



HAL
open science

Etude des mécanismes d'injection et de stockage de charges électriques dans un film mince diélectrique par microscopie à sonde de Kelvin (KPFM)

Florian Mortreuil

► **To cite this version:**

Florian Mortreuil. Etude des mécanismes d'injection et de stockage de charges électriques dans un film mince diélectrique par microscopie à sonde de Kelvin (KPFM). Energie électrique. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2015. Français. NNT : 2015TOU30176 . tel-01331036

HAL Id: tel-01331036

<https://theses.hal.science/tel-01331036>

Submitted on 13 Jun 2016

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.



THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par *L'Université de Toulouse III – Paul Sabatier*
Discipline ou spécialité : *Génie Electrique*

Présentée et soutenue par *Florian MORTREUIL*
Date prévue le *13 Novembre 2015*

Titre : Etude des mécanismes d'injection et de stockage de charges électriques dans un film mince diélectrique par microscopie à sonde de Kelvin (KPFM)

Study of injection and trapping mechanisms of electrical charges in thin dielectric films by Kelvin probe force microscopy (KPFM)

JURY

Pr. Serge AGNEL, Président du Jury
Dr. Franck DAHLEM, Examineur
Dr. Patrick PONS, Examineur
Dr. Richard ARINERO, Rapporteur
Pr. Brice GAUTIER, Rapporteur
Dr. Laurent BOUDOU, Directeur de thèse
Dr. Christina VILLENEUVE-FAURE, Co-directrice de thèse
Dr. Gilbert TEYSSEDE, Invité

Ecole doctorale : *GEET*

Unité de recherche : *LAPLACE*

Directeur(s) de Thèse : *Dr. Laurent BOUDOU et Dr. Christina VILLENEUVE-FAURE*

Rapporteurs : *Pr. Brice GAUTIER et Dr. Richard ARINERO*

Résumé :

Une des propriétés intrinsèques des matériaux diélectriques est d'accumuler des charges électriques sous l'action de contraintes extérieures (température, champ électrique...). Ce phénomène utile dans certaines applications (mémoires non volatiles...), demeure en général une cause de défaillance (microsystèmes...). Il convient donc de disposer d'une méthode permettant de mesurer cette densité de charges aux échelles pertinentes pour le système. Du fait de la miniaturisation, les méthodes classiques de mesure de charge d'espace (PEA, FLIMM,...) ne sont plus adaptées, car leurs résolutions latérales de quelques micromètres est bien supérieure aux dimensions nanométriques des systèmes. Une nouvelle méthode de mesure de la charge d'espace basée sur la microscopie à champ proche, et plus particulièrement la mesure de potentiel de surface par microscopie à sonde de Kelvin (KPFM), permet d'obtenir des informations sur l'état de charge du matériau avec une résolution nanométrique.

Notre objectif est d'étudier les phénomènes d'injection et de rétention de charges dans des diélectriques minces. Pour cela deux voies ont été explorées.

La première consiste à injecter localement des charges à la surface d'une couche mince de SiO_xN_y , d'épaisseur variable (entre 6nm et 130nm) et à mesurer les modifications du potentiel de surface induit par les charges. Les mesures de potentiel de surface (KPFM) et de courant (C-AFM) couplées à des simulations du champ électrique par éléments finis (COMSOL) ont mis en évidence que deux mécanismes sont en jeu lors de l'injection de charges : le piégeage dans la couche et la conduction au travers de la couche. Pour les épaisseurs les plus fines la conduction est le mécanisme majoritaire (ce qui limite la quantité de charges piégées) alors que pour les films plus épais le piégeage est majoritaire. Pour les films d'épaisseur intermédiaire les deux mécanismes sont en compétition. Une fois les charges injectées leur dissipation se fait majoritairement dans le volume selon une dynamique indépendante de l'épaisseur de la couche.

La seconde voie consiste à étudier l'injection et le déplacement de charges entre deux électrodes latérales enfouies dans le diélectrique. Cette structure permet de s'affranchir du manque de sensibilité de la mesure KPFM à la profondeur des charges dans le volume et d'étudier les phénomènes d'injection aux interfaces et le transport de charges sous champ électrique. Le champ électrique induit entre les deux électrodes polarisées a été simulé par éléments finis sous COMSOL et comparé aux mesures de potentiel KPFM. Nous avons ainsi pu caractériser l'injection à l'interface métal/diélectrique et nous avons montré la faisabilité d'utiliser ce type de structure pour étudier la mobilité des charges au sein d'une couche diélectrique.

Abstract:

One of the intrinsic properties of dielectrics is to accumulate electrical charges when subjected to external stresses (temperature, electrical field ...). This property can be helpful for some applications (DRAM...), but leads generally to failure of the device (micro-system...). Thus, a charge density measurement technics is mandatory for the scale of relevance according to the observed system. However due to miniaturization, the measurement technics classically used are helpless to study tiny systems of a few tens nanometers thick, as their spatial resolution is of the order a few micrometers. A new measurement technics represented by KPFM (Kelvin Probe Microscopy) and based on near field microscopy technology, can measure charges on a material with nanoscale lateral resolution.

Our purpose here is to characterize charges injection and decay mechanisms in thin SiO_xN_y and SiN_x film deposited by plasma process, thanks to near field microscopy. To achieve this goal, two approaches have been explored.

The first one consists in localized injection of electrical charges at the surface of a thin SiO_xN_y layer of variable thickness (between 6 nm and 130nm) and to measure surface potential modification induced by injected charges. Surface potential (KPFM) and current (C-AFM) measurements coupled to electric field simulation by finite element (COMSOL®) emphasizes that two mechanisms are involved during charges injection: trapping and conduction through the layer. For thinner layers, conduction mechanism is predominant (which limits trapped charges amount); while for thicker films trapping is the main mechanism. For intermediate thickness films both mechanisms are in competition. Once the charges injected, dissipation in volume appears to be the predominant mechanism for any thickness.

The second approach is the study of charges injection and transport between two embedded lateral electrodes. This structure allows overcoming the lack of in-depth sensitivity of the KPFM measurement toward the position of charges in the volume, to study injection phenomena at interfaces and transport of charges within the volume under electrical field constraint. The electric field induced between the two polarized electrodes was simulated by finite element using COMSOL and compared to surface potential measured by KFM. Results emphasize technical issues related to charges injection/transport between lateral electrodes. According to this analysis an experimental set up and data post-treatment protocol is developed which permits to characterized charges injection at interface. Besides, feasibility of charges mobility investigation using this type of structure was demonstrated.

Remerciements :

Je tiens à remercier tous ceux qui m'ont soutenu lors de ces trois dernières années, dans les périodes de doute (retard, creux et piétinement) comme dans les périodes d'avancement.

Particulièrement, je remercie mes directeurs de thèse, Laurent Boudou et Christina Villeneuve-Faure, pour leur disponibilité, leur guidance et leur confiance dans mes résultats. Grâce à eux, j'ai pu appréhender avec plus de sérénité les différents aspects de la recherche. De l'élaboration des échantillons, aux différents essais de mesures, ils m'ont apporté des conseils qui m'ont permis à la d'atteindre les objectifs fixés.

Pour m'avoir fait l'honneur de présider mon jury de thèse, Monsieur Serge Agnel, je vous exprime ma profonde gratitude.

Pour avoir accepté de rapporter mes travaux, Messieurs Brice Gautier et Richard Arinero, veuillez accepter mes remerciements les plus sincères. Vos remarques m'ont permis d'améliorer ce manuscrit, mais aussi de donner des perspectives nouvelles à mes travaux, pour cela merci.

Pour m'avoir écouté, jugé et permis de soutenir, Monsieur Franck Dahlem, vous trouverez ici l'expression de ma gratitude sincère. La discussion enrichissante que nous avons eue à l'issue de ma soutenance m'a permis d'élargir l'horizon de mes travaux.

Pour m'avoir accueilli au LAAS lors de ces trois ans, pour m'avoir fait confiance et pour m'avoir fait l'honneur d'être membre de mon jury de thèse, Monsieur Patrick Pons, je tiens à vous remercier. Vous m'avez permis de m'exercer sur l'AFM. Vous nous avez donné accès à la plateforme technologique du LAAS, ce qui nous a permis de réaliser nos différents échantillons.

Pour m'avoir accueilli et permis d'évoluer dans l'équipe DSF (Diélectrique Solide et Fiabilité) du laboratoire LAPLACE, je remercie messieurs Christian Laurent, Gilbert Teyssedre et Laurent Berquez.

Pour m'avoir renseigné et aidé lors de mes travaux au LAAS, je remercie les membres de l'équipe TEAM pour leurs conseils et leurs réponses rapides.

Pour leurs aides et conseils lors de l'élaboration des échantillons et de la mise en place de l'expérience, je tiens à remercier les personnels du laboratoire, et plus particulièrement messieurs Benoit Schlegel, Benoit Lantin et Gilles Brillat.

A tous ceux que j'ai pu côtoyer ces trois dernières années : je vous remercie de votre soutiens et vous souhaitez une bonne continuation.

Je tiens enfin à remercier ma famille et mes parents pour leurs soutiens. C'est grâce à eux que j'ai pu réaliser ces travaux. Un grand merci à vous tous.

Table des matières

Introduction Générale.....	11
Chapitre 1 : Phénomènes de stockage et dissipation de charges électriques	14
I- Introduction	14
II- Challenges liés au contrôle et à la mesure de la charge d'espace dans les matériaux diélectriques	14
II-1) Charge d'espace et matériau diélectrique.....	15
II-1.a) Notion de potentiel de surface et de travail de sortie.....	16
II-1.b) Mécanismes d'injection et de transport de charges	17
II-1.c) Le champ électrique induit par les charges électriques piégées.	19
II-2) Les techniques de mesure de charges électriques	20
II-2.a) Perturbations acoustiques : Pulsed Electroacoustic (PEA)	21
II-2.b) Perturbations thermiques : Laser Intensity Modulation Method (LIMM).....	21
II-2.c) Mesures de potentiel de surface grâce à la sonde de Kelvin.....	23
II-3) Les challenges de la miniaturisation	24
III- La microscopie à champ proche.....	25
III-1) Rappel historique	25
III-2) La microscopie à force atomique (AFM).....	25
III-2.a) Principe de fonctionnement	25
III-2.b) Les forces en présence.....	27
III-2.d) Les différents modes de fonctionnement disponibles pour la mesure de la topographie	29
III-3) Mesures du potentiel de surface grâce aux modes électriques dérivés de l'AFM	33
III-3.a) Principe de la mesure du potentiel de surface par AFM	33
III-3.b) La microscopie à force de Kelvin (KPFM).....	34
III-3.c) La Microscopie à Force Electrostatique –EFM	36
III-4) Mesure de courant (C-AFM)	37
III-4.a) Principe de fonctionnement	37
III-4.b) Limitations	38
IV- Etude de l'injection et du transport de charges par AFM.....	39

IV-1) Comment mesurer les charges électriques en AFM ?	39
IV-2) Mesures de charges par EFM.....	40
IV-3) Mesure de charges en KPFM	42
IV-4) Résolution et limitations.....	44
IV-5) Apport des mesures de courant en C-AFM	45
V- Conclusion.....	46
Bibliographie :	48
Chapitre 2 : Impact de l'épaisseur de la couche diélectrique sur l'injection et la rétention des charges électriques : cas d'un film de SiO_xN_y	57
I- Introduction	57
II- Matériau d'étude et structure des échantillons	58
II-1) Propriétés du matériau diélectrique mince étudié : le SiO _x N _y	58
II-2) Cahier des charges : contraintes liées à la mesure KPFM.....	59
II-3) Procédé de fabrication.....	60
III - Protocoles expérimentaux	63
III-1) Mesures de potentiel par KPFM	63
III-1.a) Choix des conditions d'injection	63
III-1.b) La mesure KPFM	65
III-1.c) Protocole de traitement des données	66
III-1.d) Le choix de la technique de mesure	68
III-1.e) Particularité et singularité du Multimode 8®.....	70
III-2) Mesures de courant traversant le film mince.....	70
III-2.a) Les mesures par un système extérieur	70
III-2.b) Les mesures C-AFM.....	71
IV – Modélisation du champ électrique	72
IV-1) Description du modèle	72
IV-2) Calcul du champ électrique dans la configuration d'injection	74
V- Comportement dispersif d'un paquet de charges injectées dans un film de SiO _x N _y	77
V-1) Identification des mécanismes	78
V-2) Influence de la tension appliquée sur l'injection de charges	79
V-3) Influence de la durée du contact sur l'injection de charges.....	82
V-4) Influence de l'épaisseur de la couche sur l'injection et la rétention de charges	83
V-4.a) Etude à tension appliquée constante	83
V-4.b) Etude à champ électrique constant.....	85
V-5) Influence de la distance entre le plan de masse et la pointe sur la dépolarisation	87

VI- Etude du courant électrique traversant le film de SiO_xN_y durant la phase d'injection	89
VI-1) Configuration externe.....	89
VI-2) Mesure C-AFM	91
VII – Conclusion et perspectives.....	94
Bibliographie :	97
Chapitre 3 : Etude des phénomènes de polarisation/dépolarisation entre des électrodes latérales	101
I – Introduction.....	101
II - Protocole expérimental et matériau étudié.....	101
II-1) Design des structures de test.....	102
II-2) Protocole expérimental	106
II-2.a) Mise en place de l'expérience.....	106
II-2.b) Conditionnement de l'échantillon	107
II-2.c) Vérifications.....	107
II-2.d) Acquisition du profil de potentiel en polarisation et/ou dépolarisation.....	108
II-3) Limitations du procédé expérimental et améliorations envisageables.....	111
III) Modélisation du champ électrique	112
III-1) Description du modèle.....	112
III-2) Effet du fort rapport de forme.....	114
III-3) L'influence de la présence d'un gap d'air	117
IV) Etude de la phase de polarisation.....	119
IV-1) Limitation de la technique	120
IV-1.a) Artéfacts observés	120
IV-1.b) Résolution spatial : effet de la distance inter-électrode	121
IV-1.c) Identification d'un seuil d'injection	123
IV-1.d) Reproductibilité	123
IV-2) Etude de l'injection à champ constant : influence du renforcement de champ électrique.....	124
IV-3) Influence de la tension de polarisation	128
V) Etude de la phase de dépolarisation.....	132
IV-1) Observations préliminaires.....	132
IV-2) Comportement lors de dépolarisation	134
VI) Déplacement d'une charge injectée par la pointe AFM	137
VII) Conclusion.....	138
Bibliographie :	141
Conclusions générales et perspectives.....	142

Introduction Générale

Dans le contexte industriel actuel, on assiste de plus en plus à une course à la miniaturisation des composants électroniques qui a pour but la réduction des coûts (énergétique et économique) ainsi qu'une diminution de l'encombrement, tout en améliorant la fiabilité. Cette volonté adresse plusieurs problématiques telles que la recherche de nouveaux matériaux aux propriétés équivalentes mais dont le coût de production est inférieur, une meilleure compréhension des mécanismes de défaillance passant par une analyse de la physique de défaillance, de l'évolution des propriétés intrinsèques des matériaux lorsque leurs dimensions caractéristiques diminuent...

Pour répondre aux défis de la miniaturisation, il convient de développer de nouvelles méthodes permettant de caractériser les propriétés structurales, électriques, mécaniques ou thermiques des matériaux aux échelles pertinentes pour le composant. Ainsi par exemple l'épaisseur de l'oxyde de grille d'un transistor MOS est passée de 100nm dans les années 1970 à 1nm dans les années 2000. C'est dans ce contexte que des techniques telles que la microscopie à force atomique ou la microscopie électronique ont vu leur développement. En effet, ces techniques permettent d'obtenir des informations structurales et/ou fonctionnelles sur le matériau avec des résolutions sub-nanométriques.

Les travaux développés dans ce manuscrit se placent dans ce contexte de développement des techniques de caractérisation des propriétés des matériaux à l'échelle nanométrique. Ils adresseront plus particulièrement l'étude des matériaux diélectriques inorganiques déposés en couches minces (inférieures à la centaine de nanomètres), bien que les techniques développées ici puissent être utilisées pour étudier des polymères ou des couches plus épaisses (de l'ordre de la centaine de micromètres). Les matériaux isolants sont présents dans de très nombreux systèmes électroniques/microélectroniques tels que les mémoires, les microsystèmes, les transistors, les capacités... Une de leurs propriétés principales est de pouvoir stocker des charges sous l'action d'une contrainte extérieure telle qu'un champ électrique. Cet effet, peut être exploité dans certaines applications telles que les mémoires mais est en règle générale une source de défaillance. Pour améliorer la fiabilité, il convient donc de mieux comprendre les phénomènes en jeu lors de l'injection et de l'accumulation de charges dans les isolants et ce à l'échelle du composant c'est-à-dire à l'échelle nanométrique.

Des méthodes de mesure des charges à l'échelle macroscopique telles que la méthode PEA (Pulse Electro-Acoustic) ou la F-LIMM (Focus Laser Intensity Modulation Method) ont été très largement développées et améliorées au cours de la dernière décennie pour atteindre des résolutions spatiales de quelques micromètres. Toutefois, pour descendre sous cette limite de nouvelles méthodes de mesure doivent être développées. La microscopie à force atomique (AFM) qui permet d'observer les échelles nanométriques et de cartographier les propriétés (mécaniques, électriques...) locales, apparait donc comme une candidate sérieuse pour mesurer les charges à l'échelle nanométrique.

Pour l'étude des matériaux isolants, l'AFM présente l'avantage de pouvoir mesurer différentes grandeurs pertinentes telles que des courants, des forces électrostatiques, des potentiels de surface, des résistances de surface, ou encore des capacités. De plus, un autre avantage de l'AFM pour ce type d'étude est de permettre avec un seul et même équipement de réaliser une injection locale des charges et de mesurer leur manifestation.

L'objectif de ce travail de thèse est d'étudier l'injection et le transport de charges à l'échelle nanométrique dans des couches minces isolantes inorganiques. Pour cela, nous utiliserons un mode électrique dérivé de la microscopie à force atomique : la microscopie à sonde de Kelvin (KPFM). Nous nous intéresserons principalement à deux types de configuration (i) l'étude de l'injection des charges localement par une pointe AFM et leur évolution au cours du temps et (ii) l'injection de charges par des électrodes latérales en polarisation et dépolarisation. Nous chercherons principalement à adresser deux points. Tout d'abord, nous souhaitons étudier l'influence du champ électrique sur les phénomènes d'injection. Dans ce but, nous étudierons l'impact du dimensionnement géométrique sur l'injection (effet de l'épaisseur si le champ électrique est constant). Ensuite, nous souhaitons nous pencher sur l'étude de la mobilité des charges à la surface sous l'action d'un champ électrique extérieur ou de leur champ propre. Dans l'ensemble de cette étude, une attention particulière sera apportée au protocole expérimental ainsi qu'à l'utilisation systématique de la modélisation par éléments finis pour connaître les répartitions de champ électrique.

Dans un premier chapitre, nous présenterons le contexte dans lequel la thématique de la mesure de charges à l'échelle nanométrique a vu le jour. Nous présenterons en particulier quelques techniques classiques de mesure de charges à l'échelle micrométrique avant de nous pencher plus précisément sur le fonctionnement de la microscopie à force atomique (AFM) et de ses modes électriques tels que la microscopie à force électrostatique (EFM), la microscopie à sonde de Kelvin (KPFM) et le conductive-AFM (C-AFM). Pour finir nous montrerons comment ces techniques ont permis au cours des vingt dernières années d'étudier les effets de chargement et de transport dans les isolants minces. Nous montrerons que malgré ces nombreuses études certaines problématiques telles que

l'identification des mécanismes en jeu lors de l'injection de charges locale, la détermination de la densité de charges et sa localisation dans le volume, sont encore en débat. Nous mettrons ainsi en évidence comment nos travaux se positionnent par rapport à cette thématique.

Dans une seconde partie nous étudierons plus précisément l'injection et la rétention de charges dans des couches minces de SiO_xN_y déposées par procédé plasma. Une modélisation par éléments finis sous COMSOL permettra de déterminer le champ électrique mis en jeu lors de la phase d'injection. Le suivi du potentiel de surface mesuré par KPFM juste après l'injection et au cours du temps en fonction de différents paramètres (durée de chargement, champ électrique, épaisseur...) permettra d'étudier les mécanismes d'injection et de transport de charges. Les conclusions obtenues seront renforcées par des mesures de courant C-AFM réalisées lors de la phase d'injection de charges.

Dans une troisième partie nous démontrerons la faisabilité de l'étude des phénomènes d'injection et de transport de charges au moyen d'électrodes latérales enfouies dans le diélectrique (structure MIM – Métal-Isolant-Métal- latérale). Cette configuration possède deux avantages : (i) étudier les phénomènes d'injection aux interfaces plus directement car ces dernières sont atteignables à la surface et (ii) pouvoir étudier les phénomènes « en volume ». En effet, la mesure de potentiel KPFM ne permet pas de savoir où se trouvent les charges dans le volume. En utilisant des électrodes latérales on ramène alors la structure MIM verticale à une structure MIM sur la tranche. Dans un premier temps nous détaillerons le procédé de fabrication qui permet d'obtenir un bon contact entre l'électrode métallique et l'isolant. Puis nous présenterons le protocole expérimental développé dans le cadre de cette étude pour permettre d'obtenir le profil de potentiel KPFM induit par les charges injectées au niveau des électrodes latérales. Nous en déduirons les performances de la technique mise au point avant de l'utiliser pour étudier les dynamiques de polarisation et de dépolarisation. Grâce à la modélisation, par éléments finis, du champ électrique inter-électrodes, nous nous intéresserons aux mécanismes d'injection. Pour finir nous démontrerons la faisabilité d'utiliser ce type de structure pour faire déplacer, sous l'effet d'un champ électrique, un paquet de charges injectées localement.

Pour terminer les résultats obtenus ainsi que les perspectives à cette étude seront résumés dans une conclusion générale.

Chapitre 1 : Phénomènes de stockage et dissipation de charges électriques

I- Introduction

L'accumulation de charges électriques dans divers milieux diélectriques (liquide, solide ou gazeux) est une problématique relativement ancienne et qui fait l'objet d'une attention continue. En effet, parmi ses conséquences bien connues, nous pouvons citer les phénomènes de rupture dans les câbles d'isolation électrique [1], l'apparition de décharges électrostatiques telle que la foudre ou bien les pertes de fiabilité des composants électroniques ou des microsystemes [2]. Par conséquent une analyse de ces phénomènes est nécessaire pour comprendre les mécanismes physiques en jeu et tenter de les maîtriser ou du moins de les limiter.

De manière générale, dans le domaine de l'électronique, le challenge de la miniaturisation est de plus en plus fort [3]. Dans l'industrie microélectronique les oxydes de grilles atteignent des dimensions de l'ordre de quelques nanomètres [4-5] alors qu'en laboratoire on parvient à déplacer les atomes un par un pour former des nano-systèmes [6]. Ces nouveaux systèmes nanométriques posent de nombreuses questions en terme de caractérisation de leurs propriétés fonctionnelles et électriques en particulier. Il convient donc de développer de nouvelles techniques de caractérisation ayant des résolutions adaptées aux échelles pertinentes de ces systèmes, c'est à dire de l'ordre du nanomètre. Ces défis sont tout à fait adaptés à la microscopie à Force Atomique (AFM) [7 - 8].

Dans cette partie nous nous intéresserons à la problématique de la mesure de charges d'espace dans des couches diélectriques. Après une présentation des phénomènes d'injection et de transport de charges dans les matériaux diélectriques nous nous intéresserons à la problématique de la mesure de la charge d'espace. S'en suivra une introduction au fonctionnement de l'AFM et de ses modes dérivés permettant la caractérisation électrique des diélectriques. Pour finir nous dresserons un état de l'art de la mesure de charges par AFM.

II- Challenges liés au contrôle et à la mesure de la charge d'espace dans les matériaux diélectriques

Les propriétés électriques d'un matériau dépendent de ses propriétés intrinsèques telles que sa rugosité de surface, sa cristallinité, son épaisseur, sa nature chimique ou encore des défauts qui le composent. Il existe de nombreuses techniques permettant de mesurer les propriétés électriques

d'un matériau à la fois en surface et en volume. Ici nous nous intéresseront plus particulièrement aux matériaux solides diélectriques.

Dans ce cas de figure les grandeurs qui nous intéresseront seront le courant d'injection, la densité de charges, la résistivité électrique et le potentiel électrostatique. Si ces matériaux commencent à être bien caractérisés à l'échelle macroscopique, ils le sont moins aux échelles nanométriques qui sont pertinentes pour les applications en microélectronique ou microsystèmes. L'objectif de cette partie est de présenter brièvement les phénomènes liés à la présence de charges dans les diélectriques et de présenter quelques-uns des moyens de caractérisation disponibles, et enfin de montrer en quoi ces techniques ne sont plus adaptées lorsque l'on s'intéresse à l'étude des diélectriques minces (épaisseur inférieure à quelques micromètres).

II-1) Charge d'espace et matériau diélectrique

Un matériau diélectrique parfait présenterait une structure cristallographique sans défauts et sans impuretés. Il aurait alors un diagramme énergétique tel que présenté sur la Fig. 1.1.A avec une bande de conduction et une bande de valence séparées par un gap important (entre 8 et 10eV généralement). Un tel matériau n'existe jamais dans la réalité. En général un matériau diélectrique possède des défauts de structure du fait de sa nature semi-cristalline (ou amorphe) ainsi que des impuretés. Cela a pour conséquence la présence d'états localisés dans la bande interdite qui vont réduire le gap comme représenté sur la Fig. 1.1.B.

On appellera alors charge d'espace l'ensemble des charges positives ou négatives contenues dans le diélectrique. Ces charges pourront être de surface ou de volume. Pour un matériau polarisable la densité de charges totale dans le matériau sera la somme de la charge d'espace et des charges de polarisation. De façon générale il est difficile de séparer par la mesure ces deux contributions.

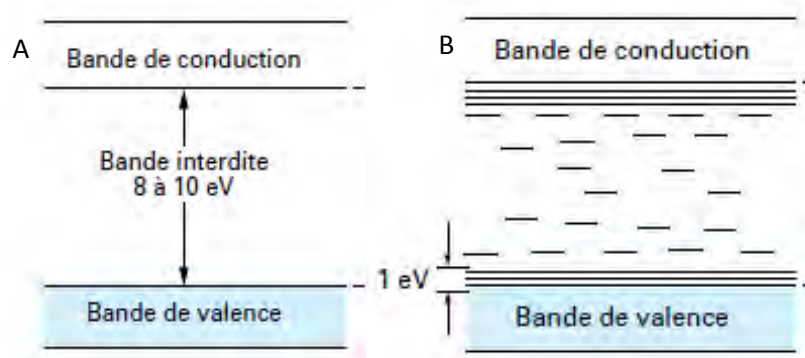


Figure 1.1 : Diagramme énergétique d'un diélectrique (A) parfait et (B) réel.

Dans cette partie nous allons expliquer succinctement les mécanismes physiques à l'origine de la charge d'espace et nous expliciterons les conséquences de la présence de ces charges électriques pour le matériau diélectrique.

II-1.a) Notion de potentiel de surface et de travail de sortie

Le travail de sortie (ϕ) correspond à la quantité minimale d'énergie nécessaire pour arracher un électron à l'état fondamental électronique à l'intérieur d'un matériau donné. Dans un métal, le travail de sortie ϕ , tel que décrit par le modèle d'électrons libres, est défini comme étant la différence d'énergie d'un électron dans l'état de vide et d'un électron à l'énergie de Fermi, comme on le voit sur la Fig. 1.2.A. Par contre dans le cas des matériaux semi-conducteurs et isolants le travail de sortie ϕ est considéré comme la différence entre l'énergie d'un électron dans l'état de vide et les électrons les plus faiblement liés à la matière solide. C'est-à-dire l'énergie minimal nécessaire à apporter à un électron faiblement lié pour qu'il se libère du solide.

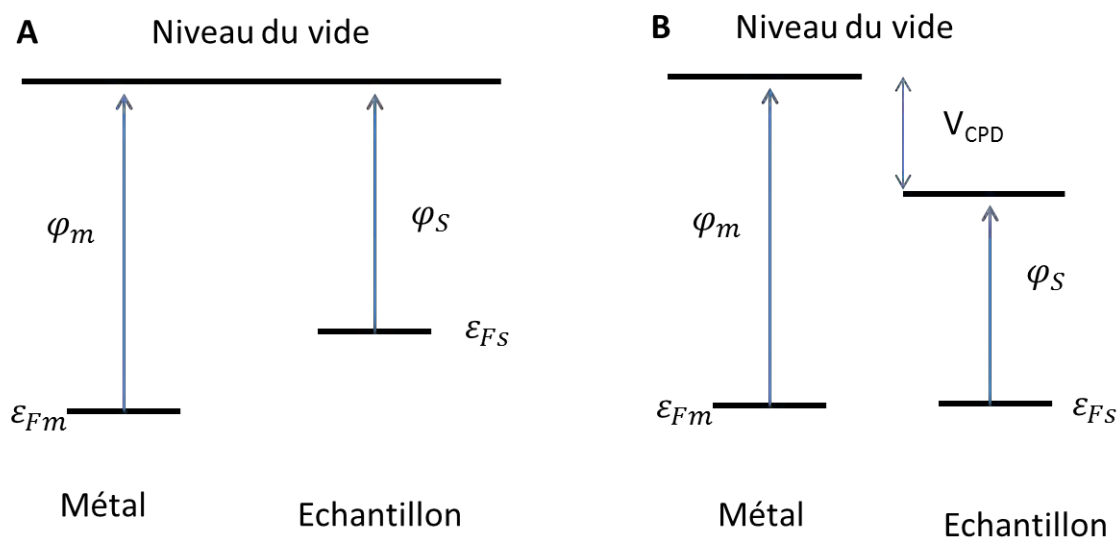


Figure 1.2 : Niveaux d'énergie entre un métal et la surface d'un échantillon (métal, isolant ou semiconducteur) dans deux cas : (A) le métal et la surface sont séparés et ne sont pas en contact électrique, (B) contact électrique entre le métal et l'échantillon.

Lorsque deux matériaux sont éloignés et sans contact électrique, leurs niveaux de Fermi sont différents (Fig. 1.2.A). En revanche lorsqu'ils sont mis en contact, leurs niveaux de Fermi doivent s'aligner, par conséquent une différence de potentiel apparait entre eux (Fig. 1.2.B). Ce potentiel de contact (V_{CPD}) est défini par la différence entre les travaux de sortie de chacun des deux matériaux d'après la relation :

$$V_{\text{CPD}} = \frac{\varphi_m - \varphi_s}{|e|} \quad (1)$$

Où e est la charge d'électron qui est égale à $-1.60219 \cdot 10^{-19}$ C.

II-1.b) Mécanismes d'injection et de transport de charges

La simple application d'un potentiel sur une électrode en contact avec un matériau entraîne une rupture de l'équilibre du système. Les charges électriques (électrons, trous, cations, anions) ainsi générées vont être classées en deux catégories :

- Charges extrinsèques : ce sont les électrons ou les trous injectés au niveau des électrodes.
- Charges intrinsèques : ce sont les ions initialement présents dans le matériau ou produits par électro-dissociation ou ionisation d'espèces neutres.

Deux configurations sont possibles : les charges sont du même signe que le potentiel de l'électrode, alors ce sont des homo-charges ; ou les charges sont de signe contraire à la charge au potentiel de l'électrode, alors ce sont des hétéro-charges.

Le phénomène d'injection (Fig. 1.3) consiste dans le passage d'une charge de l'électrode (métal caractérisé par son travail de sortie φ_m) vers la bande de conduction (E_C) du diélectrique. Ce passage nécessite une énergie non-nulle permettant de franchir la barrière énergétique $\phi_0 = E_C - \varphi_m$ (pour les électrons). Ce mécanisme sera plus ou moins aisé suivant la hauteur de barrière et dépendra donc de la nature de l'électrode. Par exemple le travail de sortie de l'aluminium est de 4.28eV et celui de l'or de 5.1eV. Une électrode en aluminium injectera plus d'électrons dans le matériau cible qu'une électrode d'or. En l'absence de champ électrique le franchissement de cette barrière est hautement improbable.

En présence d'un champ électrique E , le passage de la charge de l'électrode dans le matériau diélectrique sera favorisé. On distingue trois mécanismes possibles [9] :

- l'effet thermoïonique ou Schottky (cas 1 Fig. 1.3). Dans ce cas de figure la hauteur de barrière initiale ϕ_0 est diminuée par l'application d'un champ électrique. La charge pourra alors plus facilement la franchir par agitation thermique [10 – 11].
- L'effet tunnel ou Fowler-Nordheim (cas 2 Fig. 1.3). Dans ce cas de figure la charge pourra passer à travers la barrière d'énergie par effet tunnel [12].
- L'effet tunnel activé thermiquement (cas 3 Fig. 1.3).

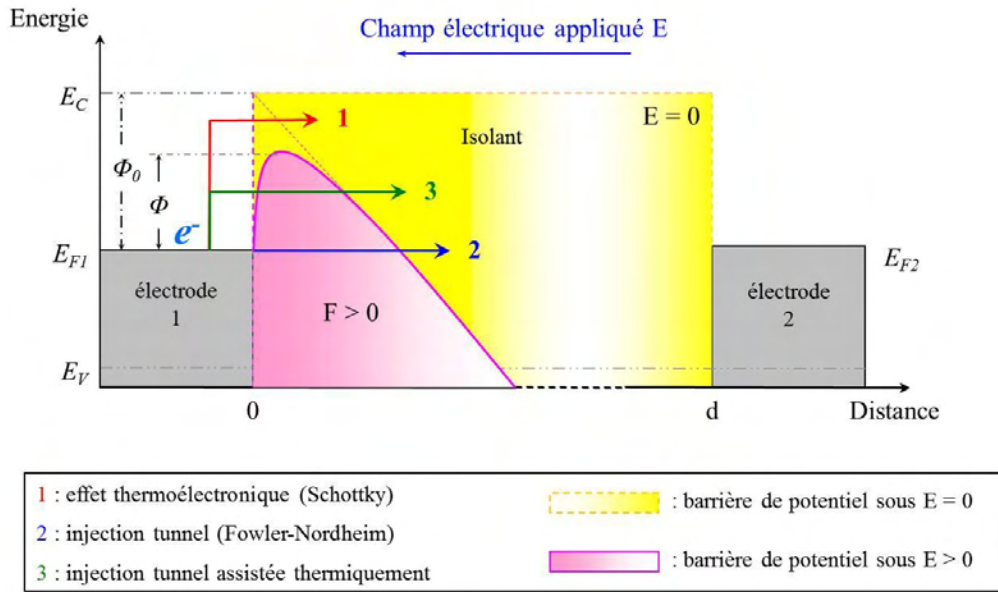


Figure 1.3 : Différents mécanismes d'injection de charges dans un isolant sous l'action d'un champ électrique E .

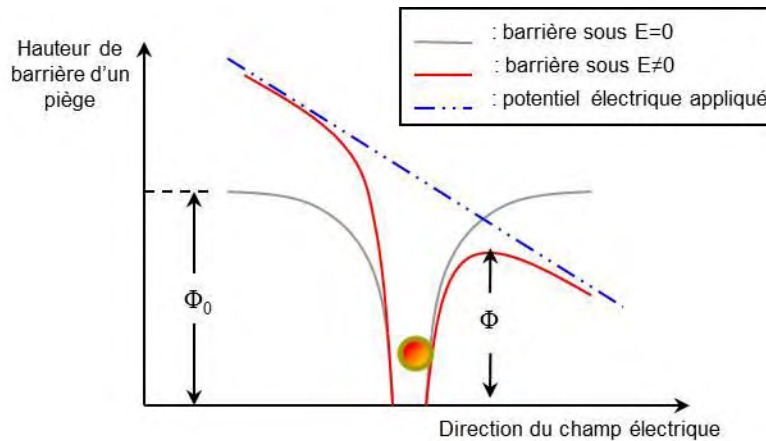


Figure 1.4 : Représentation d'un piège en 1D dans un diélectrique avec ou sans champ électrique E appliqué

Une fois injectées dans le matériau ces charges électriques vont se retrouver piégées.

Le piège peut être vu comme un puit quantique tridimensionnel, (voir Fig. 1.4). La profondeur énergétique du piège ϕ_0 conditionnera la probabilité pour la charge de sortir du piège. Plus la hauteur des barrières est importante (énergie élevée) plus le piège est efficace. On parlera alors de piège profond (ϕ_0 grand) ou peu profond (ϕ_0 petit).

Dans un isolant la conduction se fera par saut (hopping) d'un piège à l'autre. La charge pourra passer d'un piège à l'autre [13] :

- soit en sautant la barrière (la profondeur de piège pourra être abaissée par application d'un champ électrique comme indiqué sur la Fig. 1.4)
- soit par effet tunnel entre deux pièges suffisamment proches spatialement.

Macroscopiquement on définit alors une mobilité μ des porteurs de charges.

On distingue alors trois types de mécanismes de conduction [9-14] :

- La conduction de type Poole-Frenkel qui se produit lorsque la densité de pièges est faible [15]. C'est l'équivalent de l'effet Schottky mais pour le volume et se produit à champ fort. Dans ce cas-là, la hauteur de barrière à franchir est la profondeur du piège.
- Le courant limité par charges d'espace. Dans ce cas les pièges présents dans le matériau vont modifier la conduction en empêchant les charges injectées de participer. Différentes configurations seront présentes. A faible champ, le courant suit la loi d'ohm due aux porteurs intrinsèques. A champ moyen les charges injectées dominent (dont une partie est piégée) le courant de conduction dépendant alors du ratio charges mobiles/charges piégées. Enfin à fort champ tous les pièges sont peuplés et la conduction se passe comme si il n'y avait pas de pièges (loi de Mott-Gurney [16])

II-1.c) Le champ électrique induit par les charges électriques piégées.

Dans le cas d'un excès ou d'un défaut de charges, un écart à la neutralité électrique est créé, ce qui a pour conséquence la modification du champ électrique. Le champ électrique induit peut alors être déterminé à partir de l'équation de Poisson :

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho}{\varepsilon} \quad (2)$$

avec ρ la densité totale de charges (charges d'espace et polarisation) et ε la permittivité du matériau.

Dans le cas d'une distribution de charges proche des électrodes telle que sur la Fig. 1.5.A. un champ électrique inhomogène sera induit dans le matériau. Ce champ électrique induit par les charges E_{ind} va se superposer au champ électrique E appliqué entre les électrodes. Deux cas de figures peuvent être identifiés :

- Cas des homo-charges (Fig. 1.5.B). Le champ électrique sera plus faible à l'interface et plus important en volume.

- Cas des hétéro-charges (Fig. 1.5.C). Le champ électrique sera plus fort à l'interface et plus faible en volume.

