier d'expériences. A fort grossissement, que nous estimons à quelques centaines de milliers, nous avons observé une évolution lente de l'image (de l'ordre de la minute) que nous avons attribuée à un phénomène de sputtering. La tension sur la pointe était de 2.4kV et la pression d'hydrogène de 40mbar. Cette observation est à mettre en parallèle avec les observations d'une membrane recouverte d'or pour laquelle, à un grossissement de 545000 et une tension de 2kV, aucune altération de l'image n'a été observée.

Dans cette même série d'expériences, des images de la membrane ont été obtenues avec l'hélium à une pression de 30 puis de 200 mbar. Le point important qu'il nous paraît utile de reporter est qu'un grossissement aussi grand qu'avec l'hydrogène n'a pu être obtenu. Pour les très forts grossissements, un flou apparaît sur l'image qu'il est possible de désamorcer en rétractant la pointe. Nous pensons que ce phénomène est lié à l'émission d'électrons de la membrane par effet de champ favorisé dans le cas de l'hélium par une pointe polarisée à plus haute tension (5kV à 30 mbar et 3.5kV à 200 mbar).

A haute pression d'hydrogène, un processus de neutralisation des ions apparaît. Ceci se manifeste par la présence de deux images du carreau de la grille d'or dont une image non déviée lorsqu'on applique un champ magnétique, Figure 12. Ceci signifie que la neutralisation a lieu avant la déflexion, soit à une distance de l'ordre de 10 cm de l'écran. L'image non déviée présente une résolution semblable à l'image déviée. Ceci signifie que dans le processus de neutralisation le neutre généré a une vitesse de direction quasi identique à celle de l'ion incident, grossièrement schématisé par le diagramme suivant, Figure 11.

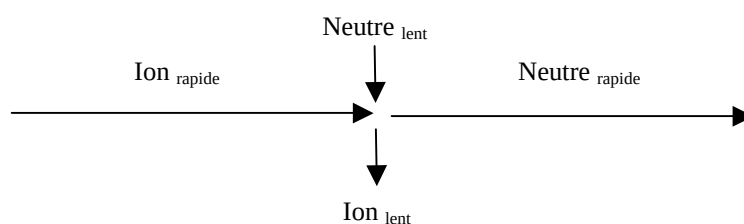


Figure 11 : Schéma de neutralisation

Une majoration sur l'incertitude sur la direction des neutres peut être estimée par le ratio de l'incertitude sur l'image (de l'ordre de $100\mu\text{m}$) sur la distance au lieu de neutralisation (de l'ordre de 10 cm). Un tel processus de neutralisation a déjà été observé par Müller^{[ref]12} à des pressions de quelques mbar. Cette pression correspondait à une pression homogène dans l'enceinte, elle est à comparer avec les 400 mbar correspondant à la pression en bout de pointe (cf. Graphe 8) et au 4.10^{-4} mbar correspondant à la pression dans la chambre. Ceci suggère que la neutralisation a lieu relativement proche de la pointe. Un calcul tenant compte de la section efficace de neutralisation ($4\text{\AA}^2$)^{[ref]29} diminuerait le courant d'ions de $1/e$ sur une distance de $3\mu\text{m}$ à 400 mbar . $N(l) = N(l=0).e^{-\sigma nl}$ ($\sigma=4\text{\AA}^2$, l distance, n concentration du gaz, N le nombre d'ions)^{[ref]12}.

Nous reviendrons sur ce phénomène de neutralisation dans le cas des pointes de platine (cf. Chapitre III-II-2)

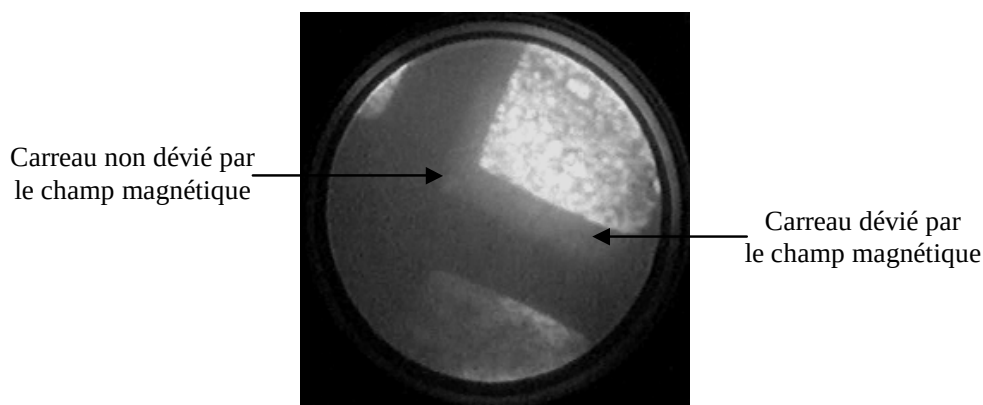


Figure 12 : Image d'un carreau de la grille d'or, en présence du champ magnétique, $P_{H_2}=400\text{mbar}$, $V=9\text{kV}$

iii- Le courant d'ions

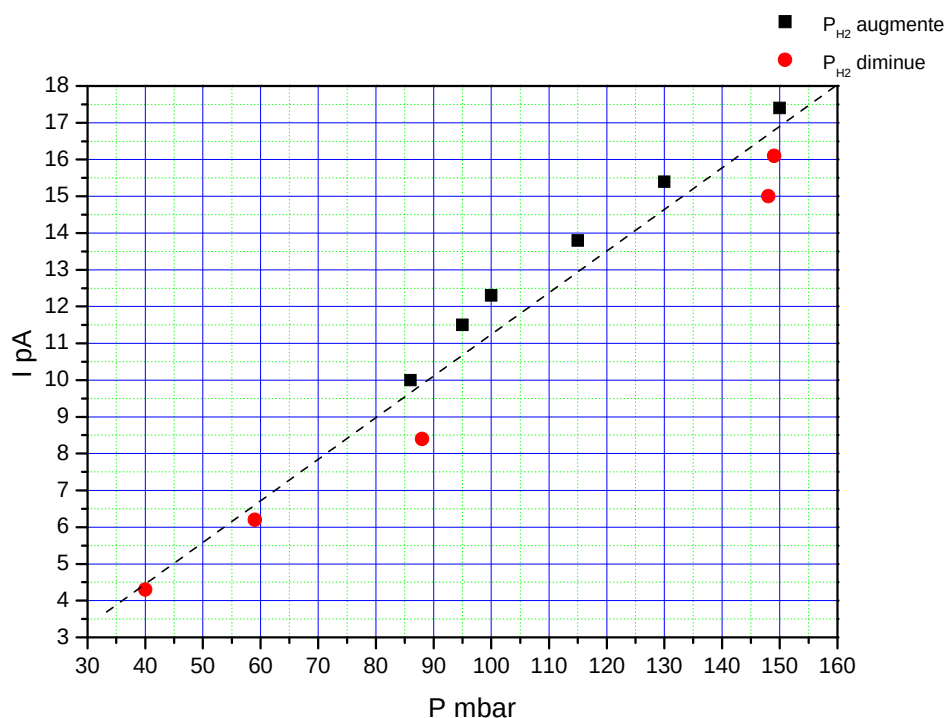
Pour une pointe à géométrie donnée, le courant d'émission dépend de deux paramètres : de la tension appliquée sur la pointe et de la pression de gaz injectée dans le compartiment haute pression. La mesure du courant d'émission peut être obtenue de différentes manières :

- soit au niveau de la pointe, en portant un ampèremètre à la haute tension, qui présente l'inconvénient de ne pas différencier le courant de fuite dans le gaz ou le long des céramiques isolantes du courant émis. De plus, la mesure de très petits courants, de l'ordre du pA, est quasiment impossible par cette méthode,
- soit sur une plaque préalablement placée en face de la source. Nous avons utilisé une plaque percée qui nous permettait néanmoins de voir l'image sur le détecteur. On n'accède ainsi qu'au courant périphérique au-delà de quatre degré de l'axe principal d'émission, dans notre cas.
- soit directement sur l'objet, la membrane, dont l'inconvénient est de présenter une transmission mal définie.

Les valeurs du courant émis, obtenues par E. Salançon, ont été mesurées sur la pointe en fonction de la tension et de la pression d'hydrogène. Pour de faibles tensions, aux faibles pressions (inférieures à 1 mbar) apparaît un courant de quelques nA alors qu'aux hautes pressions (100 mbar) un courant de l'ordre du μA se crée.

a) Courant en fonction de la pression

Nous avons effectué des mesures de courant en augmentant progressivement la pression d'hydrogène et en relevant le courant correspondant, au niveau du diaphragme, puis nous avons procédé à la même expérience en diminuant la pression, Graphe 11.

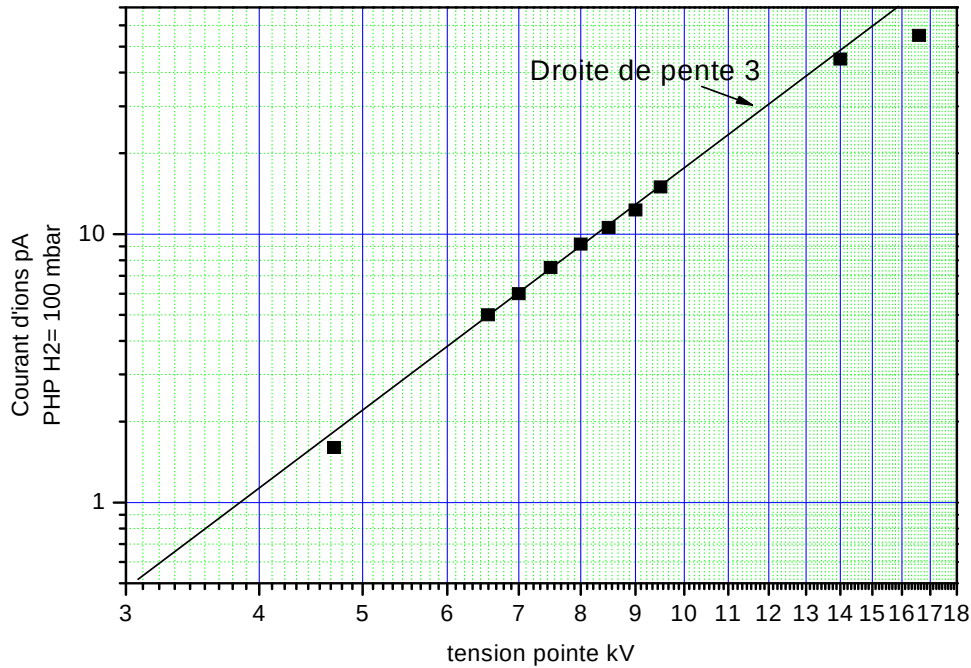


Graphe 11 : Evolution d'un courant d'émission en fonction de la pression d'hydrogène

On peut donc en déduire que le courant est relativement stable d'une expérience à l'autre pour une tension donnée (ici $V=14$ kV). On remarque que le courant a un comportement linéaire avec la pression injectée. Le courant d'ionisation dépend directement de la fonction d'apport en gaz. Cet apport provient d'une part directement de la phase gazeuse et d'autre part de la phase absorbée. Le premier apport est clairement linéaire avec la pression, alors que le second dépend de l'équilibre d'absorption. Il semble probable que dans notre cas, où la température est relativement élevée (ambiante), l'apport direct par le gaz prédomine.

b) Courant en fonction de la tension

Une autre expérience repose sur la mesure du courant d'émission en fonction de la tension appliquée sur la pointe, Graphe 12. La pression d'hydrogène injectée est de 100 mbar.



Graph 12 : Courant d'émission en fonction de la tension pour une pression donnée ($P_{H_2}=100\text{mbar}$)

L'intensité semble croître suivant une loi $I=kV^3$. Ce comportement en puissance semble avoir été observé ^{[ref]12} au-delà d'une tension où la croissance est beaucoup plus rapide.

Nous avons également corrélié les mesures de courants à des observations de l'image et déterminé deux types de régimes.

➤ Un régime faible courant où le diagramme d'émission est constitué de points relativement bien définis et résolus, correspondant aux images des sites émetteurs sur la pointe. Ce régime semble stable dans le temps (au-delà de 60 heures) mais les courants émis sont relativement faibles, inférieurs à 10 pA pour une pointe très fine émettant à 2 kV environ.

➤ Un régime fort courant apparaît brutalement sur la même pointe en augmentant le champ. Le courant émis peut alors s'établir à plus de 100 pA pour une pointe fine et le diagramme d'émission est uniforme. Cependant nous observons qu'au bout de deux heures au maximum, le courant d'émission chute, conduisant nécessairement à augmenter la tension. De nombreuses expériences nous ont amenées à soupçonner la présence d'eau entraînant une corrosion sous champ de la pointe. Nous reviendrons en détail sur ce problème par la suite.

c) Courant en fonction du temps

La stabilité du courant pour des temps longs est un problème complexe et les mesures qui s'y rattachent ingrates. Les raisons en sont nombreuses, la première étant que les paramètres qui interviennent dans la limitation de la stabilité sont des paramètres marginaux. Par exemple, les mesures de stabilité mesurées au laboratoire donnaient des résultats très différents de celles effectuées sur le bâti à Orsay Physics. Une des causes a semblé être la différence entre les lignes d'entrées de gaz, totalement ultra-vide au laboratoire et vide classique à Orsay Physics. Une seconde raison est dans le temps que nécessite la réalisation de ces expériences. Chaque expérience nous amène à l'ouverture de l'enceinte et à la fabrication d'une nouvelle structure. Le seul paramètre qui apparaît correctement refléter le « vieillissement » de la pointe est la valeur de la tension pour un courant donné. Un vieillissement relativement lent facilite la détermination des paramètres intervenants dans la durée de vie. Par exemple, nous avons découvert qu'une trop forte pression « usait » la pointe en fonctionnement. Malheureusement, cela n'est pas toujours le cas, on assiste à des morts « violentes », dont les causes sont difficiles à déterminer. Par exemple comme dans le cas de la corrosion de la pointe par des traces non mesurables d'eau.

Je vais maintenant rapporter une série d'expériences de caractère non systématique dont le but était de comprendre les résultats différents concernant la durée de vie de la source et d'en accroître la valeur. Nous soupçonnions des impuretés, en particulier de la vapeur d'eau, d'en être responsable.

Sur les premières mesures de durée de vie, on avait remarqué que le courant relevant d'une pointe très fine, i.e en début d'expérience, était instable. Il était donc nécessaire d'augmenter le potentiel appliqué sur la pointe pour maintenir un courant constant. En effet, la surface d'une pointe neuve présente des micro-aspérités instables (oxydes, petits agrégats) qui par évaporation de champ se dissocient entraînant une augmentation du rayon de courbure.

La Figure 13 illustre ce comportement. Le courant, mesuré sur la membrane, finit par se stabiliser en même temps que l'extrémité de la pointe grossit légèrement. Pour un courant de 20 pA, la tension de départ de 2,5 kV finit par atteindre 5 kV au bout de 3 heures pour un courant de quelques pA. Ce courant est stable pendant 15 heures puis chute progressivement, Figure 14. Il faut alors réajuster la tension pour rétablir le courant.

De façon générale, des durées de vie de l'ordre de 14 à 16 heures sont mesurées pour des courants de l'ordre de quelques pA, pour des pressions de l'ordre de 50 mbar d'hydrogène. Nous avons observé, qu'à plus haute pression au-delà de 200 mbar, la décroissance du courant est plus rapide (~ 1 h voire moins). Pour tenter d'éliminer les impuretés pouvant provenir du gaz, nous avons rajouté un piège à azote liquide dans le circuit d'introduction de gaz et pour éliminer les traces d'eau nous avons également procédé systématiquement à des étuvages. Seules de légères améliorations se sont révélées.

Nous avons remarqué que la fin de vie de la pointe, lorsque le courant diminue rapidement, s'accompagnait d'une augmentation très significative du bruit, Figure 14. Ce régime bruité pouvait même donner lieu à un régime pulsé. La Figure 15 montre ces oscillations obtenues à l'aide d'un oscilloscope branché en série avec le circuit de la pointe, la fréquence des pulsations est de 80 Hz pour une tension appliquée sur la pointe de 11 kV.

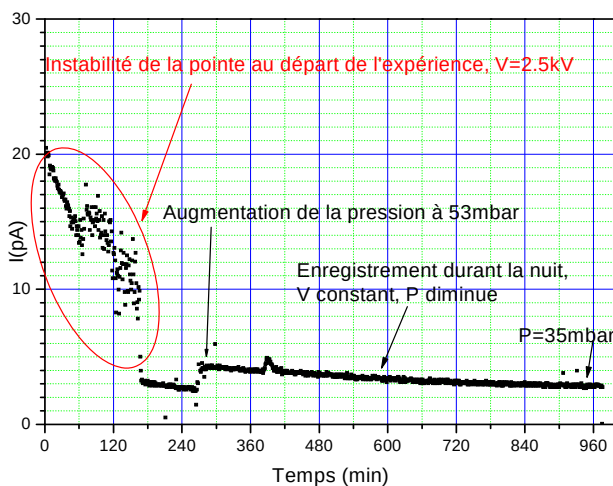


Figure 13 : Mesure de stabilité sur une pointe de tungstène

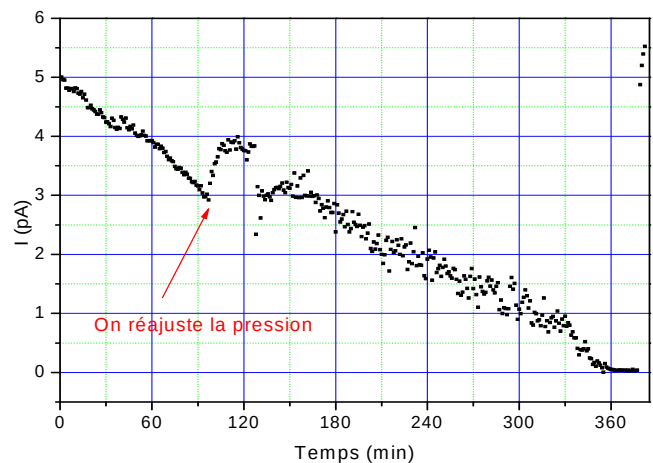


Figure 14 : Décroissance du courant avant réajustement de la tension à 5.5kV, $P_{H_2}=50$ mbar

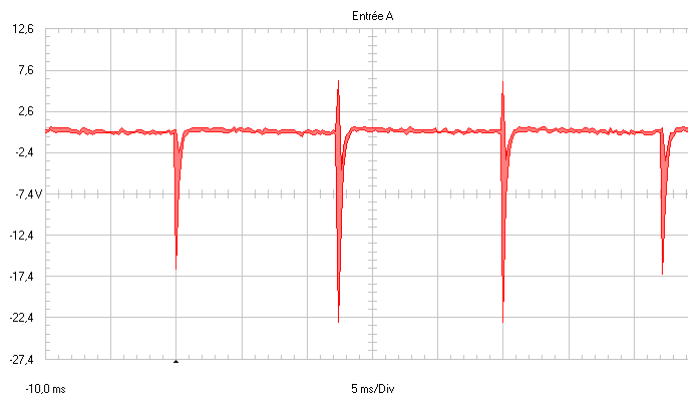


Figure 15 : Spectre des pulsations observées

La fréquence de ces pulsations varie alors en fonction de la tension appliquée sur la pointe : de 40 Hz pour 9.9 kV à 80 Hz pour 11 kV.

Nous avons alors essayé de déterminer l'origine de ces pulsations. Ces mesures ont été associées à des images de microscopie. Les pulsations, lorsqu'elles sont suffisamment espacées, nous permettent de voir une image de la membrane. Les images sont ainsi brouillées au rythme des pulsations. Après plusieurs heures de fonctionnement, nous avons alors constaté, l'apparition d'un arc électrique dans le tube en céramique, bien visible sur la Photo 3.

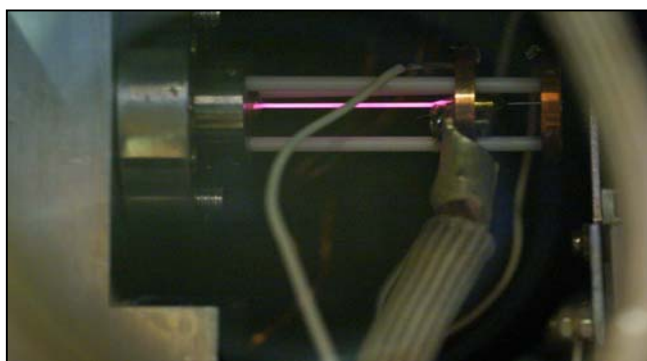


Photo 3 : Image de l'arc électrique à l'intérieur du tube en céramique, $P_{H_2}=45\text{mbar}$, $V=9\text{kV}$

Ces pulsations traduisaient donc le début de l'apparition de l'arc électrique dans le tube en céramique. Sous l'effet du fort champ électrique, les électrons libres du gaz sont accélérés et deviennent assez énergétiques pour ioniser d'autres atomes, ce qui entraîne la production d'électrons supplémentaires qui sont accélérés par le champ électrique et ainsi de suite. Si la différence de potentiel est suffisamment élevée, c'est-à-dire s'il dépasse la valeur seuil nécessaire à l'amorçage de la décharge, on aura une cascade de collisions (entre électrons et molécules de gaz) : c'est le phénomène d'avalanche. Le processus d'ionisation augmente alors considérablement ce qui conduit à l'ionisation partielle du gaz qui devient conducteur et ainsi forme un plasma.

Nous avons alors supposé que c'était l'arc qui finissait par détruire la pointe de tungstène et non une lente corrosion. Nous avons d'abord pensé à une action de l'hydrogène qui en passant à travers le tube pouvait produire une réduction de l'alumine, la rendant ainsi conductrice et susceptible d'être la cause du déclenchement de l'arc. Nous avons essayé de traiter la céramique sous vide. Pour ce faire, nous avons fait plusieurs expériences, en introduisant dans le tube en céramique de l'air, de l'oxygène et même de l'azote avec et sans étuvage. Une régénération timide de la pointe est obtenue mais l'arc finissait toujours par réapparaître.

Apprenant que de l'eau pouvait être présente en grande quantité dans les colles, il nous est venu l'idée d'agir directement sur le tube en céramique, avant la mise sous vide de la structure. La stratégie adoptée a été d'étuver la structure à 100°C pendant 12 heures à l'air. Comme nous pouvons le voir sur la Figure 16, ce traitement s'avère radical en ce qui concerne la durée de vie. Dans cet exemple, pour un courant de l'ordre de 10 pA, à 50 mbar la structure a fonctionné pendant plus de 14 heures. L'apparition d'un arc électrique nous a amenés à augmenter la pression jusqu'à 120 mbar. A partir de là, la structure a fonctionné pendant 50 heures en conservant la même valeur de tension. On a ensuite arrêté volontairement les expériences. Cependant, on constate qu'à chaque réajustement de la pression, on observe une augmentation du courant suivie d'une décroissance. A ce stade, il nous semble donc important de réguler automatiquement et non manuellement la pression afin de conserver une valeur de pression constante.

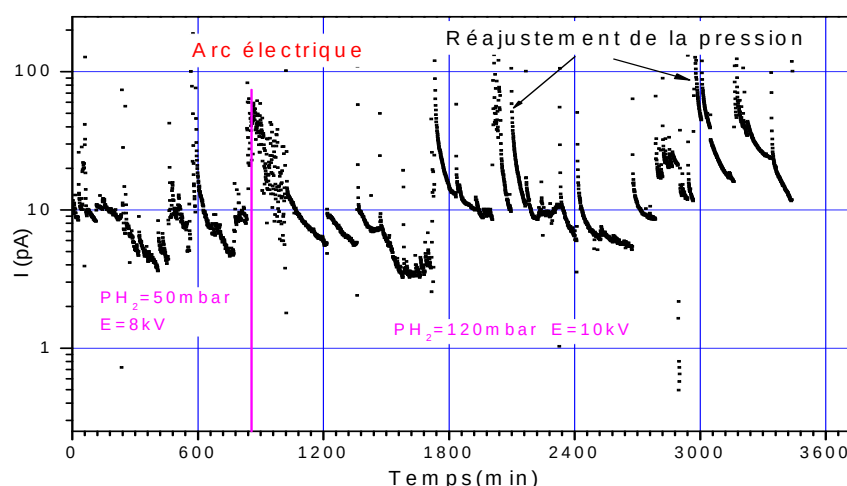


Figure 16 : Courbe du courant en fonction du temps pour la structure ayant été préalablement chauffée 12 heures

Pour des valeurs de courant proche de 1 pA avec 50 mbar de pression d'hydrogène, il semble que la structure soit totalement stable, pas de variations sur le courant pendant plus de 15 jours de fonctionnement.