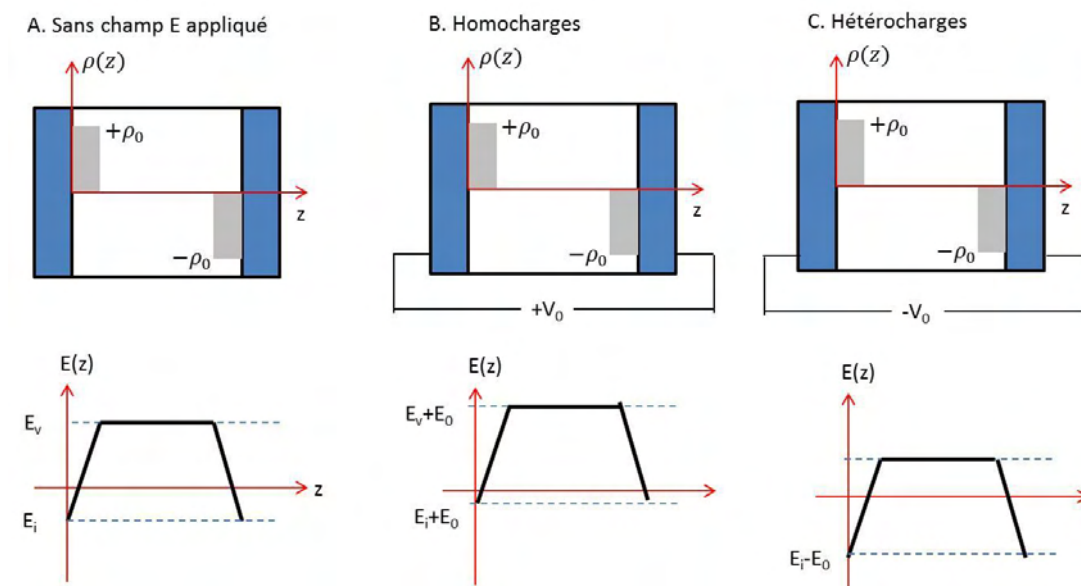


Figure 1.5 : Evolution du champ électrique dans un diélectrique en présence (A) de charges sans champ appliqué, (B) d'homocharges et (C) d'hétérocharges.

La présence de charges à l'intérieur du matériau modifie donc la répartition du champ électrique. Il peut en résulter un certain nombre de conséquences plus ou moins importantes et critiques pour le matériau. Cela peut aller du vieillissement prématuré à la rupture du diélectrique [17].

Il apparaît donc important de pouvoir quantifier et localiser la charge d'espace pour évaluer les conséquences sur la fiabilité du matériau.

II-2) Les techniques de mesure de charges électriques

Il existe un très grand nombre de méthodes de mesure de charge d'espace. Concernant les méthodes ayant une résolution spatiale, pour la plupart, leur principe repose sur l'étude de la réponse des charges électriques à une perturbation extérieure [9, 18-19]. On distingue alors deux grandes familles :

- Les méthodes utilisant une perturbation thermique
- Les méthodes utilisant une perturbation acoustique.

Cette partie a pour but de donner un aperçu non-exhaustif des différentes méthodes permettant de remonter aux densités de charges électriques.

II-2.a) Perturbation acoustique : Pulsed Electroacoustic (PEA)

Dans les années 80 une méthode de mesure de densités spatiales de charges dans un diélectrique a été développée au Japon [20]. Cette technique applique une tension pulsée sur l'échantillon pour générer des ondes acoustiques. Ces ondes interagissent avec les charges piégées et sont ensuite converties à l'aide d'un capteur piézoélectrique en un signal de tension représentatif de la distribution des charges dans l'échantillon. Le schéma de principe est représenté sur la Fig. 1.6. A partir de l'acquisition de la tension aux bornes du capteur piézoélectrique et connaissant la vitesse du son dans le matériau et son épaisseur, il est alors possible de remonter à la distribution de charges via un traitement numérique [21].

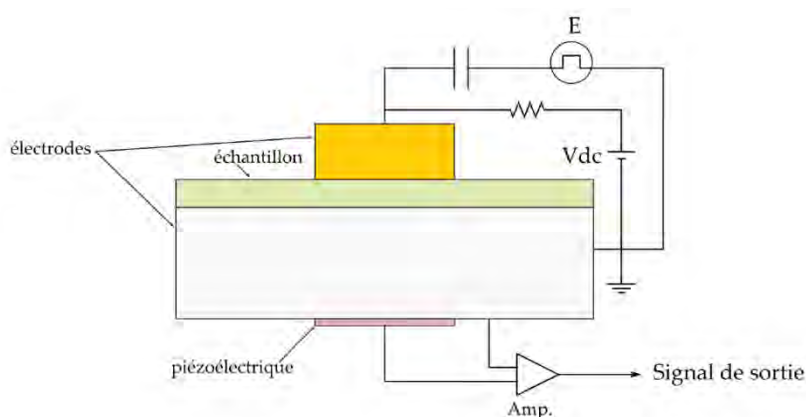


Figure 1.6 : Schéma de principe de fonctionnement de la méthode PEA

La méthode PEA classique (Fig. 1.6) admet une résolution de l'ordre de la dizaine de micromètres (en partie conditionnée par l'épaisseur du capteur piézo-électrique) et n'est utilisable que pour étudier des diélectriques dont l'épaisseur est de l'ordre de quelques centaines de microns. Toutefois, certaines études ont été conduites pour permettre de diminuer cette résolution à quelques micromètres [22]. De même une méthode dérivée de la méthode PEA classique permet l'acquisition de la répartition de charges en 2D et en 3D dans le volume sondé [23-24].

II-2.b) Perturbations thermiques : Laser Intensity Modulation

Method (LIMM)

La technique LIMM utilise un laser modulé en intensité avec une fréquence variable pour créer un gradient de température au sein d'un échantillon situé entre deux électrodes. Le laser frappe l'électrode supérieure semi-transparente qui absorbe et propage la chaleur et l'énergie dans l'échantillon. La chaleur est diffusée de manière non-homogène dans l'échantillon et produit un courant pyroélectrique en interagissant avec les charges électriques (Fig. 1.7) [25-26].

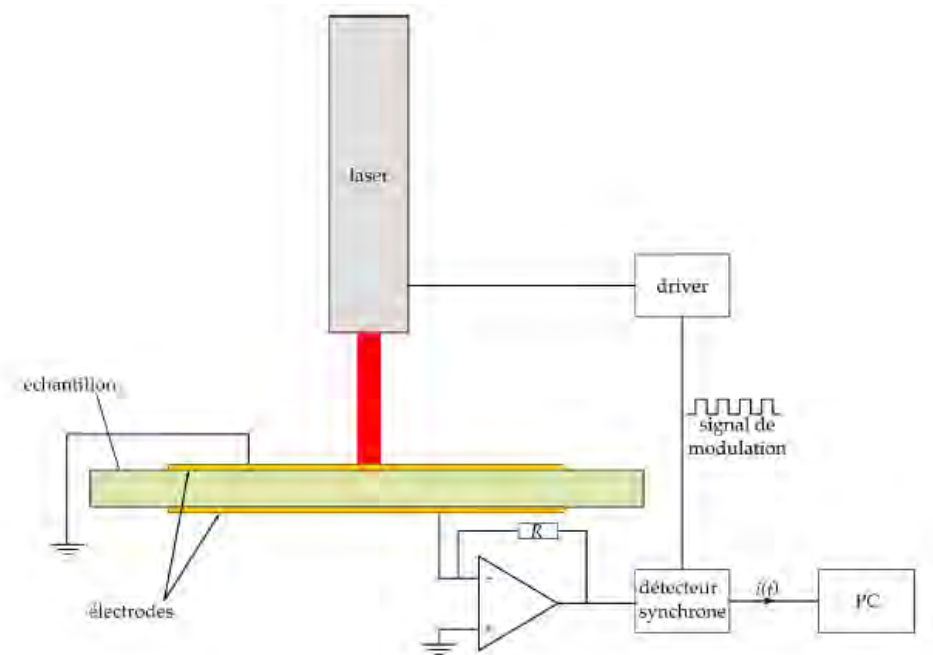


Figure 1.7 : Schéma de principe de fonctionnement de la LIMM

Du courant complexe électrique mesuré (phase et amplitude), la distribution de charges dans l'échantillon peut être déduite [27]:

$$\underline{I}(f) = j \cdot 2\pi \cdot f \cdot \frac{S}{l_{\text{éch}}} \int \rho(x) \cdot T(x, f) \cdot dx \quad (3)$$

avec $\rho(x)$ la distribution de charges électriques, S la surface de l'échantillon, $l_{\text{éch}}$ l'épaisseur de l'échantillon, $T(x, f)$ la distribution de la température dans l'échantillon et f la fréquence de modulation du laser.

La détermination de la densité de charges grâce à l'équation (3) est délicate et nécessite plusieurs étapes telles que la modélisation de la distribution de température, une étape de déconvolution et un traitement numérique [28-29]. Cette méthode permet une mesure de la densité de charges en 1D avec une résolution spatiale de $1\mu\text{m}$ en surface, résolution qui se dégrade en profondeur.

La Focused Laser Intensity Modulation Method (FLIMM) est une technique dérivée de la LIMM, utilisant une lentille convergente pour concentrer le faisceau lumineux en un point de l'échantillon. Ainsi, il est possible d'obtenir une cartographie 3D de la distribution de charges dans l'échantillon. La résolution spatiale latérale obtenue est d'environ $5\mu\text{m}$ et la résolution en profondeur est très bonne proche de la surface ($1\mu\text{m}$) et se dégrade rapidement lorsqu'on s'en éloigne [30]. L'ordre de grandeur de l'épaisseur des échantillons étudiés est de quelques dizaines de micromètres.

II-2.c) Mesures de potentiel de surface grâce à la sonde de Kelvin

La mesure à sonde de Kelvin ou à capacité vibrante est une méthode populaire qui permet de mesurer le potentiel de surface [31] (partie II.1-b) et la densité de charges de surface [32]. Contrairement aux méthodes précédentes elle ne permet pas de déterminer une répartition de charges dans le volume. Une sonde conductrice (pointe capacitive) permet une mesure à distance et non destructive (Fig. 1.8). La quantité de charge Q s'écrit simplement :

$$Q = CV \quad (4)$$

avec C la capacitance de la capacité, et V la différence de potentiel entre les électrodes. Dans le cas d'une configuration en plaques parallèles la capacité s'écrit :

$$C = \epsilon\epsilon_0 \frac{A}{D} \quad (5)$$

avec ϵ la permittivité relative du milieu et ϵ_0 la permittivité du vide, A l'aire de la plaque et D la distance entre les électrodes.

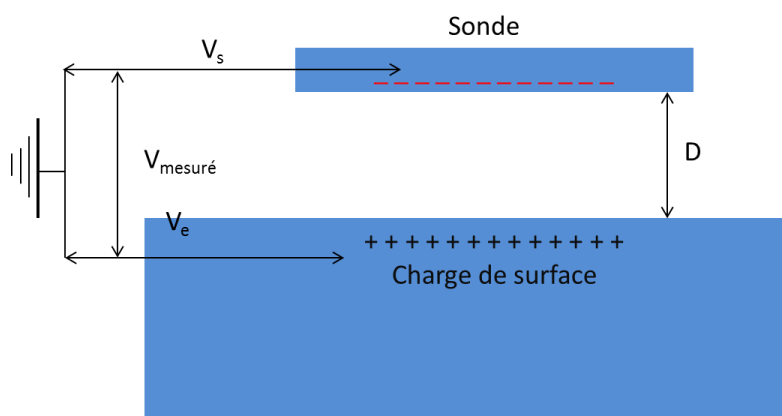


Figure 1.8 : Schéma de fonctionnement de la mesure par sonde de kelvin

Une autre méthode de mesure consiste à faire vibrer la sonde à la pulsation ω . La capacitance s'exprime alors comme :

$$C = \epsilon\epsilon_0 \frac{A}{D_0 + D_1 \sin(\omega t)} \quad (6)$$

avec D_0 la distance moyenne entre la surface et la sonde et D_1 l'amplitude d'oscillation. Le courant induit dans la pointe peut alors être déterminé grâce à :

$$I = \frac{dQ}{dt} = V \frac{dC}{dt} = -V \cdot \frac{\epsilon \epsilon_0 A D_1 \omega \cos(\omega t)}{(D_0 + D_1 \sin(\omega t))^2} \quad (7)$$

Le principe consiste alors à annuler le courant mesuré, ce qui revient à annuler la différence de potentiel V entre la pointe et la surface. Dans cette configuration le potentiel de la sonde V_s est égal au potentiel de surface V_e . Le potentiel de surface mesuré est convolué à la géométrie de la sonde [31-33]. Par la suite des sondes de plus faibles dimensions (de moins de $10\mu\text{m}$ de rayon de courbure) ont été utilisées pour améliorer la résolution spatiale [34]

Cette technique, couplée à l'injection de charge par décharge corona est pratique pour caractériser la dynamique de dispersion des charges et pour analyser les phénomènes de conductivité de surface.

II-3) Les challenges de la miniaturisation

Une des voies d'amélioration des technologies liées au secteur de l'électronique (stockage des données, transistor, interrupteur, ...) est la miniaturisation des composants (cf. la loi de Moore). En effet, la possibilité d'augmenter le nombre de composants, aux propriétés fixes, dans un volume défini permet d'augmenter les capacités globales d'un système. Toutefois, cette approche entraîne l'introduction de plusieurs limitations physiques dont la principale est liée à la modification des propriétés induites par la diminution du volume des composants (les effets de la surface deviennent alors prépondérants). Il convient donc de développer des outils spécifiques pour étudier les propriétés des matériaux aux échelles sub-micrométriques.

Concernant la caractérisation des surfaces, la microscopie électronique (à balayage MEB et en transmission MET) est parfaitement adaptée. En revanche, la caractérisation des propriétés électriques aux échelles submicroniques reste délicate [35].

En ce qui concerne les matériaux diélectriques, il convient de pouvoir caractériser à l'échelle nanométrique les phénomènes d'injection et d'accumulation de charges. Or comme nous venons de le voir la plupart des méthodes de mesure de charges d'espace permettent de remonter à la répartition spatiale de la densité de charges dans le matériau. Toutefois, ces méthodes sont en général adaptées à l'étude de matériaux d'épaisseur supérieure à la cinquantaine de micromètres et avec des résolutions spatiales au mieux de l'ordre de quelques micromètres.

Ces techniques ne sont donc pas adaptées à l'étude des films diélectriques minces (épaisseur inférieure à la dizaine de microns) et à l'étude directe des phénomènes se produisant aux interfaces. [36]

Il convient donc de développer de nouvelles méthodes permettant de mesurer la densité de charges et leur localisation avec une résolution nanométrique. Pour cela la microscopie à Force Atomique et les modes électriques qui en sont dérivés apparaissent comme des candidats particulièrement intéressants.

III- La microscopie à champ proche

III-1) Rappel historique

La microscopie en champ proche est une technologie relativement récente développée suite à l'invention du microscope à effet tunnel par G. Binnig et H. Rohrer en 1981. Cette invention fut récompensée par un prix Nobel de physique.

Par la suite, un développement continu de la technique a été réalisé et un grand nombre de méthodes dérivées ont vu le jour. Ces développements sont regroupés sous l'appellation Microscopie à Champ Proche (SPM) et peuvent être classés en trois grandes catégories:

- La microscopie à force atomique (AFM) [37] : cette technique utilise les forces d'interaction entre la sonde AFM et la surface de l'échantillon à analyser pour obtenir des informations sur la topographie de la surface et sur un certain nombre de propriétés électriques, thermiques... En utilisant le même principe de base, différentes forces peuvent être sondées et ainsi différents types de microscopie ont pu être développés : microscopie à force électrostatique (EFM), microscopie à sonde de Kelvin (KPFM), ... Dans la suite de ce chapitre seule cette catégorie sera discutée en détail.

- La microscopie à effet tunnel (STM) [38] : cette technique consiste en la mesure du courant tunnel entre une pointe conductrice (atomistique) et les atomes de la surface.

- La microscopie optique en champ proche (SNOM) [39] : technique captant, à l'aide d'une sonde locale (fibre optique taillée en pointe), les ondes évanescentes à la surface des matériaux transparents.

III-2) La microscopie à force atomique (AFM)

III-2.a) Principe de fonctionnement

Un microscope à force atomique est constitué de différents éléments illustrés sur la Fig. 1.9 :

- La sonde AFM est constituée d'un bras de levier disposant sur une de ses faces d'une pointe (Fig. 1.10). Le bras de levier a une forme soit rectangulaire soit triangulaire et est caractérisé par sa raideur k . La pointe est quant à elle pyramidale et caractérisée par un

rayon de courbure R_c et un angle d'ouverture α différent selon l'orientation. La sonde est généralement en silicium (levier rectangulaire) ou en nitrure de silicium (levier triangulaire) et peut présenter un revêtement métallique. Le rayon de courbure de la pointe influence la résolution latérale, et la raideur influence la résolution en force. En effet, une force F appliquée à la sonde induira une déflexion x du bras de levier selon la relation :

$$F = kx \quad (8)$$

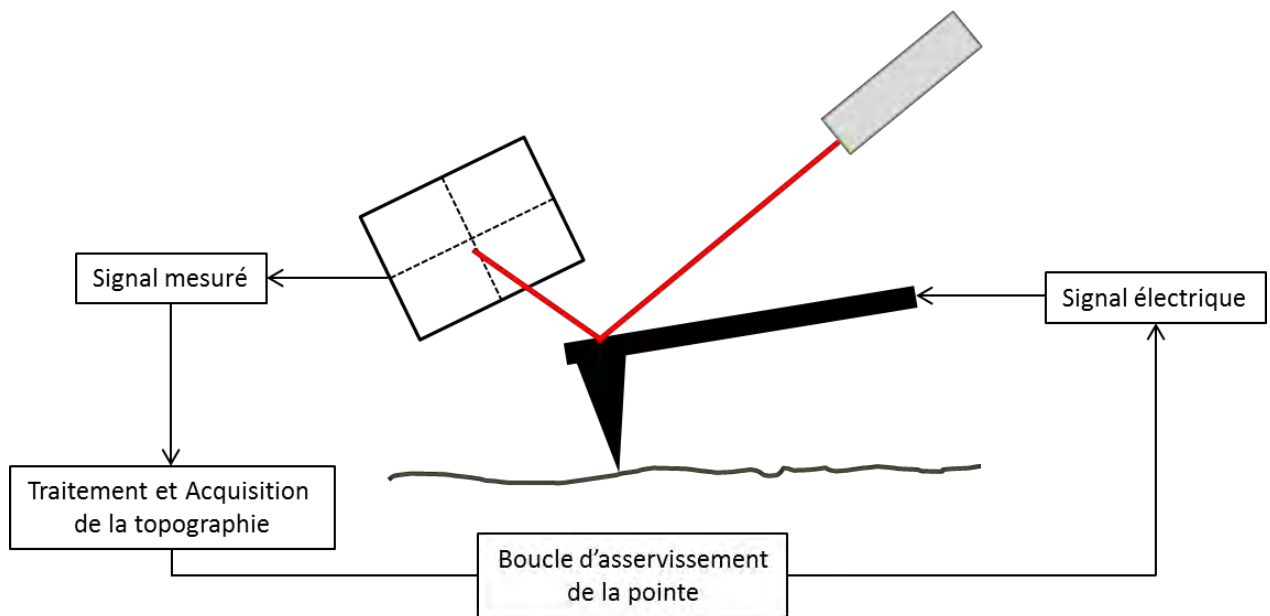


Figure 1.9 : Schéma décrivant le fonctionnement d'un AFM

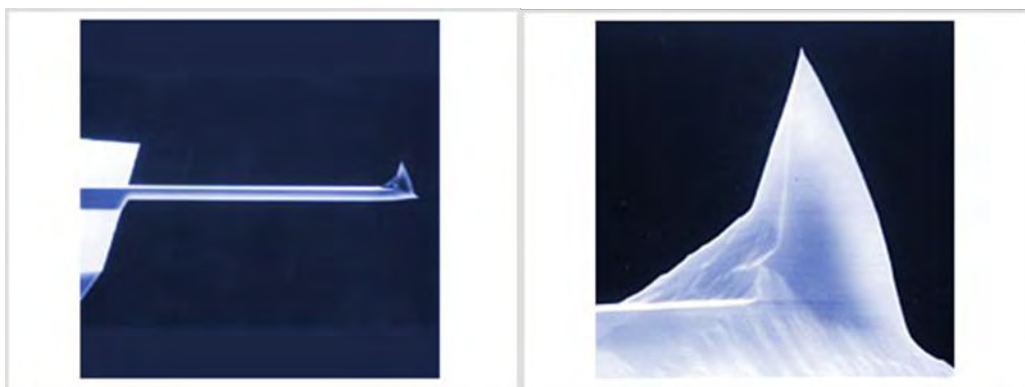


Figure 1.10 : Image au microscope électronique de la sonde AFM composé d'un bras de levier et d'une pointe (gauche) avec un zoom sur la pointe (droite)

- Le capteur de force/déflexion permet de mesurer la déflexion de la sonde AFM. Il se compose d'un laser qui se réfléchit sur le dos du bras de levier et d'une photodiode quatre cadrans permettant de mesurer le signal réfléchi. En effet, en mesurant l'intensité du signal reçu et sa position sur la diode on obtient deux types d'information :
 - Mouvement vertical du spot : déflexion du bras de levier,
 - Mouvement horizontal du spot : torsion du bras de levier.
- Le système d'acquisition permet de mesurer le signal en sortie de la photodiode et de le convertir en informations exploitables (topographie...). Ce système permet aussi de gérer l'asservissement des mouvements.
- Le système de déplacement est constitué d'un moteur qui permet l'approche de la sonde vers la surface, et de trois éléments piézoélectriques qui permettent le balayage selon les axes X, Y, Z.

III-2.b) Les forces en présence

Comme nous l'avons indiqué précédemment, la sonde AFM est sensible aux forces d'interaction avec la surface. On distingue trois types de force : les forces à très courte portée, à courte portée et à longue portée (Tableau 1.1).

A partir de la mesure de ces différentes forces, l'AFM permet d'obtenir des informations sur la topographie (Van der Waals), le potentiel de surface (électrostatique), les domaines d'aimantation (magnétique)...

L'ensemble de ces forces peut être mesuré grâce aux courbes de forces ou courbes approche – retrait. Ces courbes permettent de suivre la déflexion du bras de levier de la sonde, et par conséquent la force induisant cette déformation (équation 8), en fonction de la distance entre la sonde et la surface de l'échantillon (Fig. 1.11).

Force	Portée	Amplitude
Force de Van der Waals	Courte portée	Quelques nN
Répulsion électronique	Très courte portée	Inférieure au nN
Attraction Protons/Electrons	Très courte portée	
Répulsion Protons/Protons	Très courte portée	
Electrostatique	Longue portée	de quelques 0.1nN à quelques 100nN
Magnétostatique	Longue portée	
Adhésion/Capillarité	Longue portée	de quelques 10nN à quelques 100nN

Tableau 1.1 : Exemple de force d'interaction entre la pointe et la surface.

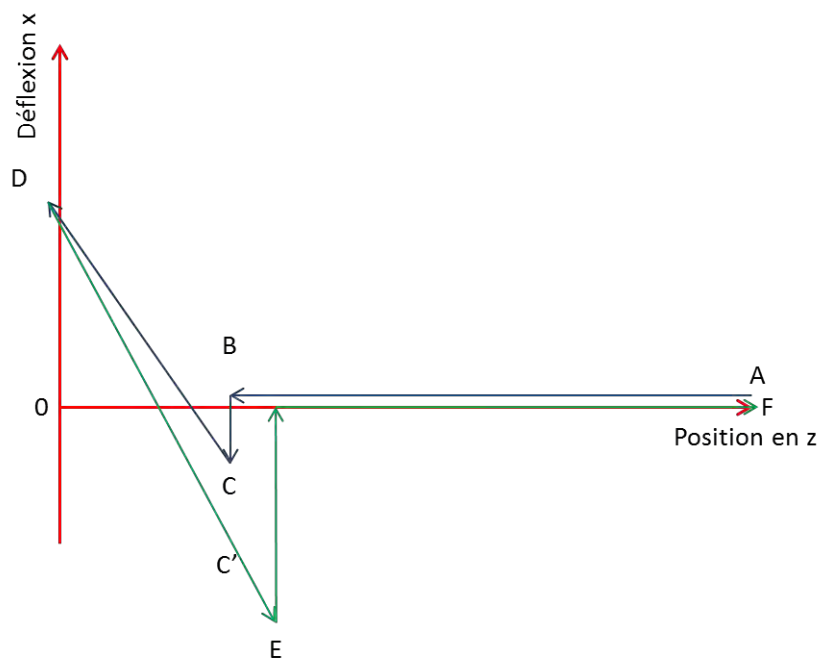


Figure 1.11 : Courbe de force théorique obtenue en approche (en bleu) et retrait (en vert) de la sonde en l'absence de force électrostatique.

On différencie plusieurs phases sur une courbe d'approche-retrait [40-41] :

- Entre A et B ([AB]) : la déflexion du bras de levier est nulle. La sonde est trop loin de la surface pour qu'elle soit sensible aux forces d'interaction.
- Entre B et C ([BC]) : le saut au contact est principalement dû aux forces de Van der Waals. Au point C la pointe est en contact avec la surface.
- Entre C et D ([CD]) : la pointe est en contact et la déflexion est alors proportionnelle à la force appliquée sur la surface par la pointe. Grâce à la pente de la courbe, on peut remonter à la sensibilité de la sonde (surface non déformable) mais aussi aux propriétés mécaniques de la surface telle que la déformation ou le module d'Young.
- Entre D et C' ([DC']) : la pointe commence son retrait de la surface. Si une déformation de la surface a été réalisée lors de la phase précédente ([CD]) une hystérésis est observée.
- Entre C' et E ([C'E]) : la sonde ne quitte pas la surface au point C' car elle est maintenue sur cette dernière par les forces d'adhésion/capillarité. Au point E la force de rappel du bras de levier devient égale aux forces d'adhésion et la pointe est brutalement libérée de la surface. Les forces d'adhésion sont quantifiables en faisant la différence entre la déflexion au point E et au point C :

$$F_{\text{cap}} = k * (x_E - x_C) \quad (9)$$

- Entre E et F ([EF]) : la sonde est libérée des forces attractives de capillarité et se retrouve à nouveau trop loin de la surface pour subir des interactions avec la surface.

En présence d'une force électrostatique les phases d'approche et de retrait seront modifiées. En particulier, les forces d'adhésion seront plus importantes en raison de la présence d'un film d'eau produisant un ménisque retenant la pointe. De plus, comme la force électrostatique est à longue portée, une courbure des phases [AB] et [EF] sera observée [42].

III-2.d) Les différents modes de fonctionnement disponibles pour la mesure de la topographie

Il existe deux façons différentes d'obtenir le signal de topographie AFM : en maintenant un contact entre la pointe et la surface (mode contact) ou en faisant osciller la pointe, à sa fréquence de résonance, à proximité immédiate de la surface (mode contact intermittent). Un troisième mode existe, le mode non contact, qui est particulièrement utilisé pour les mesures sous vide mais il ne

sera pas présenté ici. Historiquement le mode en contact a été développé en premier. Ces deux modes présentent des avantages et inconvénients qui justifient leur utilisation pour différentes applications.

Le mode contact

Dans le mode contact, l'image de la topographie est faite en mesurant la déflexion du bras de levier lorsque la pointe est en contact avec la surface (Fig. 1.12). La déflexion mesurée est alors directement une image du relief de la surface. Pour la mesure deux modes d'asservissement sont disponibles :

- l'asservissement en hauteur : dans cette méthode la sonde est maintenue à une hauteur h fixe, et on mesure les variations de la déflexion du bras de levier. La force appliquée entre la pointe et la surface varie en fonction du relief. Cette méthode est utilisée pour les échantillons avec un faible relief.
- l'asservissement en force : dans cette méthode on va chercher à maintenir la déflexion du bras de levier constante. On mesure alors l'écart entre la déflexion de référence et la déflexion mesurée, et la différence relative de hauteur par rapport au point précédent est calculée. Ensuite la sonde est remise à la hauteur nécessaire pour obtenir la déflexion de référence. Cette méthode permet de contrôler et minimiser la force de contact entre la pointe et l'échantillon et est la plus utilisée.

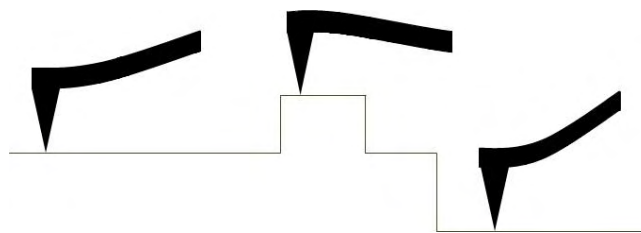


Figure 1.12 : Schéma de principe du fonctionnement du mode contact

Lors du contact entre la sonde et la surface de l'échantillon, on cherche à minimiser les forces d'interaction pour n'endommager ni la surface ni la pointe. En théorie on cherche à se retrouver avec une déflexion nulle (au point C de la courbe de force Fig. 11) mais, en pratique on se déplace légèrement vers le point D pour éviter de perdre le contact avec la surface lors du balayage.

Le mode contact intermittent

Dans le mode contact intermittent, la pointe oscille et vient toucher la surface durant un court instant dans le cycle oscillant (Fig. 1.13). Pour cela une tension sinusoïdale est appliquée à un système piézoélectrique en contact avec la pointe :

$$V_{pz} = V_{ac} \sin(\omega t + \varphi) \quad (10)$$

Avec V_{ac} l'amplitude, ω la pulsation et φ le déphasage. Cela va entraîner une oscillation du bras de levier, à la même fréquence, avec une amplitude :

$$\delta(t) = \delta_0 \sin(\omega t + \varphi) \quad (11)$$

L'amplitude d'oscillation δ_0 va être fixée par la tension V_{ac} . La distance entre la sonde et la surface sera adaptée en fonction de l'amplitude d'oscillation choisie. En effet, une diminution de la tension V_{ac} induira une diminution de l'amplitude d'oscillation. Par conséquent, pour que la pointe puisse toucher la surface il faudra diminuer la distance qui les sépare. De plus, l'amplitude d'oscillation est utilisée pour mesurer la distance entre la pointe et la surface lors de la mesure : plus la pointe se rapproche de la surface plus l'amplitude d'oscillation diminue, et inversement plus elle s'éloigne plus l'amplitude d'oscillation augmente (Fig. 1.13). Puis une fois la mesure de l'amplitude d'oscillation effectuée, la distance entre la pointe et la surface est ajustée pour retrouver la valeur de consigne.

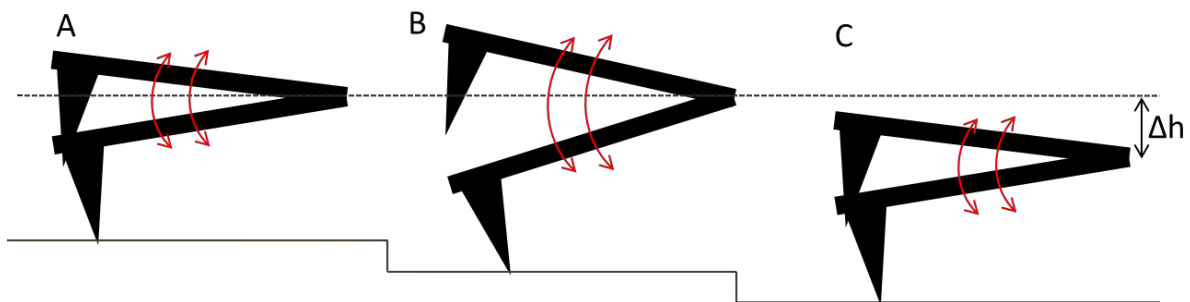


Figure 1.13 : Schéma de principe du fonctionnement du contact intermittent

De même que pour le mode contact, deux méthodes d'asservissement sont possibles :

- l'asservissement en hauteur (Fig. 1.13.A et B) : en bloquant la position de la sonde en hauteur, la pointe balaye la surface. L'amplitude d'oscillation varie alors. De même que pour le mode contact, cela ne permet pas de mesurer les forts reliefs.
- l'asservissement en amplitude (Fig. 1.13.A et C) : dans ce mode on fixe une amplitude d'oscillation de référence. Une fois un point de mesure acquis la sonde incrémente sa position et on obtient alors une amplitude d'oscillation différente. Cette amplitude est utilisée pour mesurer la différence de hauteur avec le point précédent. Puis l'amplitude

d'oscillation est ramenée à l'amplitude de référence en ajustant la position verticale de la pointe. Ce mode est plus largement utilisé que le précédent, et permet de mesurer des reliefs assez importants (quelques micromètres).

Ce mode contact intermittent permet une mesure peu intrusive sur l'échantillon (temps de contact court). Dans ce mode on cherchera à maximiser l'amplitude d'oscillation sans toutefois endommager l'échantillon (contact pointe/échantillon violent). En effet, une plus grande amplitude d'oscillation permet d'atteindre une meilleure résolution de mesure. Ainsi, on cherchera un compromis entre résolution et intrusion de la mesure comme précédemment.

Comparaison des modes contact et contact intermittent

De manière globale, quel que soit le mode de mesure, l'asservissement en hauteur est toujours plus rapide lors du balayage mais limité à l'observation de surfaces relativement lisses (quelques nanomètres de relief). Le tableau 1.2 compare les spécificités de chacune des techniques. On constate que si le mode contact a l'avantage d'une vitesse de balayage rapide, l'importance des forces de frottement générées par la pointe peut endommager cette dernière et/ou la surface de l'échantillon.

	Intrusion	Temps d'acquisition	Sensibilité
Contact	Forte (force de frottement important)	Court	Déflexion
Contact intermittent	Faible	Long (vitesse de balayage en moyenne deux fois plus lente)	Amplitude d'oscillation

Tableau 1.2 : Spécificités des méthodes de mesure de la topographie en mode contact et en mode contact intermittent

Ainsi, au détriment de la vitesse de balayage, le contact intermittent est privilégié pour la faible intrusion de la mesure. Toutefois, on retrouve des mesures faites en mode contact lors de l'observation sous milieu liquide (observation de cellule, membrane,...) [43]. En effet, il est parfois difficile dans un milieu liquide de faire des mesures avec un bras de levier oscillant.

III-3) Mesures du potentiel de surface grâce aux modes électriques dérivés de l'AFM

III-3.a) Principe de la mesure du potentiel de surface par AFM

Les mesures de potentiel de surface se font en mode dynamique, c'est-à-dire que la pointe oscille à une fréquence qui peut être ou non la fréquence de résonance. Cette oscillation peut être d'origine électrique ou mécanique.

Une tension V_{bias} est appliquée sur la pointe. Elle se compose d'une composante continue V_{dc} et d'une composante alternative V_{ac} à la même fréquence que la fréquence de résonance de la pointe :

$$V_{bias} = V_{dc} + V_{ac} \sin(\omega t) \quad (12)$$

Lorsque la sonde AFM s'approche de la surface de l'échantillon, la différence de potentiel $\Delta\Phi$ entre la pointe et la surface vient s'ajouter aux autres potentiels appliqués à la sonde :

$$V_t = (V_{dc} \pm \Delta\Phi) + V_{ac} \sin(\omega t) \quad (13)$$

Cette différence de potentiel induit sur la sonde une force électrostatique définie par l'équation suivante :

$$F_e = -\frac{1}{2} \frac{dC}{dz} (V_{dc} \pm \Delta\Phi + V_{ac} \sin(\omega t))^2 \quad (14)$$

La force électrostatique peut alors se décomposer en trois composantes :

$$F_e = F_{DC} + F(\omega) + F(2\omega) \quad (15)$$

Avec :

$$F_{DC} = \frac{1}{2} \cdot \frac{dC}{dz} \cdot ((\Delta\Phi - V_{dc})^2 + \frac{V_{ac}^2}{2}) \quad (17)$$

$$F(\omega) = -\frac{dC}{dz} \cdot (\Delta\Phi - V_{dc}) \cdot V_{ac} \sin(\omega t) \quad (18)$$

$$F(2\omega) = \frac{1}{4} \cdot \frac{dC}{dz} \cdot V_{ac}^2 \cdot \cos(2\omega t + 2\varphi) \quad (19)$$

Avec C la capacité entre la pointe et la surface, $\Delta\Phi$ la différence de potentiel de surface entre la pointe et l'échantillon, ω la pulsation, φ la phase, t le temps et z la distance entre la pointe et la surface.

La composante continue et la première harmonique dépendent de la différence de potentiel de surface entre la pointe et l'échantillon. Ce sont donc ces deux composantes qui devront être utilisées pour obtenir une cartographie du potentiel de la surface. La seconde harmonique est, quant à elle, une composante purement capacitive qui peut donc être utilisée pour trouver la capacité à 2ω .

En plus de cette composante électrostatique, la pointe est sensible aux forces de Van der Waals :

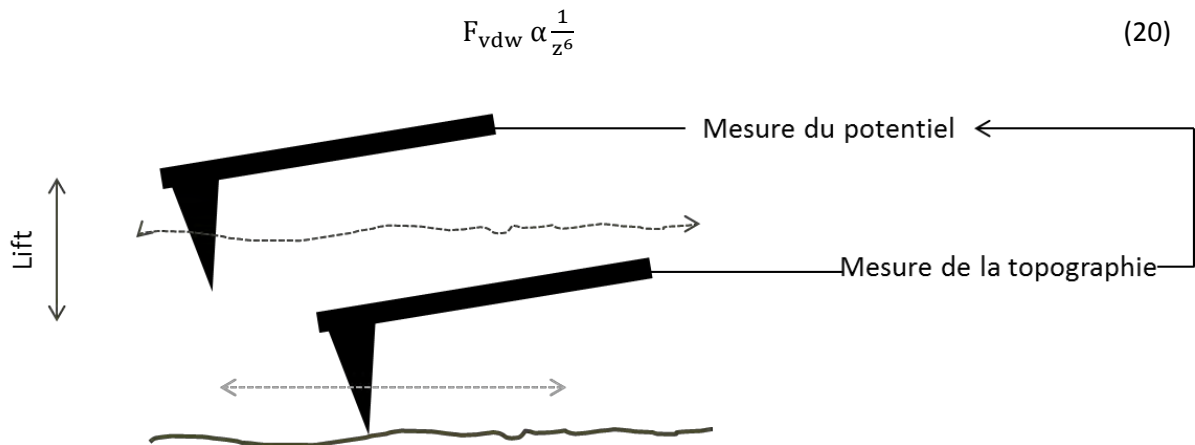


Figure 1.14 : Principe de la mesure de potentiel en mode lift

En règle générale, un double balayage est nécessaire à l'obtention de l'image du potentiel de surface (Fig. 1.14). Dans un premier temps, le signal de topographie est mesuré (contact intermittent). Puis on remonte la pointe à la hauteur h voulue (5-100nm) et on balaye la surface à hauteur constante en reproduisant la topographie acquise lors du premier balayage. La hauteur de lift doit être suffisante pour que la force de Van der Waals soit négligeable mais pas trop importante pour que la force électrostatique soit mesurable. Ainsi, uniquement les variations dues au potentiel de surface seront mesurées.

Deux méthodes sont alors disponibles pour mesurer le potentiel de surface : la microscopie à force électrostatique (EFM) et la microscopie à sonde de Kelvin (KPFM). Nous allons détailler ces deux méthodes par la suite. Il existe de nombreuses configurations possibles pour les mesures EFM et KPFM. Dans la suite nous présenterons le principe de fonctionnement des plus courantes.

III-3.b) La microscopie à force de Kelvin (KPFM)

Pour les mesures KPFM en mode lift, le second passage se fait en supprimant l'oscillation mécanique de la pointe et en appliquant une tension alternative comme indiqué dans l'équation 12. Le principe de la méthode consiste à annuler la force à la pulsation ω (équation 18). Pour cela, le système, via une boucle d'asservissement, va faire varier la composante continue du potentiel appliqué V_{dc} , de façon à compenser le potentiel de contact et ainsi annuler la force. De cette façon, la technique

KPFM permet de mesurer directement la différence de potentiel de surface entre une sonde AFM et l'échantillon [44].

Il existe deux modes de fonctionnement pour le KPFM : une modulation en amplitude (AM), ou une modulation en fréquence (FM).

AM-KPFM

Pour la modulation en amplitude de la KPFM, on va s'intéresser à la force $F(\omega)$ et minimiser son impact. En effet, la partie statique de la force (F_{DC}) est difficilement observable, alors que la partie dynamique de la force ($F(\omega)$) est facilement observable grâce à un amplificateur [45]. D'après l'équation (18) pour minimiser $F(\omega)$ il faut :

$$\Delta\Phi = V_{dc} \quad (21)$$

C'est-à-dire que la tension continue appliquée sur la pointe est égale à la différence de potentiel de surface entre la pointe et la surface (pour rappel $\Delta\Phi = \frac{(\Phi_{surface} + \Phi_{pointe})}{e}$, où e est la charge d'un électron).