En conclusion, cette étude de la durée de vie nous a conduits à compléter le protocole de fabrication de la source à structure coaxiale par un recuit sous atmosphère à une centaine de degrés pendant une douzaine d'heures.

II-1-2- Ionisation de l'eau

Lors des premières expériences, nous avons constaté que le passage à un régime d'émission à fort courant, que nous avons décrit précédemment (cf Chapitre III-II-1-1), ne se produisait que sur des pointes lors de leur première utilisation. Nous avons alors pensé dans un premier temps à la présence d'un oxyde natif en bout de pointe, puis à la présence d'eau résiduelle à l'intérieur du montage. Ces considérations étaient supportées par quelques expériences de remise à l'air en particulier. Ainsi, cette étude des conditions du passage en régime fort courant, lors de l'utilisation de l'hydrogène, nous a amenés à introduire volontairement de l'eau pure ou un mélange hydrogène-eau. D'autre part, comme nous avons pu le voir, l'eau joue un rôle important sur la durée de vie.

Ce corps présente à l'ambiante une pression de vapeur saturante proche de 20 mbar. Nous avons ainsi pu ioniser l'eau avec des pressions amont de cet ordre et observer l'ionisation à des tensions bien plus faibles que l'hydrogène (environ un facteur 2 à 3 correspondant à des champs de l'ordre de la fraction de $V/\text{\AA}$). Sur la Figure 17, en présence d'hydrogène à 400mbar, le diagramme d'émission observé est inhomogène ce qui traduit des variations du champ électrique à la surface de la pointe, par contre sur la Figure 18, en présence d'eau à 10mbar, le diagramme d'émission est homogène et le courant est quinze fois plus élevé. En présence du mélange hydrogène-eau, Figure 19, la tension peut être diminuée d'un facteur deux tout en conservant la même valeur du courant.

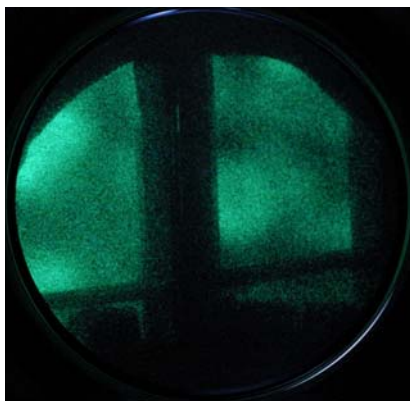


Figure 17 : Diagramme d'émission avec l'hydrogène, $P_{H_2}=400\text{mbar}$, $V=10\text{kV}$, $I=2\text{pA}$



Figure 18 : Diagramme d'émission avec l'eau (10mbar), $V=11\text{kV}$, $I= 30\text{pA}$

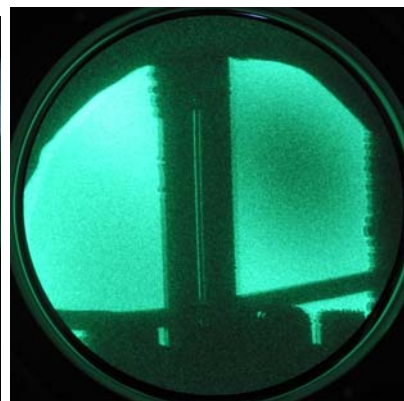


Figure 19 : Diagramme d'émission avec le mélange hydrogène (400mbar)-eau (12mbar), $V=4.8\text{kV}$, $I= 30\text{pA}$

Nous avons effectué des mesures de courant d'ions en fonction de la tension appliquée sur la pointe, dont la Figure 20 en est un exemple, suivant trois contextes différents :

- en introduisant seulement de l'hydrogène,
- en introduisant seulement de l'eau,
- en introduisant le mélange eau-hydrogène, typiquement plusieurs centaines de mbar d'hydrogène pour 10 à 20 mbar d'eau.

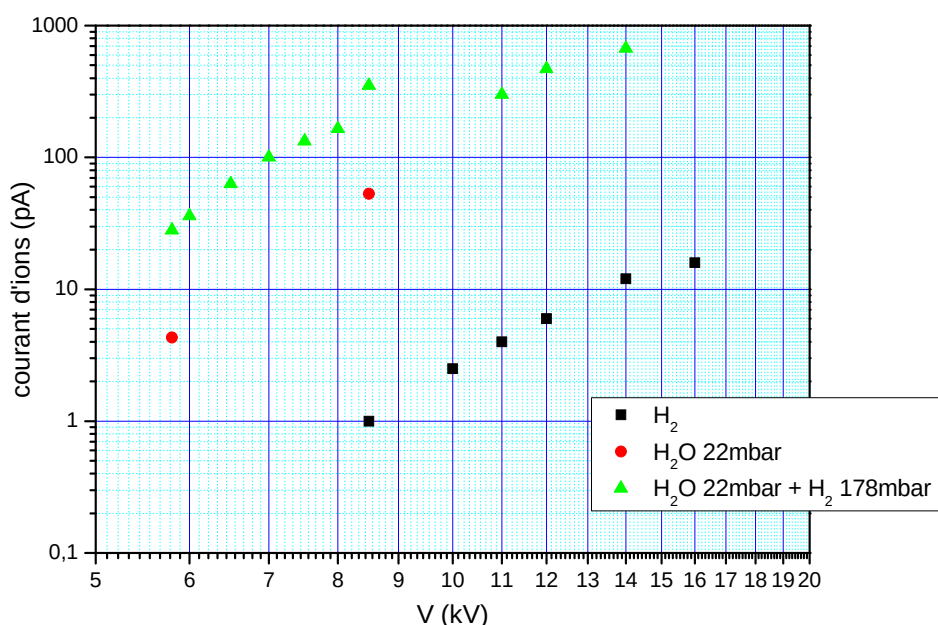


Figure 20 : Courant d'émission en fonction de la tension appliquée sur la pointe lorsque l'on introduit de l'eau

Lorsque l'hydrogène pur est introduit, le courant d'ions est de 1 pA pour 8.5 kV, alors qu'il est de 53 et 350 pA lorsque l'eau et le mélange eau-hydrogène sont introduits respectivement. L'addition d'eau puis l'addition d'hydrogène sur l'eau, provoquent une augmentation notable du courant d'ions et des courants d'émission de plusieurs nA sont même mesurés. Notons que seulement deux points sont présents lors de l'introduction d'eau. En effet, le fait que nous travaillons à faible pression favorise la formation d'arcs à haute tension.

Deux points contribuent à un fort courant d'ions dans le cas de l'eau. Premièrement, la faible valeur du champ d'ionisation ^{[ref]17}, deuxièmement la forte valeur de la fonction d'apport attendue vu la pression proche de la pression de vapeur saturante, d'une part et d'autre part la forte polarisabilité de la molécule d'eau qui favorise sa condensation dans les zones de champ fort.

Après calibrage avec l'hydrogène, nous avons pu identifier la nature des ions produits par l'ionisation de l'eau. Son spectre comporte deux raies peu déviées correspondant alors à deux ions de masses lourdes, Figure 21.

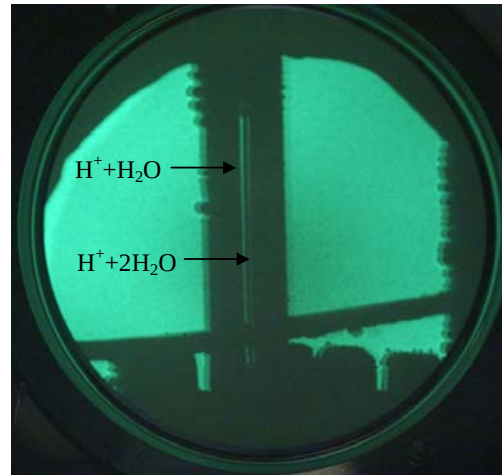
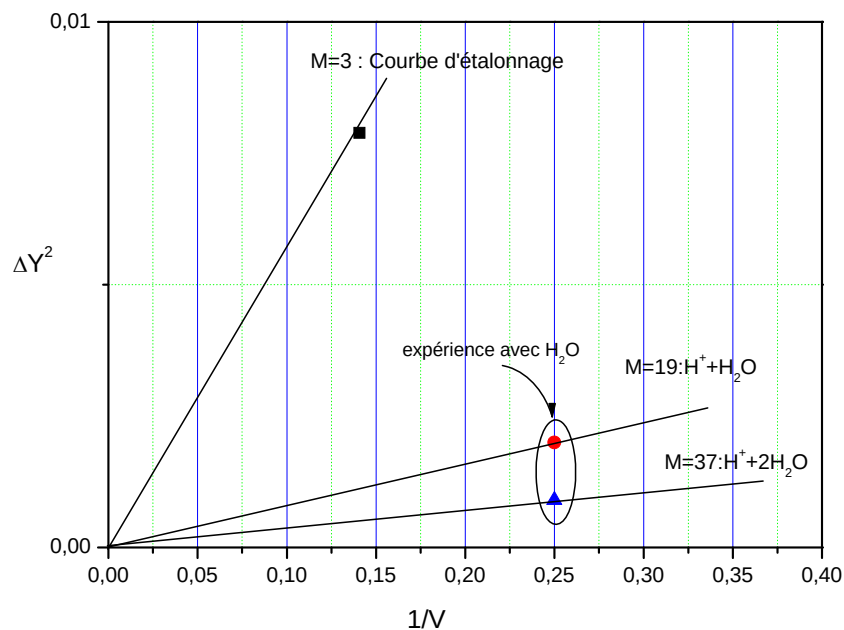


Figure 21 : $P_{H_2O}=12$ mbar, apparition de deux ions de masses lourdes, $M=19 : H^+ + H_2O$ et $M=37 : H^+ + 2H_2O$, $V=3.9kV$, $I=6pA$

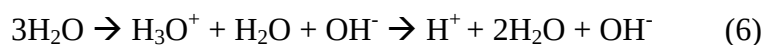
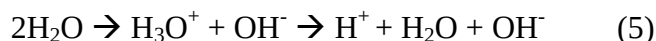
Ces images sont obtenues à des tensions beaucoup plus faibles, 3.9 kV au lieu de 7.1 kV dans le cas de l'hydrogène.

Le Graphe 10 permet de tenir compte de ce changement d'énergie pour le calibrage en masse. A la précision des mesures près (de l'ordre d'une à deux masses atomiques) les ions produits sont de masses 19 et 37, correspondant aux ions $H^+ + H_2O$ et $H^+ + 2H_2O$, respectivement, comme précédemment observé par Anway ^{[ref]17}. Notons, là encore comme dans le cas de l'hydrogène, l'énorme différence de pression dans lesquelles ces expériences ont été réalisées, Dans le cas de Anway, la pression injectée était de 2.10^{-4} mbar alors que dans notre cas elle est de 12 mbar.



Graph 13 : Zoom de la partie du Graphe 9 qui correspond aux ions lourds

Le mécanisme de formations de ces ions serait dû aux réactions de dissociation de l'eau selon les processus (5) et (6):



D'autre part, Anway^{[ref]17} invoque la formation d'adsorption en multi-couches de l'eau en bout de pointe due à l'action du champ électrique.

Dans nos expériences, l'émission ionique semble être initiée sur le cône et progresser vers le bout de la pointe tout en présentant une certaine hystérésis. Ceci nous a semblé supporter le modèle d'un cône d'eau se formant en bout de pointe sous l'action des forces électrostatiques. Nous avons tenté directement de mettre en évidence expérimentalement la formation de ce cône. Pour cela, nous avons construit une mini-chambre à vide permettant l'observation microscopique du bout de la pointe. La Figure 22 montre cette chambre. Nous avons utilisé un système de pompage constitué d'une pompe primaire et d'une pompe turbomoléculaire, couplé à un système d'amortissement. Le vide atteint est de l'ordre de 10^{-5} mbar.

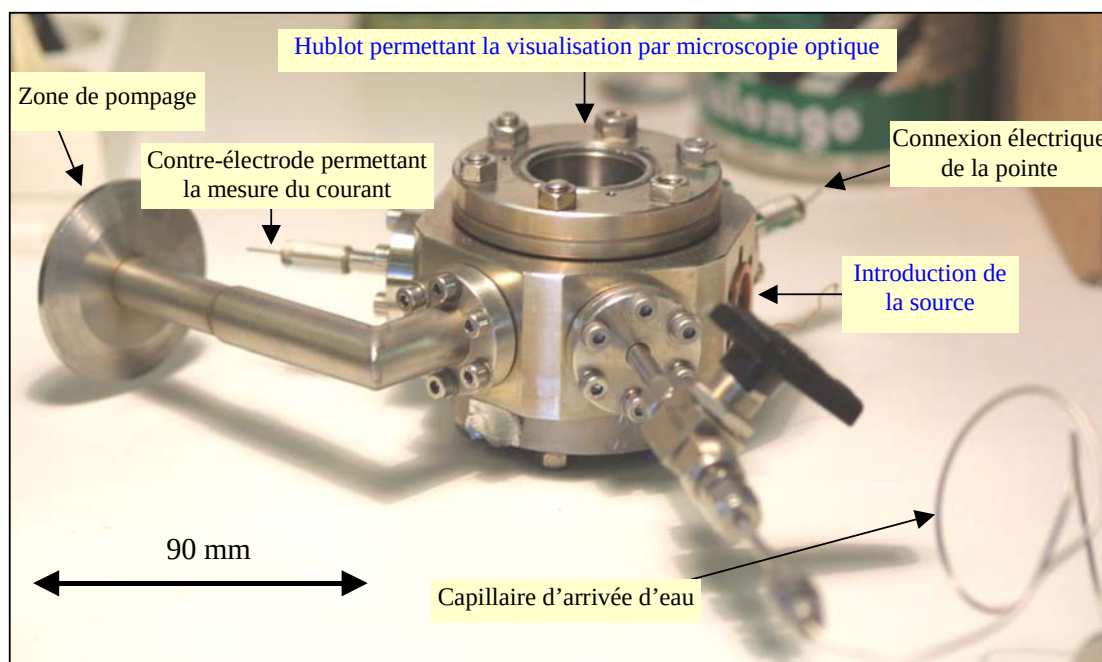


Figure 22 : Image de la chambre à vide

L'observation microscopique s'effectue par le dessus, par un hublot rentrant permettant la mise au point sur le bout de la pointe, Figure 23.

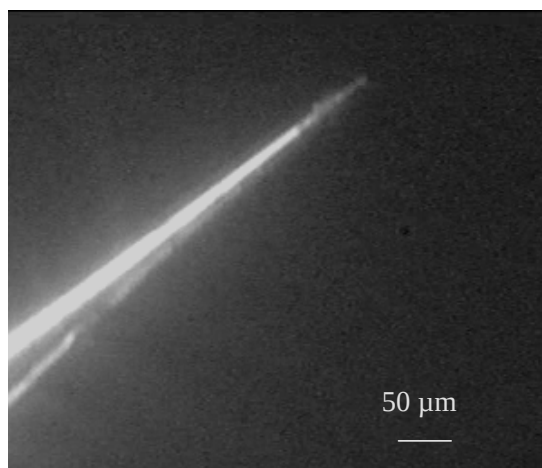


Figure 23 : Image en microscopie optique de la pointe en tungstène

La pointe est introduite sur la mini bride vue de face. Elle est alimentée en gaz/eau par le tube via la vanne vue en avant-plan. Le pompage est effectué par la bride de gauche. Les alimentations électriques et mesures de courant sont effectuées sur les brides restantes. En augmentant progressivement la tension on observe à 6kV un arc électrique.

Le cône d'eau n'a pas été directement observé probablement par manque de résolution, à cause des vibrations résiduelles dues au pompage. Par contre, la croissance d'un dépôt blanchâtre et la récession de la pointe en tungstène ont clairement été observées pour une tension de 5kV. On pense alors à la présence d'un oxyde produit par la décomposition de l'eau en présence d'un champ électrique intense mentionnée par Müller ^{[ref]16}. Ce domaine, peu étendu en début d'expérience, grandit au cours du temps.

La micro-analyse X du microscope électronique à balayage (MEB) ne nous a pas permis d'identifier ce dépôt blanchâtre, ni de mettre en évidence la présence d'oxyde invoquée par Anway ^{[ref]17} et mentionnée par Cocke et Block ^{[ref]10}. Cependant, nous ne pouvons pas nier qu'en présence d'eau, la surface de la pointe subissait une modification notable, Figure 24, Figure 25 et Figure 26.

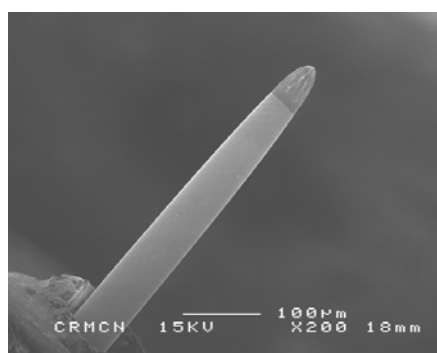


Figure 24 : Image MEB de la pointe en tungstène après l'expérience, grandissement x200

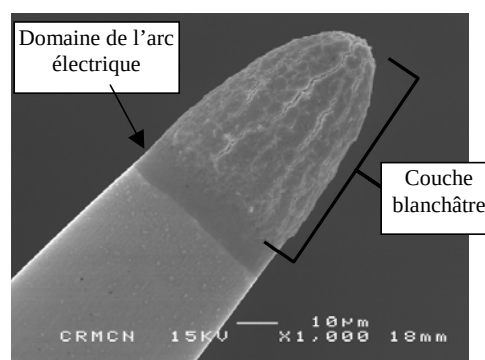


Figure 25 : Image MEB de la pointe en tungstène après expérience, grandissement x1000

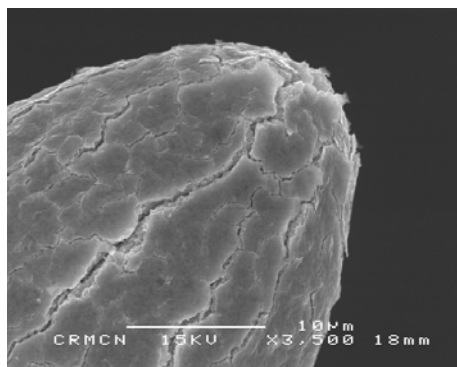


Figure 26 : Image MEB de l'apex de la pointe en tungstène après expérience, grandissement x3500

A la suite de ces observations, nous avons décidé de refroidir le gaz à l'azote liquide afin de condenser l'eau dans un piège.

Résumé sur une pointe en tungstène :

En ionisant de l'hydrogène, on obtient :

- Par spectroscopie de masse :
 - 2 types d'ions hydrogène : H^+ à fort champ, H_2^+ à bas champ,
 - observation des ions H_3^+ probablement d'origine « catalytique »,
 - 1 ion de masse « lourde » : $H^+ + H_2O$ sur une pointe oxydée,
- Par des mesures de courant :
 - deux régimes de courant : fort et faible,
 - une durée de vie pouvant aller au-delà de 60 heures,
- Par microscopie à projection :
 - un grandissement de 545.000,
 - une résolution de $3\text{\AA}$,
 - une taille de source inférieure à $3\text{\AA}$,
 - une production de neutres à haute pression,
 - une image en projection avec des neutres,

En ionisant de l'eau, on obtient :

- 2 ions : $H^+ + H_2O$ et $H^+ + 2H_2O$,
- un courant intense à bas champ, x10 par rapport à l'hydrogène,
- une corrosion sous champ de l'apex de la pointe,

En introduisant le mélange eau-hydrogène, on obtient :

- une augmentation considérable du courant d'ions, x100 par rapport à l'hydrogène.

II-2- Pointes en platine

Pour tenter de résoudre les problèmes de corrosion sous champ observés avec le tungstène nous nous sommes tournés vers un autre matériau, le platine, pour la fabrication des pointes. Celui-ci, de part son inertie chimique plus grande est un bon candidat. Le champ d'évaporation est plus faible pour le platine que pour le tungstène, $4,42\text{V}/\text{\AA}$ et $5,5\text{V}/\text{\AA}$ respectivement. De ce fait, le champ d'ionisation du gaz ne pourra être aussi élevé que dans le cas du tungstène sans provoquer une altération de la pointe par désorption de champ du platine.

Dans cette étude, les aimants permanents ont été remplacés par un électroaimant dont l'utilisation est beaucoup plus flexible. Dans l'identification des ions, nous devons alors tenir compte du courant, I , parcourant la bobine de l'électroaimant qui est proportionnel au champ magnétique. Rappelons que la déviation est donnée par $\Delta Y^2 = f(I^2/V)$.

II-2-1- Ionisation de l'hydrogène

Les essais avec l'hydrogène ont démontré des courants pouvant monter jusqu'à 20 pA pour des tensions relativement élevées sans altération de la pointe. Nous rappelons que dans le cas du tungstène des courants de plus de 100 pA ont été obtenus pour des tensions sensiblement plus faibles correspondant donc à des pointes plus fines.

Les ions formés, Figure 27, ont été identifiés et se sont révélés être les mêmes que pour les pointes en tungstène, i.e. H_2^+ et H^+ . Notons que pour les Figure 27 à Figure 30, la déviation est vers la droite contrairement aux autres images où la déviation est vers la gauche.

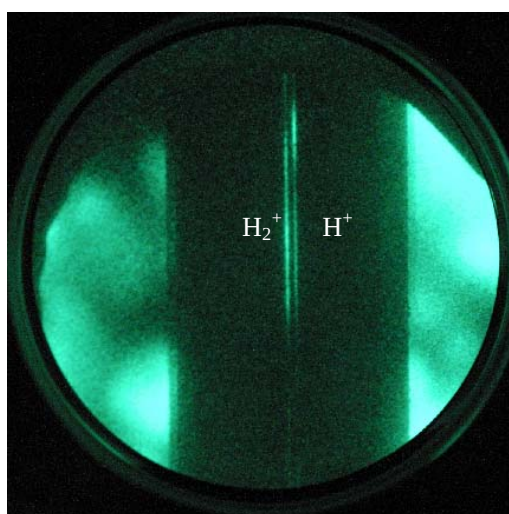


Figure 27 : $P_{\text{H}_2} = 170\text{ mbar}$, $V = 10\text{ kV}$, $I = 5.6\text{ pA}$

En particulier nous avons ainsi pu montrer que dans le cas de l'hydrogène pur :

des ions H_2^+ étaient majoritairement formés à bas champ, Figure 29,

des ions H^+ étaient majoritairement formés à fort champ, Figure 30,

la Figure 28 correspond au cas intermédiaire où les intensités des deux ions est approximativement la même.