En KPFM, la force $F(\omega)$ est mesurée en observant la déflexion du bras de levier au moyen d'une détection synchrone à ω . Pour mesurer la différence de potentiel de contact ($\Delta\Phi$), la boucle d'asservissement ramène l'amplitude de la force $F(\omega)$ à zéro en ajustant la tension de bias (V_{dc}).

De plus, il est à noter que l'on peut remonter à la capacité locale ou à la constante diélectrique en utilisant la force $F(2\omega)$ pour une tension V_{ac} constante. En effet, $F(2\omega)$ ne dépend que du gradient de capacitance (dC/dz).

Toutefois, pour être efficace, cette technique nécessite l'utilisation d'un bras de levier souple (constante de raideur de 1-10N/m) avec une fréquence de résonance relativement faible (<100Hz). La résolution latérale du KPFM dépendra fortement de la géométrie de la pointe ainsi que de la hauteur de lift [34].

FM-KPFM

Pour le KPFM modulé en fréquence, la mesure peut être réalisée en mode lift [46] ou non [47]. Dans tous les cas la fréquence d'excitation de la tension alternative V_{AC} sera faible devant la résonance mécanique. Pour les mesures en simple passage (sans lift), c'est l'utilisation d'une fréquence plus faible qui, en créant des pics satellites autour de la fréquence d'oscillation mécanique, permettra de séparer les signaux de topographie et de potentiel.

On s'intéresse ici au gradient de la force électrostatique à longue portée ($\partial F_e/\partial z$). Dans le cas de la mesure en lift, ce gradient change la fréquence d'oscillation f_ω :

$$\Delta f_\omega \propto \frac{dF(\omega)}{dz} = -\frac{d^2C}{dz^2} (\Delta\Phi - V_{dc}) V_{AC} \sin(\omega t) \quad (22)$$

Dans ce cas, la tension V_{dc} sera également ajustée pour compenser la différence de potentiel de surface entre la pointe AFM et la surface de façon à annuler le décalage en fréquence. Cette méthode, du fait de sa sensibilité au gradient de force, aura une meilleure résolution latérale que le AM-KPFM mais sera plus sensible au bruit.

Cette technique présente l'avantage d'avoir un décalage en fréquence bien défini. Ainsi, il est possible d'utiliser des bras de levier plus rigides (quelques 10 N/m) afin de se rapprocher de la surface et d'un gradient de force plus important [48].

III-3.c) La Microscopie à Force Electrostatique –EFM

Historiquement, le mode EFM a été développé très rapidement après le mode contact intermittent et bien avant le mode KPFM. Pour les mesures EFM en mode lift, le principe est assez différent du KPFM. En effet, pendant le second passage, l'oscillation mécanique de la pointe est maintenue et seulement la composante continue de la tension est appliquée ($V_{ac}=0$ dans l'équation 12). Dans ce cas la force s'exerçant sur la pointe devient :

$$F_{DC} = \frac{1}{2} \cdot \frac{dC}{dz} \cdot ((\Delta\Phi - V_{dc})^2) \quad (23)$$

Cette force s'appliquant sur la pointe modifie la constante de raideur naturelle k du bras de levier ce qui introduit une modification de la pulsation de résonance (et de la phase) de la pointe :

$$\omega_1 = \sqrt{\omega^2 - \frac{1}{m_e} \frac{\partial F}{\partial z}} \approx \omega \left(1 - \frac{1}{2k} \frac{dF_{DC}}{dz} \right) \quad (24)$$

Une force attractive entraîne une diminution de la fréquence et une force répulsive une augmentation. Par conséquent, la mesure de cette variation de fréquence nous permettra d'avoir une information sur le potentiel de surface sans pour autant pouvoir mesurer directement la différence de potentiel de surface comme dans le cas du KPFM [49].

La méthode EFM du fait de sa sensibilité au gradient de force présente une meilleure résolution spatiale que le KPFM mais nécessite une étape de modélisation pour remonter au potentiel de la surface. C'est pour cette raison que pour de nombreuses applications le KPFM est préféré. De plus

pour tenter de surmonter les problèmes de résolution latérale en KPFM, des méthodes de déconvolution telle que la « point spreading function » ont été développées [50].

III-4) Mesure de courant (C-AFM)

III-4.a) Principe de fonctionnement

Dans cette méthode, une pointe conductrice est amenée en contact avec la surface d'un échantillon dont on veut étudier les propriétés de conduction. Une tension V_{DC} appliquée en face arrière de l'échantillon et un système d'asservissement en déflexion permettant de conserver la force de contact constante durant la mesure (Fig. 1.15). En fonction du type d'amplification utilisée pour la mesure du signal, différents modes existent :

- La Scanning Spreading Resistance (SSRM) qui utilise un amplificateur logarithmique qui permet de mesurer des courants assez importants sur une grande plage (entre 1mA et 0.1 μ A).
- Le Conductive AFM (C-AFM) et le Tunneling AFM (TUNA) qui utilisent des amplificateurs linéaires qui permettent d'atteindre des faibles courants (respectivement 1pA-1 μ A pour le C-AFM et 100fA-200pA pour le TUNA).

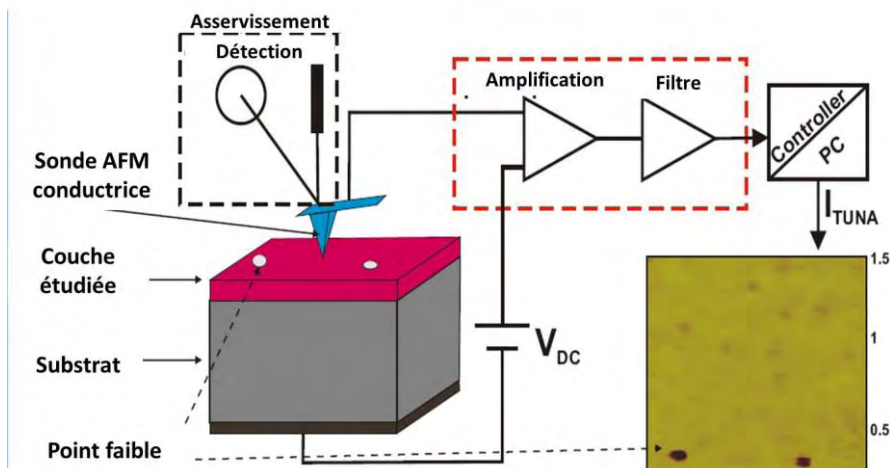


Figure 1.15 : Schéma de principe de la mesure du courant.

Deux modes sont accessibles : un mode d'imagerie et un mode de spectroscopie :

- Le mode imagerie : la topographie est mesurée en mode contact avec une pointe conductrice et le courant est acquis simultanément. Il est alors possible de corréler la cartographie des courants avec la topographie de l'échantillon.

- Le mode spectroscopie : en fixant la position de la sonde, on fait varier le potentiel appliqué en face arrière de l'échantillon. On obtient alors le courant I en fonction de la tension appliquée V ($I=f(V)$). Ces courbes sont appelées des caractéristiques I-V d'une petite zone de l'échantillon. Grâce à ces mesures, des informations sur les propriétés électriques (résistivité,...) ou électroniques locales peuvent être obtenue (densité des états...).

III-4.b) Limitations

Les courants mesurables vont de quelques μA à quelques centaines de nA selon les amplificateurs utilisés. Il faut donc veiller à ne pas dépasser le courant maximum observable.

Du fait du contact entre la pointe et la surface (force de friction importante), une plus grande usure du revêtement métallique de la pointe est observée. Ainsi, il faut faire attention à l'état de la pointe lors de la mesure. Une autre méthode consiste à utiliser des pointes conductrices mais non-métallisées, comme des pointes en silicium dopé ou en diamant dopé. Ces pointes sont plus résistantes au contact mais ont des résistivités plus grandes et n'assurent pas forcément un contact de type ohmique avec le matériau étudié.

De plus, le courant mesuré dépend de la surface de contact entre la pointe et l'échantillon. Cette surface de contact est difficile à caractériser précisément. En effet, elle dépend de la géométrie et de l'état de la pointe, de ses propriétés mécaniques et des conditions expérimentales (force de contact, température...). Le courant collecté dépend aussi de l'état d'oxydation de la pointe.

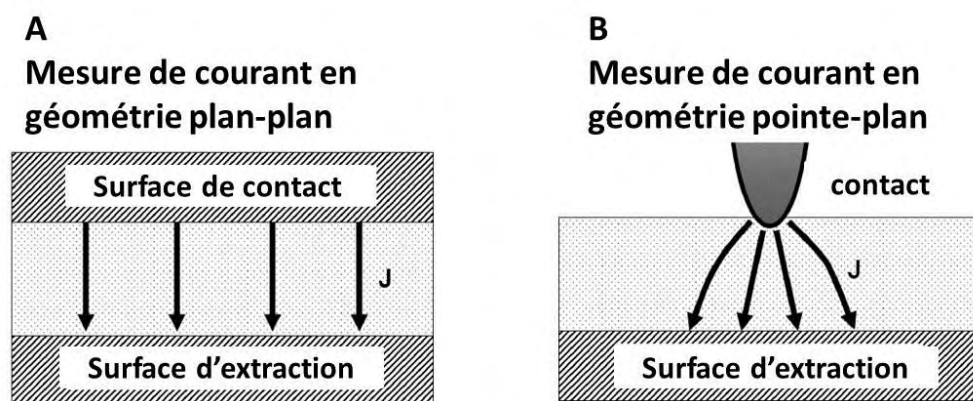


Figure 1.16 : Différence de géométrie de collection du courant J en configuration A) plan-plan et B) pointe-plan [51].

Comme l'ont montré O. Reid et al. [51] la configuration de collection du courant est très différente pour une configuration plan-plan (Fig. 1.16.A) et pour une configuration pointe-plan (Fig. 1.16.B). En

effet, un écart de 3 décades peut être obtenu sur la mobilité des porteurs mesurée avec des électrodes macroscopiques ou en mode C-AFM. Cet effet est en partie expliqué par la difficulté de connaître précisément la surface de contact et par le renforcement du champ électrique au niveau de la pointe.

Dans le cadre de l'étude de couches isolantes, les courants mesurés seront très faibles et donc les modes C-AFM et TUNA seront préférés.

IV- Etude de l'injection et du transport de charges par AFM

Cette partie a pour objectif de dresser un état des lieux, non exhaustif, de l'injection et de la mesure de charges par AFM. Cette problématique est assez ancienne puisque dès les années 1989-1990, elle est introduite avec les travaux de B. Terris et al. [52] et de C. Schönenberger [53]. Plusieurs articles présentent un état des lieux assez complet [54-56]. Toutefois, malgré de très nombreuses études un certain nombre de questions restent encore en suspens tels que les mécanismes en jeu lors de l'injection localisée des charges, la possibilité de déterminer la répartition des charges en volume...

Dans l'ensemble de ces études les charges sont injectées localement par une pointe AFM conductrice sur laquelle est appliquée une différence de potentiel par rapport à l'échantillon. La pointe AFM peut être en contact ou non avec la surface de l'échantillon. En fonction du mode d'injection utilisé différents effets ont pu être observés.

De même, il est possible de charger un échantillon selon des motifs particuliers en déplaçant la pointe à la surface de l'échantillon avec une tension appliquée sur la pointe [57]. Il devient alors possible d'observer les interactions entre les différents paquets de charges piégées. Une autre façon possible d'injecter des charges est d'utiliser des électrodes latérales de façon à pouvoir étudier l'injection en même temps que le transport de charges [58-60]. Toutefois ces études sont assez rares et restent cantonnées à l'étude de matériaux semiconducteurs.

IV-1) Comment mesurer les charges électriques en AFM ?

Les charges électriques piégées dans le matériau peuvent se manifester de différentes façons

- Participation au courant de conduction au sein de la couche. Ces effets pourront être mesurés par C-AFM.
- Induction d'une modification du potentiel de surface (KPFM) et de la force électrostatique (EFM). La densité de charges piégées Q_s dans l'échantillon entraîne des variations dans la

force mesurée $F(\omega)$ en KPFM (équation 18). Par exemple, en considérant une densité de charges Q_s ponctuelle, la force électrostatique devient :

$$F(\omega) = \left(\frac{dC}{dz} \left(V_{dc} + \frac{\Phi_{surface}}{e} \right) - \frac{Q_s C}{4\pi\epsilon_0 z^2} \right) V_{ac} \sin(\omega t) \quad (25)$$

Ainsi, en théorie le nombre Q_s et le signe des charges sont accessibles. Toutefois, dans le cas d'une distribution non ponctuelle de charges le calcul de la force électrostatique n'est plus si évident. De plus, le calcul de la capacité C dépend grandement de la géométrie de la pointe et de la configuration pointe échantillon, ce qui rend la détermination de Q_s difficile comme nous le verrons par la suite.

Par la suite nous allons voir comment chacune de ces mesures (C-AFM, KPFM et EFM) a permis d'étudier l'injection et le stockage des charges électriques dans des couches diélectriques minces (inférieures à quelques centaines de nanomètres).

IV-2) Mesures de charges par EFM

La mesure par EFM des charges injectées par une pointe AFM en contact avec une surface isolante a été démontrée à la fin des années 1980 [52 - 53].

Si l'application d'un potentiel V_{dc} (équation 23) permet d'améliorer la sensibilité de la mesure, il a été démontré que la variation de phase (ou de fréquence) induite par les charges dépend de ce potentiel.

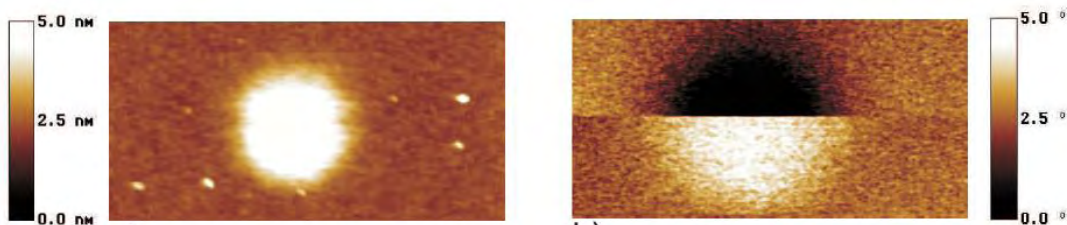


Figure 1.17 : Imagerie (A) du signal de topographie et (B) du signal de phase sur une couche de SiO_2 de 7 nm d'épaisseur mesurés pour un lift de 100nm pour une injection de 10s à -10V. V_{dc} vaut -2 V sur la partie inférieure et +2 V sur la partie supérieure [61]

En effet, comme montré sur la Fig. 1.17, le contraste de phase varie en fonction du potentiel appliqué. Si le potentiel appliqué est de même signe que la charge, la phase apparaît positive (force répulsive). En revanche, si le potentiel est de signe opposé à la charge, la phase devient négative. Malheureusement dans certains cas (V_{dc} de même signe que la charge mais dont la norme est inférieure au potentiel de surface induit par les charges) un profil en bosse avec un creux au milieu apparaît ce qui rend l'interprétation plus complexe.

Afin d'étudier les phénomènes de transport, J. Lambert et al. [62] ont injecté localement des charges à l'aide d'une pointe AFM et les ont faites se déplacer sous l'effet d'un champ électrique induit par des électrodes latérales. Ils ont ainsi pu mettre en évidence les très faibles vitesses de déplacement des charges. Toutefois cette étude en est restée à la preuve de concept.

A partir de ces mesures de variation de phase ou de fréquence plusieurs axes ont été développés pour permettre de remonter au potentiel de surface ainsi qu'à la densité de charges.

Dans tous les cas, cela passe par une modélisation, la plus précise possible, des interactions pointe-échantillon. Ainsi de nombreux groupes de recherche se sont penchés sur l'évaluation quantitative des forces d'interaction électrostatique entre une sonde AFM et une surface [63-66].

La première approche a été de calculer numériquement la dérivée seconde de la capacité entre la pointe et la surface pour l'ensemble des éléments qui la compose pour l'injecter dans l'équation 22 ou 25 :

- La capacité plan-plan pour tenir compte de la capacité du bras de levier,
- La capacité sphère-plan pour tenir compte de la contribution de l'apex [67],
- La capacité cône tronqué-plan pour tenir compte de la contribution du cône sans l'apex [68 - 69].

Cette modélisation, même si elle est relativement simplifiée a permis d'obtenir de nombreux résultats très intéressants [70 - 71] et en particulier de mettre en avant qu'il était possible de détecter une charge unique pour des couches diélectriques extrêmement fines (en effet la quantité minimale de charge détectable augmente avec l'épaisseur de la couche) [72]. Par la suite des modèles basés sur les mesures de hauteur apparente [73 - 74] ainsi que sur la combinaison des mesures à ω et 2ω [75] ont permis de déterminer quantitativement des densités de charges surfaciques.

Par la suite, en 2001 T. Melin et al. ont développé un modèle reposant sur une modélisation de la capacité plus réaliste ainsi que sur la combinaison des mesures à ω et 2ω [76].

Pour s'affranchir des problèmes liés à la modélisation de la capacité entre la sonde et la surface qui est très sensible à un certain nombre de paramètres difficilement maîtrisables (rugosité de surface, distance pointe-surface en mode oscillant...), R. Dianoux a développé dans sa thèse une méthode de détection et quantification de la charge basée sur la mesure du gradient de force, où celui-ci est

enregistré sur un point fixe en fonction du déplacement vertical du piézoélectrique (courbe approche-retrait en mode oscillant) [61].

Toutefois, malgré ses nombreux avantages, la sensibilité de l'EFM aux charges images rend la technique difficile à maîtriser et entraîne des incertitudes de mesure [77]. Pour résoudre ce problème une mesure directe du potentiel de surface a été envisagée.

IV-3) Mesure de charges en KPFM

Comme expliqué précédemment la microscopie à sonde de Kelvin permet la mesure directe des modifications du potentiel de surface induites par les charges piégées.

Par conséquent de très nombreuses études discutent directement des mesures de potentiel de surface sans pour autant avoir recours à une étape de modélisation pour remonter à la densité de charges.

Au cours de ces vingt dernières années, un très grand nombre d'études a été menées. Elles s'intéressent principalement à quatre phénomènes.

- L'influence des conditions expérimentales s que le mode d'injection en contact ou en mode dynamique [78], l'environnement (humidité ou nature du gaz) [55], traitement de surface [79], et la distance de mesure (dans le cas du mode lift) [80 - 81] sur l'injection et le transport de charges.
- Les mécanismes d'injection de charges au sein des isolants ont été discutés [55, 78-80]. Toutefois, même si l'injection de charges a été largement étudiée expérimentalement dans la littérature, les phénomènes physiques impliqués ne sont encore que marginalement discutés. Seulement quelques mécanismes ont été proposés pour expliquer l'injection de charges. En effet, l'injection par décharge corona [82] est souvent citée comme le principal mécanisme mais des calculs théoriques associés à des mesures KPFM démontrent que ce phénomène est impossible pour l'injection de contact due à la faible distance pointe-échantillon [83 - 84]. En outre, la mesure du courant lors de l'injection de charges révèle un comportement proche d'un mécanisme Fowler-Nordheim [85]. De plus, l'analyse de la bibliographie souligne que l'influence des caractéristiques de la pointe (géométrie, travail de sortie...) est rarement prise en compte avec précision pour assurer une réelle compréhension des mécanismes d'injection ; l'accent ayant surtout été mis sur l'étude des mécanismes de rétention. Z. Sun et al [86] discutent de l'influence du travail de sortie de la pointe sur l'injection de charges, mais sans prendre

en considération précisément la géométrie de la pointe (qui contrôle le champ électrique) et la tension de polarité. En effet, c'est un paramètre important, car les électrons et les trous présentent une quantité de charges injectées et une évolution temporelle différente, ce qui indique que des mécanismes probablement différents sont impliqués.

- Les phénomènes de rétention de charges dans les isolants. De très nombreuses études se sont penchées sur cette problématique, aussi bien pour étudier des applications pour les électrets [87], que pour les mémoires [88] ou pour la caractérisation des propriétés d'une couche diélectrique [89 - 90]. L'étude la plus intéressante est celle de S. Morita et al. [91] car les auteurs indiquent comment à partir de l'étude de l'évolution temporelle du profil de potentiel on peut savoir si les mécanismes en jeu sont volumiques, surfaciques ou un mélange des deux.
- Les effets de l'environnement de mesure. Différents points ont été adressés et en particulier l'influence de l'atmosphère [92], de l'humidité [93], et de la température [57]. Il a été montré que l'injection de charges augmente et leur rétention diminue lorsque la température [94] ou l'humidité augmente [91].

Toutefois, de même que pour l'EFM, la KPFM utilise la force électrostatique et par conséquent le système capacitif entre l'échantillon, l'atmosphère et la pointe. La modélisation de la mesure KPFM et donc la détermination de la densité de charges ne sera donc pas plus facile. De plus, cette modélisation est rendue encore moins aisée du fait de la sensibilité de la mesure aux capacités parasites [34].

La première façon de modéliser les mesures KPFM pour essayer de remonter à la densité de charges repose sur un calcul numérique des forces électrostatiques en fonction de la tension appliquée sur la pointe [95].

Pour essayer d'obtenir des résultats plus proches de la réalité, L. Borowik et al [96] a développé un modèle basé sur le calcul des forces par éléments finis sous COMSOL. Ce modèle axisymétrique représente la pointe comme un cône tronqué par une sphère et le bras de levier par un disque présentant un gradient de force équivalent. Ce modèle, bien que simplifié reste largement utilisé et a fourni de très bon résultats. Grâce à ce modèle, trois forces sont calculées, F_{ps0} la force capacitive entre l'échantillon non chargé et la sonde en présence d'une tension, F_{ip} la force issue de la charge image vu par la pointe mise à la masse (proportionnelle à la densité de charges au carré), et F_{ps} la force capacitive entre la pointe et l'échantillon chargé lorsqu'une tension de bias est appliquée.

En tenant compte du fait que la mesure KPFM n'est pas sensible aux charges images, ils en déduisent une expression du potentiel de surface mesuré en fonction de ces forces (dans le cas où les oscillations de la pointe sont négligées):

$$V_{DC} = - \frac{V_{stat}(F_{ps} - F_{ps0} - F_{Ip})}{2(F_{ps0} + F_{capa})} \quad (29)$$

avec V_{stat} une tension de bias statique appliquée sur la pointe et F_{capa} la force capacitive associée au bras de levier.

En prenant différentes hypothèses sur la localisation en profondeur des charges E. Palleau et al [97] ont déterminé une densité surfacique de charges dont l'ordre de grandeur (10^{-3}C.m^{-2}) est peu influencé par la profondeur, grâce à ce modèle.

Ces résultats, bien que reposant sur certaines approximations (profondeur de localisation des charges, géométrie de la sonde AFM...) sont toutefois très importants et novateurs surtout que comme les auteurs l'indiquent, il n'existe toujours pas de méthode permettant de connaître la position des charges dans le volume avec une précision nanométrique.

IV-4) Résolution et limitations

Comme nous venons de le voir précédemment l'EFM et la KPFM ont largement été utilisés pour étudier l'injection et le transport de charges dans les isolants en couches minces. Toutefois chacune de ces techniques présente des avantages et des inconvénients.

La résolution latérale de ces techniques est sensible à de très nombreux paramètres tels que les dimensions de la sonde AFM (rayon de courbure, bras de levier...), la hauteur de lift, la méthode de détection (en amplitude pour le AM-KPFM ou en fréquence pour l'EFM et le FM-KPFM), les capacités parasites (l'utilisation du signal de fréquence rend la mesure moins sensible aux capacités parasites)... La dimension de la sonde (rayon de courbure) est un paramètre d'autant plus critique qu'il impacte deux fois la résolution : (i) augmentation de la capacité parasite et (ii) dégradation de la résolution en topographie qui sera reproduite en lift. Ainsi les meilleures résolutions latérales sont obtenues en FM-KPFM et en EFM.

Si la résolution est de l'ordre de l'Angstrom en KPFM en mode non contact sous ultraviolet sur des molécules uniques [98], elle est comprise entre 50nm et 100nm pour des mesures à l'air sur des matériaux à contraste de travail de sortie (empilement latéral de couches semiconductrices par exemple). Toutefois, on ne dispose que de peu d'informations quant à la résolution latérale des

mesures KPFM ou EFM sur des charges localisées. Il semblerait toutefois d'après les travaux de E. Palleau [97] que la résolution dans ce cas soit supérieure à 100nm.

Concernant la sensibilité, comme nous l'avons indiqué précédemment, l'EFM pourrait être sensible à la charge unique mais sa sensibilité dépend fortement de l'épaisseur de la couche diélectrique. Concernant le KPFM la sensibilité de la technique est de l'ordre de 10mV bien que des résolutions de l'ordre de 1mV ont été rapportées dans certaines conditions de lift et de géométrie de pointe [99 - 100]. Toutefois le FM-KPFM reste plus sensible au bruit que l'AM-KPFM.

Enfin, la force électrostatique est une force à longue portée, qui peut être très intense à courte portée et ainsi perturber les mesures de topographie. Ces artefacts de « hauteur apparente » sur la topographie [46] vont augmenter la distance entre la pointe et la surface lors de la mesure de potentiel et ainsi détériorer la sensibilité et la résolution latérale.

Le plus grand avantage de la mesure en KPFM est de permettre la mesure directe du potentiel de surface et de ne pas être sensible aux charges images contrairement à l'EFM, ce qui rend plus facilement interprétables les résultats obtenus. Cela explique pourquoi le KPFM est une technique de plus en plus utilisée pour la mesure des charges piégées dans les isolants.

Toutefois, il est nécessaire de nuancer le fait que le KPFM mesure le potentiel de surface de l'échantillon. En effet, des mesures quantitatives du potentiel de surface nécessitent de connaître le travail de sortie de la pointe Φ_{pointe} , ce qui nécessite une calibration sur une surface pour laquelle le travail de sortie est connu. Mais cette valeur sera très sensible au moindre changement d'état: la dégradation de la pointe (perte du revêtement), la contamination (due à la surface sondée et/ou à l'atmosphère) ou à la présence de charges stockées lors des phases de polarisation de la pointe [101].

IV-5) Apport des mesures de courant en C-AFM

Les mesures de courant en C-AFM sont principalement utilisées pour étudier le courant circulant dans une couche mince isolante dans trois circonstances :

- Lors de la polarisation, le suivi du courant pourra ainsi permettre d'évaluer la quantité de charges traversant le film mince [102].
- Les études liées à la fiabilité des diélectriques que ce soit pour l'étude des phénomènes de claquage, [103] ou des courants de fuite et des points chauds [104]

- Les études des phénomènes de transport : un transport de type courant tunnel Fowler-Nordheim a été démontré pour des couches ultraminces (inférieure à 4nm) [103, 105 - 106]. Toutefois, la détermination de certains paramètres tels que la hauteur de barrière est rendue très dépendante de l'estimation de la surface de contact entre la pointe et la surface.

Dans tous les cas les informations obtenues sont complémentaires des mesures d'injection et de transport de charges réalisées en KPFM ou en EFM.

V- Conclusion

Comme nous venons de le voir la compréhension des mécanismes d'injection et de rétention de charges dans les isolants est nécessaire pour améliorer la fiabilité de ces matériaux. Dans le cas de couches minces les techniques classiques possèdent des résolutions spatiales bien supérieures aux dimensions des films étudiés. Il faut donc mettre au point de nouvelles méthodes de mesure de charges. Depuis une vingtaine d'années les méthodes dérivées de la microscopie à force atomique telles que l'EFM ou le KPFM ont largement été utilisées pour étudier l'injection et la rétention de charges dans des couches minces diélectriques. Il apparaît également que le KPFM est une méthode très performante pour étudier ces phénomènes, même s'il reste plus sensible aux capacités parasites.

Si l'EFM et le KPFM ont toutes les deux fourni un grand nombre de résultats concernant les mécanismes en jeu, un certain nombre de problématiques demeure, telles que les mécanismes en jeu lors de l'injection de charges ou la possibilité de connaître la localisation en profondeur des charges dans la couche, ainsi que leur déplacement en volume au cours du temps.

Les travaux développés dans cette thèse auront pour objectif d'apporter des informations concernant ces deux problématiques. Dans une première partie nous nous intéresserons à l'influence de l'épaisseur de la couche sur l'injection et la rétention des charges piégées. Dans cette configuration les charges seront injectées localement par une pointe AFM et des mesures de potentiel de surface et de courant seront réalisées.

La deuxième partie de ces travaux adressera la problématique du transport de charges dans le volume. Comme il n'est pas possible de connaître la répartition des charges dans le volume, une configuration utilisant des électrodes latérales a été utilisée pour injecter des charges. Les problèmes en 3D sont ainsi ramenés à un problème 2D en regardant la structure métal/isolant/métal sur la

tranche. L'injection et le transport de charges sous champ électrique pourront ainsi être étudiés en dynamique par mesure de potentiel KPFM.

Bibliographie :

- [1] Y. Zhang, J. Lewiner, C. Alquié, and N. Hampton, “*Evidence of Strong Correlation Between Space-Charge Buildup and Breakdown in Cable Insulation*”, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 3, Num. 6, 1996
- [2] K.J. Chao, J. R. Kingsley, R.J. Plano, X. Lu, and I. Ward, “*Applications of atomic force microscopy scanning capacitance microscopy in imaging implant structures of semiconductor devices*”, J. Vac. Sci. Technol. B, Vol. 19, Num. 4, 2001
- [3] G.E. Moore, “*Cramming More Component onto Integrated Circuits*”, Proceeding of the IEEE, Vol. 86, Num. 1, 1998
- [4] M. Lundstrom, and Z. Ren, “*Essential Physics of Carrier Transport in Nanoscale MOSFETs*”, IEEE Transactions on electron devices, Vol. 49, Num. 1, 2002
- [5] J.V. Barth, G. Costantini, and K. Kern, “*Engineering atomic and molecular nanostructures at surfaces*”, Nature, Vol. 437, 2005
- [6] S. Roth and C. Joachim, “*Atomic and molecular wires*”, kluwer, dordrecht, germany 1997
- [7] G. Binnig, and C. F. Quate, “*Atomic Force Microscope*”, Phys. Rev. Lett., Vol. 56, Num. 9, 1986
- [8] C. Villeneuve, G. Teyssedre, F. Mortreuil, L. Boudou, and K. Makasheva, “*Space charge probing in dielectrics at nanometer scale by techniques derived from Atomic Force Microscopy*”, IEEE International Conference on Solid Dielectrics, 2013
- [9] R. Coelho and B. Aladenize, “*Les diélectriques*”, Hermés, 1993
- [10] C. R. Crowell, “*The Richardson Constant for thermionic emission in Schottky barrier diodes*”, Solid-State Electronics, Vol. 8, Num. 4, 1965
- [11] R. T. Tung, “*The physics and chemistry of the Schottky barrier height*”, Appl. Phys. Rev., vol. 1, 011304, 2014
- [12] R.H. Fowler, and L. Nordheim, “*Electron Emission in Intense Electric Fields*”, Proceedings of the Royal Society of London, Vol. 119, Num. 781, 1928
- [13] C. Bonelle, G. Blaise, C. Le Gressus, and D. Tréheux, « Les isolants », lavoisier, 2010

- [14] P.N. Murgatroyd, "*Theory of space-charge-limited current enhanced by Frenkel effect*", J. Phys. D: Appl. Phys., vol. 3, 151, 1970
- [15] J. Frenkel, "*On pre-breakdown phenomena in insulators and electronic semi-conductors*", Phys. Rev., vol. 54, 647-648, 1938
- [16] N.F Mott, R.W. Gurney, "*Electronic Processes in Ionic Crystals*", 1st ed. Oxford University Press, 1940
- [17] L.A. Dissado and J.C. Fothergill, "*Electrical degradation and breakdown in polymers*", Peter Peregrinus Ltd., 1992
- [18] N.H. Ahmed and N.N. Srinivas "*Review of space charge measurements in dielectrics*" IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, vol. 4, 644, 1997
- [19] G. Damamme, C. Le Gressus and A.S. De Reggi "*Space charge characterization for the 21th century*" IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, vol. 4, 558, 1997
- [20] T. Maeno, T. Futami, H. Kushibe, T. Takada, "*Measurement of spatial charge distribution in thick dielectrics using the pulsed electroacoustic method*", IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation, vol. 3(6), 754-757, 1996
- [21] M. Arnaoul, F. Baudouin, L. Berquez and D. Payan, "*Study of signal treatment for Pulsed electroacoustic measurement cell: a way of improving the transfert matrix contribution number*", J. Phys. Appl. Phys., Vol. 44, 405403, 2011
- [22] L. Galloy, "*Réalisation d'une cellule électroacoustique pulsée à haute résolution spatiale en vue de l'étude spatio-temporelle de la répartition de la charge d'espace dans les diélectriques spatiaux soumis à un environnement chargeant*", Thèse, Université Paul Sabatier Toulouse 3, 2014
- [23] M. Fukuma, T. Maeno, and K. Fukunaga, "*High repetition rate two-dimensional space charge measurement system*", International Symposium on Electrical Insulating Materials, Vol. 3, 584-587, 2005
- [24] S. Hole, and J. Lewiner, "*High-resolution multidimensional space charge measurement using elastic wave methods*", Phys. Rev. B, vol. 64 (10), 104-106, 2001
- [25] C. Alquie, C.L. Tolra, J. Lewiner, et S. B. Lang, "*Comparison of polarization distribution measurement by the LIMM and PWP methods*", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. 27, 751-757, 1992

- [26] S.B. Lang and D. K. Das-Gupta, "A technique for determining the polarization distribution in thin polymer electrets using periodic heating", *Ferroelectrics*, vol. 39, 1249-1252, 1981
- [27] P. Bloss, H. Schäfer, "Investigations of polarization profiles in multilayer systems by using the laser intensity modulation method", *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 65, 1541, 1994
- [28] A. Petre, D. Marty-Dessus, L. Berquez, J. L. Franceschi, "A comparison of different mathematical treatments for solving the inverse problem in focus laser intensity modulation method", *J. App. Phys.*, Vol. 43, 2572, 2004
- [29] S. B. Lang, "Fredholm integral equation of the Laser Intensity Modulation Method (LIMM): Solution with the polynomial regularization and L-curve methods", *J. Mater. Sci.*, vol. 41, 147-152, 2006
- [30] A. Petre, C.D. Pham, D. Marty-Dessus, L. Berquez "Three-dimensional space charge cartographies by FLIMM in electron irradiated polymers", *J. Electrostatics*, vol. 67, 430-434, 2009
- [31] W. Thomson, "Contact electricity of metal", *Philos. Mag.*, Ser. 5, Vol. 46, 82-120, 1898
- [32] M.A. Noras, "Non-Contact surface charge/voltage measurements Capacitive probe – principle of operation", *Trek Application note*, 0234/Man rev.2, Num. 3001, 2002
- [33] I. D. Baikie, S. Mackenzie, P. J. Z. Estrup, and J. A. Meyer, "Noise and the Kelvin method", *Review of Sci. Instrum.*, vol. 62, 1326, 1991
- [34] B. Marlin and H. Kliem, "Space charge measurement with scanning Kelvin probe", *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, vol. 15, 560, 2008
- [35] R.K. Leach "The European nanotechnology landscape", *Nanotechnology*, vol. 22, 062001, 2011
- [36] G. Teyssedre, C. Villeneuve, L. Boudou, K. Makasheva, "Challenges in probing space charges at sub-micrometer scale", *Proc. ECCE-CEIDP*, 2012
- [37] G. Binnig, "Atomic Force Microscopy", *Phys. Rev. Lett.*, vol. 56, 930, 1986
- [38] G. Binnig, "tunneling through a controllable vacuum gap", *Appl. Phys. Lett.*, vol. 40, 178, 1982
- [39] D.W. Pohl, "Optical near-field scanning microscope", *Brevet Européen*, 0112401, 1987
- [40] H-J. Butt, B. Cappella and M. Kappl, "Force measurements with the atomic force microscope: technique, interpretation and applications", *Surf. Sci. Rep.*, vol. 59, num. 1, 2005

- [41] B. Cappella and D. Dietler, "*Force-distance curves by atomic force microscopy*" Surf. Sci. Rep., vol. 34, 1–104, 1999
- [42] S. Gómez-Moñivas, L.S. Froufe-Pérez, A.J. Caamaño and J.J. Sáenz, "*Electrostatic forces between sharp tip and metallic and dielectric surface*", Appl. Phys. Lett., vol. 79, num. 24, 2001
- [43] S. Kasas, V. Gotzos, and M. R. Celio, "*Observation of living cells using the atomic force microscopy*", Biophys. J., Vol. 64, 539-544, 1993
- [44] M. Nonnenmacher, M.P. O'Boyle and H.K. Wickramasinghe, "*Kelvin Probe Force Microscopy*", Appl. Phys. Lett., vol. 58, 2921, 1991
- [45] D. Ziegler, N. Naujoks, and A. Stemmer, "*Feed-forward compensation of surface potential in atomic force microscopy*", Rev. Sci. Instrum., vol. 79, 063704, 2008
- [46] D. Ziegler and A. Stemmer, "*Force gradient sensitive detection in lift-mode Kelvin force microscopy*", Nanotechnology, vol. 22, 075501, 2011
- [47] U. Zerweck, C. Loppacher, T. Otto, S. Gaström and L.M. Eng, "*Accuracy and resolution limits of Kelvin probe force microscopy*", Physical Review B, vol. 71, 125424, 2005
- [48] W. Melitz, J. Shen, A.C. Kummel and S. Lee, "*Kelvin probe force microscopy and its application*", Surf. Sci. Rep., vol. 66, 1-27, 2011
- [49] M. Nelson, P. Schroeder, R. Schlaf and B. Parkinson, "*Two-dimensional dopant profiling of patterned Si wafers using phase imaging tapping mode atomic force microscopy with applied biases*", J. Vac. Sci. Technol. B, vol. 17, 1354, 1999
- [50] E. Strassburg, A. Boag, and Y. Rosenwaks, "*Reconstruction of electrostatic force microscopy images*", Rev. Sci. Instrum., vol. 76, 083705, 2005
- [51] O. Reid, K. Munechika and D.S. Ginger, "*Space charge Limited Current measurements on conjugated polymer films using conductive Atomic force Microscopy*", Nanoletters, vol. 8, 1602, 2008
- [52] B. Terris, J. Stern, D. Rugar and H. Mamin, "*Contact electrification using force microscopy*", Phys. Rev. Lett., vol. 63, 2669, 1989
- [53] C. Schönenberger, "*Charge flow during metal-insulator contact*", Phys. Rev. B, vol. 45, 3861, 1992