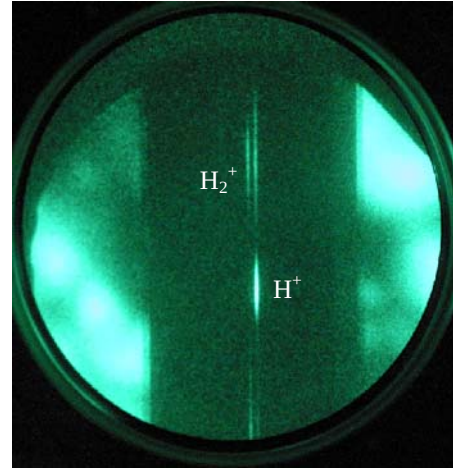
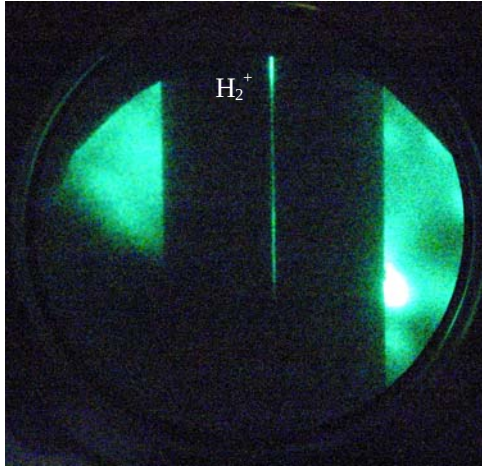


Figure 29 : $P_{H_2}=160 \text{ mbar}$, $I=0.3 \text{ pA}$, $V=7 \text{ kV}$ Figure 30 : $P_{H_2}=160 \text{ mbar}$, $I=11 \text{ pA}$, $V=11 \text{ kV}$

Rappelons qu'un même point d'émission de la pointe produisant deux ions donne lieu à deux images de la fente correspondant à la même côte. Ainsi, sur la Figure 31, on constate que la région supérieure de la pointe émet sensiblement autant de H_2^+ que de H^+ alors que la région centrale émet majoritairement du H^+ . Ce fait va être interprété dans la suite en terme de différence de valeur du champ électrique en différents sites de la pointe.

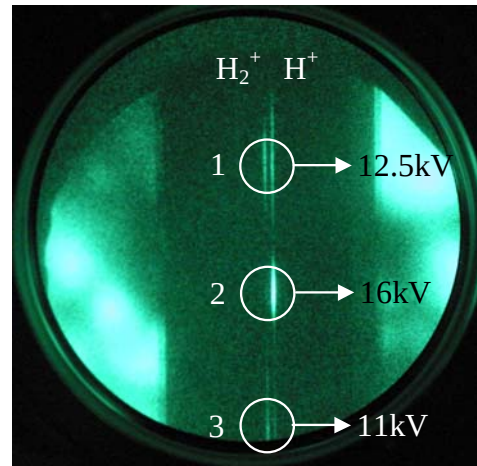
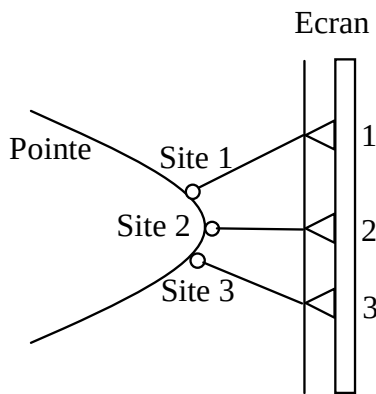
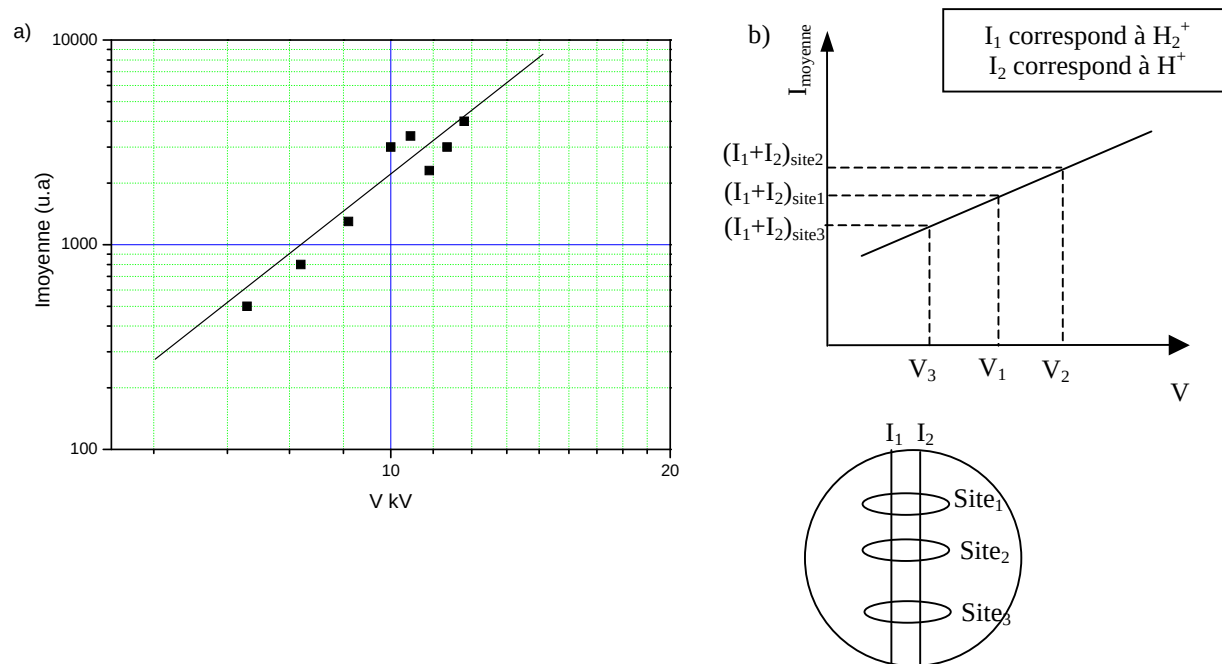


Figure 32 : $P_{H_2}=160 \text{ mbar}$, $V=11 \text{ kV}$, $I=11 \text{ pA}$

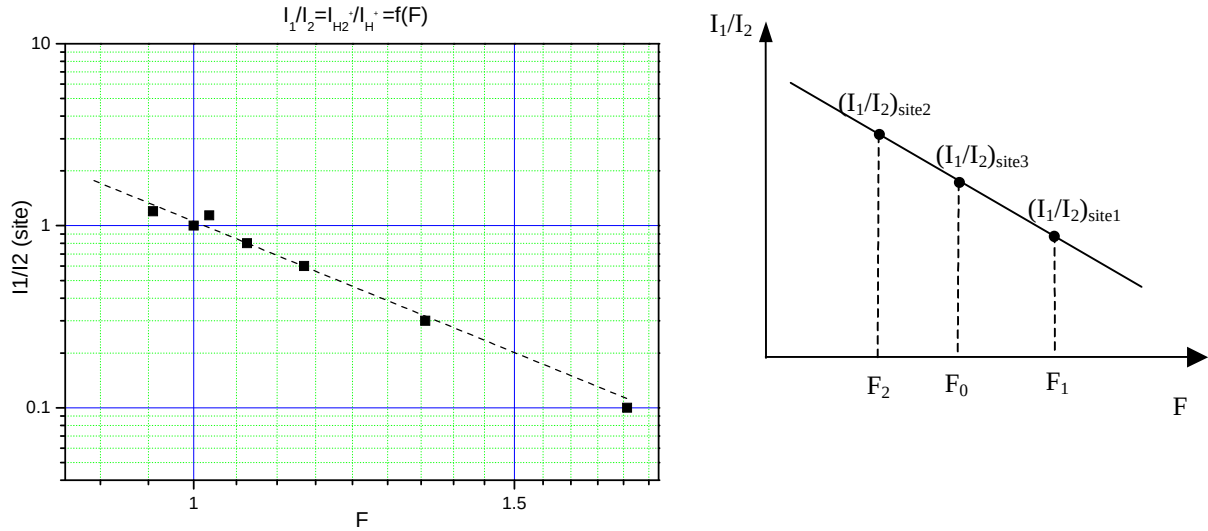
Pour cela, sur le Graphe 14, on a tracé l'intensité moyenne des deux intensités en fonction de la tension. Cette intensité moyenne a été calculée comme l'intégrale du courant le long de la

fente sur plusieurs images. Pour analyser maintenant les variations locales, Figure 33, on calcule l'intensité moyenne sur un site, par exemple le Site 1 que l'on reporte sur la courbe moyenne pour la valeur de tension pour laquelle l'image a été prise. Des tensions sont obtenues pour les autres sites en reportant alors la somme de l'intensité des deux ions sur la courbe d'intensité moyenne. On en déduit une tension correspondant au site étudié. Un schéma résume la démarche appliquée, Graphe 14-b). L'hypothèse faite est que le champ reflète à la fois l'intensité globale et le rapport des pics.



Graphe 14 : a) Intensité moyenne des deux raies en fonction de la tension sur la pointe, b) schéma permettant l'identification de la tension relative à un site

Les différences de tension en fonction du site reflètent les différences de champ. Notons que ces différences sont relatives puisque nous avons arbitrairement attribué la tension de la pointe au site 1. De même, on trace la courbe $(I_1/I_2)=f(F)$. On calcule le rapport des intensités des ions en fonction du champ. Pour déterminer le champ, on déduit un champ arbitraire, F_0 , pour $I_1/I_2=1$ et on en déduit un champ relatif.



Graphe 15 : a) I_1/I_2 suivant différents sites d'une même image en fonction du champ, b) schéma permettant l'identification du champ relatif à un site

Si on revient à la Figure 32, le site 1 correspond à un potentiel de 12.5 kV et la proportion de H_2^+ et H^+ est la même, on associe un champ F_0 . Par contre, pour le site 2, le potentiel est de 16 kV, correspondant à un fort champ, $F_1=130\%$ de F_0 et les ions H^+ sont prépondérants alors qu'inversement, le site 3 qui correspond à un potentiel de 11 kV (correspondant à un champ plus faible, $F_2=90\%$ de F_0), ce sont les ions H_2^+ qui sont majoritaires, ce qui corrobore les observations de Inghram et Gomer^{[ref]11} et Clements et Müller^{[ref]8}.

Ainsi, il est possible, suivant les proportions respectives des ions émis, de déterminer le champ local. On peut également anticiper que les valeurs moyennes sur l'ensemble de la pointe donnent une idée du champ moyen. L'intérêt de cette analyse est de pouvoir calibrer le champ en « aveugle », ce qui est fort intéressant par exemple pour l'utilisation d'une telle source dans un FIB.

Nous avons également observé la présence d'oscillations temporelles sur une même image, ce qui est illustré sur les Figure 34 et Figure 35. Ces oscillations se traduisent par l'apparition d'une ou deux images de la fente pour une tension de 7.05 kV et une pression de 156 mbar d'hydrogène, i.e de l'émission alternée de l'ion H_2^+ et de l'ion H^+ . Ces oscillations sont également associées à des variations d'intensité, entre 9 pA et 14 pA. Lorsque l'intensité est la plus faible H_2^+ et H^+ coexistent et donc deux images de la fente sont visibles, Figure 35, par contre lorsque l'intensité est maximale seuls les ions H_2^+ sont émis, Figure 34.

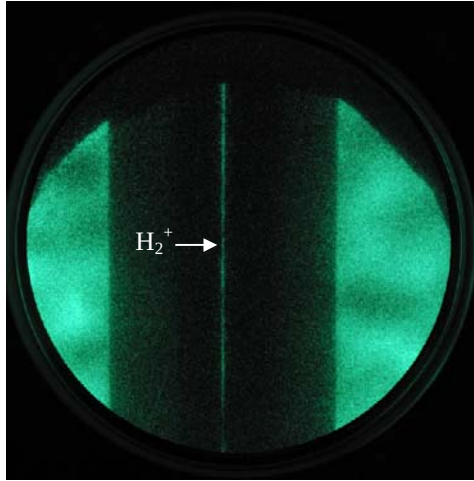


Figure 34 : Photo correspondant aux ions H_2^+ , $P_{H_2}=156\text{mbar}$, $V=7.05\text{ kV}$, $I=14.5\text{pA}$

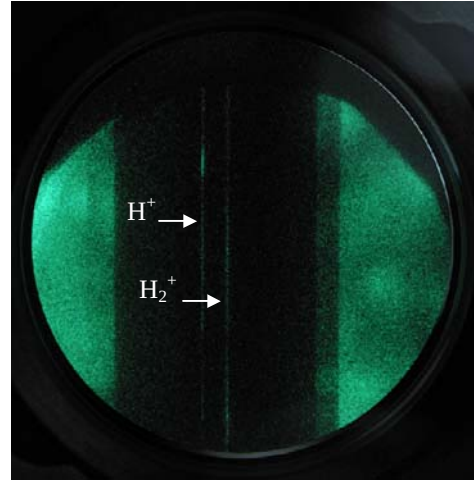


Figure 35 : Photo correspondant à H^+ et H_2^+ , $P_{H_2}=156\text{ mbar}$, $V=7.05\text{kV}$, $I=9\text{pA}$

Ces oscillations peuvent être expliquées par la présence de deux forces qui s'opposent. Une force qui aura un effet déstabilisant, due à la croissance par champ des atomes de platine proéminents à la surface de la pointe. Ces sites vont former des micro-pointes qui vont s'affiner de nouveau sous l'effet du champ qui se renforce d'autant plus. Cependant la tension de surface aura tendance à stabiliser le système par la polarisation des atomes de gaz due au bombardement de neutres à la surface de la pointe. Cette polarisation crée une élévation de la température qui aura pour effet d'éroder les micro-pointes. Ce système instable se produit pour un champ particulier correspondant dans ce cas à 7kV et tend à se stabiliser au-delà ou en-deçà de cette valeur. De telles oscillations ont été observées sur le platine avec un mélange H_2/O_2 et H_2/H_2O par J.H. Block et al ^{[ref]23 [ref]24}.

Lorsque nous travaillons à une pression de 100 mbar d'hydrogène et à forte tension appliquée sur la pointe, 10 kV, il apparaît alors trois raies (correspondant à trois images de la fente), Figure 36-a). Une raie correspond à des ions H^+ , une autre plus intense à des ions H_2^+ et une troisième raie se distingue à gauche des ions H_2^+ , il s'agit d'une image non déviée de la fente.

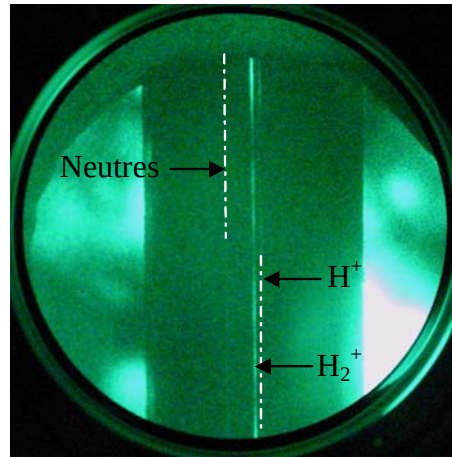


Figure 36 : Apparition des neutres, $P_{H_2}=100\text{mbar}$, $V=10\text{kV}$, $I=7\text{pA}$

De manière analogue à ce qu'on a observé sur le tungstène à haute pression, cette raie est très probablement associée à un processus de neutralisation avant la déflexion.

Dans d'autres conditions, à savoir pour une pression d'hydrogène de 110 mbar et une tension de 16 kV, nous voyons quatre raies, Figure 37. Trois raies peuvent être facilement identifiées. Elles correspondent à :

- des neutres, dont l'image de la fente n'est pas déviée,
- des ions H^+ , raie très peu intense,
- des ions H_2^+ majoritaires, raie très intense.

La présence de la quatrième raie ne peut s'expliquer que par un déficit en énergie, sans quoi il faudrait considérer une masse inférieure à H^+ ou un ion multi-chargé d'hydrogène. On peut estimer le déficit en énergie expérimentalement. En effet la déflexion est proportionnelle à $1/V^{1/2}$, si on compare la déflexion associée à la quatrième raie et celle des ions H^+ , on en déduit que le déficit en énergie est donc d'environ 95%. La raie étant bien définie, elle correspond à un processus bien défini en énergie donc en position. Ce phénomène a lieu à une distance d particulière de la pointe.

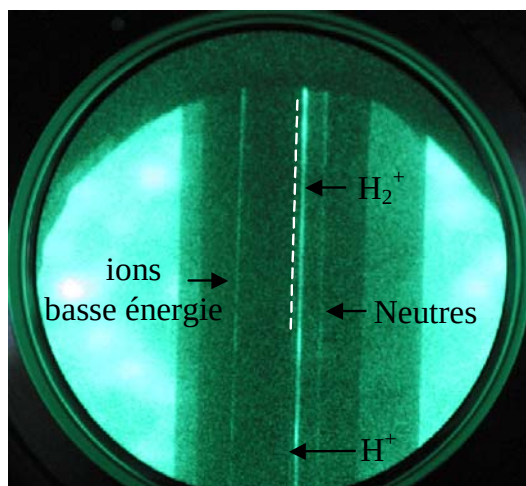


Figure 37 : $P_{H_2}=110\text{mbar}$, $I=23\text{pA}$, $V=16\text{kV}$

La particule ne peut être ionisée près de la pointe car cela conduirait à une énergie élevée. On est donc conduit à envisager une production de neutres au niveau de la pointe qui s'ioniseraient par collision avec un atome de gaz à une distance où le potentiel ne varierait pas trop et correspondrait à environ 5% de la tension de la pointe. Néanmoins, pour que ce processus existe, il faut que le neutre soit suffisamment énergétique. Il faut donc envisager qu'il est généré proche de la pointe à partir d'un ion émis par la pointe. Un schéma résume ce phénomène, Figure 38.

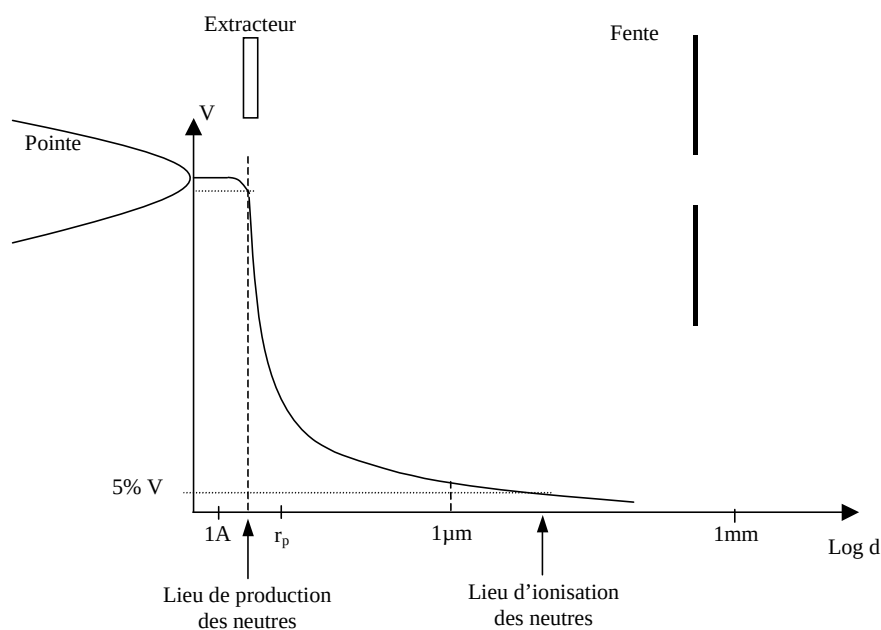


Figure 38 : Schématisation du mécanisme d'ionisation et de neutralisation

II-2-2- Ionisation de l'eau

En début d'expérience, nous avons introduit de l'hydrogène. Nous observons les raies H^+ et H_2^+ , puis nous avons effectué des expériences en introduisant uniquement de l'eau : 12 mbar. De manière surprenante, on détecte essentiellement des ions H^+ et H_2^+ , Figure 39. Nous rappelons que dans le cas du tungstène ce sont les ions H^+ hydratés que l'on observe. Ce résultat est également surprenant car Rothfuss et al^{[ref]20} observent également les ions H^+ hydratés et seulement ceux-ci pour l'ionisation de l'eau sur le platine. Leurs expériences sont néanmoins réalisées dans des conditions expérimentales fort différentes des nôtres (très faible pression ou condensation de quelques couches à basse température).

Si on pompe l'eau et on réintroduit de l'hydrogène, on observe à nouveau la présence des deux ions H^+ et H_2^+ du début de l'expérience.

Néanmoins, si on regarde la position exacte des raies des ions H^+ et H_2^+ produites par l'ionisation de l'eau ou par l'ionisation finale de l'hydrogène par rapport à celles produites par l'ionisation initiale de l'hydrogène, on constate un léger décalage, que l'on peut interpréter par un décalage en énergie. Nous pensons que ce décalage en énergie pourrait provenir de l'ionisation à l'extrémité d'un cône diélectrique d'eau. Le pompage rapide de l'eau avant la réintroduction de l'hydrogène ne permet pas la disparition du cône d'eau.

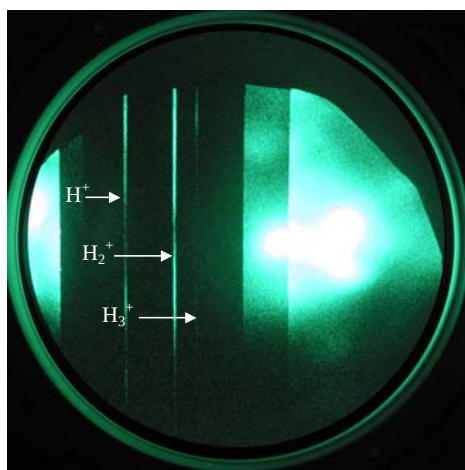
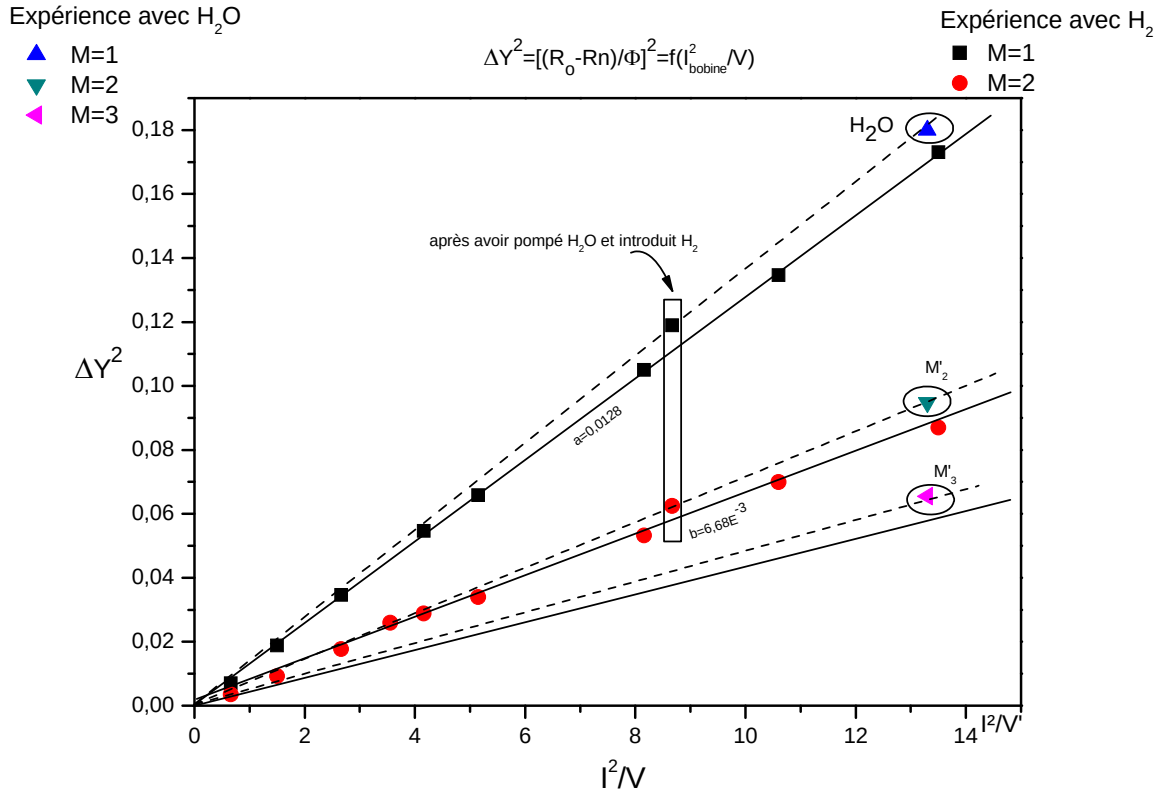


Figure 39 : $P_{H_2O} = 12 \text{ mbar}$, $V = 6.09 \text{ kV}$, $I = 35 \text{ pA}$

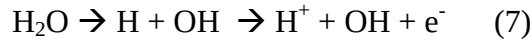
Le Graphe 16, $\Delta Y^2 = f(I^2/V)$ où I est le courant traversant la bobine de l'électroaimant, regroupe les résultats de l'ionisation initiale de l'hydrogène (droites en trait plein), ceux de l'ionisation de l'eau (symbole triangulaire) et ceux de l'ionisation finale de l'hydrogène (entourés du rectangle).