- [54] M. Ishii, “*Static states and dynamic behaviour of charges: observation and control by scanning probe microscopy*”, J. Phys.: Condens. Matter, vol. 22, 173001, 2010
- [55] C.A. Rezende, R.F. Gouveia, M.A. da Silva, and F. Galembeck, “*Detection of charge distributions in insulator surfaces*”, J. Phys.: Condens. Matter, vol. 21, 263002, 2009
- [56] G.C. Stevens and P.J. Baird, “*Nano- and Meso-measurement methods in the study of dielectrics*” IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., vol. 12, 979, 2005
- [57] E. Verveniotis, A. Kromka, and B. Rezek, “*Controlling electrostatic charging of nanocrystalline diamond at nanoscale*”, American Chemical Society, 2013
- [58] W.R. Silvera and J.A. Marohn, “*Microscopic view of charge injection in an organic semiconductor*”, Phys. Rev. Lett., vol. 93, 116104, 2004
- [59] M. Jaquith, E.M. Muller and A. Marohn, “*Time-resolved electrostatic force microscopy of charge trapping in polycrystalline pentacene*”, J. Phys. Chem. B, vol. 111, 7711, 2007
- [60] T.N. Ng, W.R. Silvera and J.A. Marohn, “*Dependence of charge injection on temperature, electric field and energetic disorder in organic semiconductor*”, Phys. Rev. Lett., vol. 98, 066101, 2007
- [61] R. Dianoux, “*Injection et détection de charges dans des nanostructures semiconductrices par Microscopie à Force Atomique*”, thèse, Université Joseph Fourier, Grenoble, 2004
- [62] J. Lambert, G. de Loubens, C. Guthmann, and M. Saint-Jean, “*Dispersive charge transport along the surface of an insulating layer observed by electrostatic force microscopy*”, Phys. Rev. B, vol. 71, 155418, 2005
- [63] L. Klein, C. Williams and J. Kim., “*Electron tunneling detected by electrostatic force*”, Appl. Phys. Lett., vol. 77, 3615, 2000
- [64] J. Colchero, A. Gil and A. Baro., “*Resolution enhancement and improved data interpretation in electrostatic force microscopy*”, Phys. Rev. B, vol. 64, 245403, 2001
- [65] T. Krauss et L. Brus, “*Charge, polarizability, and photoionization of single conductor nanocrystals*”, Phys. Rev. Lett., vol. 83, 4840, 1999
- [66] S. Jeffery, A. Oral and J. Pethica. “*Quantitative electrostatic force measurements in AFM*”, Appl. Surf. Sci., vol. 157, 280, 2000
- [67] E. Durand, “*Electrostatique*”, vol. II., Masson et Cie, 1966

- [68] S. Hudlet, "*Etude des propriétés électrostatiques de surface par microscopie à force atomique : l'exemple de la triboélectricité*", Thèse, Université Denis Diderot, Paris 7, 1997
- [69] S. Hudlet, M. Saint-Jean, C. Guthmann and J. Berger, "*Evaluation of the capacitive force between a atomic force microscope tip and a metallic surface*", Eur. Phys. J. B, vol. 2, 5, 1998
- [70] C. Guillemot., "*Etude et caractérisation des propriétés électriques de surfaces de semiconducteurs par AFM*", thèse, ENST Paris, 2001
- [71] T. Krauss and L. Brus., "*Charge, polarizability, and photoionization of single conductor nanocrystals*", Phys. Rev. Lett., vol. 83, 4840, 1999
- [72] C. Schönenberger et S. Alvarado, "*Observation of single charge carriers by force microscopy*", Phys. Rev. Lett., vol. 65, 3162, 1990
- [73] E. Boer, L. Bell, M. Brongersma, H. Atwater, M. Ostraat and R. Flagan, "*Charging of single Si nanocrystals by atomic force microscopy*", Appl. Phys. Lett., vol. 78, 3133, 2001
- [74] S. Banerjee, M. Salem and S. Oda, "*Conducting-tip atomic force microscopy for injection and probing of localized charges in silicon nanocrystals*", Appl. Phys. Lett., vol. 83, 3788, 2003
- [75] M. Vogel, B. Stein, H. Pettersson and K. Karrai, "*Low-temperature scanning probe microscopy of surface and subsurface charges*", Appl. Phys. Lett., vol. 78, 2592, 2001
- [76] T. Mélin, H. Diesing, D. Deresmes, and D. Stiévenard, "*Electric force microscopy of individually charged nanoparticles on conductors: An analytical model for quantitative charge imaging*", Phys. Rev. B, Vol. 69, 035321, 2004
- [77] J. Lambert, C. Guthmann and M. Saint-Jean, "*Relationship between charge distribution and its image by electrostatic force microscopy*", J. Appl. Phys., vol. 93, pp. 5369–5376, 2003
- [78] L. Ressier and V. Le Nader, "*Electrostatic nanopatterning of PMMA AFM charge writing for directed nano-assembly*", Nanotechnology, vol. 19, 135301, 2008
- [79] E.T. Enikov and A. Palaria, "*Charge writing in silicon-silicon dioxide for nano-assembly*" Nanotechnology, vol. 15, 1211, 2004
- [80] U. Zaghloul Heiba, "*Caractérisation nanométrique et macroscopique, des phénomènes de chargement des diélectriques et des mécanismes d'adhérence pour la fiabilité des micro-nano systèmes à actionnement électrostatique*", Thèse, Université Paul Sabatier Toulouse 3, 2011

- [81] A. Liscio, V. Palermo, K. Müllen and P. Samori, "*Tip-sample interaction in KPFM: quantitative measurement of the local potential*", J. Phys. Chem., vol. 112, 17368, 2008
- [82] S. Morita, Y. Sugawara and Y. Fukano, "*Atomic Force Microscope combined with scanning tunneling microscope*", Jpn. J. Appl. Phys., vol. 32, 2983, 1993
- [83] K. Makasheva, B. Despax, L. Boudou, C. Laurent and G. Teyssedre; "*A discussion on the likely mechanisms for dielectric charging in AFM*", 2010 Annual Report Conference Electr. Insul. Dielectr. Phenomena, 2010
- [84] K Makasheva, C Villeneuve-Faure, C Laurent, B Despax, L Boudou and G Teyssedre, "*Dielectric charging by AFM in tip-to-sample space mode: overview and challenges in revealing the appropriate mechanisms*", Nanotechnology, vol. 26, 295704, 2015
- [85] A. Ando, R. Hasunuma, T. Maeda, K. Sakamoto, K. Miki, Y. Nishioka and T. Sakamoto, "*Conducting atomic force microscopy studies on local electrical properties of ultrathin SiO₂ films*", Appl. Surf. Sci., vol. 162, 401, 2000
- [86] Z. Sun, X. Wang, W. Song, and Q. Lei, "*A research on the Surface Charge with Different Coating Tip by Electrostatic Force Microscope*", 2013 Annual Report Conference Electr. Insul. Dielectr. Phenomena, 295-297, 2010
- [87] L. Ressler, E. Palleau, C. Garcia, G. Viau, and B. Vallet, "*How to control AFM nanoxérogaphy for the templated monolayered assembly of 2nm colloidal gold nanoparticles*", IEEE Trans. Nanotech., vol. 8, 4, 2009
- [88] Y. Han, Z. Huo, X. Li, G. Chen, X. Yang, D. Zhang, Y. Wang, T. Ye et M. Liu, "*Investigation of charge loss mechanism of thickness-scalable trapping layer by variable temperature Kelvin probe force microscopy*", IEEE Electron Device Letters, vol. 34, 7, 2013
- [89] E. Vianello, E. Nowk, D. Mariolle, N. Chevalier, L. Perniola, G. Molas, J.P. Colonna, F. Driussi and L. Selmi, "*Direct probing trapped charge dynamics in SiN by Kelvin Force Microscopy*", IEEE Conf. On Microelec. Text and structure, vol. 94, 2010
- [90] Z.Z. Lwin et al, "*Localized charges trapping and lateral charge diffusion in metal-NC embedded in high-k/SiO₂ gate stack*", Appl. Phys. Let., vol. 99, 222102, 2001
- [91] S. Morita, T. Uchihashi, K. Okamoto, M. Abe and Y. Sugawara, "*Microscale contact charging on a silicon oxide*", P.M. Vilarinho et al. (eds), Scanning Probe Microscopy: Characterization, Nanofabrication, and Device Application of Functional Materials, pp. 289-308, 2005

- [92] K. Sridhara, L. Borowik, D. Mariolle, N. Chevalier and J.P. Colonna, "Environment and baking influence on charge retention on silicon nitride charge trap layers", J. Appl. Phys., vol. 111, 023710, 2012
- [93] U. Zaghoul, B. Bushan, P. Pons, G.J. Papaioannou, F. Coccetti and R. Plana, "On the influence of environment gases, relative humidity and gas purification on dielectric charging/discharging processes in electrostatically driven MEMS/NEMS devices", Nanotechnology, vol. 22, 035705, 2011
- [94] S.-D. Tzeng and S. Gwo, "Charge trapping properties at silicon nitride/silicon oxide interface studied by variable-temperature electrostatic force microscopy", J. Appl. Phys., vol. 100, 023711, 2006
- [95] D.S.H Charrier, M. Kemerik, B.E. Smalbrugge, T. Vries and R.A.J Janssen, "Real versus measured surface potentials in scanning Kelvin probe microscopy", ACS Nano, vol. 2, pp. 622-626, 2008
- [96] L. Borowik, K. Kusiaku, D. Theron and T. Melin, "Calculating Kelvin force microscopy signals from static force field", Appl. Phys. Lett., vol. 96, 103119, 2010
- [97] E. Palleau, L. Ressler, Ł. Borowik and T. Mélin, "Numerical simulations for a quantitative analysis of AFM electrostatic nanopatterning on PMMA by Kelvin force microscopy", Nanotechnology, vol. 21, 225706, 2010
- [98] F. Bocquet, L. Nony, C. Loppacher, and T. Glatzel, "Analytical approach to the local contact potential difference on (001) ionic surfaces: implications for Kelvin probe force microscopy", Phys. Rev. B, vol. 78, 035410, 2008
- [99] H.O. Jacobs, H.F. Knapp and A. Stemmer, "Practical aspects of Kelvin probe force microscopy", Rev. Sci. Instrum., vol. 70, 1756, 1999
- [100] H.O. Jacobs, H.F. Knapp, S. Muller and A. Stemmer, "Surface potential mapping: A qualitative material contrast in SPM", Ultramicroscopy, vol. 65, 39, 1997
- [101] D.M. Schaadt et al., "Charge storage in Co nanoclusters embedded in SiO₂ by scanning force microscopy", Appl. Phys. Lett., vol. 74, 472, 1999
- [102] A. Majumdar, P.I. Oden, L.A. Nagahara, J.J. Graham and J. Alexander, "Nanometer-scale lithography using the atomic force microscope", Appl. Phys. Lett, vol. 61, pp. 2293-2295, 1992

- [103] R. Foissac, S. Blonkowski, M. Kogelschatz, and P. Delcroix, "*A relationship between statistical time to breakdown distributions and pre-breakdown negative differential resistance at nanometric scale*", J. Appl. Phys., vol. 116, 024505, 2014
- [104] A. Seko, Y. Watanabe, H Kondo, A. Sakai, S. Zaima and Y. Yasuda, "*Behavior of Local Current Leakage in Stressed Gate SiO₂ Films Analyzed by Conductive Atomic Force Microscopy*", Jpn J. Appl. Phys., vol. 43, 4683, 2004
- [105] W. Frammelsberger, G. Benstetter, J. Kiely, and R. Stamp, "*C-AFM-based thickness determination of thin and ultra-thin SiO₂ films by use of different conductive-coated probe tips*", Appl. Surf. Sci., vol. 253, 3615, 2007
- [106] W. Hourani, "*Nanoscale characterization of leakage currents in ultra-thin oxide layers for microelectronics*", Thèse, INSA de Lyon, 2011

Chapitre 2 : Impact de l'épaisseur de la couche diélectrique sur l'injection et la rétention des charges électriques : cas d'un film de SiO_xN_y

I- Introduction

Comme nous l'avons montré dans le chapitre précédent, l'étude des mécanismes d'injection et de rétention de charges à l'échelle locale représente un véritable enjeu instrumental, pour la fiabilité des microsystèmes et des composants électroniques, mais aussi d'un point de vue plus fondamental pour la compréhension des phénomènes physiques. La microscopie à sonde de Kelvin (KPFM) apparaît alors comme une méthode attractive pour la mesure de charges d'espace du fait de sa résolution nanométrique et de sa sensibilité à la force électrostatique induite par les charges piégées. De plus, elle permet une injection locale des charges en utilisant la pointe AFM conductrice et la mesure du potentiel induit par des charges électriques piégées dans un film mince diélectrique. [1]. Cette méthode simple permet donc d'appréhender le comportement électrique local de différents matériaux.

La configuration choisie pour la phase d'injection (contact, contact intermittent ou triboélectrification) influence fortement l'injection ainsi que le comportement des charges au cours du temps. Les mécanismes de chargement d'un diélectrique mince par une pointe AFM ont été discutés par K. Makasheva [2], ou L. Ressler [3]. La configuration la plus simple et la mieux maîtrisable apparaît comme étant le chargement par contact en appliquant une différence de potentiel entre la pointe et la surface. Dans cette configuration il est alors aisé de connaître le champ électrique au point de contact par l'intermédiaire d'une simulation.

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés à l'influence de l'épaisseur d'une couche d'isolant sur les mécanismes d'injection et de rétention de charges électriques. Nous avons choisi de réaliser nos injections en contact et nous étudierons l'influence de paramètres expérimentaux tels que la tension ou la durée d'injection sur l'injection et la rétention de charges. L'observation de l'évolution du potentiel après l'injection nous permettra de mieux comprendre les mécanismes dissipatifs au sein de la couche étudiée (ici le $\text{SiO}_{1,98}\text{N}_{0,02}$). Des mesures de courant viendront compléter cette étude et confirmer les résultats obtenus.

Ce chapitre se divisera en quatre parties, dans un premier temps nous présentons les conditions expérimentales ainsi que le matériau diélectrique étudié. Puis, dans la deuxième partie, nous présentons le modèle que nous avons développé pour calculer le champ électrique induit par la

pointe au point d'injection. Les deux parties suivantes seront dédiées à la présentation des résultats obtenus. Tout d'abord nous étudierons l'influence des conditions de l'injection (tension et temps d'injection) et de l'épaisseur de la couche sur l'injection et la dissipation des charges. Puis nous présenterons les mesures de courant réalisées en configuration d'injection et nous les comparerons aux résultats obtenus à l'aide de la mesure de potentiel de surface.

II- Matériau d'étude et structure des échantillons

Nous nous sommes fixés comme objectif d'étudier l'effet de l'épaisseur d'une couche diélectrique sur les propriétés d'injection et de rétention de charges. Pour cette étude nous avons choisi le SiO_xN_y comme matériau d'étude et le KPFM comme outil de caractérisation. Pour réaliser cette étude, nous avons choisi des échantillons répondant à nos besoins propres. Dans cette partie nous allons présenter successivement les propriétés du matériau étudié puis les différentes étapes de la fabrication des échantillons.

II-1) Propriétés du matériau diélectrique mince étudié : le SiO_xN_y

Pour cette étude, nous avons choisi un matériau homogène et isolant, l'oxynitride de silicium (SiO_xN_y) du fait de sa faible rugosité moyenne (de l'ordre du nanomètre) et ses propriétés électriques accordables en fonction du procédé de fabrication [4].

En effet, la composition de la couche d'oxynitride de silicium, déposée par Pulsed Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition (PPECVD) change selon les conditions de dépôt [4]. Dans ce procédé, la décharge plasma haute fréquence (13,56Mhz) est utilisée pour entraîner une réaction dans le gaz (pression de 500mTorr). Il se forme alors des grains nanométriques qui se déposent à la surface, puis s'agglomèrent pour former la couche. En fonction du ratio des gaz réactants γ (silane SiH_4 et protoxyde d'azote (N_2O)) la composition de la couche change :

$$\gamma = \frac{[\text{N}_2\text{O}]}{[\text{SiH}_4]} \quad (1)$$

Avec $[\text{N}_2\text{O}]$ la concentration (pression partielle) de protoxyde d'azote et $[\text{SiH}_4]$ la concentration de silane.

Si le ratio γ tend vers 100 la composition et les propriétés électriques de la couche seront proches de la silice thermique. Au contraire si le ratio tend vers 2 la structure sera plus riche en silicium (Tableau 2.1) et la formation de nanoparticules de silicium dans une matrice de SiO_xN_y sera initiée.

L'oxynitride de silicium présentant un rapport $\gamma=100$ a des propriétés de rétention de charges proches de la silice qui peuvent être résumées comme suit :

- Permittivité diélectrique relative de 3,9 (7,5 pour le Si_3N_4 et 12 pour le Si),
- Résistivité électrique mesurée de $2,2 \cdot 10^{15} \Omega \cdot \text{m}$.

Du fait de ces propriétés, le SiO_xN_y présentant un facteur $\gamma=100$ sera choisi pour cette étude.

Ratio γ	[Si] (%)	[N] (%)	[O] (%)
2	60	5	35
5	38	5	57
10	36	6	58
100	36	4	60

Tableau 2.1 : Concentration en pourcentage des espèces chimiques présentes dans le SiO_xN_y en fonction du ratio γ [4].

II-2) Cahier des charges : contraintes liées à la mesure KPFM

On distingue deux types de contraintes, celles liées à l'instrument et celles liées au protocole expérimental.

Comme indiqué en introduction, l'injection de charges électriques se fait par contact entre la pointe AFM métallisée (Platine – Iridium) et la surface. Pour obtenir un résultat satisfaisant, il faut que la surface de l'échantillon soit peu rugueuse (jusqu'à une dizaine de nanomètres de rugosité) pour favoriser le contact lors de l'injection mais aussi la reproductibilité de l'expérience. En effet, le chargement d'une surface rugueuse entraîne une forte dépendance à la localisation de l'injection. Nos mesures AFM ont été réalisées à l'aide d'un Multimode 8[®] de Bruker, équipé d'une cellule environnementale. D'un point de vue dimensionnement, l'enceinte environnementale du Multimode 8[®] se compose d'un cylindre isolant d'un centimètre de diamètre intérieur : ainsi, les dimensions de l'échantillon doivent être choisies inférieures (8 x 8mm par exemple).

II-3) Procédé de fabrication

Pour réaliser cette étude, nous avons choisis sept épaisseurs différentes pour le matériau diélectrique : 6, 11, 16, 31, 50, 68 et 130nm.

Deux structures différentes ont été conçues, l'une pour la mesure du courant d'injection traversant la couche (Fig. 2.1.A-B) et l'autre pour l'étude de l'injection et de la rétention de charges (Fig. 2.1.C-D). Dans le cas de la mesure de courant, l'échantillon comporte des électrodes enfouies dans la couche diélectrique et connectées à une électrode déportée pouvant être polarisée au moyen d'un fil. Alors que pour l'étude de l'injection, on a choisi de mettre un plan d'or, isolé du substrat, sous la couche de SiO_xN_y . Les dimensions de l'échantillon avec les électrodes enfouies (Fig. 2.1.A et C) sont de $10 \times 5 \text{mm}^2$ avec des fils de largeur $40 \mu\text{m}$ et un carré d'or de $4 \times 4 \text{mm}^2$. Le carré d'or est de même dimension pour le deuxième échantillon (Fig. 2.1. B et D) de dimension $5 \times 5 \text{mm}^2$.

Le procédé de fabrication permettant de réaliser ces deux types de structure est résumé dans le tableau 2.2. Une couche de SiO_2 est déposée sur le substrat en Silicium de façon à assurer une parfaite isolation électrique entre les électrodes et le substrat (Fig. 2.2). Par la suite l'électrode est fabriquée en déposant une couche métallique en Ti/Au (Fig. 2.3) puis en la mettant en forme par photolithographie. Une couche de SiO_xN_y est ensuite déposée par PPECVD dont l'épaisseur varie de 6nm à 130nm (Fig. 2.4). Cette couche est ensuite gravée au niveau des larges électrodes, qui permettront par la suite de polariser les électrodes enfouies. La Fig. 2.5 représente une image au Microscope Electronique à Balayage (MEB) des électrodes enfouies reliées à l'électrode de polarisation.

La confection de ces échantillons est relativement simple. Néanmoins, une attention particulière est apportée la surface : la rugosité doit être suffisamment faible pour que les défauts ponctuels n'altèrent pas la répétabilité de la mesure.

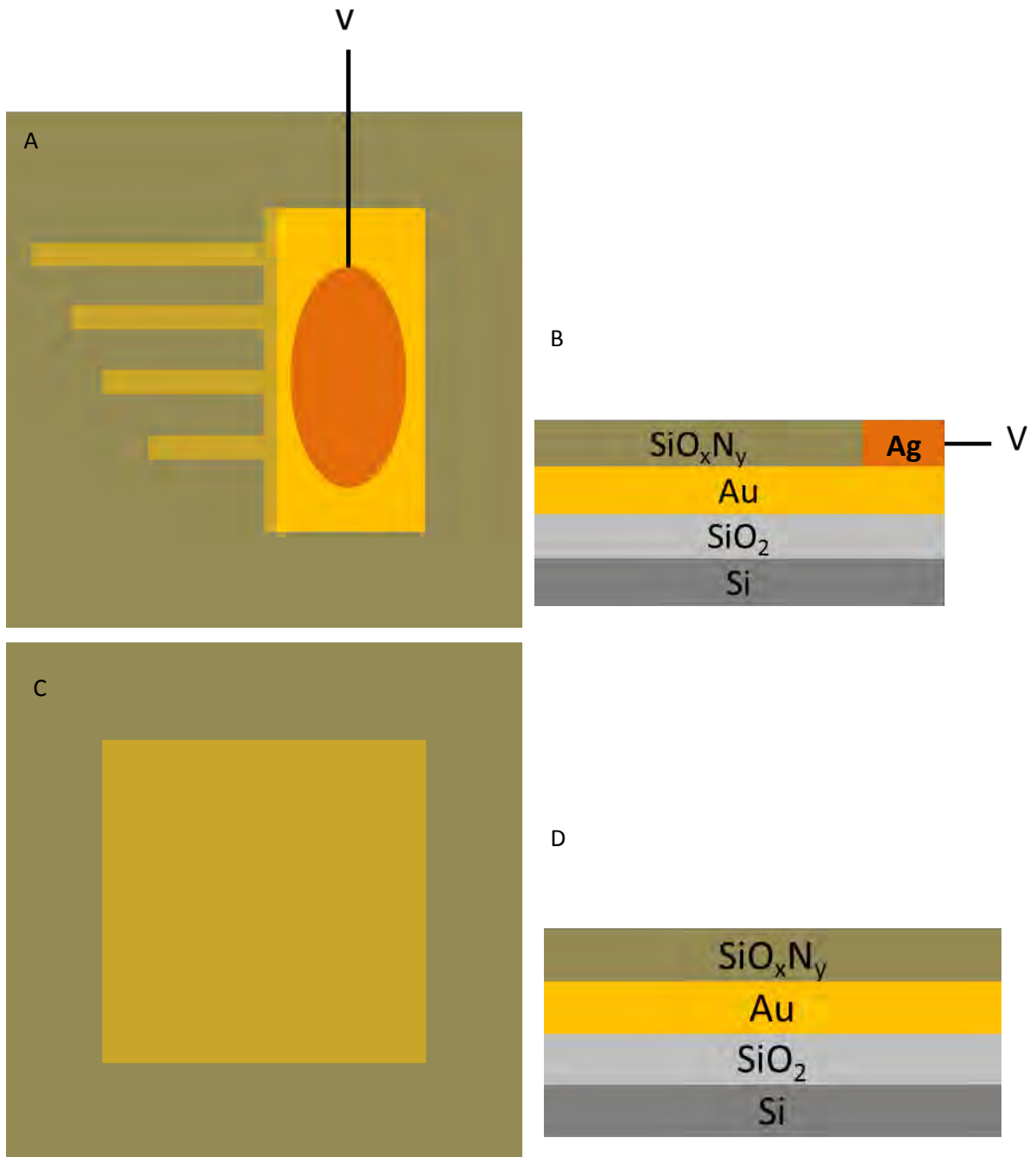


Figure 2.1 : Structures pour mesurer le courant (A) vu de dessus et (B) vu de profil et pour étudier l'injection de charge (C) vu de dessus et (D) vu de profil.

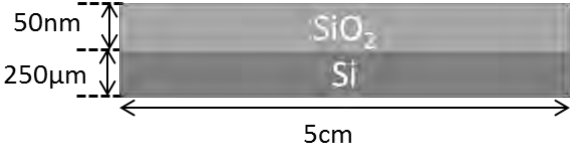

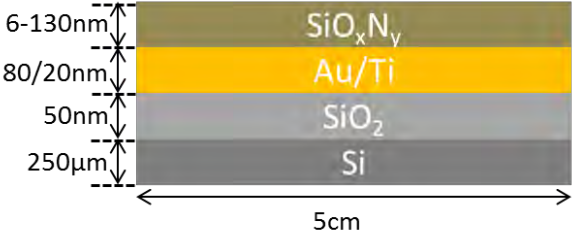
<p>Préparation du substrat :</p> <ul style="list-style-type: none"> - Nettoyage piranha (H_2SO_4: H_2O_2) d'un substrat en Si de 2 pouces. - Oxydation sous atmosphère contrôlée (1% O_2 et 99% N_2) à $1400^\circ C$ sous flux laminaire. Formation d'une couche de 50nm de SiO_2. 	 <p>Figure 2.2 : Schéma après le recuit du wafer de silicium.</p>
<p>Dépôt de la couche métallique :</p> <ul style="list-style-type: none"> - Dépôt de 20nm de Titane et de 80 nm d'or par Pulvérisation Cathodique 	 <p>Figure 2.3 : Schéma après dépôt des couches de Titane et d'or</p>
<p>Mise en forme des électrodes</p> <ul style="list-style-type: none"> - Réalisation d'un masque de résine par photolithographie - Gravure chimique de la couche métallique (Au/Ti) pour délimiter les électrodes enfouies. - Suppression du masque de résine 	
<p>Dépôt de la couche à étudier :</p> <ul style="list-style-type: none"> - Dépôt par PPECVD de couches de SiO_xN_y de différentes épaisseurs : 6, 11, 16, 31, 50, 68 et 130nm. 	 <p>Figure 2.4 : Schéma après dépôt de la couche de SiO_xN_y.</p>
<p>Ouverture des contacts sur les électrodes de polarisation</p> <ul style="list-style-type: none"> - Réalisation d'un masque de résine par photolithographie - Gravure chimique de la couche de SiO_xN_y présente sur les électrodes de polarisation. - Suppression du masque de résine 	
<p>Découpage :</p> <ul style="list-style-type: none"> - Découpage du substrat en silicium pour obtenir des échantillons de $8*8mm^2$. 	

Tableau 2.2 : Etapes du procédé de fabrication des échantillons.

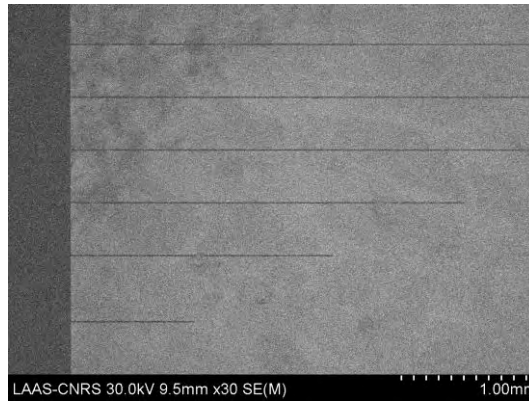


Figure 2.5 : Image MEB d'électrodes de 20 μ m de large enfouies sous une couche de 130nm de SiO_xN_y.

III - Protocoles expérimentaux

Notre objectif principal est l'observation du comportement des charges électriques après une injection ponctuelle à la surface d'un diélectrique mince. Nous allons ici décrire le protocole mis en place pour le chargement local de la couche diélectrique, pour la mesure du potentiel de surface par KPFM et pour la mesure du courant d'injection par C-AFM.

III-1) Mesures de potentiel par KPFM

III-1.a) Choix des conditions d'injection

Plusieurs configurations d'injection grâce à la pointe sont envisageables. Ces configurations se regroupent en deux grandes catégories : les injections en mode contact et en mode oscillant. L'injection en contact est réalisée en maintenant la pointe métallique de l'AFM en contact avec la surface de l'échantillon. Dans cette configuration, plusieurs paramètres sont ajustables : la force et la durée de contact ainsi que le potentiel appliqué sur la pointe. L'injection en mode oscillant est réalisée en maintenant le bras de levier supportant la pointe en oscillation au-dessus de la surface. Un bref contact entre la pointe et la surface est obtenu à chaque oscillation. Dans ce cas, plusieurs modes d'injection sont présents et l'interprétation des résultats devient plus complexe. Les paramètres ajustables sont alors l'amplitude d'oscillation, la durée et la tension appliquée. Ces différents procédés sont utilisés soit pour caractériser les propriétés électriques de divers matériaux [3, 5-6] soit pour réaliser de la nano-xérographie [7].

Pour éviter d'avoir différents mécanismes présents lors de l'injection, nous avons choisi le mode d'injection de charges par contact entre la pointe et la surface en un point fixe (Fig. 2.6). Nous nous retrouvons ainsi dans une configuration d'injection plus simple et mieux maîtrisée. Cette

simplification nous permettra alors de réaliser une modélisation du champ électrique dans la configuration d'injection.

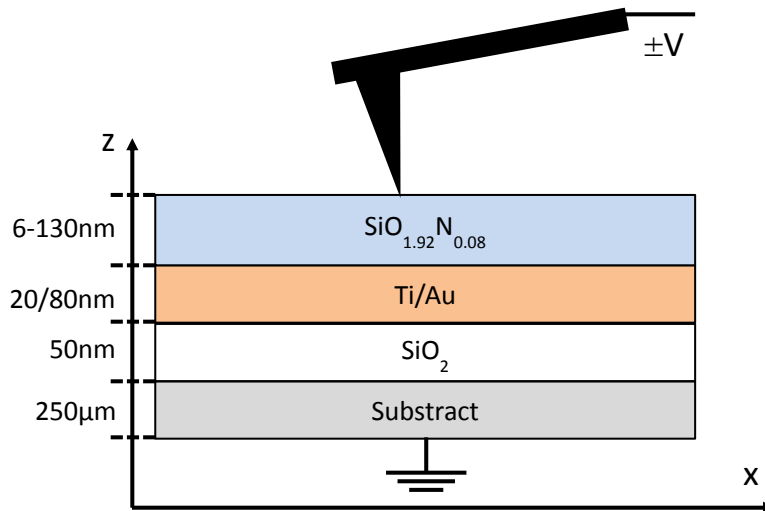


Figure 2.6 : Schéma en coupe de la configuration d'injection sur un échantillon de SiO_xN_y .

Plusieurs paramètres expérimentaux entrent en jeu dans l'injection de charges par contact, certains seront fixés et d'autres seront variables :

- **La force de contact** (fixe) : plus la force de contact est importante plus la surface en contact entre la pointe et l'échantillon sera importante (surtout dans le cas d'un matériau mou), mais aussi plus la pointe risque d'être endommagée (perte du revêtement métallique). Dans notre cas, pour assurer un contact le plus reproductible possible tout en limitant l'usure de la pointe, une force constante de 90nN environ a été choisie.
- **La tension de polarisation de la pointe** (variable) : faire varier ce paramètre nous permettra d'étudier la dépendance des charges injectées au champ électrique à la pointe. Le logiciel limitant l'application du potentiel sur la pointe à 12V, un système extérieur permettra d'appliquer des tensions allant jusqu'à 100V.
- **Le temps de contact entre la pointe polarisée et la surface de l'échantillon** (variable) : faire varier ce paramètre nous permettra d'étudier la dynamique d'injection.
- **Le rayon de courbure de la pointe** (fixe) : ce paramètre impacte directement la zone d'interaction entre la pointe et la surface ainsi que le champ électrique [8]. Pour éviter que ce paramètre ne perturbe les mesures, nous utiliserons toujours la même pointe pour une même série d'expériences et nous en tiendrons compte lors des simulations de champ électrique.

- **Le métal recouvrant la pointe** (fixe) : ce paramètre modifie le travail de sortie de l'électrode et donc le mécanisme d'injection (dans le cas d'une injection de type Schottky par exemple, la hauteur de barrière à franchir par le porteur de charge est modifiée). Dans cette étude nous avons choisi d'utiliser uniquement des pointes en silicium recouvert d'une couche de Pt/Ir (pointes SCM-PIT de chez Bruker ayant une raideur d'environ 2.5N/m).
- **L'environnement** (fixe) : la présence d'humidité dans l'atmosphère et à la surface de l'échantillon a pour effet d'accélérer la dispersion des charges électriques à la surface d'un isolant, comme le montre U. Zaghoul dans sa thèse [9]. Pour éviter cet effet, l'échantillon est étuvé à 140°C pendant 3min puis placé sous atmosphère d'azote pour éviter toute contamination due à l'eau.

De plus, l'échantillon est fixé sur une pastille métallique pour assurer la stabilité mécanique, ainsi qu'un contact électrique avec la masse. Cette fixation permet également de limiter les vibrations de l'échantillon dues au flux continu d'azote.

III-1.b) La mesure KPFM

Une fois les charges injectées localement, la mesure du potentiel de surface induit se fait par KPFM. Dans le cas d'une injection ponctuelle sur une surface homogène de SiO_xN_y par une pointe présentant un revêtement en Pt/Ir, on observe un spot de potentiel circulaire sur la surface (Fig. 2.7.B) sans toutefois observer de modification de la topographie de cette dernière (Fig. 2.7.A). Le profil de potentiel obtenu en coupe sur ce spot (Fig. 2.7.C) présente alors une forme gaussienne caractéristique qui a été observée dans de nombreuses études [3, 10-11].

Lorsque le nombre de charges injectées est important, la force électrostatique induite peut perturber la mesure de topographie et introduire un profil de hauteur apparente qui a pour conséquence de minimiser le potentiel mesuré [12]. Cet artéfact de mesure peut être corrigé en appliquant, lors de la mesure de topographie, un potentiel sur la pointe équivalent au potentiel mesuré sur la surface.

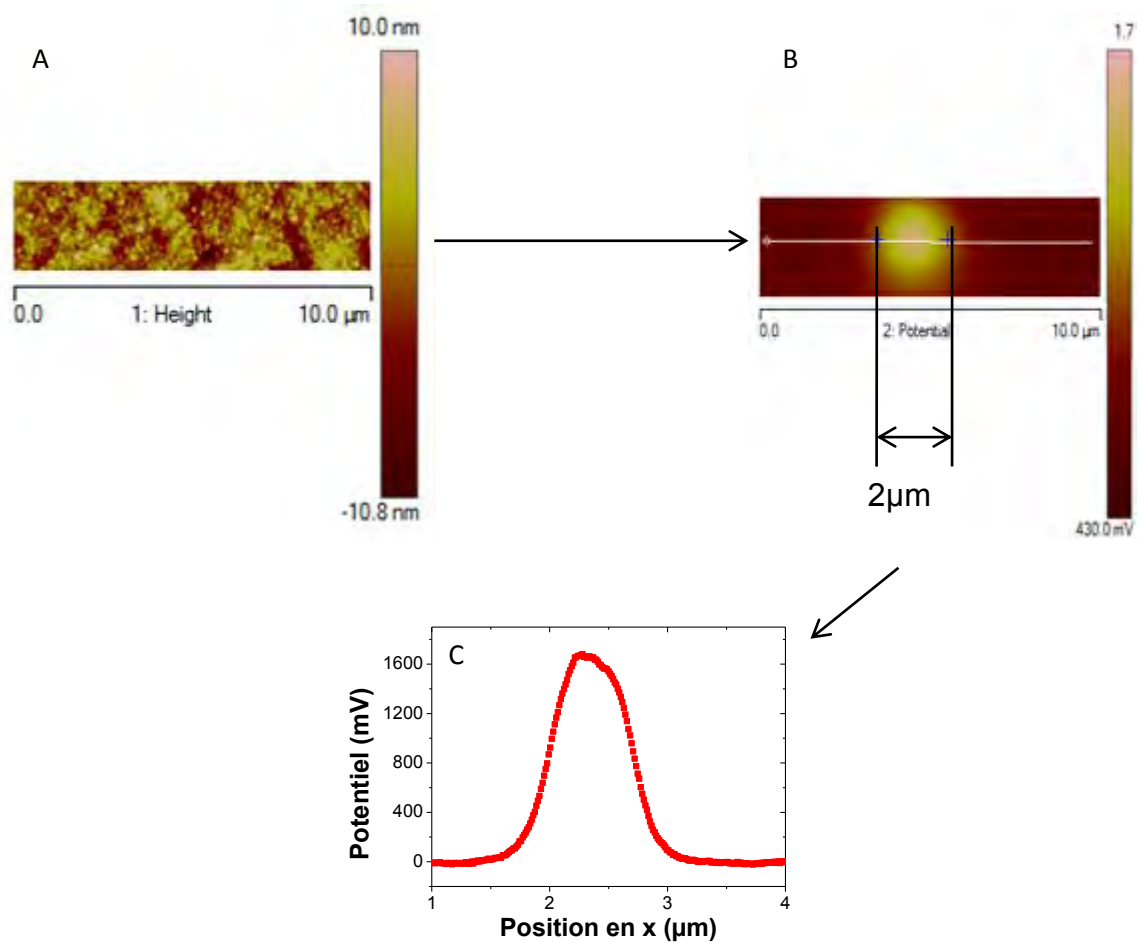


Figure 2.7 : Mesure KFM après une injection localisée dans une couche de SiO_xN_y . A) Topographie, B) Potentiel de surface, et C) Profil de potentiel obtenu au-dessus du maximum du spot d'injection.

III-1.c) Protocole de traitement des données

Pour cette étude, une procédure de traitement des profils de potentiel obtenus (Fig. 2.7.C) a été établie.

Pour caractériser le profil de potentiel induit par le paquet de charges piégées trois grandeurs sont utilisées (Fig. 2.8) :

- le maximum de potentiel (Max),
- la largeur à mi-hauteur (FWHM) représentant la répartition latérale des charges
- l'aire en dessous du pic qui, en première approximation, représente l'image de la densité de charges si la couche est suffisamment mince [13].

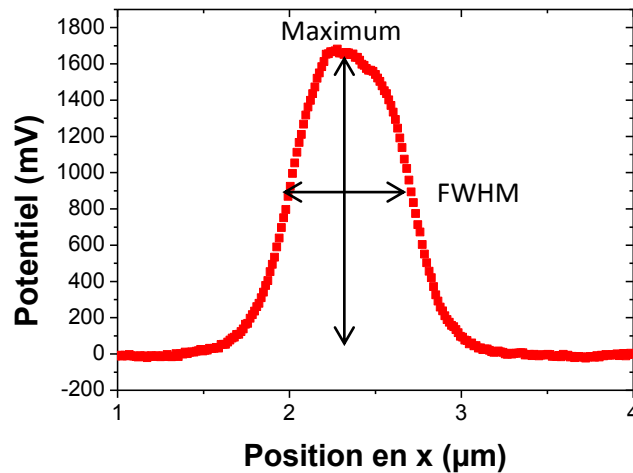


Figure 2.8 : Profil de potentiel au-dessus d'un paquet de charges injectées dans une couche de SiO_xN_y .

En fonction de l'évolution temporelle de ces paramètres, plusieurs cas de figure sont identifiables :

- l'aire est proportionnelle au produit du maximum et de la largeur à mi-hauteur.
- si le maximum de potentiel est constant, alors les variations de la largeur à mi-hauteur se répercutent directement sur l'aire ;
- si la largeur à mi-hauteur est constante, alors les variations du maximum de potentiel se répercutent directement sur l'aire ;

On peut alors identifier deux mécanismes de dissipation dans un film mince :

- si l'aire sous la courbe est stable et que le maximum de potentiel diminue, alors que la largeur à mi-hauteur augmente. Il s'agit alors d'un mécanisme dispersif en surface.
- si l'aire sous la courbe et le maximum diminue avec la même dynamique, et que la largeur à mi-hauteur est stable : alors la dispersion des charges électriques se fera par le volume.
- si la largeur à mi-hauteur augmente et l'aire diminue suivant la même dynamique que le maximum alors une combinaison des différents mécanismes dispersifs (en volume et en surface) est présente.

Ces grandeurs sont complétées par la mesure de la valeur de potentiel de la ligne de référence. La ligne de référence est définie comme le potentiel mesuré sur la surface vierge (sans la contribution due aux charges piégées). La valeur de potentiel de référence dépend uniquement de la différence de travail de sortie entre l'échantillon et la pointe.