Graphe 16: Identification des ions suivant la tension appliquée sur la pointe et du courant traversant l'électroaimant

Nous avons déjà évoqué la formation d'un cône d'eau dans le cas du tungstène.

Le déficit en énergie nous porte à penser que les ions H⁺ et H₂⁺ seraient produits au bout du cône. D'autre part, leur présence dans le cas du platine et non dans le cas du tungstène plaide en faveur de leur création au niveau de l'interface eau-pointe. En effet, le platine peut être considéré comme un catalyseur pour la dissociation de l'eau suivant le processus (7) étudié par Rothfuss et al ^{[ref]20} :



Par contre dans le cas du tungstène, Anway^{[ref]17} évoque la création de H⁺ hydraté directement à l'interface tungstène-eau. Pour expliquer nos résultats, il nous faut admettre que les ions H⁺ produits à l'interface platine-eau migrent vers l'extrémité du cône d'eau sous l'effet du champ électrique sans acquérir de l'énergie cinétique. En ce point, ils sont transmis dans le vide et commence à acquérir de l'énergie cinétique. Le déficit en énergie, que nous mesurons, correspond à environ 1kV. Le champ d'ionisation étant de l'ordre de 0.5 V/Å, pour un champ constant cela revient à dire que le cône d'eau a une dimension, x, d'environ 2000 Å.

Résumé sur une pointe en platine:

- **En ionisant de l'hydrogène, on obtient :**
 - des ions H_2^+ à bas champ,
 - des ions H^+ à plus fort champ,
 - pour un certain champ : des oscillations d'intensité associées à des oscillations des intensités relatives de H_2^+ et H^+ ,
 - à forte pression des neutres et des ions de basse énergie,
 - une mesure du champ basée sur les intensités relatives de H_2^+ et H^+ ,
- **En ionisant de l'eau, on obtient :**
 - trois ions hydrogène : H^+ , H_2^+ et H_3^+ ,
 - on ne voit pas les ions de l'eau comme sur le tungstène,
 - un courant pouvant atteindre 35pA.
- **Difficulté à fabriquer les pointes.**

II-3- Pointes en palladium

Nous avons également étudié un autre matériau : le palladium. Le palladium est un métal dans lequel l'hydrogène a pu être incorporé de façon réversible. Il présente les avantages de pouvoir être obtenu simplement avec une haute pureté ainsi que d'avoir sa surface qui ne s'oxyde pas à l'air. De plus, la cinétique d'absorption et de désorption de l'hydrogène est relativement rapide, mais surtout le palladium absorbe d'importantes quantités d'hydrogène à température ambiante ^{[ref]21 [ref]22}.

II-3-1- Ionisation de l'hydrogène

Après identification des premiers spectres, nous pouvons affirmer qu'il n'y a pas de différence notable entre l'ionisation de l'hydrogène sur le palladium et celle sur le tungstène ou le platine, car nous observons les ions H^+ et H_2^+ , Figure 40, cependant le courant est assez faible, autour de 2 à 5 pA.

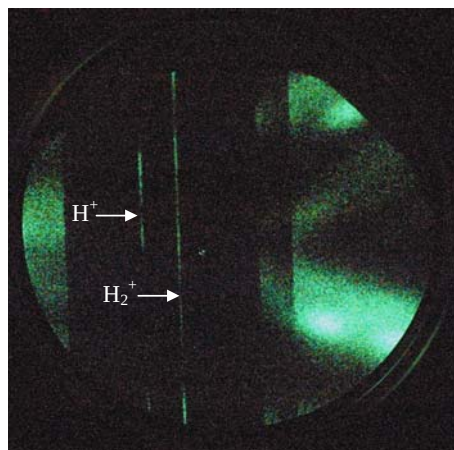


Figure 40 : Pointe en palladium, apparition de deux ions, H^+ et H_2^+ , $V=8kV$, $P_{H_2}=60mbar$, $I=2pA$

II-3-2- Ionisation de l'eau

En présence d'eau, l'intensité augmente considérablement et comme dans le cas du platine les ions H^+ , H_2^+ et H_3^+ apparaissent, Figure 41. Il semble que l'intensité de l'ion H_3^+ soit relativement plus importante que dans le cas du platine.

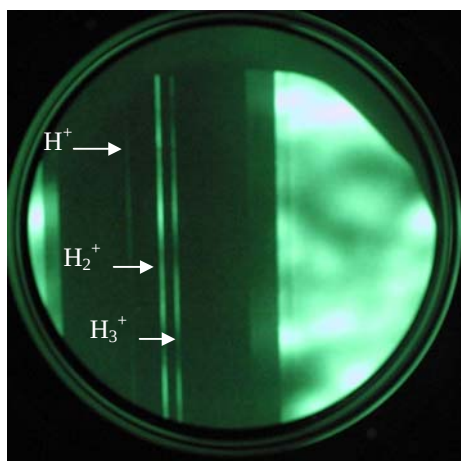


Figure 41 : Pointe en palladium, apparition de 3 ions en présence d'eau, H^+ , H_2^+ et H_3^+ , $V=6.13kV$, $P_{H_2O}=23mbar$, $I=10pA$

Nous avons, en diminuant la tension sur la pointe, vu un quatrième ion apparaître que nous avons identifié comme étant l'ion H_4^+ , Figure 42. Nous pensons que la formation de ces ions est analogue au cas du platine, que nous avons discuté précédemment.

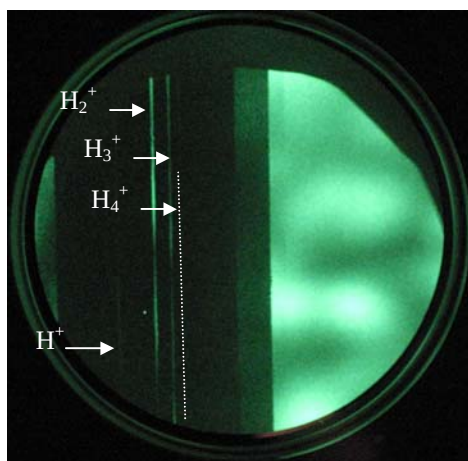


Figure 42 : Pointe en palladium, apparition de 4 ions en présence d'eau, H^+ , H_2^+ , H_3^+ et H_4^+ , $V=4.7kV$, $P_{H_2O}=23mbar$, $I=15pA$

II-3-3- Ionisation du mélange hydrogène-eau

Lorsqu'on rajoute de l'hydrogène à l'eau, on se rend compte que l'intensité augmente considérablement, Figure 43 et Figure 44.

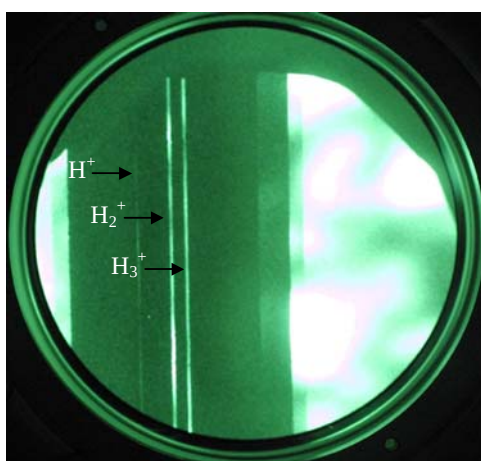


Figure 43 : Pointe en palladium, présence de 3 ions avec le mélange hydrogène-eau, H^+ , H_2^+ et H_3^+ , $V=6kV$, $P_{totale}=46mbar$, $I=70pA$

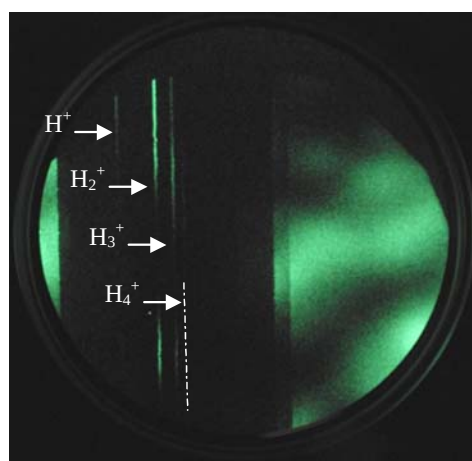
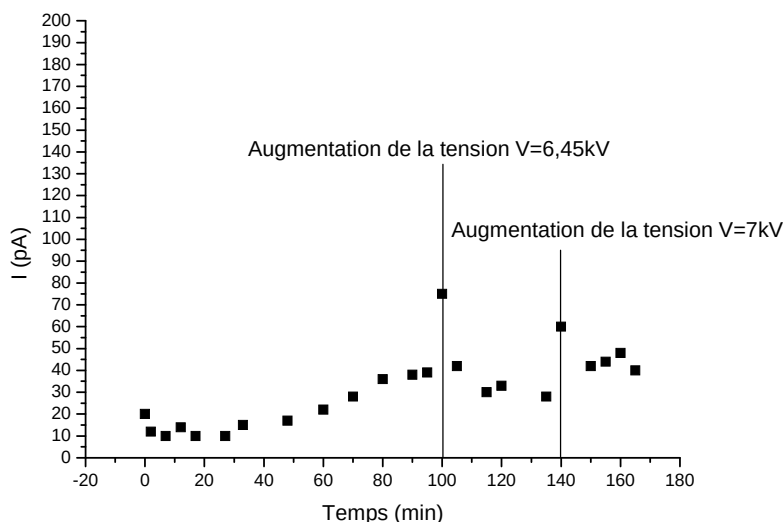


Figure 44 : Pointe en palladium, présence de 4 ions avec le mélange hydrogène-eau, H^+ , H_2^+ , H_3^+ et H_4^+ , $V=4.47kV$, $P_{totale}=46mbar$, $I=30pA$

Nous ne comprenons pas actuellement la raison de ce phénomène. Peut-être une dissolution de l'hydrogène dans l'eau ?

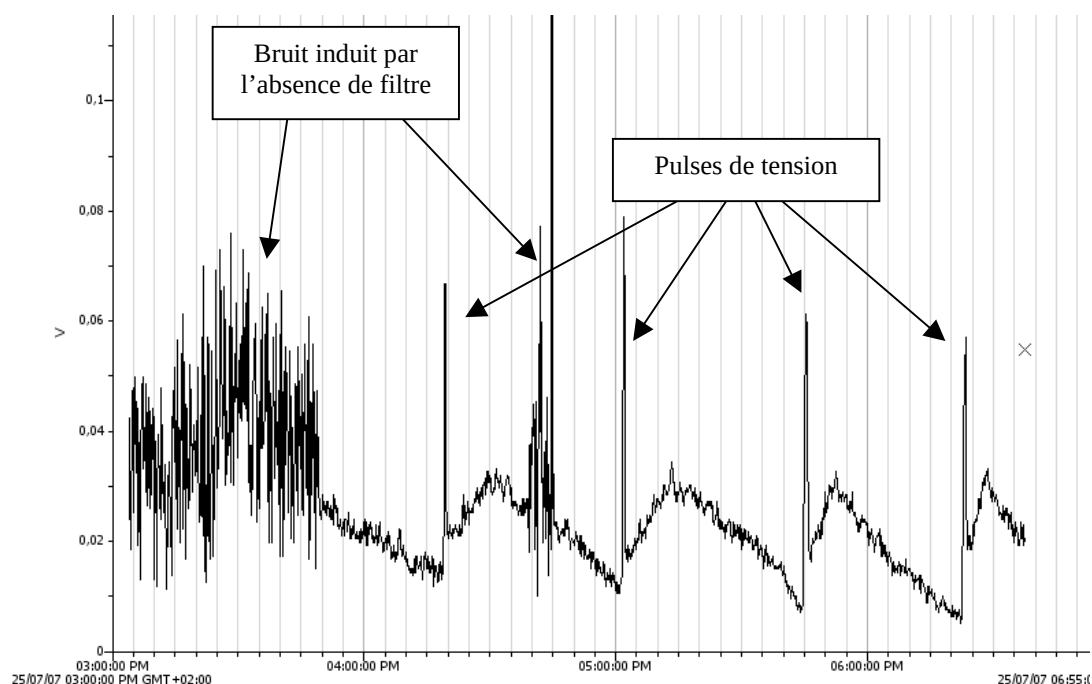
Les résultats obtenus sur les pointes en palladium se sont révélés prometteurs, notamment sur la durée de vie et la stabilité du courant. Des mesures de courant en fonction du temps ont été effectuées manuellement, Graphe 17. Nous avons obtenu des courants de plusieurs dizaines

de pA pendant environ 3 heures pour un mélange eau-hydrogène (23mbar d'eau et 20 mbar d'hydrogène) sans altération de la pointe.