III-1.d) Le choix de la technique de mesure

Il existe différentes méthodes pour mesurer le potentiel de surface en mode KPFM :

- Le KPFM modulé en amplitude (AM-KPFM) : le premier balayage est effectué en contact intermittent, et le deuxième permet en mode lift de mesurer le potentiel grâce aux variations de l'amplitude d'oscillation (AM-KPFM).

- Le KPFM modulé en fréquence (FM-KPFM) : permet à la fois en un seul balayage de mesurer la topographie et avec le décalage en fréquence d'acquérir le signal de potentiel (FM-KPFM).

- Le Peak-Force KPFM (PF-KPFM) : la topographie est acquise grâce à des courbes de force en chaque point (mode PF [14]) et un second balayage de la surface avec un lift permet la mesure du potentiel en AM-KPFM.

Pour comparer les performances des différents modes et identifier le mieux adapté à notre étude, une injection de 1min à 10V a été réalisée. Le potentiel de surface résultant a ensuite été mesuré en utilisant les paramètres suivants :

- Lift (mesure) : 10nm au-dessus de la surface
- Vitesse de balayage (mesure) : 5 μ m/s
- Potentiel appliqué sur la pointe (mesure de topographie) : 0-2V selon le potentiel mesuré
- Force de contact (mesure Peak-Force) : 100nN

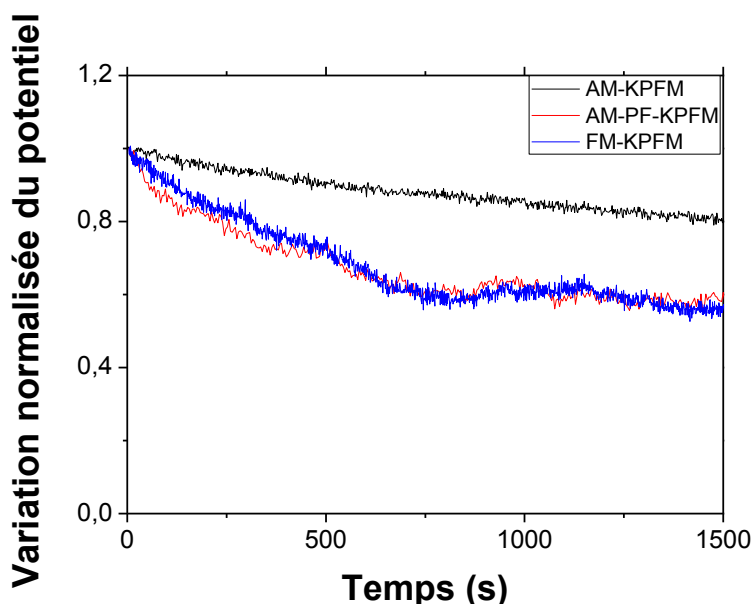


Figure 2.9 : Evolution du maximum de potentiel en fonction du temps pour les différents modes opératoires : PF-KPFM, AM-KPFM et FM-KPFM (injection à 10V pendant 1min).

D'après la littérature, ces différentes méthodes de mesure KPFM possèdent des avantages différents : la mesure de topographie par PF-KPFM présente une meilleure résolution latérale, et le FM-KPFM présente une meilleure sensibilité et résolution latérale en potentiel que le AM-KPFM tout en étant plus sensible au bruit [15]. Toutefois, dans notre cas, nous nous intéressons à l'évolution temporelle des charges électriques injectées : il nous faut donc identifier la méthode de mesure la moins intrusive possible. Pour cela, la Fig. 2.9, compare l'évolution temporelle du maximum de potentiel après une injection de 10V pendant 1min en fonction des différentes méthodes de mesure.

Un comportement en deux temps est observé pour toutes les courbes : pendant les vingt-cinq premières minutes, une décroissance rapide apparaît suivie d'une stabilisation. La deuxième partie de la décroissance est similaire pour les trois expériences. Dans le cas du PF-KPFM et du FM-KPFM, la décroissance initiale est trois fois plus rapide, et ne correspond pas un artéfact de mesure (décalage de la zone de mesure). Une hypothèse émise pour expliquer ce phénomène est que plus le temps de contact entre la pointe et la surface est important plus les charges se dissipent en raison de la perturbation induite par la pointe. En effet, aucun lift n'est présent lors de la mesure en FM-KPFM ce qui peut perturber la répartition des charges ; et la mesure de topographie en mesure de courbe de force en PF-KPFM impose un temps de contact plus long.

Dans notre étude nous avons choisi la technique de mesure la moins intrusive : l'AM-KPFM. De plus, pour améliorer l'interprétation des résultats, nous avons choisi un lift unique (10nm) pour limiter les variations de la force électrostatique en fonction de la distance (Fig. 2.10) d'une mesure à la suivante. Ce lift est choisi de manière à trouver un compromis entre minimiser la distance entre la pointe et la surface, mais aussi à permettre un asservissement correct en hauteur. Ici, nous avons choisi un lift correspondant à l'ordre de grandeur des plus grands reliefs mesurés (i.e. la rugosité observée est de quelques nanomètres).

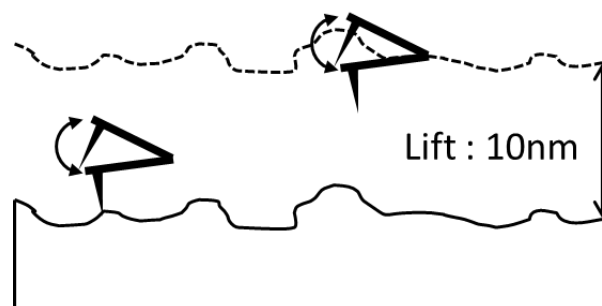


Figure 2.10 : Schéma de principe de la mesure KPFM en mode lift.

III-1.e) Particularités du Multimode 8®

Le Multimode 8® présente plusieurs restrictions et spécificités :

- La taille d'échantillon est limitée par l'espace sous la pointe : un disque de 1,1cm de diamètre.
- Le porte pointe est fixe : le scanner est situé sous le porte échantillon. L'approche s'effectue en remontant l'échantillon vers la pointe.
- L'enceinte environnementale est composée d'un cylindre en plastique et d'un porte pointe spécifique permettant l'arrivée de gaz.
- On peut faire varier la température de l'échantillon de -20°C à 160°C en fonction du porte échantillon utilisé. Pour les hautes températures un chauffage de la pointe par effet joule permet de contrebalancer les effets d'un gradient de température sur la mesure. Mais dans ce cas les mesures de potentiel de surface ne sont plus possibles.
- Un module externe a été installé pour appliquer des tensions sur la pointe via un générateur extérieur (0-100V).

Ces différentes spécificités seront prises en compte lors de la mise en place des procédures ainsi que du design des différents échantillons.

III-2) Mesures de courant traversant le film mince

En parallèle de l'étude sur l'injection et la dissipation des charges, nous avons mesuré le courant traversant la couche durant la phase d'injection (contact entre la pointe polarisée et la surface) pour différentes épaisseurs de film de SiO_xN_y . La configuration expérimentale réalisée est représentée sur la Fig. 2.11.

Deux méthodes ont été testées pour mesurer le courant d'injection : des mesures extérieures grâce à un électromètre Keithley (Fig. 2.11) et des mesures par C-AFM (Mesure du courant tunnel entre la pointe et la surface).

III-2.a) Les mesures par un système extérieur

La mesure de courant par un système extérieur est présentée sur la Fig. 2.11. Dans cette configuration l'électrode de polarisation est reliée à un électromètre de modèle Keithley 6517B (Fig. 2.11.B) lui-même connecté à la masse de l'AFM. La pointe est amenée en contact avec la surface du

film mince de SiO_xN_y au-dessus d'une électrode d'or. La pointe est alors portée à la tension désirée (V_0), un courant peut alors traverser la couche de SiO_xN_y et être collecté par l'électromètre.

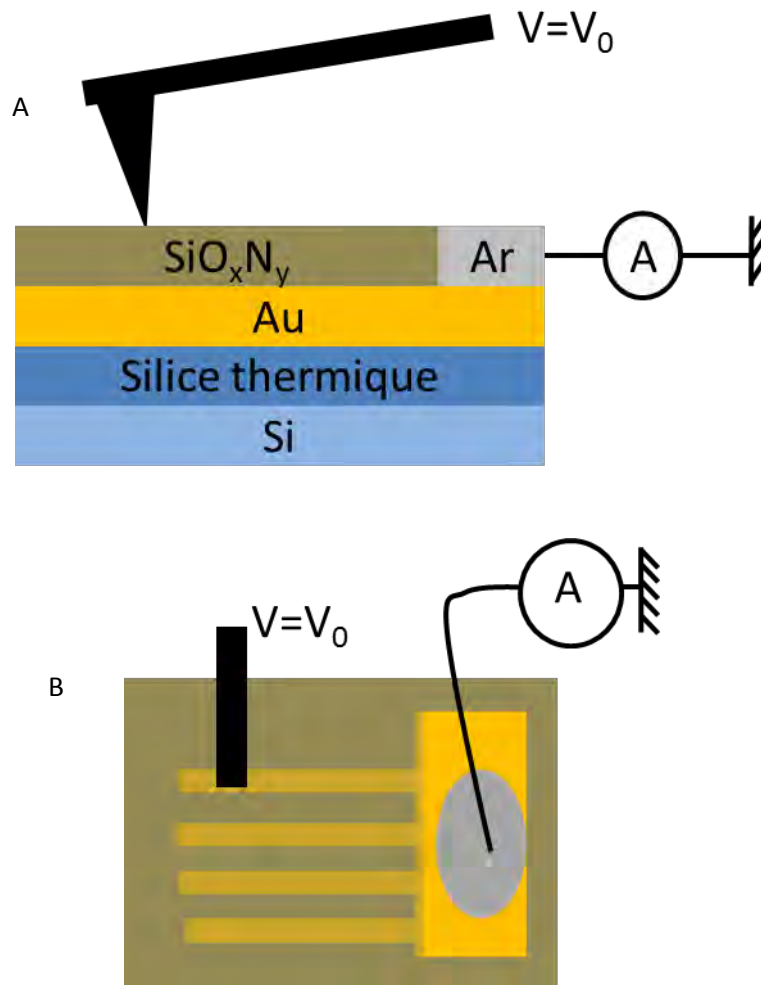


Figure 2.11 : Configuration pour la mesure de courant avec un électromètre, (A) vu de coupe et (B) vu de dessus.

Pour ces mesures nous nous sommes placés en environnement contrôlé sous atmosphère d'azote. Le courant est injecté en appliquant une tension de polarisation sur la pointe de quelques volts.

III-2.b) Les mesures C-AFM

La mesure C-AFM est une technique qui consiste à mesurer le courant à effet tunnel entre la pointe et la surface d'un échantillon. Le système C-AFM du fait de la proximité entre le système de mesure de courant et la pointe AFM permet des mesures très faible bruit (inférieur à 100fA). De plus, le système dispose de différents amplificateurs linéaires permettant de mesurer des courants très faibles allant jusqu'à quelques centaines de femto-ampères. Ce système de mesure est donc tout particulièrement adapté à la mesure de courant dans des diélectriques minces.

Les mesures C-AFM ont été conduites dans les mêmes conditions que précédemment: sous atmosphère contrôlée d'azote et en appliquant quelques volts en face arrière de l'échantillon. Les résultats obtenus par ces deux procédés expérimentaux seront comparés.

IV – Modélisation du champ électrique

Le champ électrique conditionne le phénomène d'injection mais aussi la dynamique post-injection. Ainsi, nous nous sommes intéressés à évaluer le champ électrique lors de la polarisation de la surface par la pointe.

IV-1) Description du modèle

Pour le calcul du champ électrique et du potentiel, nous avons utilisé le logiciel Comsol Multiphysics®. Le calcul du potentiel est réalisé en résolvant l'équation de Poisson :

$$\nabla^2 V = -\frac{\rho_f}{\varepsilon} \quad (1)$$

Avec ρ_f la distribution volumique de charges, ε la permittivité du milieu et V le champ scalaire du potentiel électrique. Cette équation est dérivée de la loi de Gauss sur le champ électrique E :

$$\nabla \cdot E = \frac{\rho_f}{\varepsilon} \quad (2)$$

$$\nabla \times E = 0 \quad (3)$$

$$-\nabla V = E \quad (4)$$

Il faut toutefois définir des conditions aux limites pour pouvoir résoudre l'équation (1) et en déduire le champ électrique grâce à l'équation (4).

La configuration choisie est décrite sur la Fig. 2.12 et comporte les éléments suivants :

- La pointe a été modélisée en 2D sous forme d'un cône tronqué par une demi-sphère représentant l'apex : de hauteur totale de 10 μ m et un rayon de courbure de 10nm.
- L'échantillon multicouche a été simulé avec les couches suivantes (en partant de la surface) : une couche de SiO_xN_y d'épaisseur variable (6 à 130nm), une couche d'or de 100nm, une couche de SiO₂ de 50nm et un substrat de silicium de 250 μ m.
- Le contact est ponctuel entre la surface et la pointe.
- Le potentiel $\pm V_0$ est appliqué sur la pointe.
- La masse est reportée sous l'échantillon.
- La couche d'or est laissée en potentiel flottant.

- Une condition de conservation des charges a été utilisée sur les frontières restantes.
- Pas de charges piégées dans la couche ($\rho_f = 0$)

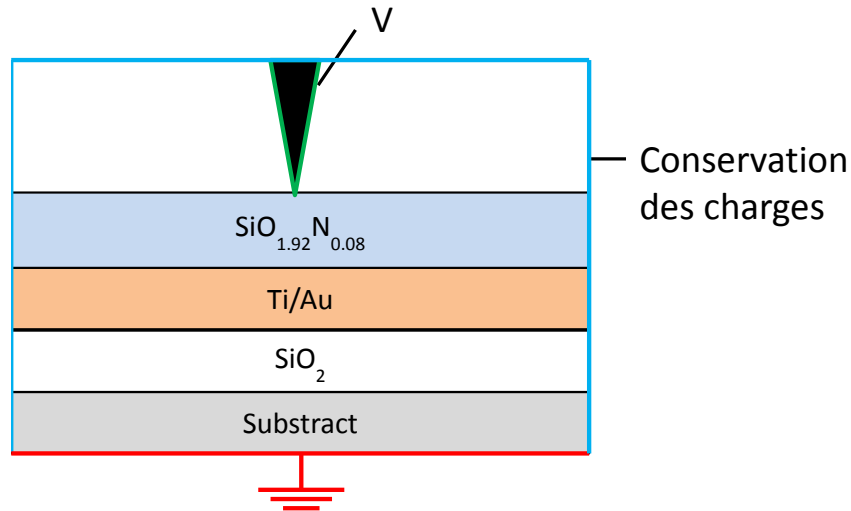


Figure 2.12 : Configuration lors de l'injection des charges électriques

Nous nous attendons à avoir un fort effet de renforcement de champ en bout de la pointe AFM. La Fig. 2.13 présente la distribution de champ électrique obtenue en appliquant 5V sur la pointe AFM pour une couche de 6nm de SiO_xN_y et en effectuant un grossissement autour de la zone d'intérêt. Le champ électrique est trouvé nul dans l'air pour des distances de quelques nanomètres de la pointe. Le champ se retrouve confiné entre le bout de la pointe et la surface de l'échantillon atteignant la valeur de $6 \cdot 10^7 \text{V/m}$ au point de contact (Fig. 2.14.A). Le champ électrique est proportionnel à la tension appliquée sur la pointe. Le champ électrique (Fig. 2.14.B) décroît ensuite rapidement à mesure que l'on s'éloigne de la pointe pour atteindre la valeur de $0,3 \cdot 10^7 \text{V/m}$ au niveau de la couche d'or. Il est important de préciser que le champ électrique n'est pas calculé dans les métaux, puisque nul. Par la suite nous nous intéresserons uniquement à la valeur du champ électrique au point de contact pointe-surface ainsi qu'à son évolution dans la couche de SiO_xN_y .

De part cette configuration particulière, on en conclut que la charge sera principalement injectée au niveau de la zone de contact entre la pointe et la surface.

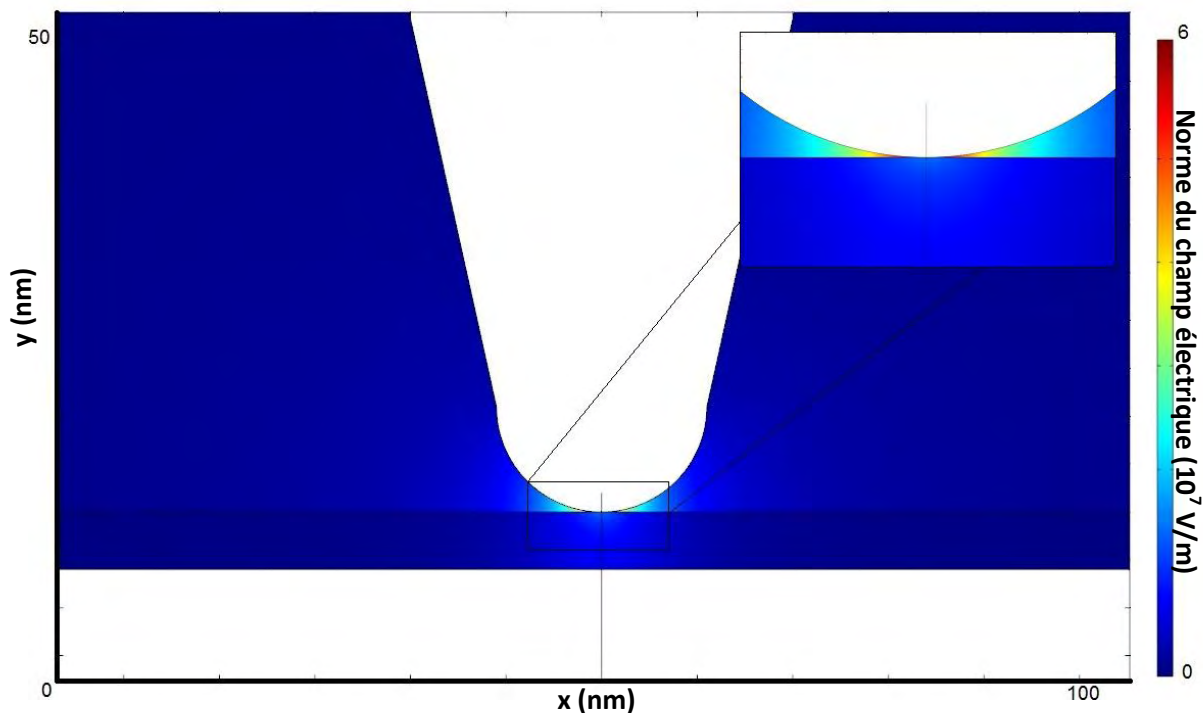


Figure 2.13 : Simulation du champ électrique entre la pointe et la couche de SiO_xN_y .

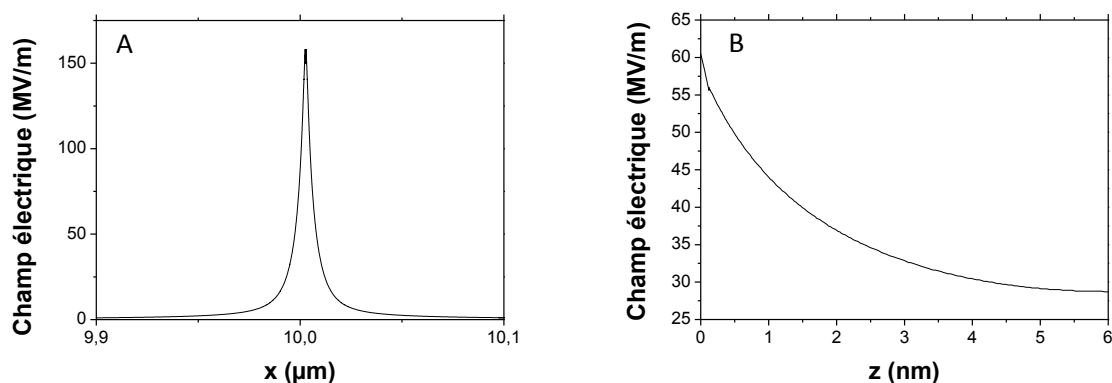


Figure 2.14 : Profil du champ électrique obtenu A) selon l'axe horizontal de l'interface diélectrique-air et B) selon l'axe vertical sous la pointe dans la couche de 6nm de SiO_xN_y .

IV-2) Calcul du champ électrique dans la configuration d'injection

Dans le cas présent, comme le montre la Fig. 2.14, la pointe introduit un renforcement du champ électrique autour de la pointe. Cela diffère fortement du cas du condensateur plan. En effet, le champ électrique dans la configuration d'un condensateur plan infini est homogène et constant entre les électrodes, alors que le potentiel évolue de façon linéaire.

Le champ électrique induit par une différence de potentiel V est alors directement lié à la distance inter-électrode d :

$$E = \frac{V}{d} \quad (6)$$

Toutefois dans notre cas, l'épaisseur d est dominée par l'épaisseur du substrat en silicium de $250\mu\text{m}$ (le plan métallique est au potentiel flottant). En effet, les variations de l'épaisseur de la couche de SiO_xN_y sont de l'ordre de la centaine de nanomètres au maximum. Ainsi, dans la configuration d'électrodes planes infinies l'épaisseur de la couche diélectrique n'aura que peu d'incidence sur le champ électrique.

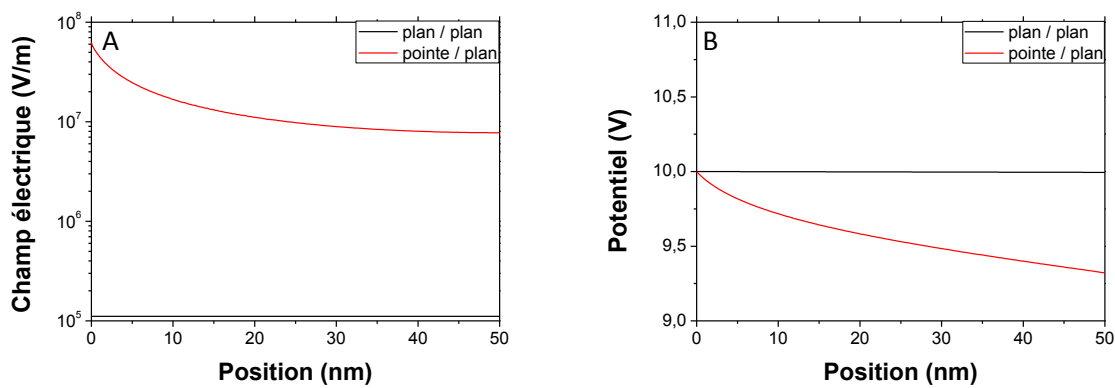


Figure 2.15 : Profil simulé (A) de champ électrique et (B) de potentiel (film de 50nm de SiO_xN_y)

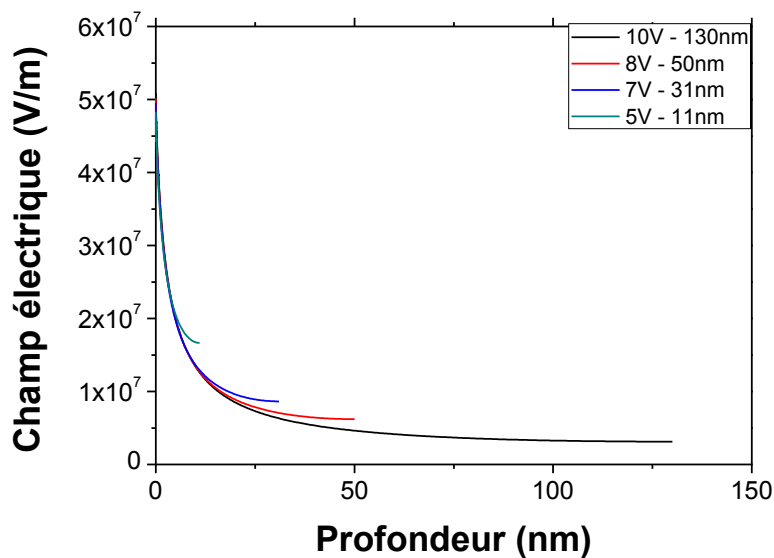


Figure 2.16 : Profil à champ sous pointe constant ($4,7 \cdot 10^7$ V/m) à l'intérieur de la couche de SiO_xN_y pour différentes épaisseurs (11, 31, 50 et 130nm).

La Fig. 2.15 compare les coupes verticales du champ électrique et du potentiel simulé par COMSOL Multiphysics® entre les deux électrodes en configuration plan-plan et pointe-plan. Dans le cas du champ électrique, la pointe introduit un renforcement de deux ordres de grandeur (6.10^7 V/m) comparé à la configuration plan-plan (1.10^5 V/m). Au contraire le potentiel est trouvé faiblement décroissant sur 50nm pour la configuration plan-plan alors qu'il diminue rapidement dans la configuration pointe plan (5% sont perdu dans les 50 premiers nanomètres). Cet effet provient de la grande distance d considérée (250 μ m de distance entre l'électrode et la masse).

Le renforcement important du champ électrique (d'un facteur 600) autour de la pointe favorise l'injection comparativement à la configuration entre deux électrodes planes. Dans le cas d'un contact réel entre deux interfaces formant un plan, l'injection de charges sera privilégiée par les défauts locaux formant des pointes de faibles dimensions. Ainsi l'AFM reproduit correctement grâce au principe de superposition les problèmes de multi-contact [16].

On peut rajouter que pour un champ électrique constant au point de contact dans la configuration pointe plan, la décroissance du champ électrique dans le film mince est similaire pour les différentes épaisseurs (Fig. 2.16). En effet, il n'y a que peu de différence sur les premiers 10-20nm, mais au-delà, le champ électrique est plus important pour les faibles épaisseurs.

Comme nous venons de le voir, la distance entre les électrodes est importante. On peut donc se poser la question de l'impact de l'épaisseur de la couche SiO_xN_y sur le champ électrique. Pour cela, nous avons pris les maximums du champ électrique (champ électrique au point de contact pointe-surface) et nous les avons représentés pour les différentes épaisseurs de SiO_xN_y (Fig. 2.17).

Le champ électrique au point de contact est divisé par 2 quand l'épaisseur de la couche est multipliée par 20 environ. Pour un potentiel donné le champ électrique dépend donc de l'épaisseur. Si l'injection est pilotée par le champ électrique au contact, alors le phénomène sera renforcé dans les couches de faible épaisseur. De plus, sur la Fig. 2.17, on peut remarquer que le champ électrique calculé au point de contact est proportionnel au potentiel appliqué sur la pointe.

Dans la suite, comme le champ électrique est maximum au point de contact, nous poserons l'hypothèse que l'injection est majoritairement contrôlée par le champ au point de contact et c'est cette valeur que nous prendrons comme champ d'injection.

La simulation donne donc d'importants résultats comme l'importance de l'épaisseur de la couche. Elle permet également de montrer la dépendance du champ électrique à la forme de la pointe [8].

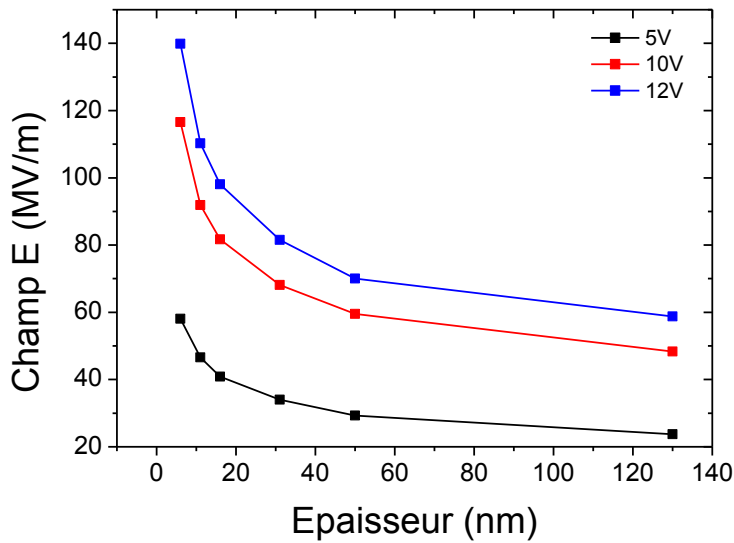


Figure 2.17 : Champ électrique au point de contact en fonction de l'épaisseur de la couche de SiO_xN_y .

V- Comportement dispersif d'un paquet de charges injectées dans un film de SiO_xN_y

Dans cette partie nous allons étudier l'impact de l'épaisseur de la couche diélectrique sur les mécanismes d'injection et de dispersion de charges. Pour cela, nous nous appuyons sur les simulations de champ électrique présentées dans la partie IV pour évaluer le champ électrique en jeu lors de la phase d'injection et les mesures de potentiel de surface par KPFM. Comme décrit précédemment, l'injection de charges est réalisée en contact en appliquant une tension entre la pointe et l'échantillon pour une durée donnée. En faisant varier la tension et la durée de l'injection, nous pourrions étudier les phénomènes en jeu lors de l'injection. En suivant la dynamique des charges après cette phase de polarisation nous pourrions ainsi adresser les mécanismes en jeu lors de la dissipation des charges.

En polarisation comme en dépolarisation, nous observons l'évolution des trois grandeurs suivantes : maximum de potentiel, largeur à mi-hauteur et aire sous le pic.

Ainsi nous nous proposons de vérifier l'impact des variations du champ électrique sur l'injection pour différentes épaisseurs de films diélectriques. Deux paramètres peuvent influencer le champ : l'épaisseur de la couche et le potentiel/champ appliqué. Nous nous intéresserons donc à l'influence de chacun de ces paramètres pris séparément avant de nous intéresser à l'influence de la durée d'injection. Les mesures de potentiel de surface seront alors complétées par des mesures de courant d'injection en configuration pointe-plan grâce à des mesures C-AFM.

Nous nous intéresserons ensuite à l'influence de l'épaisseur de la couche sur la dynamique de dissipation des charges.

V-1) Identification des mécanismes

Nous disposons de couches isolantes ayant des épaisseurs allant de 6nm à 280nm, déposées sur un plan en or dont le potentiel est flottant. L'objectif de cette première étude est d'observer les différences de comportement en fonction de l'épaisseur de la couche isolante de façon à identifier les paramètres pertinents permettant de mieux comprendre les mécanismes en jeu lors des phases de chargement et de déchargement.

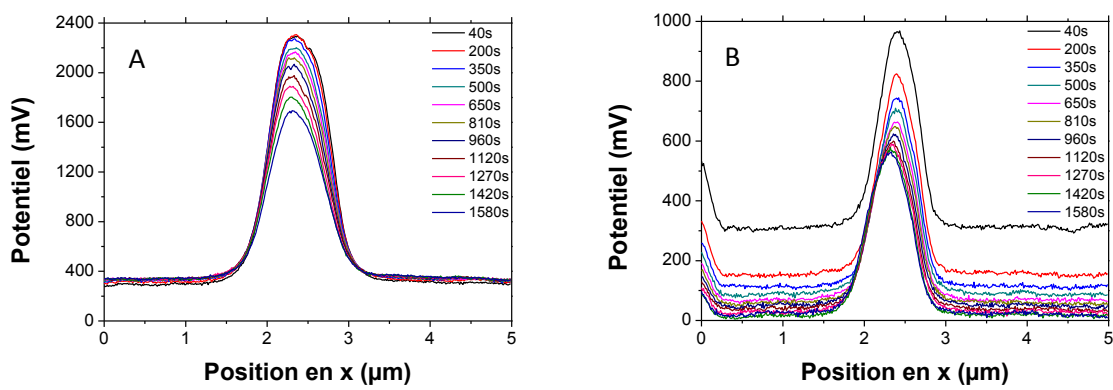


Figure 2.18 : Profil de potentiel sur le spot de charges après une injection de 2min sous 10V pour des épaisseurs de film de SiO_xN_y de (A) 130nm et (B) 11nm

La Fig. 2.18 représente l'évolution du profil de potentiel au cours du temps après l'injection pour deux épaisseurs de diélectrique (11nm et 130nm). On constate que si les profils de potentiel sont similaires, l'évolution de leur ligne de base ne l'est pas du tout. En effet, comme indiqué sur la Fig. 2.19.A pour une épaisseur de 11nm, le potentiel initial de la ligne de base est de 500mV et décroît rapidement. Dans le même temps la ligne de base, dans le cas d'une injection dans une couche de 130nm, reste stable.

De plus, comme représenté sur la Fig. 2.19.B, en augmentant la tension appliquée sur la pointe lors de l'injection, on remarque que le potentiel initial de la ligne de référence augmente. Ensuite s'ensuit une décroissance dont la dynamique est indépendante des conditions d'injection (400s). Le potentiel initial est trouvé proportionnel à la tension d'injection : pour une tension multipliée par 2, le potentiel initial est multiplié par 2.

Cet effet est lié à l'augmentation du potentiel de la couche sous-jacente en or. Cette augmentation est due à l'injection de charges à travers la couche diélectrique. Ces charges vont diffuser rapidement

à l'interface diélectrique-métal mais resteront mesurables car il n'existe pas de connexion entre le plan d'or et la masse. Cette augmentation globale du potentiel autour du spot est observée pour des épaisseurs inférieures ou égales à 11nm, ce qui signifie que pour ces épaisseurs les charges parviennent à traverser la couche diélectrique lors de l'injection.

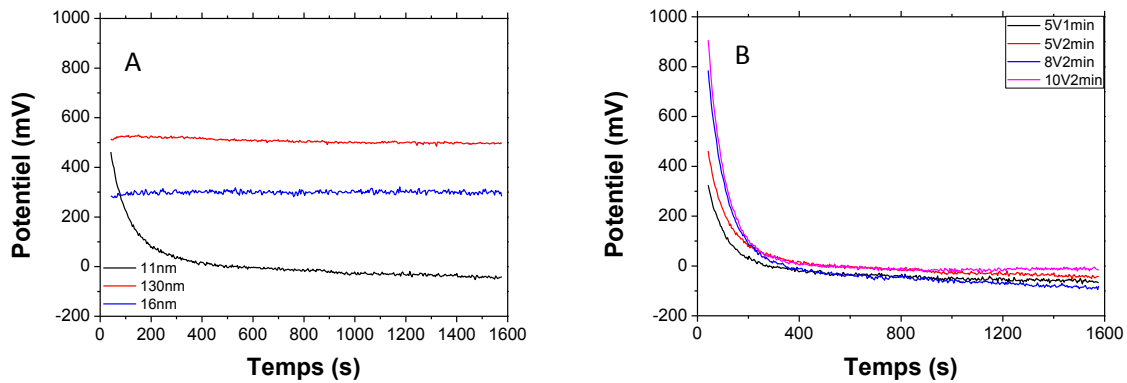


Figure 2.19 : (A) Comparaison de l'évolution temporelle du potentiel de référence pour des épaisseurs de 11, 16 et 130nm pour une injection de 2min sous 5V. (B) Influence des conditions d'injection sur l'évolution temporelle du potentiel de référence pour une épaisseur de 11nm.

En résumé, comme nous venons de le voir, le suivi du potentiel de référence nous apporte une information quant à l'injection au travers de la couche pour les films diélectriques les plus fins (épaisseur inférieure à 11nm). De plus, le potentiel initial de la ligne de base augmente avec la tension d'injection, en conservant la même dynamique de dispersion (400s). Il est alors fort probable que ce soit une partie des charges injectées qui traverse le film mince de SiO_xN_y et se disperse à l'interface avec l'or. Pour confirmer cette hypothèse des mesures de courant d'injection seront réalisées (voir partie VI).

Il est également intéressant de se demander si pour ces faibles épaisseurs ce phénomène d'évacuation de charges pourrait concurrencer l'injection et influencer la dynamique d'évacuation des charges post-injection. Dans la suite de l'étude seule la forme du profil de potentiel sera étudiée (la ligne de base sera ramenée à 0V).

V-2) Influence de la tension appliquée sur l'injection de charges

Une manière de faire varier le champ électrique sous pointe est de modifier la tension appliquée entre la pointe et l'échantillon. En effet, comme vu dans la partie précédente le champ électrique est directement proportionnel à la tension appliquée. On s'attend alors à une croissance du nombre de charges injectées dans la couche de SiO_xN_y avec l'augmentation de la tension.

La Fig. 2.20 représente l'évolution du maximum de potentiel et de la largeur à mi-hauteur du profil de potentiel juste après l'injection ($t=35s$) en fonction de la tension d'injection pour trois épaisseurs différentes de SiO_xN_y . Pour les films les plus épais ($>11nm$), le maximum de potentiel augmente linéairement avec la tension appliquée. Il en va de même pour la largeur à mi-hauteur même si son augmentation reste faible. Entre 5 et 9V le maximum de potentiel a été multiplié environ par 3 et la largeur à mi-hauteur environ par 1,2. Au contraire, pour un film d'épaisseur 11nm (Fig. 2.20.C), le maximum de potentiel est constant, et la largeur à mi-hauteur augmente peu. Au regard du confinement latéral du champ électrique sous la pointe et de la largeur du profil de potentiel (autour de 500nm), l'injection doit se faire préférentiellement sous la pointe, et malgré un champ électrique doublé l'expansion latérale n'évolue que faiblement. De plus, un deuxième phénomène apparaît pour les couches de faibles épaisseurs (inférieures à 11nm), en effet on a une limitation du nombre de charges injectées.

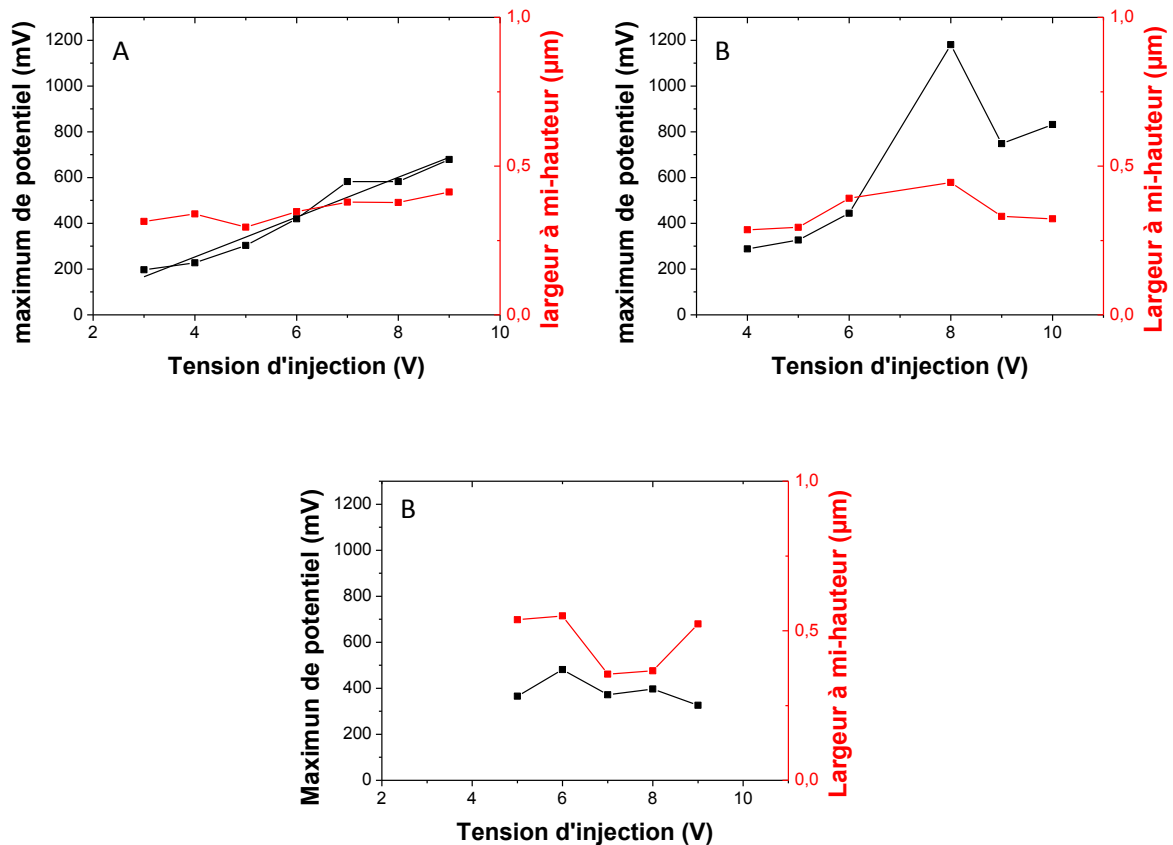


Figure 2.20 : Effet de la tension de polarisation sur le maximum et la largeur à mi-hauteur du profil de potentiel pour un film de (A) 130nm, (B) 31nm et en (C) 11nm d'épaisseur. La durée d'injection est de 2min.

L'énergie des électrons injectés augmente avec la tension d'injection. Ainsi, on peut penser que lorsque la tension d'injection augmente, les charges injectées ont deux possibilités : peupler des niveaux de pièges de plus en plus profonds proches de la surface et/ou peupler des pièges de plus en plus éloignés du point d'injection, en se déplaçant par conduction (hopping par exemple). On peut donc raisonner sur la profondeur énergétique d'un piège ainsi que sur sa localisation par rapport au point d'injection.

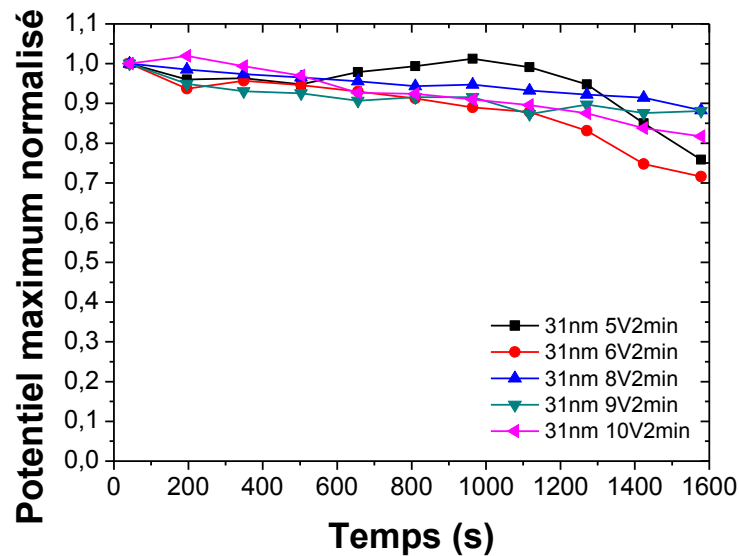


Figure 2.21 : Evolution du maximum de potentiel lors de la dépolarisation pour différentes tensions d'injection.

L'évolution du maximum de potentiel normalisé au cours du temps après l'injection est représentée sur la Fig. 2.21. Quelle que soit la tension appliquée lors de l'injection, l'évolution du maximum de potentiel est identique. En effet, il diminue de 20% toutes les 25min, donnant lieu à une décroissance exponentielle inverse. De plus, la largeur à mi-hauteur n'évolue pas au cours du temps. Par conséquent, la dispersion de charges s'effectue majoritairement dans le volume. Cette décroissance sera considérée comme caractéristique du SiO_xN_y utilisé. En effet, des expériences complémentaires sur les différentes épaisseurs de film ont montré une dynamique de déchargement identique.

En résumé, plus le champ électrique est important et plus la charge résiduelle est importante (à l'exception des films d'épaisseur inférieure à 11nm). De plus, le SiO_xN_y retient fortement les charges électriques, avec un comportement dispersif en volume.

V-3) Influence de la durée du contact sur l'injection de charges

De façon à pouvoir identifier les différences de comportements en injection en fonction de l'épaisseur nous nous sommes intéressés à l'influence de la durée d'injection.

Dans le cas précédent nous avons fait varier la tension sur la pointe, et donc le champ électrique, et nous avons avancé l'hypothèse qu'avec le champ électrique croissant, le nombre de pièges accessibles augmenterait. Afin de mesurer l'impact des pièges sur la rétention de charge, nous avons pris l'hypothèse que la densité de pièges était homogène dans la couche de SiO_xN_y . De ce fait, limiter le volume accessible lors de l'injection revient à limiter le nombre de pièges accessibles. Pour ce faire nous avons choisi de regarder l'effet qu'une injection a pour des épaisseurs de plus en plus faibles. Dans ce cadre, des expériences à tension d'injection constante ont été menées (Fig. 2.22). Pour chaque épaisseur de SiO_xN_y , la durée de l'injection varie entre 1min et 10min. L'augmentation de la durée d'injection a pour but d'atteindre le régime d'équilibre (saturation) et ainsi de mettre en évidence la limitation ou non de pièges accessibles dans une couche d'épaisseur croissante. Trois épaisseurs ont été testées :

- 11nm : L'aire (500 V.nm) sous le pic et le maximum (600mV) du pic de potentiel sont faibles et stables avec l'augmentation de la durée d'injection.
- 31nm : L'aire et le maximum augmentent puis se stabilisent autour des valeurs 1,5V.µm et 2V respectivement.
- 130nm : l'aire et le maximum augmentent pour les durées d'injections croissantes testées.

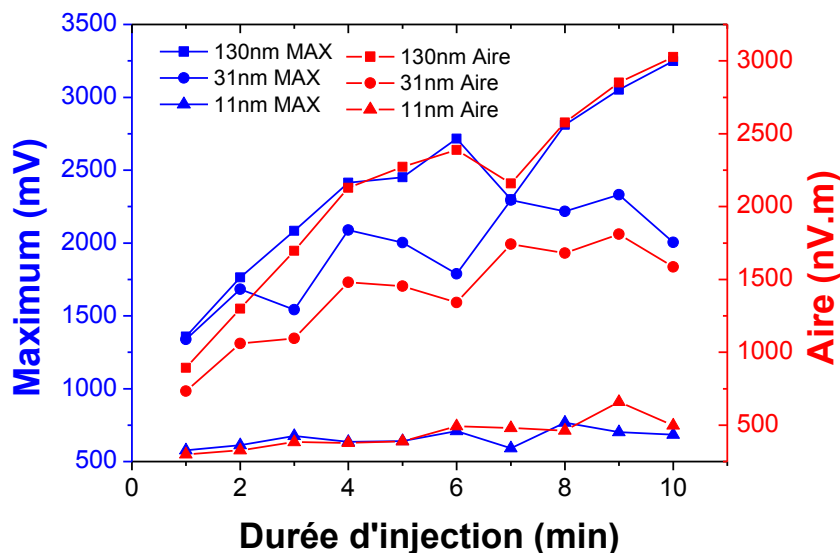


Figure 2.22 : Evolution des grandeurs caractéristiques du profil de potentiel (maximum et aire sous le pic) en fonction de la durée de l'injection à 12V.

Ainsi, pour les mêmes conditions, l'injection est plus importante dans les couches les plus épaisses, bien que le champ au point de contact soit plus faible ($1,1 \cdot 10^8$ V/m pour une épaisseur de 11nm contre $5,6 \cdot 10^7$ V/m pour une épaisseur de 130nm). De plus, le temps avant d'atteindre la saturation augmente avec l'épaisseur de la couche. Pour les films dont l'épaisseur est supérieure à 11nm (pas de changement du potentiel de référence), le fait que pour un champ plus faible l'aire sous le pic soit plus grande et la saturation plus lente à être obtenue montre qu'un plus grand nombre de pièges est disponible dans la couche plus épaisse. Par conséquent quand le temps d'injection augmente on aura tendance à peupler des pièges disponibles dans le volume du matériau de plus en plus distant de la surface. Alors que lorsque l'on augmente la tension d'injection il apparaît qu'on vient plutôt peupler des niveaux de pièges plus profonds. Pour confirmer cette hypothèse il convient de réaliser une étude à potentiel constant et à champ constant. Pour le film de 11nm d'épaisseur le profil de potentiel est peu influencé par le temps d'injection car les charges traversent la couche.

V-4) Influence de l'épaisseur de la couche sur l'injection et la rétention de charges

V-4.a) Etude à tension appliquée constante

L'épaisseur de la couche limite physiquement le nombre de pièges accessibles. Ainsi, la charge totale injectée dans une couche fine est moindre. De plus, pour des épaisseurs très fines les charges peuvent passer directement dans l'électrode inférieure par courant tunnel ce qui limitera également la quantité totale de charges piégées.

Pour une tension d'injection fixée, l'évolution de l'aire sous le pic et de la largeur à mi-hauteur a été observée en fonction de l'épaisseur (Fig. 2.23). Pour les deux paramètres deux zones peuvent-être identifiées :

- Faibles épaisseurs (<11nm) : largeur à mi-hauteur et aire sous le pic faibles et croissantes avec l'épaisseur (même si le champ au point d'injection diminue).

- Moyennes épaisseurs (au-delà de 16nm) : la largeur à mi-hauteur et l'aire sous le pic sont stables même si le champ au point de contact diminue.

D'après ces résultats nous posons l'hypothèse qu'il y a compétition entre deux mécanismes : le piègeage de charges et le courant (courant tunnel ou de conduction). Pour des épaisseurs faibles le courant à travers le diélectrique sera le mécanisme prédominant. Par conséquent, quand l'épaisseur de la couche augmente le courant sera de moindre importance et donc la quantité de charges

piégées sera plus importante même si le champ au point d'injection diminue. Pour confirmer cette hypothèse une étude à champ constant et des mesures de courant sont nécessaires.

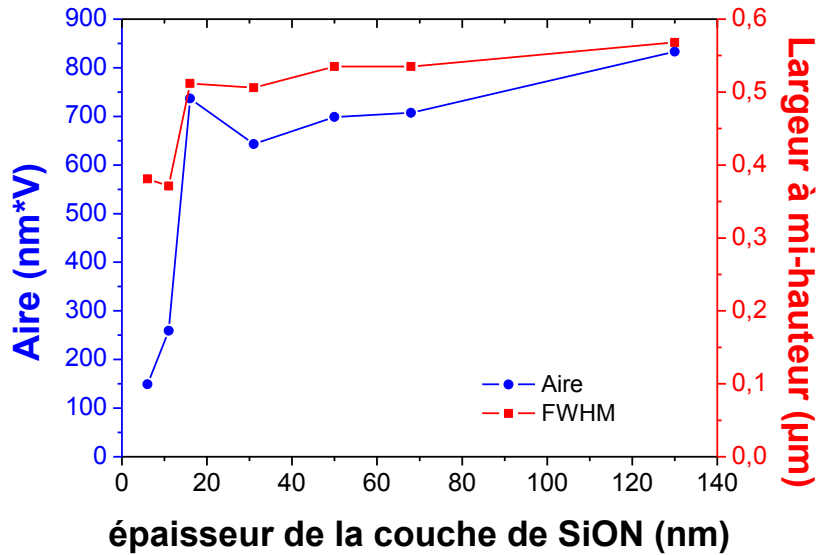


Figure 2.23 : Evolution des paramètres caractéristiques du profil de potentiel initial en fonction de l'épaisseur de la couche pour une injection à 12V pendant 2min.

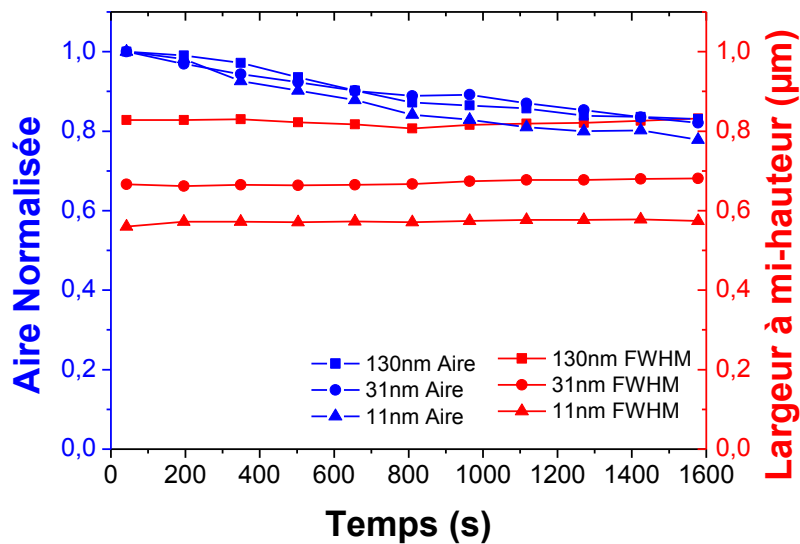


Figure 2.24 : Evolution temporelle de la largeur à mi-hauteur et de l'aire sous le pic pour différentes épaisseurs pour une injection à 12V pendant 2min.

Au vu de l'influence de l'épaisseur de la couche diélectrique sur les mécanismes d'injection, nous nous sommes ensuite intéressés à son influence sur la dynamique des charges après l'injection. Dans cette optique nous avons observé la dissipation (évolution de l'aire sous le pic et de la largeur à mi-

hauteur au cours du temps) pour différentes épaisseurs. Les résultats obtenus sont résumés sur la Fig. 2.24. Quelle que soit l'épaisseur du film diélectrique, une évolution identique est observée: décroissance de 20 % de l'aire sous le pic après 25min, et une stabilité de la largeur à mi-hauteur. Ces observations sont cohérentes avec celles réalisées précédemment. Pour les épaisseurs testées aucun effet de l'augmentation du champ électrique pour les couches les plus fines n'est observé. Au contraire, on remarque une limitation de l'expansion latérale des charges pour les épaisseurs les plus fines. Ces résultats montrent que la dynamique de dissipation des charges après injection n'est que peu influencée par l'épaisseur de la couche. En effet, une fois que le champ d'injection disparaît les charges évoluent en fonction de leur champ propre, faible devant le champ d'injection, et similaire pour les différentes épaisseurs.

V-4.b) Etude à champ électrique constant

Nous allons maintenant nous intéresser à l'influence de l'épaisseur de la couche dans une configuration où le champ électrique au point d'injection est le même (potentiel d'injection variable). Pour cela nous avons choisi des tensions à appliquer sur la pointe pour obtenir un champ électrique identique pour les différentes configurations et égal à $4.7.10^7$ V/m soit : 5V pour la couche de 11nm, 7V pour la couche de 31nm, 8V pour la couche de 50nm et 10V pour la couche de 130nm d'épaisseur. La durée de l'injection est égale à 2min. Les résultats obtenus sont présentés sur la Fig. 2.25.

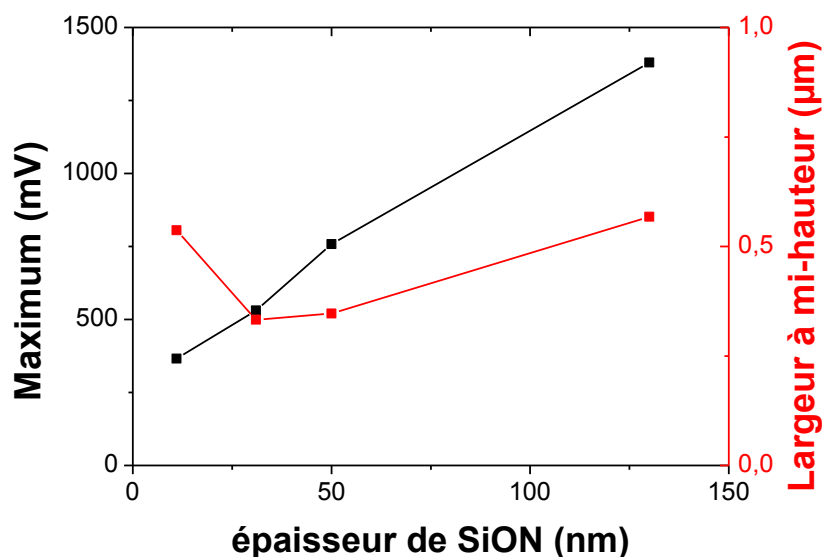


Figure 2.25 : Evolution des caractéristiques initiales (maximum et largeur à mi-hauteur) du profil de potentiel en fonction de l'épaisseur à champ électrique constant (injection 2min à $4,7.10^7$ V*m)

Tout d'abord on peut remarquer que la largeur à mi-hauteur varie peu avec l'épaisseur de la couche et est comprise entre 350 et 600nm. L'aire sous le pic augmente de façon linéaire avec l'épaisseur de la couche. Pour un champ électrique identique, si le seul mécanisme en jeu était l'injection, on pourrait s'attendre à ce que la densité de charges piégées et donc l'aire sous le pic soit constante. Ces résultats vont dans le sens de l'hypothèse présentée précédemment à propos de la compétition entre le courant (tunnel ou conduction) et l'injection de charges. De plus, comme le montrent les Fig. 2.15 et 2.16 la distribution de champ électrique dans la couche est quasiment identique quelle que soit l'épaisseur. Par conséquent la profondeur des pièges accessibles par les charges injectées reste la même. Cela confirme donc que l'augmentation de la densité de charges piégées augmente avec l'épaisseur car plus de pièges sont disponibles dans le volume.

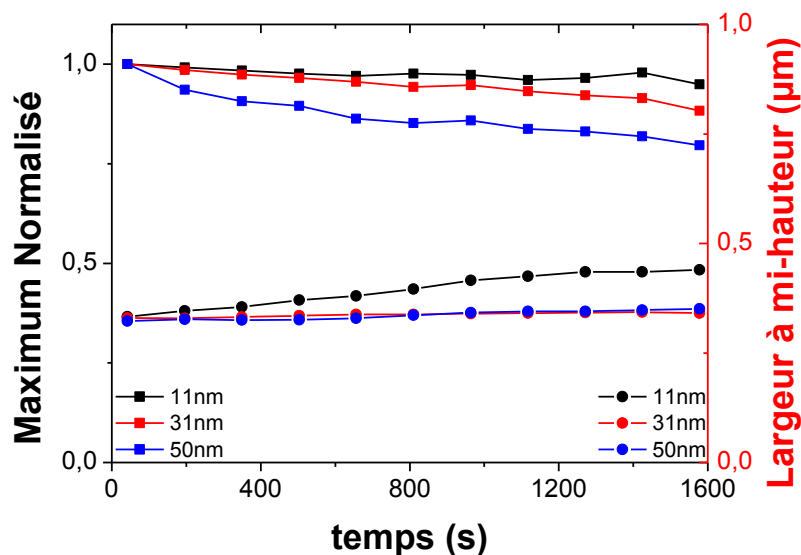


Figure 2.26 : Evolution temporelle du maximum et de la largeur à mi-hauteur pour une injection à champ constant pour différentes épaisseurs de film.

La Fig. 2.26 présente l'évolution temporelle des paramètres caractéristiques du profil de potentiel en fonction de l'épaisseur de la couche diélectrique (11, 31 et 50nm) pour un champ (sous pointe) d'injection identique. On observe que l'épaisseur de la couche a une légère influence sur la décroissance. En effet, après 1580s, le maximum de potentiel a diminué de :

- 6% pour la couche de 11nm d'épaisseur ;
- 12% pour la couche de 31nm d'épaisseur ;
- 21% pour la couche de 50nm d'épaisseur.

On retrouve les dynamiques de décroissance du maximum de potentiel observées précédemment. Pour les différentes épaisseurs la largeur à mi-hauteur reste stable au cours du temps. Par

conséquent le phénomène de dissipation en volume est le mécanisme majoritaire. De plus, le fait que la décroissance de potentiel soit légèrement plus rapide pour les films minces montre que la proximité du plan d'or, porté à un potentiel flottant, a une légère influence sur la dissipation des charges.

V-5) Influence de la distance entre le plan de masse et la pointe sur la dépolarisation

Comme vu précédemment, la présence du plan d'or même porté à un potentiel flottant influence la dissipation des charges. Dans ce paragraphe nous allons voir comment la présence du plan d'or porté soit à la masse soit à un potentiel flottant va influencer la dynamique des charges. En effet, le fait que le plan d'or soit à la masse introduira un champ électrique supplémentaire (dans le cas d'un plan au potentiel flottant les charges ne sont soumises qu'à leur champ propre) qui modifiera la dynamique des charges. Ainsi pour vérifier l'impact du champ électrique nous avons choisi de rapprocher le plan de masse de la pointe. Deux configurations ont été utilisées :

- plan de masse sous l'échantillon : la distance entre la pointe et le plan de masse est grande et le plan d'or est à un potentiel flottant (configuration étudiée précédemment).

- plan de masse sur le plan d'or (directement sous la couche de SiO_xN_y) : la distance entre la pointe et le plan de masse est égale à l'épaisseur du diélectrique (ici 130nm).

Les différentes configurations seront appelées configuration 250 μm et configuration 130nm respectivement par la suite. De plus, pour les mêmes conditions d'injection (12V sur la pointe) la distance entre les deux électrodes est divisée par 2000, le champ électrique est alors multiplié d'autant.

La Fig. 2.27 présente l'influence du potentiel du plan d'or sur le comportement lors de la dépolarisation. Pour la configuration 250 μm (plan d'or au potentiel flottant), la charge est localisée autour du point d'injection et décroît lentement au cours du temps. Au contraire, pour la configuration 130nm (plan d'or à la masse) la charge est plus large et décroît plus rapidement. La proximité modifie donc la phase d'injection (favorise l'étalement latéral des charges) et de déchargement. Les caractéristiques initiales du spot de potentiel varient grandement comme précisé dans le tableau 2.3.

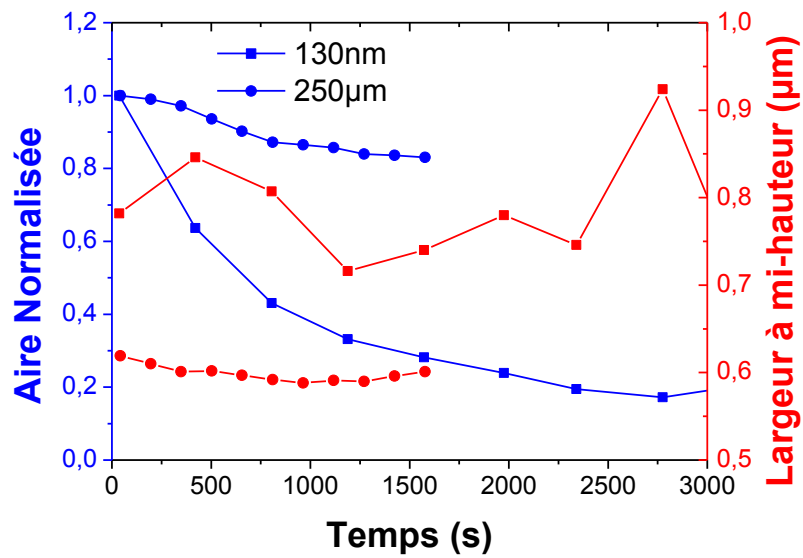


Figure 2.27 : Evolution de l'aire et de la largeur à mi-hauteur du profil de potentiel en fonction du temps pour une charge injectée pendant 2min à 12V en fonction de la distance à la masse.

Distance à la masse	130nm	250µm
Maximum (mV)	680	1764
Largeur à mi-hauteur (µm)	0,782	0,619
Aire (V.nm)	580	1300

Tableau 2.3 : Valeurs initiales après injection à 12V pour une distance inter-électrode de 130nm et 250µm.

Dans la configuration où la masse est appliquée sous l'échantillon, le maximum est quasiment divisé par 3, il en va de même pour l'aire et la largeur à mi-hauteur est légèrement plus faible que dans la configuration avec la masse sur le plan d'or. Dans le cas du plan d'or à la masse (faible épaisseur) l'augmentation du champ électrique explique facilement l'augmentation de la taille latérale du spot ainsi que celle du maximum ou de l'aire sous le pic. La diminution du maximum du spot de potentiel au cours du temps peut s'expliquer par la proximité du plan de masse qui attire les charges électriques plus rapidement (augmentation du champ électrique).

VI- Etude du courant électrique traversant le film de SiO_xN_y durant la phase d'injection

Dans la partie précédente, nous avons observé qu'une partie de la charge injectée traverse la couche de SiO_xN_y pour être collectée par le plan d'or. Pour confirmer cette observation nous avons réalisé des mesures de courants entre la pointe et le plan d'or durant l'injection. Deux méthodologies ont été utilisées : une mesure par un ampèremètre extérieur connecté entre la pointe et le plan d'or et une mesure de courant C-AFM.

VI-1) Configuration externe

Dans le cas des mesures de courant par un système extérieur, le courant traversant le film mince de SiO_xN_y est relativement important (de quelques μA à quelques mA). C'est pourquoi aucune mesure sur les couches d'épaisseur inférieure à 50nm n'a été réalisée dans cette configuration. Comme le montre la Fig. 2.28 pour une tension appliquée fixe le courant augmente au cours du temps. Lors du premier cycle le courant augmente jusqu'à $120\mu\text{A}$ et un point noir est à ce moment visible sur la couche. Suite à ce claquage le courant chute brutalement pour augmenter à nouveau signe que le claquage a été guéris. Le courant maximum atteint lors de la deuxième montée est supérieur à celui de la première phase. Les courants mesurés sont suffisamment importants pour percer la couche, produisant un claquage local. Lors de ce claquage il est possible qu'une partie du revêtement métallique (Pt/Ir) de la pointe soit déposée sur la surface de l'échantillon, altérant ainsi les propriétés électriques. Cela guérit alors le claquage ce qui permet au courant d'augmenter à nouveau.

Pour assurer la reproductibilité de la mesure il convient alors de ne pas atteindre le claquage mais aussi de contrôler parfaitement le temps de mesure.

La Fig. 2.29 montre l'évolution du courant dans la couche en fonction du champ électrique simulé par COMSOL au point de contact pointe-échantillon. On constate que le courant augmente avec le champ et que cette augmentation est d'autant plus faible que la couche est épaisse. Toutefois les courants mesurés restent considérables pour des surfaces d'électrodes aussi faibles.

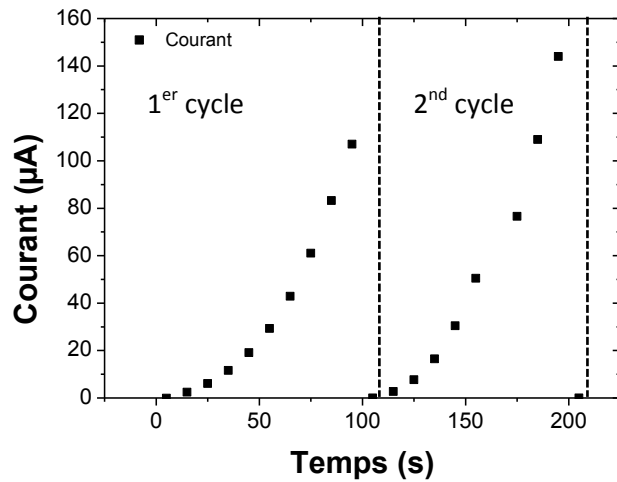


Figure 2.28 : Evolution du courant traversant un film de SiO_xN_y de 50nm d'épaisseur par palier de tension de 0,5V (2 cycles successifs).

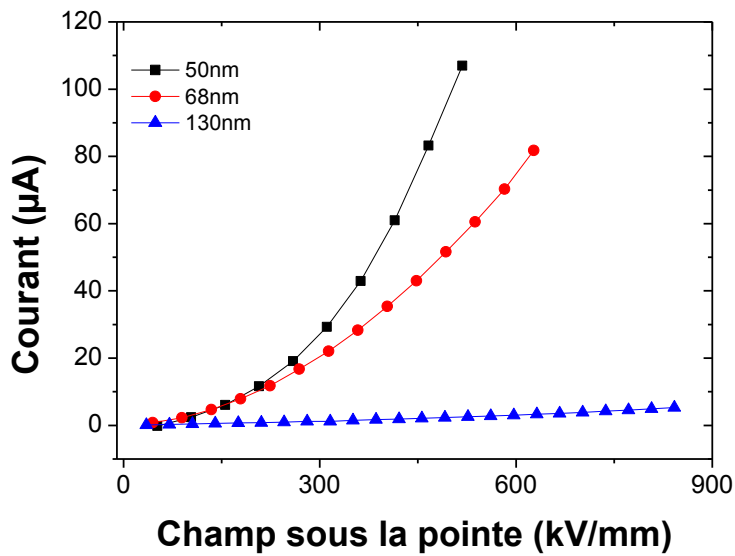


Figure 2.29 : Evolution, en fonction du champ électrique appliqué, du courant traversant des films de 50, 68 et 130nm de SiO_xN_y (simulation sous Comsol)

Les courants I mesurés et présentés sur la Fig. 2.29 ont été ajustés par une loi de la forme :

$$I = aE^n + b \quad (2)$$

Avec E la norme du champ électrique et n compris entre 1,4 et 2,5. Ce qui semble correspondre à un courant limité par charge d'espace :

$$J = \frac{9}{8} \epsilon_0 \epsilon_r \mu \frac{E^2}{e} \quad (3)$$

Avec ϵ_0 et ϵ_r la permittivité du vide et relative respectivement, μ la mobilité et e l'épaisseur de la couche traversée.

Malgré un accord correct entre les mesures et la loi de Mott-Gurney, le courant mesuré est très important. Un endommagement de la surface est observé, avec un endommagement de la pointe supposé l'accompagnant. Le fait que les courants mesurés soient très importants et que le claquage rapide des couches empêche d'étudier les films les plus minces (inférieur à 50nm) nous amène à réaliser des mesures de courant par C-AFM.

VI-2) Mesure C-AFM

Les mesures C-AFM ont été réalisées dans les conditions suivantes:

- l'atmosphère est contrôlée par un flux d'azote, et l'échantillon est conditionné en suivant la procédure précédemment décrite pour l'injection de charges.

- la pointe, en contact avec la surface du diélectrique SiO_xN_y , est une pointe Diamant de rayon de courbure $R_c=125$ nm et de constante de raideur $K= 2$ N/m,

- une tension continue V_{OR} , variable de 1 à 20V, est appliquée au plan d'or situé sous le diélectrique,

- le courant est mesuré par l'amplificateur faible bruit du module TUNA® connecté à la pointe.

La mesure consiste à augmenter la tension appliquée V_{OR} par paliers, sur chaque palier le courant C-AFM est enregistré pendant 60 secondes. La valeur moyenne de ce courant est ensuite calculée pour chaque palier. La Fig. 2.30 représente donc la variation de ce courant moyen en fonction de la tension appliquée V_{OR} pour différentes épaisseurs de SiO_xN_y .

Nous constatons premièrement que les courants mesurés sont beaucoup plus faibles que dans l'expérience décrite au III-2.a), et sont par conséquent plus représentatifs d'un bon diélectrique, dont les caractéristiques sont proches de celles de la silice SiO_2 .

De plus, l'analyse des résultats montre que pour les plus faibles épaisseurs (6 et 11nm) le courant mesuré est plus élevé, à champ électrique constant, comparativement aux épaisseurs plus élevées. Il est probable qu'aux faibles épaisseurs un mécanisme de conduction de type Fowler-Nordheim soit favorisé [17-19].

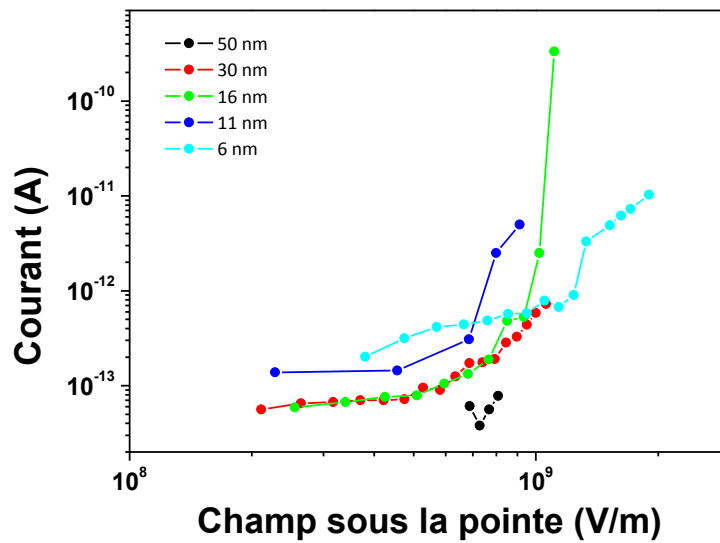


Figure 2.30 : Variation du courant en fonction du champ simulé pour différentes épaisseurs de SiO_xN_y .

On peut également noter que le comportement de la plus faible épaisseur (6 nm) est particulier, puisque le courant est effectivement plus élevé pour les champs faibles comparativement aux autres épaisseurs, mais que ce n'est plus le cas pour les champs supérieurs à 10^9 V/m. Il est important de noter ici que pour les très faibles épaisseurs, les caractéristiques structurales du SiO_xN_y , déposé par procédé plasma, sont probablement différentes comparativement aux épaisseurs plus élevées.

Pour la couche la plus épaisse (50 nm), il est intéressant de comparer les résultats obtenus par C-AFM avec les résultats obtenus dans une configuration classique de type capacité MIM (Métal/Isolant/Métal).

Pour la mesure sur capacité MIM les conditions de mesure sont les suivantes :

- l'atmosphère est contrôlée
- la tension V_{DC} est appliquée par paliers et le courant est enregistré pendant 1000 secondes.
- la densité de courant est calculée en divisant le courant (pris comme une moyenne sur les dernières secondes du palier de tension) par la surface de l'électrode supérieure de diamètre 10mm.
- l'épaisseur du SiO_xN_y est de 116,8 nm

Pour les mesures C-AFM réalisées sur l'échantillon d'épaisseur 50 nm, la densité de courant est calculée en divisant le courant mesuré par une aire effective S_{eff} , puisque dans ce cas il n'y a pas

d'électrode supérieure. L'aire effective est prise comme étant l'aire d'un disque sous la pointe dont le rayon est égal au rayon de courbure $R_a = 125$ nm de la pointe. Nous avons également calculé la densité de courant dans l'hypothèse où l'aire à prendre en compte serait 10 fois et 100 fois supérieure à cette aire effective.

Dans le cas I, correspondant aux mesures sur capacité MIM, le champ électrique est calculé en divisant la tension appliquée par l'épaisseur de l'échantillon, et correspond donc à un champ électrique homogène calculé dans le cas d'un condensateur plan/plan [4]. Dans le cas des mesures C-AFM, le champ électrique est simulé à partir de COMSOL® puisque nous sommes dans le cas d'un champ divergeant dans une configuration pointe/plan. La valeur de champ reportée sur l'axe des abscisses correspond dans ce cas au champ au point de contact entre la pointe et la surface du diélectrique.

L'ensemble des résultats et des configurations de mesure est représenté sur la Fig. 31.

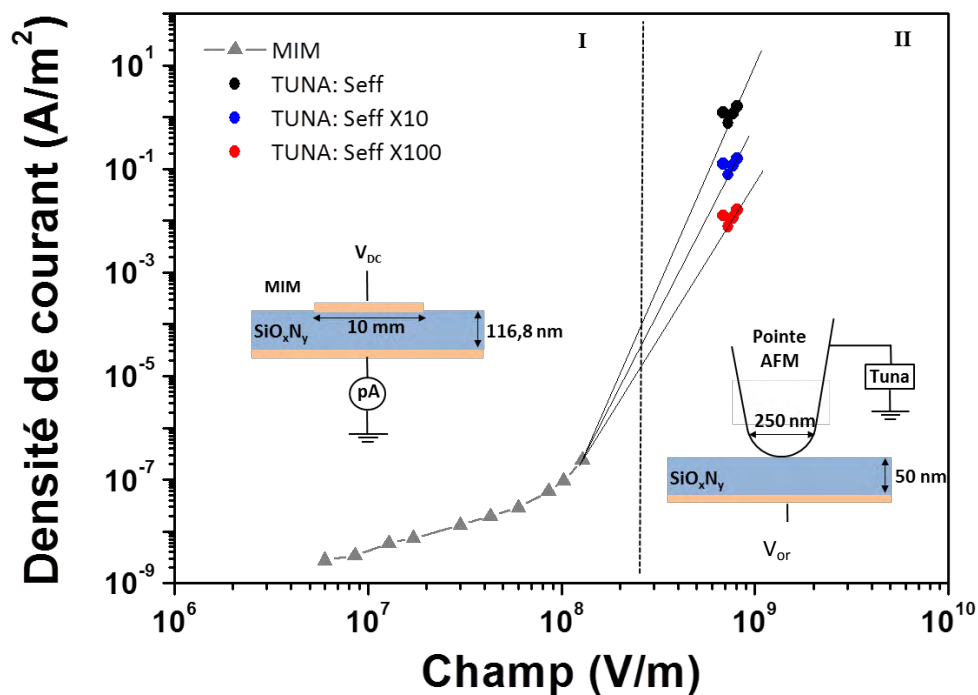


Figure 2.31 : Variation de la densité de courant en fonction du champ électrique. I) Mesures sur une structure classique MIM. II) Mesures C-AFM

L'analyse de la Fig. 2.31 montre que la comparaison entre les résultats obtenus par capacité MIM et C-AFM est difficile dans notre cas, puisque les gammes de champs explorées ne sont pas comparables. Cependant l'allure générale de la courbe semble cohérente, avec une zone ohmique

aux faibles champs, un champ seuil aux alentours de 10^8 V/m qui marque un changement de pente de la courbe tracée dans un diagramme log-log, et une zone à champs forts où la position des points de mesures C-AFM semble cohérente par rapport à l'allure générale de la courbe. Pour confirmer ces résultats il serait intéressant de compléter les mesures dans la zone de champ allant de $2 \cdot 10^8$ V/m à $8 \cdot 10^8$ V/m.

Pour finir, l'analyse de la Fig. 2.31 pointe également le problème de la surface à prendre en compte pour le calcul de la densité de courant le cas des mesures C-AFM. En effet l'allure générale de la courbe reste cohérente que l'on prenne une aire effective égale à S_{eff} , ou 10 fois plus grande, voire 100 fois plus grande. Cette problématique n'est pas nouvelle, en effet de nombreux auteurs ont rapporté la différence observée entre des mesures de courant par une pointe C-AFM et avec des électrodes macroscopiques [20] en montrant en particulier que les surfaces de contact dans le cas de l'AFM devraient être de plusieurs ordres de grandeur supérieures au rayon de courbure de la pointe de façon à faire correspondre les résultats [21]. Même si certaines études essaient de déterminer la surface de contact [22-24], on constate que la surface de contact (ou surface d'émission) est bien souvent un paramètre ajustable qui varie d'une expérience à l'autre (comme par exemple en fonction de l'épaisseur de la couche) [19]. Pour la suite de ce travail il serait intéressant de réaliser des mesures C-AFM sur des échantillons avec une électrode de taille supérieure. On pourrait ainsi étudier l'effet de l'aire en prenant plusieurs diamètres d'électrode.

VII – Conclusion et perspectives

Dans cette étude nous nous sommes intéressés aux phénomènes d'injection et de rétention de charges dans le SiO_xN_y . Nous avons pu mettre en évidence l'influence de l'épaisseur de la couche diélectrique sur ces mécanismes à l'aide de mesures de potentiel de surface et de courant couplées à une modélisation par éléments finis du champ électrique dans la couche et au point d'injection. Nous avons ainsi pu mettre en évidence plusieurs phénomènes.

Tout d'abord nous avons montré que le phénomène d'injection de charges était très fortement dépendant de l'épaisseur de la couche diélectrique.

- Pour des films de très faibles épaisseurs (<11nm), nous avons mis en évidence que les conditions d'injection (durée et champ électrique) n'influençaient que très faiblement le profil de potentiel (i.e. la densité de charges piégées). De plus, une injection de charges directement dans le plan en or (au potentiel flottant) a été observée. De même pour des injections à faible champ (2V appliqué) un courant d'injection a pu être mesuré. Par conséquent deux mécanismes sont en compétition lors de la phase d'injection : la

conduction et le piégeage de charges. La conduction est dans ce cas le mécanisme majoritaire.