Graphe 17 : Mesures manuelles du courant en fonction du temps, $P_{totale}=43\text{mbar}$

D'autres mesures faites à l'aide d'un enregistreur automatiquement ont permis d'obtenir des courants de 20 pA pendant plus de 50 heures, les expériences étant été arrêtées volontairement. Un autre exemple est donné sur le Graphe 18. L'échelle de tension verticale équivaut à une échelle de courant en nA. Dans cette expérience, on introduit un mélange eau-hydrogène (23mbar d'eau et 20 mbar d'hydrogène). La tension appliquée sur la pointe est de 9kV. Après chaque décroissance du courant, des pulses de tension égale à 10.9kV sont appliqués pendant dix secondes conduisant à un courant de 80pA. Cette opération est effectuée toutes les vingt minutes environ. Nous arrivons ainsi à restaurer le même courant de l'ordre de 20 pA.



Graph 18 : Mesures enregistrées du courant en fonction du temps,

Ces expériences nous montrent que la stabilité parfaite de l'émission est un point perfectible mais qu'il ne semble pas apparaître de phénomènes irréversibles comme dans le cas du tungstène. La pointe utilisée a servi à de nombreuses expériences, il faut certainement tenir compte d'une contamination de l'eau. La Figure 45 montre une photo obtenue en microscopie optique de la pointe en palladium avant d'effectuer les expériences et la Figure 46 après expériences. Nous pouvons observer que le rayon de courbure de la pointe en fin d'expérience n'a sensiblement pas augmenté.

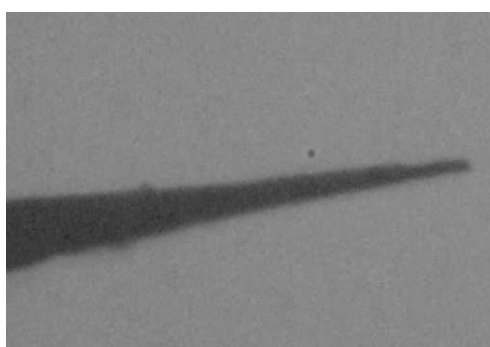


Figure 45 : Pointe en palladium, microscope optique, avant expérience

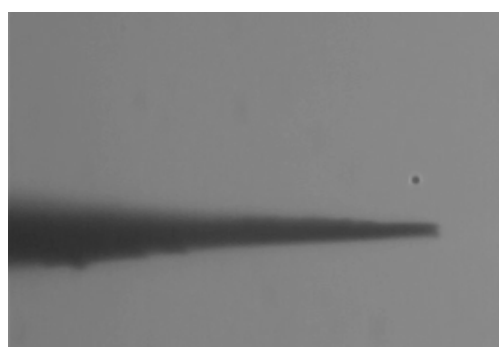


Figure 46 : Pointe en palladium, microscope optique, après expérience

Résumé sur une pointe en palladium:

- **En ionisant l'hydrogène, on obtient :**
 - les ions H^+ et H_2^+ sont majoritaires, la proportion de H^+ augmentant avec le champ.
- **En ionisant l'eau, on obtient :**
 - production de trois ions : majoritairement les ions H_2^+ et H_3^+ et en quantité moindre des ions H^+ à bas champ,
 - observation des ions H_4^+ .
- **En ionisant le mélange eau-hydrogène, on obtient :**
 - production de trois ions : majoritairement des ions H_2^+ et H_3^+ et en quantité moindre des ions H^+ à bas champ,
 - observation des ions H_4^+ .
- Courant intense à bas champ 30 pA à 6 kV en ionisant l'eau ou le mélange eau-hydrogène,
- Aucun phénomène irréversible n'est visible lors du fonctionnement de la source pendant plusieurs dizaines d'heures.

III- Références bibliographiques

- [ref]1 Cours de technique du vide, J. Arianer, <http://hal.in2p3.fr/docs/00/09/29/56/PDF/cel-30.pdf>
- [ref]2 Vacuum Manual, Ed. L. Holland, W. Stecelmacher & J. Yarwood, E. & F. N. SPON London (1974)
- [ref]3 Ping Fan, Ji-guo Chu, Jian-da Shao, "Conductance calculation of long tubes with rectangular cross section and annular cross section in the full pressure range", Vacuum 68, 373-378 (2003)
- [ref]4 D. J. Santeler, "Exit loss in viscous tube flow" J. Vac. Sci. Technol. A, 4 (3), 348-352, (1986).
- [ref]5 D.J. Santeler, "New concepts in molecular gas flow", J.Vac.Sci.Technol. A, 4 (3), 338-343 (1986)
- [ref]6 Alain Degiovanni, Habilitation à diriger des recherches, Université d'Aix-Marseille III, Mai 2000
- [ref]7 Field Emission and field ionization, R. Gomer, 1961
- [ref]8 T.C. Clements and E.W. Müller, "Occurrence of H₃⁺ in the field ionization of hydrogen", J. Chem. Phys. 37, 11 (1962)
- [ref]9 Y. Suchorski, W.A. Schmidt, N. Ernst, J.H. Block, H.J. Kreuzer, Prog. Surf. Sci. 48 (1995) 121
- [ref]10 D.L. Cocke and J.H. Block, "Field Ion and Field Desorption Mass Spectrometry of Inorganic Compounds", Surface Sci. 70 (1978) 363-391
- [ref]11 M.G. Inghram and R Gomer, "Mass spectrometric analysis of ions from the field microscope", J. Chem. Phys. 22, 1279 (1954)
- [ref]12 « Field Ion Microscopy : principles and applications », E. W. Müller and T.T. Tsong (American Elsevier Publishing Compagny, Inc., New York 1969)
- [ref]13 W. Stocker, H.W. Fink and R. Morin, "Low-energy electron and ion projection microscopy ", Ultramicroscopy 31, p379, 1989
- [ref]14 E. Salançon, " Source Ponctuelle d'Ions à Structure Coaxiale" , Thèse Université Aix-Marseille III, 29 Nov. 2002

- [ref]15 R.G. Forbes, “Understanding How the Liquid Metal Ion Source Works”, *Vaccum*, 48(1), p85-97, 1997
- [ref]16 E. W. Müller, “Structure and properties of thin films” (John Wiley and Sons, New York, 1959), p476
- [ref]17 Allen R. Anway, “Field ionization of water”, *J. Chem. Phys.* 50, 5 (1969)
- [ref]18 A.J. Nam, A. Teren, T.A. Lusby and A.J. Melmed, “Benign making of sharp tips for STM and FIM: Pt, Ir, Au, Pd, and Rh,” *J.Vac.Sci.Technol. B* 13(4), Jul/Aug 1995
- [ref]19 A.J. Jason, R.P. Burns and M.G. Inghram, “” *J. Chem. Phys.* 44, 4351 (1966)
- [ref]20 C.J. Rothfuss, V.K. Medvedev and E. Stuve, “Temperature and field dependence of protonated water cluster emission from field adsorbed water layers on platinum”, *Surf. Sci.* 501 (2002), p. 169
- [ref]21 P.D. Cobden, V.V. Gorodetskii and B.E. Nieuwenhuys, “Field emission microscope study of the initial behaviour of the palladium-hydrogen system at low temperatures”, *Surf. Sci.* 432 (1999) 61
- [ref]22 B.D. Kay, H. F. Peden and D. W. Goodman, “Kinetics of hydrogen adsorption by Pd(110)”, *Phys. Rev. B.* 34 (1986), 2
- [ref]23 B. Sieben, G. Bozdech, N. Ernst, and J. H. Block, “On the kinetics of oscillating reactions: H₂/O₂ and H₂/H₂O on Platinum”, *Surf. Sci.*, 352, (1996), p.167.
- [ref]24 N. Ernst, G. Bozdech, V. Gorodetskii, H.-J. Kreuzer, R.L.C. Wang, J. H. Block, “Oscillating hydrogen-water reactions on a platinum field emitter”, *Surf. Sci.*, 318 (1994), L1211-L1218
- [ref]25 Vacuum Manual, Ed. L. Holland, W. Stecelmacher & J. Yarwood, E. & F. N. SPON London
- [ref]26 D.J. Santeler, “Gas-flow experiments in the transition region”, *J.Vac.Sci.Technol. A* 12(4), Jul/Aug 1994
- [ref]27 G. L. Kellog, “Field evaporation of silicon and field desorption of hydrogen from silicon surfaces”, *Phys. Rev. B*, 28, (4), Aug 1983
- [ref]28 R. Morin and A. Degiovanni, “Interferometry with low-energy electrons”, *J. Vac. Sci. Technol. B* 13(2), Mar/Apr 1995
- [ref]29 P.M. Stier and C.F. Barnett, “Charge exchange cross sections of hydrogen ions in gases”, *Phys. Rev.* 103 (1956), 4

[ref]³⁰ J. Bardon, A. Degiovanni, V. Georges and R. Morin, “Conducting, semi conducting and insulating objects observed by low energy electron holography”, *Ultramicroscopy* 92 (2002), 133-142.

[ref]³¹ A. Degiovanni, W. Lai and R. Morin, “Electron Sources of Atomic Size”, Invited conference, Proceedings of the Symposium on Advanced Surface Analytical Technique, Kyoto, Nov. 1996, The Japan Society for the Promotion of Science.

Conclusion

Le travail que nous avons effectué durant ces trois années de thèse et présenté dans ce mémoire, est relatif à l'étude d'une source ponctuelle d'ions à structure coaxiale. Sa structure utilise un capillaire dans lequel est insérée une pointe. Le capillaire guide un gaz vers la pointe où il est ionisé par effet de champ.

Un montage expérimental permettant microscopie ionique de champ, microscopie ionique à projection, spectrométrie de masse des ions émis a été construit. La microscopie ionique de champ a permis d'obtenir des images de la source faite de différents matériaux avec différents gaz. La microscopie à projection a permis d'obtenir des images d'objet et une mesure de la taille de la source. La spectrométrie de masse a permis d'identifier la nature des ions émis pour les différents gaz utilisés.

Les résultats les plus marquants nous apparaissent les suivants. Grâce au montage du microscope ionique à projection, nous avons obtenu des images d'objet à des grossissements jusqu'alors jamais atteints, jusqu'à 540 000 avec une résolution de 3Å. Ainsi nous avons démontré que la taille virtuelle de la source était certainement plus petite que 3Å. La spectrométrie de masse a mis en évidence la production d'ions de nature différente. Dans le cas de l'ionisation de l'hydrogène, le rapport de l'intensité des différents ions nous a conduits à une méthode de mesure du champ électrique présentant un intérêt certain pour l'utilisation de la source, par exemple dans un contexte FIB. L'ionisation de l'eau sur platine ou palladium a montré l'émission surprenante d'ions hydrogène. Outre ces résultats, la mise en œuvre de ces techniques a permis d'améliorer sensiblement les propriétés et la fiabilité de la source. On obtient des courants de plusieurs dizaines de pA pendant plusieurs dizaines d'heures sans dégradation de la pointe.

Les perspectives ouvertes par ce travail nous apparaissent dans trois directions. La première concerne la formation d'ions et la catalyse dans des conditions de haute pression difficiles d'étude par d'autres techniques. La seconde est la microscopie ionique à projection à haute résolution. La troisième est dans l'utilisation de ces sources dans des dispositifs optiques comme le FIB.