- Pour des films d'épaisseurs intermédiaires (entre 15nm et 50nm), nous avons montré que la durée et le champ d'injection influençaient le profil de potentiel induit par les charges. En particulier on observe une augmentation de la densité de charges avec le temps d'injection suivie d'une saturation. Ce phénomène de saturation apparaît pour des temps de plus en plus longs quand l'épaisseur de la couche augmente. De plus, même si aucune injection directe dans le plan d'or n'a été observée un courant entre la pointe et le plan d'or est détectable lors de l'injection. Le seuil de détection de ce courant augmente avec l'épaisseur de la couche (3V pour 16nm, 6V pour 30nm et 17V pour 50nm) ce qui indique que le phénomène de conduction se produit pour des champs de plus en plus élevés. Pour ces épaisseurs les phénomènes de conduction et de piégeage sont toujours en compétition mais le phénomène de piégeage est majoritaire par rapport à la conduction.
- Pour des films épais (>70nm), on observe une augmentation de la densité de charges injectées avec la durée et le champ d'injection. Aucun effet de saturation n'est observable pour des durées allant jusqu'à 10min. De plus, aucun courant d'injection n'est détecté. L'augmentation de la densité de charges se fait donc en occupant non plus les pièges près de la surface mais en peuplant aussi les pièges répartis dans le volume.

Le phénomène de saturation observé peut alors être attribué (i) soit à une occupation de tous les pièges disponibles, (ii) soit à un état d'équilibre entre conduction et injection, (iii) soit à une autolimitation de l'injection par le champ induit par les charges piégées. Cette dernière hypothèse paraît peu probable car le phénomène de saturation semble plus lié à la durée qu'au champ d'injection (la saturation n'est pas observée en champ). De plus, pour une injection à champ identique mais différentes épaisseurs nous avons montré que pour une même distribution de champ dans la couche, la densité de charges injectées augmente avec l'épaisseur. Comme le champ est identique cette augmentation ne peut pas être liée au peuplement de pièges plus profonds mais bien au peuplement de pièges dans le volume de la couche. Les deux premières hypothèses semblent donc les plus probables. Pour essayer de discriminer l'une de ces hypothèses, une étude utilisant différents métaux recouvrant la pointe pourrait être envisagée. Elle permettrait de modifier la hauteur de barrière énergétique en jeu lors de l'injection et donc de modifier la quantité de charges injectées tout en conservant un champ identique.

Nous avons également pu montrer que la dynamique des charges après l'injection dépendait légèrement de l'épaisseur. En effet, la décroissance de la densité de charges piégées est d'autant plus rapide que l'épaisseur de la couche diélectrique est fine. Cela est lié à la présence de la couche d'or qui constitue un piège énergétiquement favorable pour les charges. De plus, quelle que soit l'épaisseur, la décroissance de charge ne s'accompagne pas d'un étalement de cette dernière ce qui indique que le mécanisme principal est une dissipation en volume.

Un comportement classique de diélectrique est retrouvé dans la mesure de courant (C-AFM) : en premier un régime ohmique, puis une augmentation rapide au-delà d'un seuil. Ce seuil a pu être observé et apparaît autour de $2 \cdot 10^8$ V/m. Ces observations confirment la présence d'un mécanisme de conduction entre la pointe et la couche d'or pendant l'injection.

Une autre question importante repose sur la profondeur de pénétration des charges. En effet, c'est un paramètre clé permettant de modéliser le profil de potentiel et de remonter à la densité de charges comme montré par E. Palleau [19]. Les résultats obtenus montrent qu'on ne peut pas considérer que les charges sont uniformément réparties dans le volume de la couche. En effet, cette hypothèse semble tout à fait fondée pour les films fins (inférieur à 11nm), mais plus vraie au-delà. En effet, pour les films intermédiaires la mesure d'un courant d'injection indique que des charges ont atteint le plan d'or mais la densité présente ne modifie pas son potentiel et est donc beaucoup plus faible qu'en surface. La détermination de la densité de charge ne peut donc se faire qu'en tenant compte d'une répartition volumique de charges dont la profondeur de pénétration dépend du champ d'injection utilisé.

Toutefois, malgré l'absence de quantification de la densité de charges, nous disposons donc d'une méthode performante pour l'étude de l'injection et de la dissipation des charges, à l'échelle nanométrique, dans divers matériaux.

Pour améliorer la compréhension des mécanismes d'injection, la détermination de seuil d'énergie ou de barrière de potentiel des tests en faisant varier les paramètres de la pointe (revêtement et/ou rayon de courbure) pourront être envisagées. De plus, des calculs de champ électrique prenant en compte une densité de charges déjà piégées dans la couche pourraient aider à comprendre l'autolimitation possible du phénomène d'injection. Enfin le couplage avec d'autres techniques, telle que l'EFDC présentée dans la thèse d'A. Boularas [8], pourrait permettre de compléter les informations en particulier sur la répartition volumique des charges.

Bibliographie :

- [1] Z. Z. Lwin, K. L. Pey, C. Liu, Q. Liu, Q. Zhang, Y. N. Chen, P. K. Singh and S. Mahapatra, *“Localized charge trapping and lateral charge diffusion in metal nanocrystal-embedded High- κ /SiO₂ gate stack”*, Appl. Phys. Lett., vol. 99, 222102, 2011
- [2] K. Makasheva, B. Despax, L. Boudou, C. Laurent, and G. Teysseire, *“A discussion on the likely mechanisms for dielectric charging in AFM”*, IEEE Proc. Conference on Electric Insulation and Dielectric Phenomena, 2010.
- [3] C. Dumas, L. Ressler, J. Grisolia, A. Arbouet, V. Paillard, G. BenAssayag, S. Schamm, P. Normand, *“KFM detection of charges injected by AFM into a thin SiO₂ layer containing Si nanocrystals”*, Microelectronic Engineering, vol. 85, 2358–2361, 2008
- [4] K. Makasheva, B. Despax, L. Boudou and G. Teysseire, *“Dielectric Layers for RF-MEMS Switches: Design and Study of Appropriate Structures Preventing Electrostatic Charging”*, IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul. Vol. 19, 4, 2012
- [5] E. Verveniotes, A. Kromka, and B. Rezek, *“Controlling Electrostatic Charging of nanocrystalline Diamond at Nanoscale”*, Langmuir, vol. 29, 7111–7117, 2013
- [6] F. Marchi, R. Diannoux, H.J.H. Smilde, P. Mur, F. Comin, J. Chevrier, *“Characterisation of trapped electric charge carrier behavior at nanometer scale by electrostatic force microscopy”*, J. Electrostatics, vol. 66, 538-547, 2008
- [7] L. Ressler and V. Le Nader, *“Electrostatic nanopatterning of PMMA by AFM charge writing for directed nano-assembly”*, Nanotechnology, vol. 19, 135301, 2008
- [8] A. Boullaras, *“Modélisation multidimensionnelle des interactions électrostatiques pointe/diélectrique en microscopie à champ proche”*, Thèse, Université Paul Sabatier Toulouse 3, 2015
- [9] U. Zaghloul, *“Caractérisation à l'échelle nanométrique et macroscopique, des phénomènes de chargement des diélectriques et des mécanismes d'adhérence pour la fiabilité des micro-nano systèmes à actionnement électrostatique”*, Thèse, Université Paul Sabatier Toulouse 3, 2011
- [10] E. T. Enikov and A. Palaria, *“Charge writing in silicon–silicon dioxide for nano-assembly”*, Nanotechnology, vol. 15, 1211–1216, 2004.

- [11] M. Ishii, *"Static states and dynamic behaviour of charges: observation and control by scanning probe microscopy"*, J. Phys. Condens. Matter, vol. 22, 173001, 2010.
- [12] D. Ziegler, N. Naujoks and A. Stemmer, *"Feed-forward compensation of surface potential in atomic force microscopy"*, Rev. Sci. Instrum., vol.79, 063704, 2008
- [13] G. C. Stevens and P. J. Blair, *"Nano- and Meso-measurement Methods in the study of Dielectrics"*, IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., Vol.12, 5, 2005
- [14] T.J Youn, M.A Monclus, T.L. Burnett, W.R. Broughton, S.L. Ogin and P.A. Smith, *"The use of Peak Force qualitative nanomechanical mapping AFM-based method for high-resolution Young's modulus measurement of polymers"*, Meas. Sci. Technol., Vol. 22, 125703, 2011
- [15] V. Zerweck, *"Accuracy and resolution limits of Kelvin probe force microscopy"* Phys. Rev. Lett. B, Vol. 71, 125424, 2005
- [16] S. Morita, T. Uchihashi, K. Okamoto, M. Abe and Y. Sugawara, *"Microscale contact charging on a silicon oxide"*, P.M. Vilarinho et al (eds), Scanning Probe Microscopy : characterization, nanofabrication, and Device Application of functional Materials, 289-308, 2005
- [17] A. Olbrich, N. Ebersberger and C. Boit, *"Nanoscale Electrical Characterization of thin oxides with conductive atomic force microscopy"*, 36th annual IEEE IRPS, Final report, Vol. 2934, 2001.
- [18] M. Porti, M. Nafra, X. Aymerich, A. Olbrich and B. Ebersberger, *"Nanometer-scale electrical characterization of stressed ultrathin SiO₂ film using conducting atomic force microscopy"* Appl. Phys. Lett., vol. 78, 4181, 2001
- [19] A. Olbrich, B. Ebersberger, C. Boit, J. Vance and H. Hoffman, *"A new AFM-based tool for testing dielectric quality and reliability on a nanometer scale"*, Microelectronics Reliability, vol. 39, 941-946, 1999
- [20] O. Reid, K.Munehika and D.S. Ginger, *"Space charge Limited Current measurements on conjugated polymer films using conductive Atomic force Microscopy"*, Nanoletters, vol. 8, 1602, 2008
- [21] W. Hourani, *"Caractérisation des courants de fuite à l'échelle nanométrique dans les couches ultra-minces d'oxydes pour la microélectronique"*, PhD Thesis, INSA Lyon, FR 2011
- [22] W. Frammelsberger, *"Improved atomic force microscopy based techniques for electrical and structural characterization of thin dielectric films"*, Ph.D. Thesis, University of the West of England, Bristol, UK, 2006

[23] T.G. Ruskell, R. Workman, D. Chen, “*High resolution Fowler-Nordheim field emission maps of thin silicon oxide layers*”, Appl. Phys. Lett., vol. 68, 1996

[24] U. Celano, T. Hantschel, G. Giammaria, R.C. Chintala, T. Conard, H. Bender and W. Vandervorst, “*Evaluation of the electrical contact area in contact-mode scanning probe microscopy*”, J. Appl. Phys., vol. 117, 214305, 2015

[25] E. Palleau, L. Ressier, L. Borowik and T. Melin, “*Numerical simulations for a quantitative analysis of AFM electrostatic nanopatterning on PMMA by Kelvin Force Microscopy*” Nanotechnology 21, 225706, 2010

Chapitre 3 : Etude des phénomènes de polarisation/dépolarisation entre des électrodes latérales

I – Introduction

L'injection et le piégeage de charges électriques, dans les diélectriques utilisés dans des systèmes aux dimensions de plus en plus faibles, deviennent des phénomènes d'importance qu'il faut étudier. Une solution originale consiste en les polariser grâce à deux électrodes parallèles enfouies dans le matériau. Cette structure particulière, permet d'étudier les phénomènes d'injection aux interfaces métal/isolant, ainsi que les phénomènes de transport de charges entre les électrodes latérales.

Dans ce chapitre nous présenterons tout d'abord le protocole expérimental mis en place pour la fabrication des structures dites à électrodes latérales et pour la réalisation des mesures. Nous insisterons plus particulièrement sur les problèmes rencontrés et les solutions apportées, ainsi que sur les futures améliorations possibles. Par la suite nous présenterons les premiers résultats obtenus, que nous discuterons en nous appuyant sur des résultats de simulation de champ électrique dans ces structures à électrodes latérales.

II - Protocole expérimental et matériau étudié

La fabrication des échantillons, réalisée au sein de la centrale technologique du LAAS, ainsi que la mise en place du protocole expérimental ont nécessité plusieurs phases d'essai et d'optimisation. Au cours de ces phases, nous avons choisi d'étudier, pour des raisons de facilité de mise en œuvre, le SiN_x comme matériau diélectrique associé à des électrodes en aluminium.

Notre choix s'est porté sur du SiN_x déposé par Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition (PECVD) à partir de SiH_4 et de NH_3 avec une excitation Haute Fréquence, du fait de sa faible vitesse de dépôt permettant un bon contrôle des faibles épaisseurs et pour ses propriétés électriques bien connus [1], résumées dans le tableau suivant :

Indice optique	1,97
Permittivité	7,5
Vitesse de dépôt	11,5 nm/min

Tableau 3.1 : propriétés du SiN_x

II-1) Design des structures de test

Le design des échantillons répond aux contraintes expérimentales suivantes : taille maximale de l'échantillon de 1cmx1cm pour entrer dans la cellule de mesure ainsi qu'une bonne isolation électrique entre la face arrière de l'échantillon et les électrodes.

Le design choisi est présenté sur la Fig. 3.1. Il comporte une couche diélectrique de SiN_x déposée par PECVD sur un substrat en silicium intrinsèque, assurant ainsi une bonne isolation électrique et des électrodes en aluminium, recouvertes par une couche de passivation également en SiN_x . Des ouvertures dans la couche de passivation ont été aménagées au niveau des pads métalliques pour permettre le contact électrique. Des tests préliminaires ont mis en évidence la nécessité d'enterrer les électrodes dans le matériau (limiter le rayonnement électromagnétique) et de les passiver (limiter la création d'arc électrique entre la pointe et l'électrode).

Différentes distances inter-électrode ont été envisagées pour notre étude ($5\mu\text{m}$, $10\mu\text{m}$, $20\mu\text{m}$, $40\mu\text{m}$ et $50\mu\text{m}$) de façon à mettre en évidence l'influence de cette distance sur la mesure (en particulier sur la faisabilité et la « résolution » de la mesure).

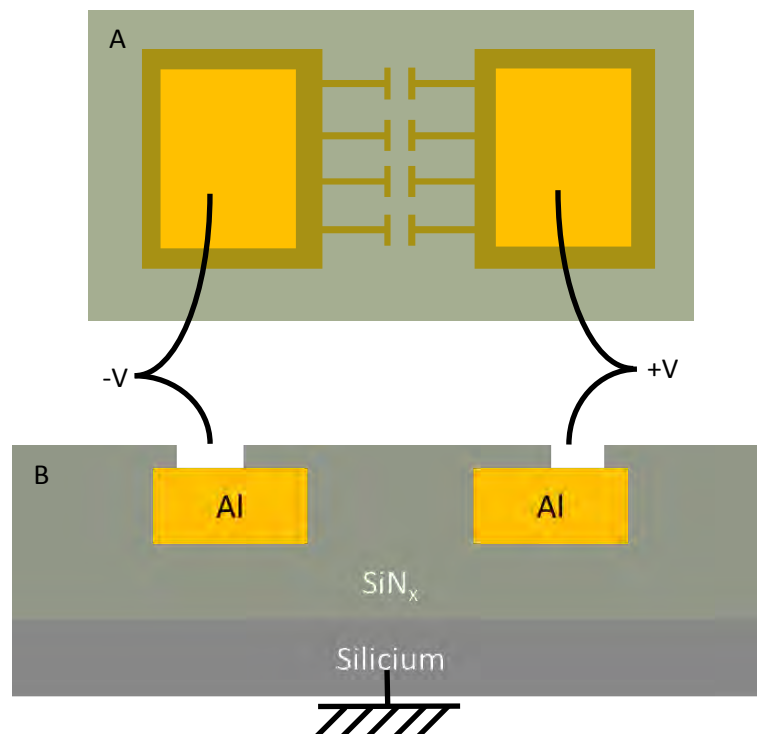



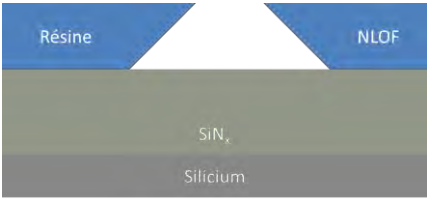
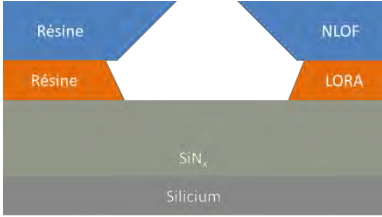
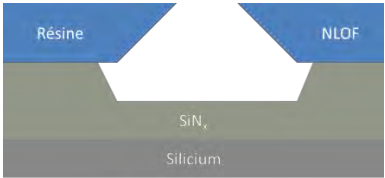
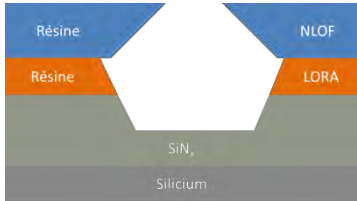
Figure 3.1 : Schéma de conception des électrodes latérales (A) en vue de dessus et (B) en coupe latérale.

La réalisation d'électrodes enterrées dans la couche diélectrique représente un défi technologique car l'interface entre l'isolant et le métal doit être de très bonne qualité, c'est-à-dire qu'un contact intime doit exister entre eux (pas de gap d'air) de façon à maîtriser l'injection des charges. Pour cela deux procédés de fabrication ont été envisagés (cf. tableau 2).

Les substrats utilisés sont en silicium faiblement dopé ($10^{12} \text{ e}^-/\text{cm}^3$) de façon à assurer une bonne isolation électrique pour les électrodes. Après nettoyage des substrats et le dépôt par PECVD de 300nm de SiN_x (Fig.3.2), l'étape critique de la fabrication des électrodes peut commencer, elle comporte trois étapes : la photolithographie pour définir les dimensions des électrodes, la gravure chimique du SiN_x pour enfouir les électrodes et le dépôt du métal constituant ces dernières.

Le procédé A (Tableau 3.2) présente des paramètres de procédé standard pour la réalisation d'électrodes par lift-off. Grâce à ce procédé les flancs de la résine forment un angle de 45° avec la surface ce qui est optimal pour une bonne libération de la résine lors du lift-off. Une fois la gravure chimique et le dépôt métallique, par évaporation, réalisés la Fig. 3.6.A nous montre la présence d'un gap d'air entre l'aluminium et le SiN_x . Cela entraîne, après passivation, un gap d'air de $1\mu\text{m}$ environ ce qui ne permet pas un contact intime entre l'électrode et le diélectrique (Fig. 3.7.A). Pour remédier à cela le procédé B est proposé. Les principales différences concernent les étapes de photolithographie et de métallisation. Pour l'étape de photolithographie l'utilisation d'une fine couche de LORA (résine non photosensible) ainsi que la diminution du temps de révélation de la AZ nLOF (résine photosensible) et l'augmentation de sa température de PEB (Post Exposure Bake) permet d'augmenter l'angle de la résine (60° au lieu de 45°) de façon à limiter l'effet d'ombrage (Fig. 3.4.B). De plus, la couche d'aluminium est déposée par pulvérisation cathodique ce qui améliore la conformité du dépôt et diminue la dimension des gaps d'air. En effet comme montré sur la Fig. 3.6.A, le gap d'air n'est plus maintenant que de 50nm au maximum. Après passivation aucun gap d'air n'est visible sur le profil AFM (Fig.3.7.B). Les structures obtenues sont visibles sur les Fig. 3.6.C et D.

Un de nos objectifs est l'étude des phénomènes aux interfaces : l'injection et le déplacement de charges électriques. Par conséquent le procédé B sera utilisé par la suite pour réaliser des structures sans gap d'air.

Procédé A	Procédé B
<p>Traitement du Substrat de Silicium :</p> <ul style="list-style-type: none"> - Nettoyage piranha ($H_2SO_4 : H_2O_2$) - Traitement plasma O_2 - Dépôt de 300nm de SiN_x par PECVD (Voir Fig. 3.2). Ce dépôt se fait sous une pression de 1.2bar avec un mélange de 30sccm de SiH_4, 40 sccm de NH_3 et 1200 sccm de N_2.  <p>Figure 3.2 : Schéma après dépôt de la couche de SiN_x par PECVD</p>	
<p>Photolithographie : Définition des électrodes</p> <ul style="list-style-type: none"> - Dépôt de 2,5μm de NLOF - Exposition aux UV - Révélation (retrait de la résine exposée aux UV) pendant 30s - Recuit d'après exposition (PEB) à 110°C <p>Le PEB est là pour inverser l'angle du flan de la résine.</p>  <p>Figure 3.3.A : Schéma du profil obtenu après dépôt et révélation de la couche de résine NLOF</p>	<p>Photolithographie : Définition des électrodes</p> <ul style="list-style-type: none"> - Dépôt de 350nm de LORA - Dépôt de 2,5μm de NLOF - Exposition aux UV - Révélation pendant 15s - PEB (Post Exposure Baking) à 115°C  <p>Figure 3.3.B : Schéma du profil obtenu après dépôt et révélation des couches de résine LORA et NLOF.</p>
<p>Gravure de 70nm de SiN_x (durée 35s) (Vitesse de gravure : 115nm/min)</p>  <p>Figure 3.4.A : Schéma du profil de l'échantillon obtenu après gravure du SiN_x.</p>	<p>Gravure de 70nm de SiN_x (durée 35s) (Vitesse de gravure : 115nm/min)</p>  <p>Figure 3.4.B : Schéma du profil de l'échantillon obtenu après gravure du SiN_x.</p>
<p>Fabrication des électrodes : Dépôt de 70nm d'aluminium par évaporation</p>	<p>Fabrication des électrodes : Dépôt de 70nm d'aluminium par sputtering</p>

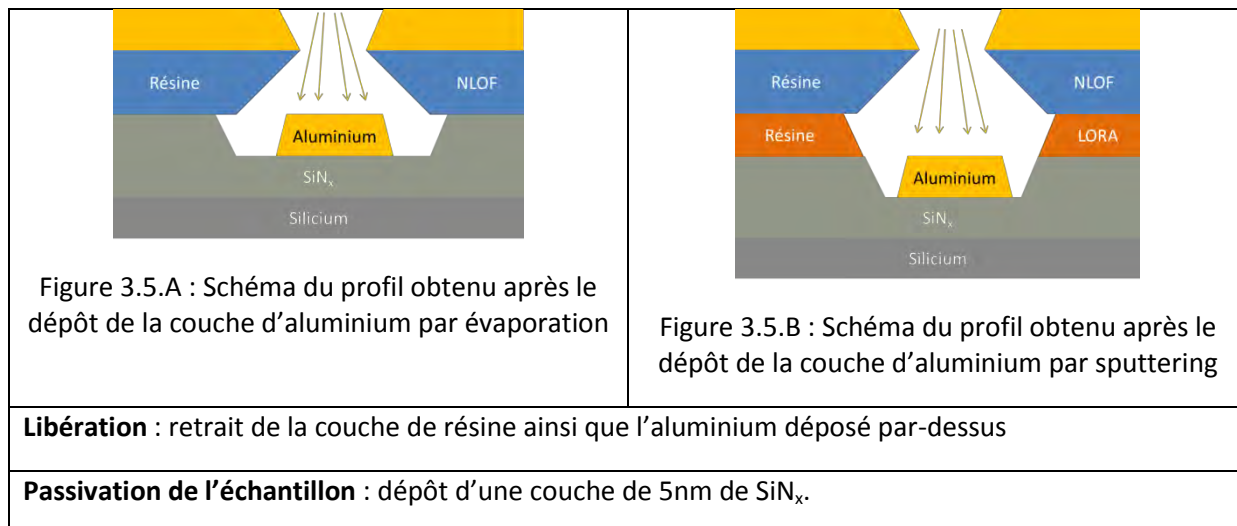


Tableau 3.2 : Description des étapes des deux procédés de fabrication étudiés.

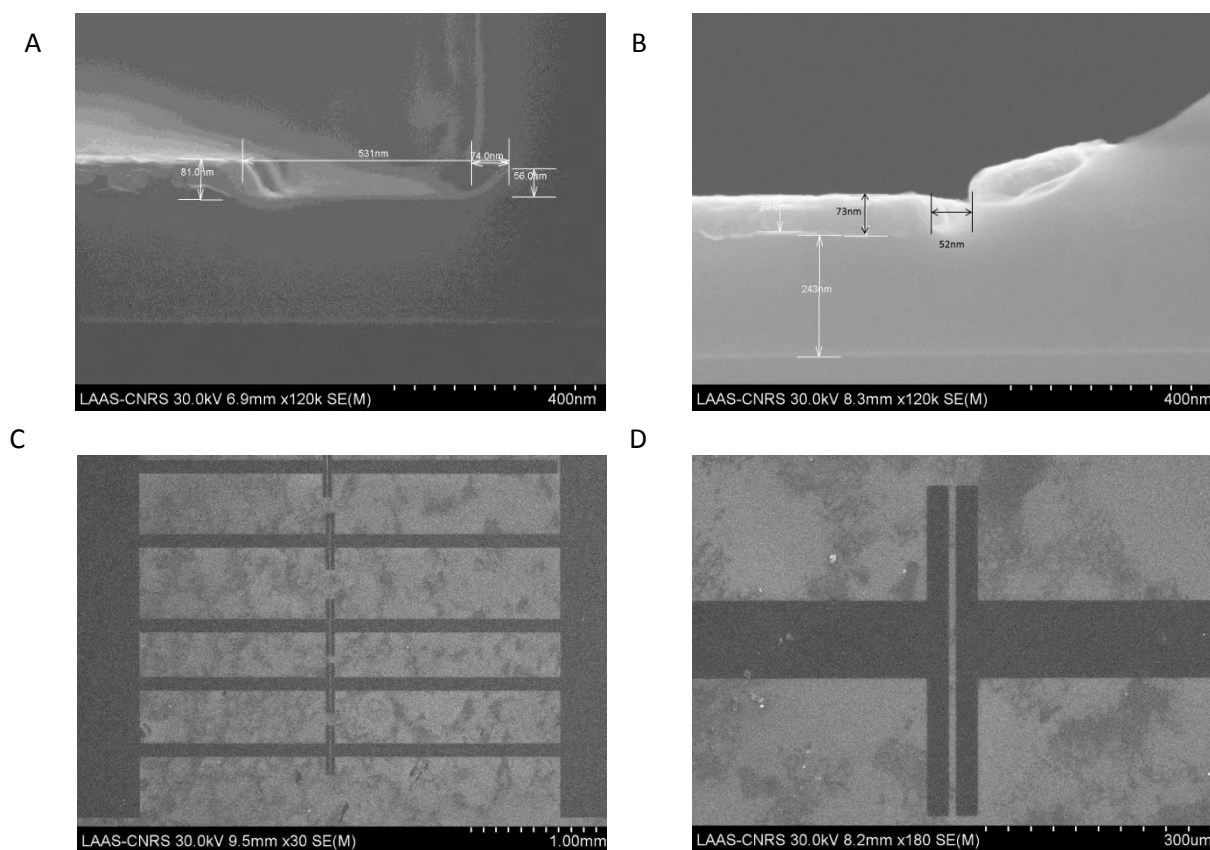


Figure 3.6 : Image MEB du gap d'air entre l'isolant et l'électrode métallique avant passivation pour (A) le procédé A et (B) le procédé B. En C et D le résultat obtenu.

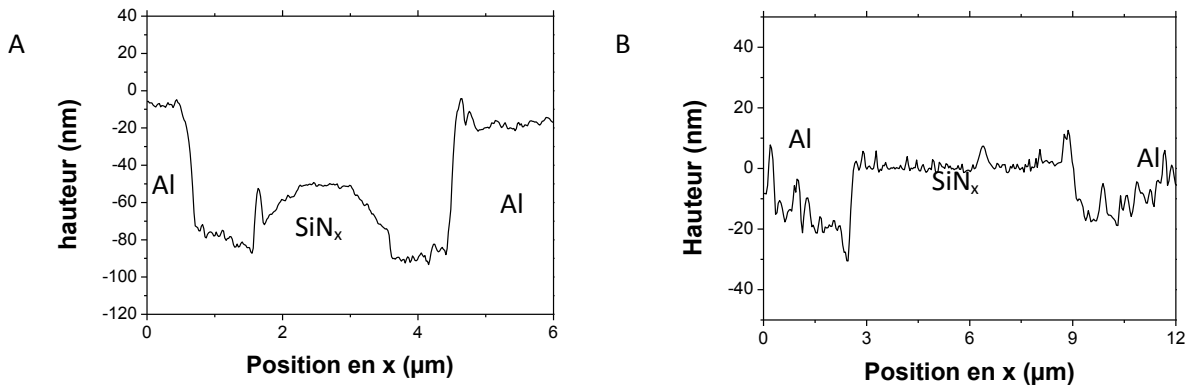


Figure 3.7. : Profil de topographie par AFM entre les électrodes latérales après passivation pour (A) le procédé A et (B) le procédé B

II-2) Protocole expérimental

Une fois les échantillons mis en forme, le protocole expérimental doit être déterminé. Il sera divisé en quatre grandes étapes : mise en place de l'expérience, conditionnement de l'échantillon, vérifications et mesures.

II-2.a) Mise en place de l'expérience

Le but de l'expérience est de polariser un échantillon par l'intermédiaire de deux électrodes parallèles (Fig. 3.1). Pour ce faire, il faut appliquer un potentiel différent sur chaque électrode à l'aide de deux générateurs externes. Ces derniers sont connectés par des fils aux pads d'aluminium. Le contact électrique et mécanique est assuré par un point de laque d'argent. Par soucis de simplicité nous avons choisi d'appliquer un potentiel symétrique ($\pm V$) sur les électrodes. Après séchage de la laque d'argent (15min), une vérification rapide de la qualité du contact électrique est réalisée. Pour cela, une tension de $\pm 2V$ est appliquée sur les électrodes, suivie d'une mesure KFM permettant de vérifier que l'on mesure bien les potentiels attendus au niveau des électrodes.

Ensuite l'enceinte du multimode 8[®] est fermée, et un faible flux d'azote est injecté en continu. L'atmosphère, stabilisée au bout de 15min, permet de limiter les effets de la couche d'eau résiduelle (cf. chapitre précédent). Une nouvelle vérification de la qualité du contact électrique et mécanique est alors réalisée comme précédemment.

II-2.b) Conditionnement de l'échantillon

Une fois l'échantillon sous atmosphère contrôlée, il faut éliminer le film d'eau en surface. Pour cela, on étuve l'échantillon à une température de 120°C pendant 3min et 45s. Le conditionnement est fait in-situ, une température supérieure à 100°C est nécessaire pour que le film d'eau s'évapore, on a choisi une température de 120°C sur le porte échantillon pour être certains que la température soit supérieure à 100°C en surface. Le retour à la température ambiante est assuré par un circuit de refroidissement hydraulique et nécessite environ 15 minutes. Il est important de noter que si le conditionnement n'a aucun effet sur la couche de SiN_x, il en a un sur la laque d'argent. En effet une partie du solvant s'évapore et se dépose alors sur les parois de l'enceinte, sur la pointe ainsi que sur les éléments d'optique. Le tableau 3.3 récapitule les différences observées pour une même pointe avant et après le conditionnement. On observe tout d'abord une diminution de 20% de l'intensité lumineuse reçue par la photodiode. Cela est probablement dû aux phénomènes de dispersion diffuse du laser sur le miroir et sur la pointe. Ce phénomène s'accompagne d'une diminution de sensibilité et de la raideur. Cette diminution de raideur n'est qu'apparente car la fréquence de résonance n'est que très légèrement modifiée. Elle est due à la modification de la sensibilité induite par la pollution.

	Avant conditionnement	Après conditionnement
Fréquence de résonance	62,9 KHz	62,7 KHz
Constante de raideur (K)	1,89 N/m	0,90 N/m
Sensibilité en amplitude	70 nm/V	110 nm/V
Amplitude totale de l'intensité lumineuse reçue par le détecteur	100%	79,4%

Tableau 3.3 : Influence du conditionnement sur les caractéristiques d'une pointe SCM-PIT.

II-2.c) Vérifications

Cette étape consiste à vérifier que le balayage s'opère de manière stable. Pour ce faire on vient sonder la zone entre les électrodes comme indiqué sur la Fig. 3.8. Le fait que les électrodes ne soient pas positionnées verticalement est lié à l'encombrement des fils dans la cellule. La distance inter-électrode apparente est donc corrigée d'un coefficient géométrique dépendant de l'angle entre les électrodes et l'axe horizontal. Une fois la pointe positionnée, un balayage sur une ligne fixe est

réalisé pour acquérir les signaux de topographie et de potentiel de surface de façon à repérer d'éventuels défauts et à enregistrer une référence.

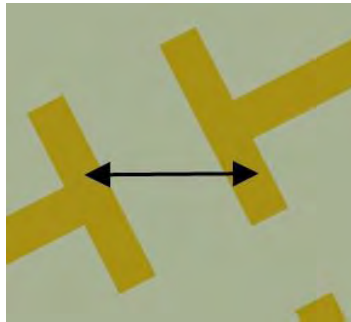


Figure 3.8 : Schéma représentant la ligne sur laquelle le scan est effectué pendant la polarisation

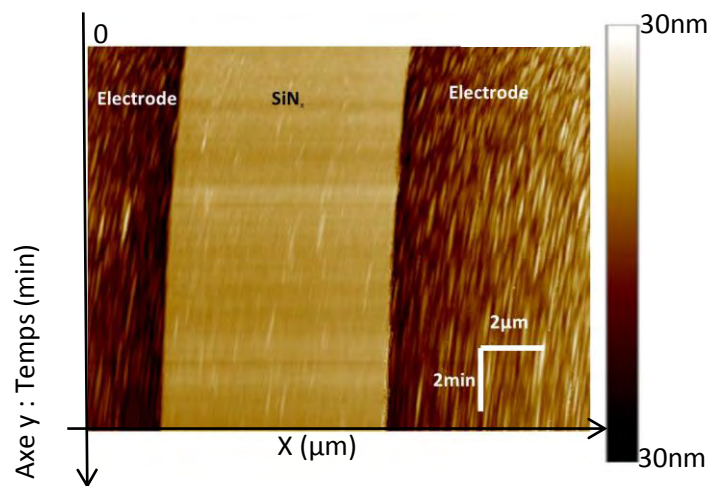


Figure 3.9 : Topographie AFM sur une même ligne entre deux électrodes en aluminium séparées par 5 μm de SiN_x .

La Fig. 3.9 représente un signal de topographie typique lorsqu'on ne balaye que sur l'axe rapide (axe x). L'axe lent (axe y), représente alors le temps (sachant qu'il faut 4s pour acquérir une ligne). On constate que pour les temps courts (premières minutes) une dérive importante est observée mais qui tend vers la stabilisation. Au bout d'une dizaine de minutes plus aucune dérive n'est observée. Une fois la stabilité du balayage jugée suffisante (moins de 10nm de déviation par minute) une différence de potentiel peut être appliquée aux électrodes et la mesure peut débuter.

II-2.d) Acquisition du profil de potentiel en polarisation et/ou dépolarisation

La polarisation se fait à l'aide de deux générateurs externes, la référence de potentiel (« masse ») étant appliquée en dessous de l'échantillon (Fig. 3.1.). La polarisation du film mince entre les électrodes se fera avec la tension négative appliquée sur la gauche (anode) et la tension positive sur

la droite (cathode). Lorsqu'une différence de potentiel ΔV de 10V est appliquée sur les électrodes cela signifie donc que 5V est appliqué à droite et -5V à gauche. Le système ne pouvant pas mesurer des potentiels supérieur à 10V, nous avons choisi par la suite de ne pas appliquer plus de $\pm 10V$ sur les électrodes de façon à pouvoir suivre le potentiel in-situ au cours du temps.

La Fig. 3.10.A représente les profils de potentiel KFM mesurés au cours du temps lorsqu'une différence de potentiel de 10V est appliquée entre les électrodes. On constate que la modification du profil de potentiel est importante mais dominée par la composante capacitive. Par conséquent, la contribution des charges injectées reste faible et est difficile à visualiser.

L'influence des charges injectées sur le potentiel mesuré étant peu marquée, il est nécessaire de soustraire la courbe de référence prise à un temps faible représentant uniquement la composante capacitive (entre 4 et 20s après le début de la polarisation, le temps que la mesure se stabilise) aux autres. De façon à tenir compte des dérives latérales, il faut pouvoir définir précisément la position de l'interface de façon à pouvoir recalibrer spatialement les deux profils. La définition précise de l'interface entre l'électrode et le matériau sondé est difficile à déterminer car la force électrostatique importante au niveau des électrodes altère l'acquisition du signal de topographie [2]. Les profils obtenus suite à la soustraction du profil de référence sur les profils de la Fig. 3.10.A sont représentés sur la Fig. 3.10.B.

On constate la présence d'un pic positif à proximité (Fig. 3.10.B) de l'électrode négative (anode) aux temps courts, et de l'électrode positive (cathode) ce qui est difficilement justifiable et interprétable. En effet, une hypothèse prise est la neutralité électrique du système à l'équilibre. De plus, le maximum observé du pic positif à l'anode diminue avec le temps. Cet effet peut être dû soit à un signal de référence déjà influencé par les charges injectées soit à un problème lors du recalage latéral des deux profils avant la soustraction. Pour éviter ces problèmes et les erreurs induites par la soustraction, une autre procédure d'acquisition a été mise au point. Elle consiste à éteindre le générateur quelques secondes le temps d'acquérir le profil de potentiel sans être perturbé par les potentiels appliqués sur les électrodes. Les profils ainsi obtenus sont représentés sur la Fig. 3.10.C. On observe comme attendu un pic négatif du côté de l'anode et un pic positif du côté de la cathode. Par la suite, toutes les mesures seront réalisées en suivant ce protocole.

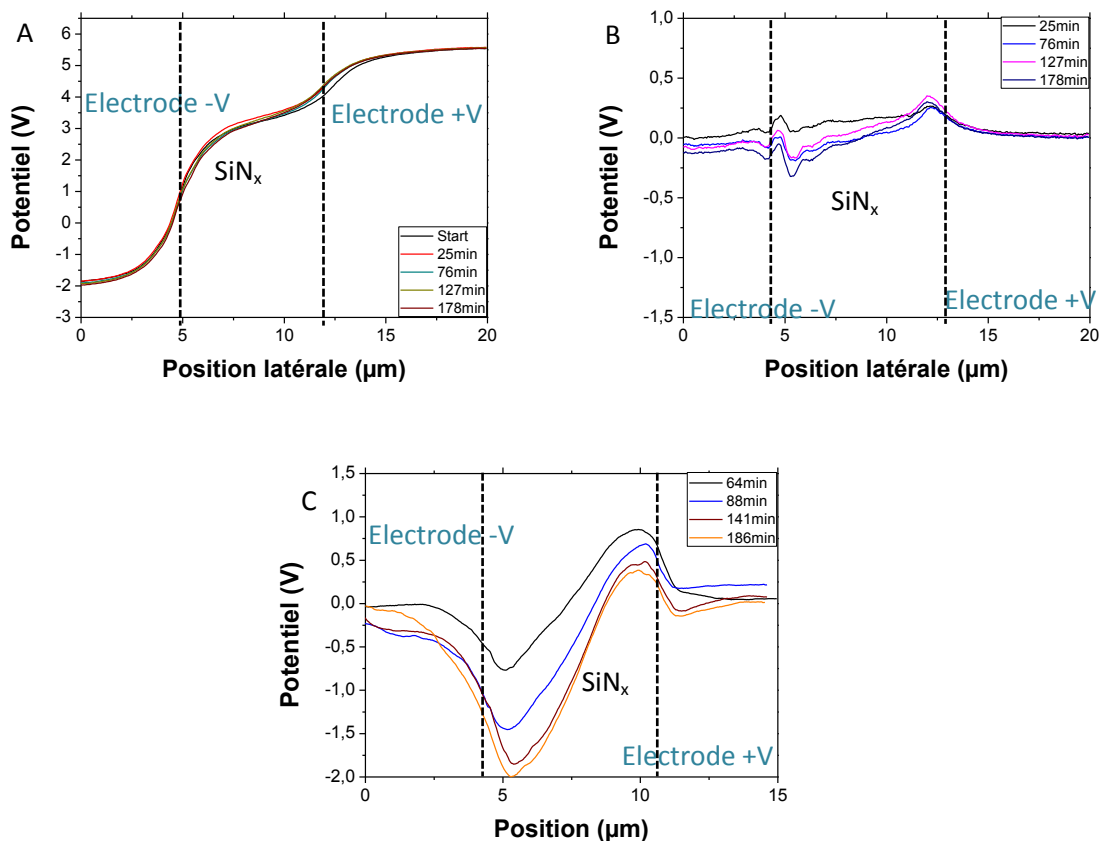


Figure 3.10 : Coupe de potentiel réalisée par AFM en mode AM-KFM pour une polarisation de $\pm 5V$ en (A) les profils bruts et (B) après soustraction de la référence. (C) coupes de potentiel pour une polarisation de $\pm 7V$, mesuré avec les générateurs éteints. La distance inter-électrode est de $5\mu m$ dans chaque cas.

Le potentiel vu par la pointe est une moyenne de la différence du travail de sortie entre la sonde (bras de levier et la pointe) et la surface en fonction de la distance sonde-surface. Ainsi, les variations de potentiel au cours du temps sur la ligne de référence peuvent être interprétées comme une variation du potentiel en surface global (phénomène des capacités parasites [3]), c'est-à-dire que les variations du potentiel local ont un impact sur le potentiel mesuré sur la surface. Par exemple lors de la dissipation de charges il n'est pas rare d'observer une diminution du potentiel de la ligne de référence (autour du pic de potentiel) au cours du temps.

Ainsi, nous avons mis en place une procédure de traitement en deux temps afin de minimiser les pertes d'informations :

- Position latérale des courbes : les profils sont repositionnés par rapport à la position de l'interface relevée sur le profil de topographie.
- Potentiel moyen du profil de potentiel :

- Si possible : on émet l'hypothèse d'un potentiel nul entre les deux électrodes, puis on soustrait la valeur du potentiel obtenu aux profils de potentiel mesurés. Cette hypothèse est validée pour le cas d'électrodes éloignées.
- Si aucun potentiel nul n'est visible : on émet l'hypothèse que la moyenne du potentiel mesuré au-dessus des électrodes (cathode et anode) est de zéro : c'est-à-dire que les charges injectées négatives et positives dans la couche de passivation au-dessus des électrodes sont en nombre équivalent. Ainsi, on calcule le potentiel moyen au-dessus des électrodes, et on soustrait la valeur obtenue au profil de potentiel mesuré.

Les profils présentés par la suite seront traités suivant cette procédure. De plus les hypothèses faites sont des premières approximations et ne permettent pas dans le cas où aucun retour à zéro n'est observable de raisonner quantitativement.

II-3) Limitations du procédé expérimental et améliorations envisageables

Plusieurs améliorations du procédé expérimental sont envisageables, qui faute de temps n'ont pu être réalisées au cours de cette thèse. Deux voies peuvent être envisagées :

- Le design des échantillons de façon à prendre en compte l'encombrement vertical des fils. En effet, l'espace séparant le porte-pointe du Multimode 8[®] et la surface de l'échantillon est très limité (moins d'un millimètre). Il faut donc déporter les contacts électriques vers l'avant comme montré sur la Fig. 3.11, ce qui permettra de balayer perpendiculairement aux électrodes latérales et non plus avec un angle compris entre 30° et 60°.

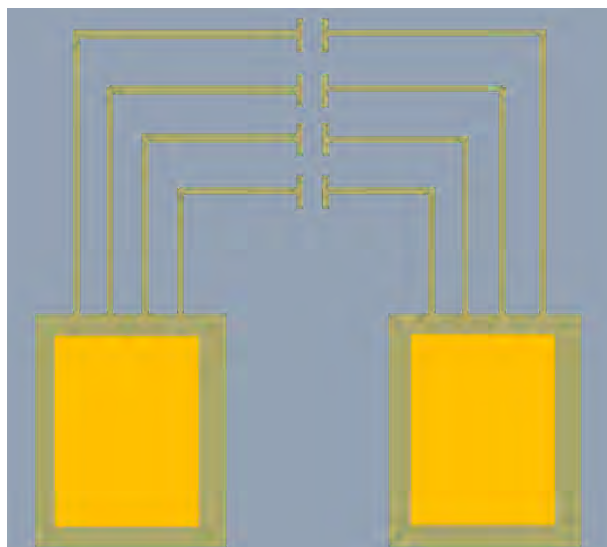


Figure 3.11 : Schéma de positionnement des contacts pour permettre un balayage horizontal.

- La suppression de l'utilisation de la laque d'argent et la création d'un porte échantillon adapté, afin d'obtenir un contact électrique et mécanique sur les pads métalliques sans réaliser de dépôt sur l'échantillon (soudure, laque d'argent, scotch carbone...). Une solution proposée est l'utilisation de languettes métalliques et un contact avec le fil déporté grâce à un circuit imprimé (Fig. 3.12). Lors de la création du porte échantillon il faudra aménager, sous l'échantillon, une plaque métallique isolée des contacts de polarisation. Cette partie conductrice (en orange sur la Fig. 3.12) permettra de ramener le plan de masse sous l'échantillon mais aussi à étuver l'échantillon in-situ (amélioration de la conductivité thermique du PCB). La tenue mécanique des fils ne serait plus un problème et n'introduirait plus de bruit lors de la mesure. De plus, ne plus utiliser de laque d'argent permettrait de mieux contrôler l'environnement et d'éviter les dérives dues à la pollution (tableau 3).

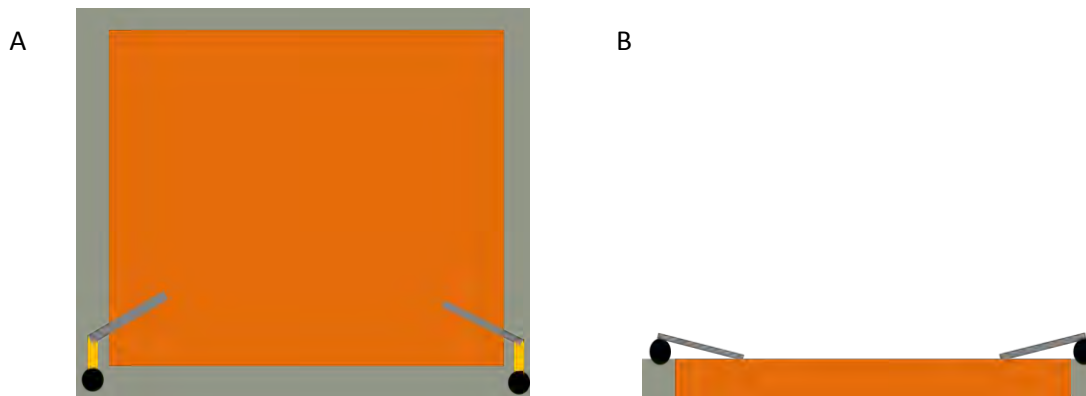


Figure 3.12 : Schéma d'un design de porte échantillon, en (A) vu de dessus et en (B) vu en coupe.

III) Modélisation du champ électrique

De façon à mieux comprendre les phénomènes en jeux lors de l'injection de charges ou pendant leur transport, une modélisation du champ électrique au sein de nos structures a été proposée. Du fait de leurs faibles épaisseurs par rapport à la distance les séparant (fort rapport de forme), les électrodes vont jouer un rôle particulier (effet de pointe). Plusieurs effets vont être étudiés : le fort rapport de forme, le renforcement aux interfaces et l'effet d'un éventuel gap d'air.

Pour cette étude nous avons choisis d'utiliser le logiciel commercial COMSOL Multiphysics®, basé sur la méthode des éléments finis.

III-1) Description du modèle

Pour prendre en compte la réalité de la géométrie de nos échantillons, une épaisseur de 50nm a été choisie pour le SiN_x et l'électrode d'aluminium (Fig. 3.13). Ces couches sont placées au-dessus d'une couche de 50nm de silice thermique (SiO_2^{th}), et d'un substrat de silicium de $250\mu\text{m}$ d'épaisseur. Au-

dessus de cet échantillon, une boîte d'air de 500nm d'épaisseur a été utilisée afin d'obtenir des conditions aux limites supérieures qui ne perturbent pas le calcul. En effet, une distance minimum est nécessaire pour que les bornes du domaine n'influencent pas le système. Ici on a choisi une distance correspondant à 10 fois l'épaisseur de la couche d'intérêt.

Le maillage raffiné, pour tenir compte des disparités de la géométrie, permet d'avoir par exemple 8 mailles dans l'épaisseur de la couche de SiN_x et ainsi d'obtenir une bonne précision du résultat simulé dans la zone d'intérêt. De plus, la géométrie choisie introduit des angles à 90° (Fig. 3.13). Les angles droit sont présents aux interfaces et augmentent de 25% la valeur du champ (entouré en orange sur la Fig. 3.13) par rapport au champ électrique situé au niveau du milieu de l'épaisseur du film mince de SiN_x. En faisant un chanfrein (1/4 de l'épaisseur de la couche) à ces angles on réduit l'augmentation du champ électrique de moitié et on se rapproche des conditions réelles. Pour la simulation, les potentiels V₁ et V₂ sont appliqués sur les électrodes, la masse sous l'échantillon, et zéro charge sur les autres bords de la boîte. L'équation de poisson en l'absence de charge est alors résolue pour déterminer le champ électrique \vec{E} :

$$\nabla \cdot (\epsilon \vec{E}) = 0 \quad (1)$$

Avec ϵ la permittivité du milieu. Le potentiel V est ensuite déduit grâce à :

$$\vec{E} = -\vec{\nabla}V \quad (2)$$

Avec ces conditions aux limites et avec un maillage fin, la Fig. 3.14 est obtenue en appliquant +100V pour V₁ et -100 pour V₂. Le calcul du champ électrique et du potentiel se font dans toutes les parties exceptées les électrodes en aluminium.

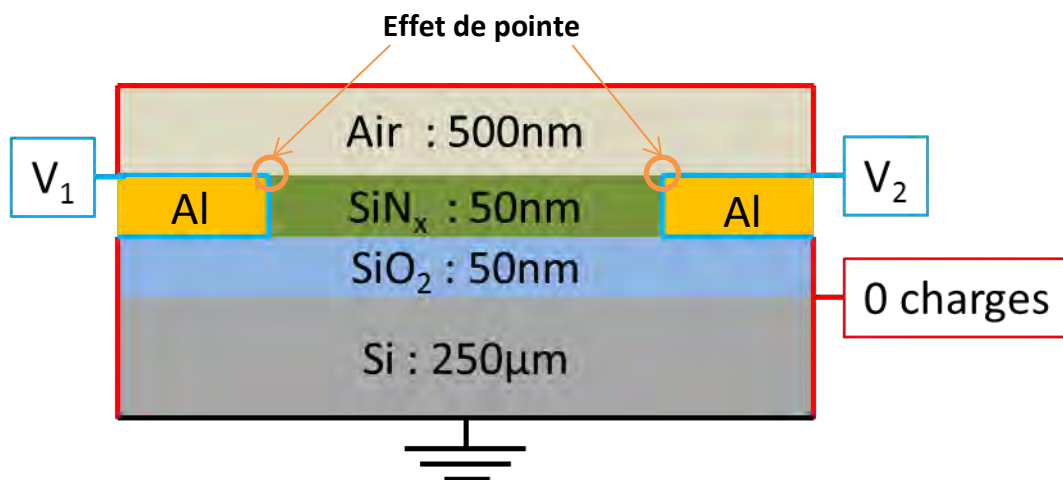


Figure 3.13 : Schéma conceptuel et conditions aux limites

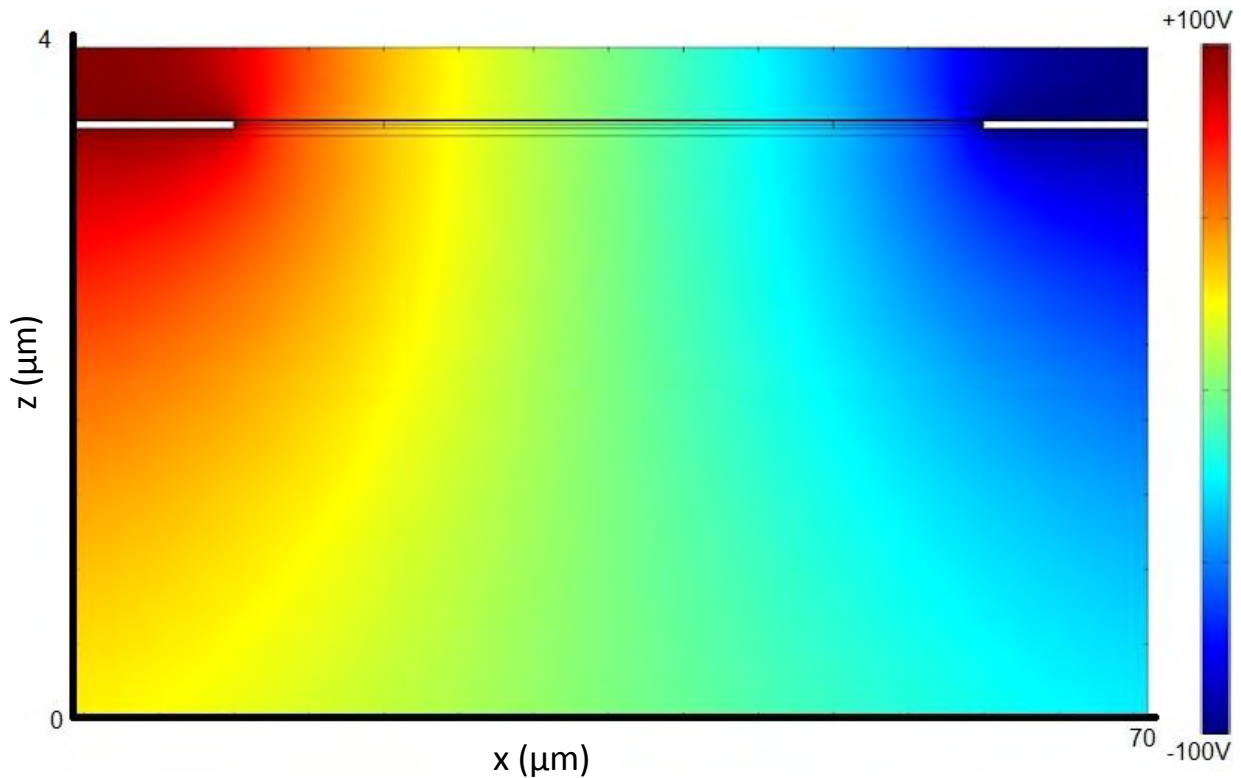


Figure 3.14 : Cartographie de potentiel modélisée sous COMSOL[®].

Un paramètre essentiel pour le calcul du champ électrique est la permittivité diélectrique relative ϵ_r des différents matériaux. Les valeurs choisies pour cette étude sont résumées dans le tableau 3.4. La valeur de la permittivité diélectrique relative du SiN_x provient du travail de K. Makasheva et al [4] sur les multicouches de SiO_xN_y . Les autres valeurs sont les valeurs données par la bibliothèque de COMSOL[®].

Matériau	ϵ_r
Air	1
$\text{SiN}_x (\text{Si}_3\text{N}_4)$	7,5
SiO_2	4,2
Si	12,1

Tableau 3.4 : Permittivité diélectrique relative utilisée pour la modélisation

III-2) Effet du fort rapport de forme

Dans le cas d'un condensateur plan infini, le potentiel entre les deux électrodes évolue linéairement avec la distance, alors que le champ électrique reste constant selon (3) et (4) :

$$V(x) = \frac{\Delta V * x}{d} \quad (3)$$

$$E(x) = -\frac{\partial V(x)}{\partial x} = \frac{\Delta V}{d} \quad (4)$$

Avec d la distance inter-électrode, ΔV la différence de potentiel appliquée aux électrodes et x la position entre les électrodes avec pour origine la position centrale entre les électrodes.

Lors des mesures KPFM, la ligne de scan est située vers le milieu des électrodes vues de dessus (Fig. 3.8). Par conséquent dans le plan des électrodes, la condition du condensateur plan infini reste valable (bords latéraux des électrodes suffisamment éloignés de la ligne de scan). En revanche du fait de la faible épaisseur des électrodes (70nm) et du scan réalisé à la surface, les effets de bord sont importants et la condition pour le condensateur infini dans la direction perpendiculaire au plan n'est plus validée.

La Fig. 3.15 représente les champs électriques et les potentiels associés calculés pour différentes configurations le long d'une ligne de scan. On constate que, quelque-soit la condition le champ électrique n'est pas constant entre les électrodes, ce qui confirme que la condition du condensateur plan infini n'est plus respectée dans la direction perpendiculaire au plan. On distingue deux zones : une proche de l'interface Al/SiN_x (<1μm), où un renforcement de champ important se produit ($P_{\text{Al/SiN}}$) ; et une dans la partie centrale du SiN_x, où le champ est quasi-constant. La forme du profil de potentiel se rapproche de celle mesurée expérimentalement lors de l'application d'une différence de potentiel entre les électrodes (Fig. 3.10.A). Pour le potentiel, un point d'inflexion se forme à 0,5μm de l'interface. Alors qu'entre 4 et 6μm le potentiel retrouve une quasi-linéarité. Un renforcement ponctuel du champ électrique est donc noté à l'interface, introduit par la faible épaisseur (70nm) de l'électrode d'aluminium.

Les principales caractéristiques des configurations présentées sur les Fig. 3.15 sont résumées dans le tableau 3.5. Dans le cas d'un condensateur plan infini le champ électrique entre deux électrodes serait de $1,18 \cdot 10^6$ V/m pour les configurations proposées sur les Fig. 3.15.A, B et C. Toutefois, dans les conditions réelles, le champ électrique n'est plus constant, et le potentiel s'écarte de la linéarité. Le renforcement du champ électrique ($P_{\text{Al/SiN}}$) augmente avec le potentiel appliqué et diminue avec l'augmentation de la distance séparant les deux électrodes. Toutefois, la dépendance au potentiel est plus importante que la dépendance à la distance : en multipliant la distance et le potentiel appliqué par 4, le renforcement de champ électrique augmente d'un facteur 2 (comparaison des cas B et D, tableau 3.5).

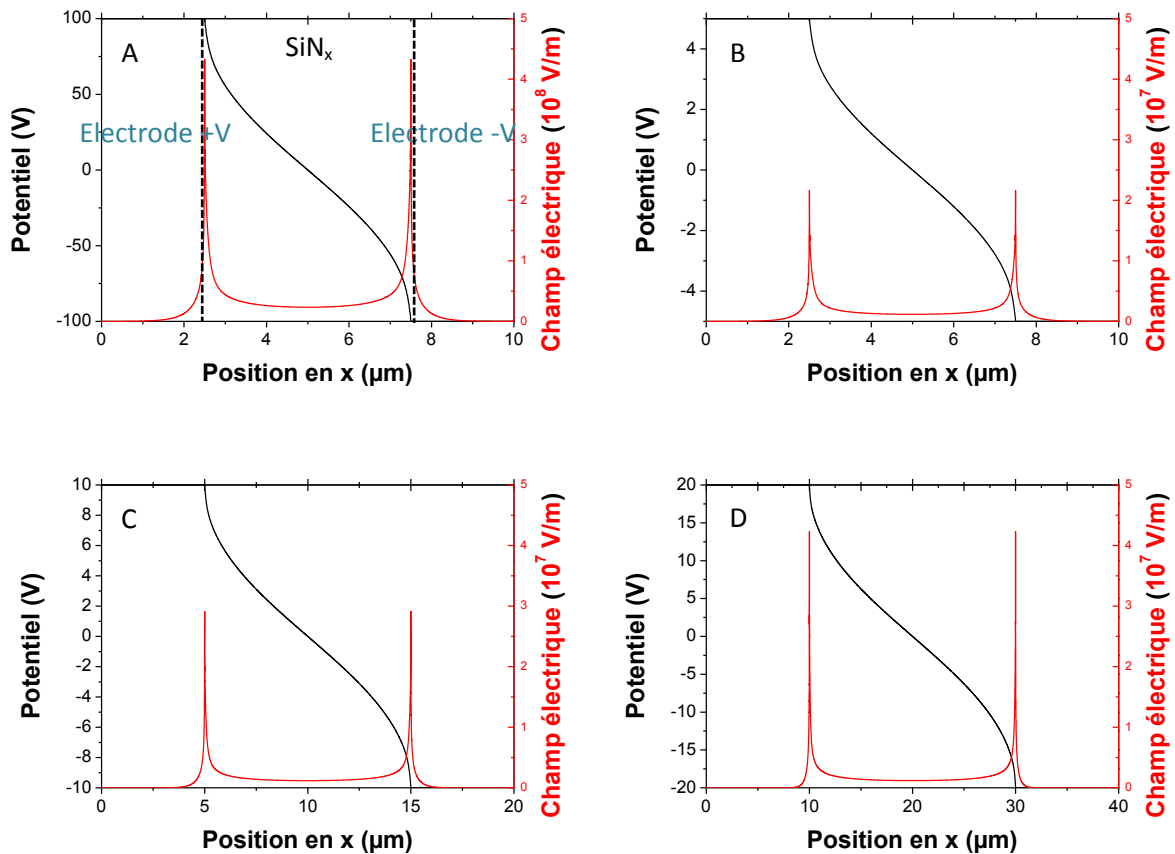


Figure 3.15 : Profil de potentiel et de champ électrique simulés pour les conditions suivantes : (A) distance inter-électrode de 5µm avec $\Delta V=200V$; (B) distance inter-électrode de 5µm avec $\Delta V=10V$; (C) distance inter-électrode de 10µm avec $\Delta V=20V$ et (D) distance inter-électrode de 20µm avec $\Delta V=40V$.

Conditions	Champ électrique au centre (V/m)	Champ électrique aux interfaces (V/m)	Champ électrique pour un condensateur plan infini (V/m)
A : D=5µm et $\Delta V=200V$	$2,33 \cdot 10^7$	$4,32 \cdot 10^8$	$4 \cdot 10^7$
B : D=5µm et $\Delta V=10V$	$1,17 \cdot 10^6$	$2,16 \cdot 10^7$	$2 \cdot 10^6$
C : D=10µm et $\Delta V=20V$	$1,18 \cdot 10^6$	$2,95 \cdot 10^7$	$2 \cdot 10^6$
D : D=20µm et $\Delta V=40V$	$1,18 \cdot 10^6$	$4,23 \cdot 10^7$	$2 \cdot 10^6$

Tableau 3.5 : Champ électrique simulé pour différentes conditions.

Les valeurs de champ électrique sont relativement faibles (de l'ordre de 10^6) entre les électrodes. Par contre, il est d'un ordre de grandeur plus important aux interfaces métal/isolant. Par conséquent, l'hypothèse d'une injection favorisée aux interfaces est pressentie.

Pour une distance inter-électrode identique, augmenter la différence de potentiel ΔV conduit à augmenter d'autant le champ électrique. Entre les Fig. 3.15.A et B la différence de potentiel a été multipliée par 20 et le champ électrique est lui aussi multiplié par 20, et ce même aux interfaces. Pour un condensateur plan infini, les conditions B, C et D prédisent un champ électrique généré identique, comme indiqué dans le tableau 5. En configuration réelle on constate que le champ au centre est identique dans les trois configurations. En revanche, le renforcement de champ aux interfaces augmente avec le ΔV et la distance séparant les électrodes.

Ces observations correspondent à ce qui est observé par T. Okamoto [5]. L'auteur a étudié des structures présentant des interfaces planes avec un matériau séparant les électrodes. En appliquant une tension sur les électrodes, des défauts dans l'uniformité de l'injection aux interfaces sont observés. De plus, l'auteur met en évidence des chutes et des renforcements du champ électrique aux interfaces. Ces variations sont attribuées soit à des défauts géométriques (pointe, creux), ou à des défauts structurels (composition chimique).

III-3) L'influence de la présence d'un gap d'air

Dans la première partie (Ch3.I) dédiée au procédé, nous avons indiqué que la présence de gaps d'air entre le diélectrique et les électrodes devait être évitée. Ici, nous allons montrer l'impact de ces gaps d'air sur le champ électrique calculé, afin de mieux appréhender leurs effets.

Plusieurs dimensions de gap d'air ont été étudiées : 100nm, 250nm, 500nm et 1 μ m correspondant aux Fig. 3.16.A, B, C et D respectivement. Les champs électriques calculés au centre et à l'interface pour ces configurations sont présentés dans le tableau 3.6. Si on considère que le champ électrique ne dépend que de la distance aux électrodes et du potentiel appliqué, alors le gap d'air ne devrait pas avoir d'influence sur le champ électrique. En effet, le champ électrique calculé au centre entre les électrodes est de $1,15 \cdot 10^6$ V/m et ne varie pas quel que soit la taille du gap. De plus, il correspond au champ trouvé sans gap. Le gap d'air n'a donc que peu d'influence sur le champ électrique au milieu du film mince.

Le gap d'air introduit une double interface : entre l'électrode et l'air ($P_{a/AI}$) puis entre l'air et le diélectrique ($P_{a/SiN}$). A chaque interface ($P_{a/AI}$ et $P_{a/SiN}$), le champ électrique présente un renforcement, soit deux renforcements au total. Alors que, le profil de potentiel reste similaire à celui obtenu sans gap d'air (Fig. 3.15). L'intensité du renforcement à l'interface $P_{a/Au}$ reste constante pour les différentes dimensions de gaps testées, alors que l'intensité du pic à l'interface entre $P_{a/SiN}$ diminue quand la taille du gap augmente. On retrouve un plateau quasi-constant au centre du SiN_x , qui coïncide avec la partie quasi-linéaire de la courbe de potentiel.

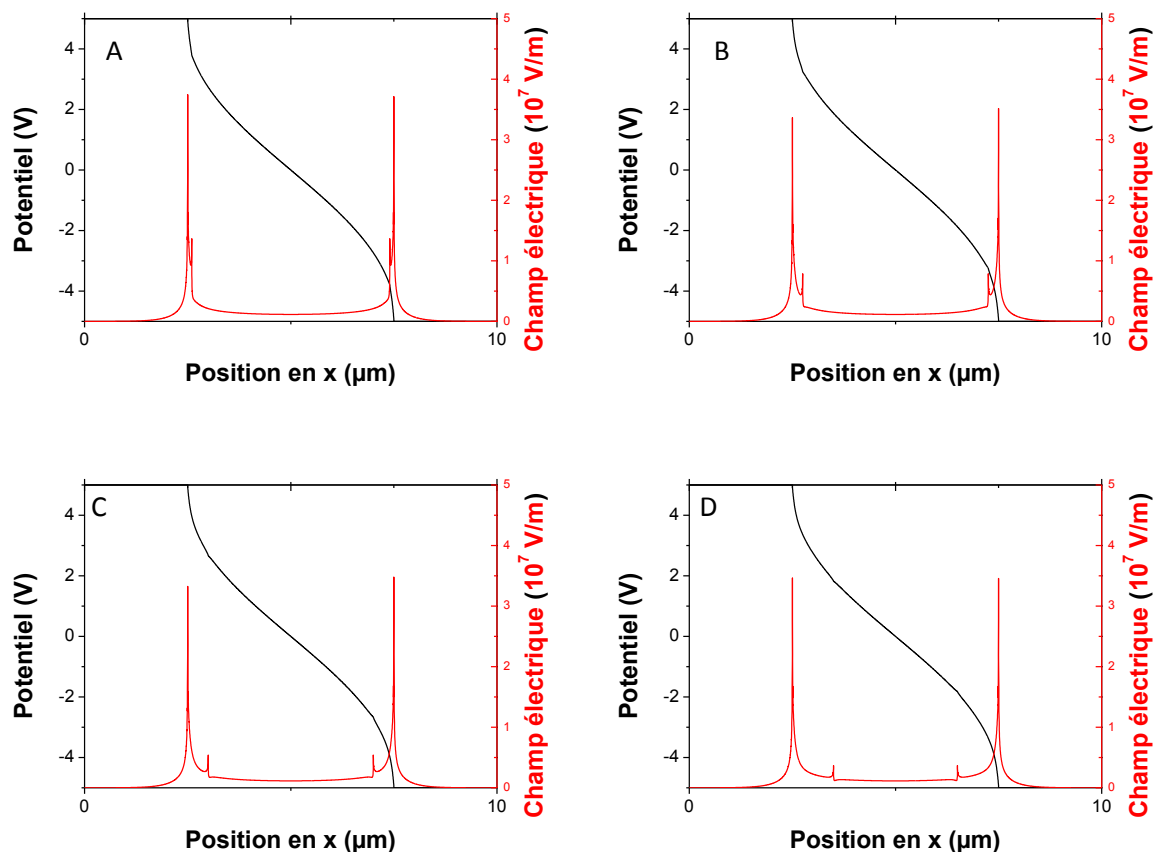


Figure 3.16 : Profils de potentiel et de champ électrique simulés pour une distance inter-électrode de 5µm avec un $\Delta V=10V$ pour différents gaps d'air: (A) 100nm ; (B)250nm ; (C) 500nm et (D) 1µm.

Taille du gap (nm)	Champ électrique au centre (V/m)	Champ électrique à l'interface Air/ SiN _x (V/m)	Champ électrique à l'interface électrode/Air (V/m)
100	$1,15 \cdot 10^6$	$1,37 \cdot 10^7$	$3,74 \cdot 10^7$
250	$1,15 \cdot 10^6$	$7,86 \cdot 10^6$	$3,36 \cdot 10^7$
500	$1,15 \cdot 10^6$	$5,40 \cdot 10^6$	$3,32 \cdot 10^7$
1000	$1,14 \cdot 10^6$	$3,65 \cdot 10^6$	$3,46 \cdot 10^7$

Tableau 3.6 : Champ électriques aux interfaces et au centre dans la configuration avec un gap d'air : $D=5\mu m$ et $\Delta V=10V$.

En comparant la configuration sans gap d'air avec la configuration en présence d'un gap d'air, on remarque que le pic $P_{a/AI}$ est supérieur de moitié au pic $P_{AI/SiN}$ (cas B du tableau 3.5). En outre, les variations du champ électrique à ces interfaces ne semblent être que peu influencées par la taille du

gap : 10% de variation pour un gap 10 fois plus grand. Un renforcement du champ électrique dans le gap d'air est trouvé à proximité de l'interface avec l'électrode.

Au contraire, le pic du champ électrique à l'interface avec le SiN_x $P_{a/\text{SiN}}$ est lui plus faible que le pic $P_{\text{Al/SiN}}$. De plus, plus la taille du gap augmente, plus le champ électrique à l'interface est faible. Un gap de 100nm introduit une chute du champ électrique à l'interface de 36% par rapport à la configuration sans gap ($P_{\text{Al/SiN}}$), et un gap de $1\mu\text{m}$ présente une perte de 83%. Le gap aura donc pour conséquence de limiter d'autant mieux l'injection aux électrodes que le gap est large.

IV) Etude de la phase de polarisation

Par la simulation, nous avons repéré un renforcement de champ électrique aux interfaces, on suppose que celui-ci doit favoriser l'injection de charges électriques. Ainsi, dans ce cadre nous allons rechercher à mettre en évidence les possibilités et les limitations liées à la technique : les avantages et inconvénients du traitement des données ; les effets de la distance inter-électrode ; l'influence de la tension de polarisation, du champ électrique ; l'estimation de la mobilité des charges.

Les observations ont été réalisées sur des distances inter-électrodes inférieures à $50\mu\text{m}$, pour éviter les artéfacts de courbure dus aux grandes dimensions de balayage. Les artéfacts de courbure sont dues à la déviation du piézoélectrique lors des scans de grandes dimensions ($80\mu\text{m}$ et plus). De plus, les mesures ont été réalisées sur des structures à électrodes latérales fabriquées suivant le procédé B (paragraphe II.1), c'est à dire pour lesquelles il n'y a pas de gap d'air aux interfaces métal/diélectrique.

Un premier scan réalisé avant d'appliquer la polarisation permet de vérifier l'absence de charges électriques rémanentes. Le profil de potentiel mesuré avant la polarisation est présenté sur la Fig. 3.17. Le plateau central correspond au SiN_x et présente une différence de potentiel de 70mV avec le potentiel mesuré aux extrémités (au-dessus des électrodes). L'absence de pics ou de creux dans le profil de potentiel nous confirme l'absence de charges dans le SiN_x .

Une fois l'absence de charges confirmée, les diverses expériences de polarisation peuvent être réalisées. Nous considérons, en première approximation, que les variations de potentiel par rapport au profil de référence (Fig. 3.17) sont dues à des charges électriques (électrons ou trous) dans le matériau sondé. Ainsi, nous pourrons relier les creux et les pics de potentiel à des charges injectées dans la couche de SiN_x .

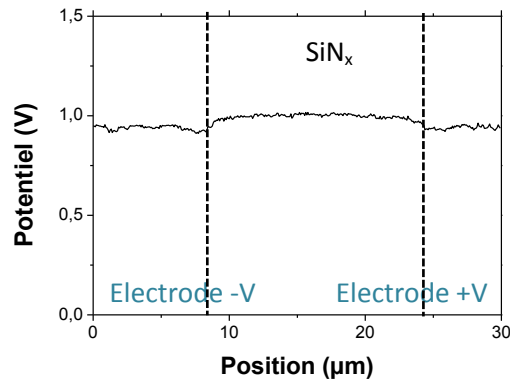


Figure 3.17 : Profil de potentiel de surface initial obtenu pour une distance inter-électrode de 20µm.

Dans un premier temps, nous nous intéresserons aux effets de renforcement de champ électrique pour des distances inter-électrode constantes. Pour ensuite comparer, nous étudierons des conditions pour lesquelles le champ électrique central reste constant pour un condensateur plan infini de 5, 10 et 20µm de distance inter-électrode. Nous finirons par une discussion des effets obtenus en appliquant le même potentiel pour les différentes distances inter-électrode.

IV-1) Limitation de la technique

IV-1.a) Artéfacts observés

Les données brutes obtenues (Fig. 3.18.A) présentent des informations intéressantes pour de futures optimisations. Comme le montre la Fig. 3.18 les profils de potentiel KPFM mesurés peuvent parfois présenter des défauts qui les rendent inexploitable : potentiel non constant au-dessus des électrodes, ou décrochages de la pointe.

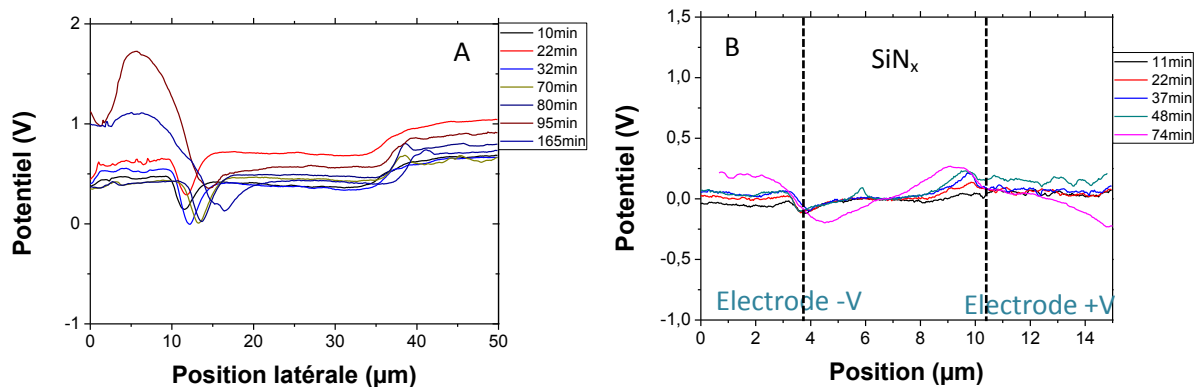


Figure 3.18 : Profils de potentiels obtenues en volt-off pour (A) $D=20\mu\text{m}$ et $\Delta V=10\text{V}$ et pour (B) $D=5\mu\text{m}$ et $\Delta V=5\text{V}$.

Le décrochage observé sur la Fig. 3.18.B au-delà de 74min rend le signal mesuré inutilisable. Cette perte de signal semble provenir de microparticules qui s'agglutinent à la surface et occultent le potentiel aux interfaces. Les microparticules sont attirées électrostatiquement par le potentiel appliqué sur les électrodes, ce sont principalement des poussières de laque d'argent qui n'ont pu être nettoyées de l'échantillon. La solution est de se déplacer sur la surface de l'échantillon et de recommencer à scanner sur cette nouvelle position.

Au-dessus des électrodes, les variations du potentiel mesurées sont attribuées aux charges piégées dans la couche de passivation (5nm). Ces charges n'ont pas forcément le temps de s'évacuer lors de la mesure (générateurs éteints seulement pour quelques secondes) : le potentiel apparaît donc fluctuant. En effet, ce potentiel dépend du temps laissé entre la coupure de la tension et la mesure. Le manque de stabilité empêche d'utiliser cette partie du signal soit comme référence soit comme apport d'information. Un excès ou un défaut de potentiel sur l'électrode peut avoir comme effet de changer la valeur de potentiel mesuré au niveau des pics. Une solution pratique serait d'effectuer la mesure après un laps de temps identique après la coupure des sources de tension. Ici, les mesures ont été prises lorsque le signal de potentiel a atteint la stabilité après l'arrêt des générateurs (entre 6s et 1min). Il faut donc trouver un compromis entre une mesure relativement rapide pour ne pas perturber l'état du système et une mesure lente pour obtenir le meilleur signal possible.

De plus, l'arrêt des générateurs provoque la plupart du temps un saut dans les mesures de potentiel, après lequel il n'est pas rare de ne pas retrouver la même valeur de référence. Pour finir, d'autres mécanismes pourraient avoir des effets sur le potentiel mesuré : polarisation et dépolarisation d'un plan sous-jacent, effet de la contamination à la laque d'argent, ou encore instabilité du signal de potentiel dû à des mesures longues en environnement polarisant.

IV-1.b) Résolution spatial : effet de la distance inter-électrode

Une fois que nous avons identifié les artéfacts, il apparaît important, avant toute étude d'injection de charges, d'identifier les limites de la mesure. Notre but est d'identifier la distance minimum entre les électrodes permettant la mesure et l'exploitation correcte des résultats. Pour cela nous avons sélectionné une tension de polarisation fixe ($\Delta V=10V$) que nous avons appliquée pour les différentes distances inter-électrodes (5 μm , 10 μm et 20 μm). Les résultats obtenus sont montrés sur la Fig. 3.19. Ces profils sont obtenus lors de la polarisation, avec les générateurs éteints lors de la mesure.

Pour l'échantillon avec une distance inter-électrode de 5 μm (Fig. 3.19.A), nous n'observons pas de retour à un potentiel nul dans l'espace inter-électrode. En effet, les pics de potentiel observés à l'anode et à la cathode sont étalés, le changement de signe du potentiel (de négatif à positif) étant

observé en un point situé à environ $2\mu\text{m}$ de l'anode. Ce résultat est donc un bon exemple des limitations actuelles de la mesure, car il est impossible de recaler nos courbes en potentiel, ce qui empêche une détermination fiable des paramètres des profils de potentiel aux électrodes (maximum, position et largeur à mi-hauteur) qui pourraient nous renseigner sur l'état de charge. Dans ces conditions expérimentales, nous ne pouvons donc pas observer correctement le comportement lors de la polarisation pour des distances inter-électrodes inférieures à $5\mu\text{m}$.

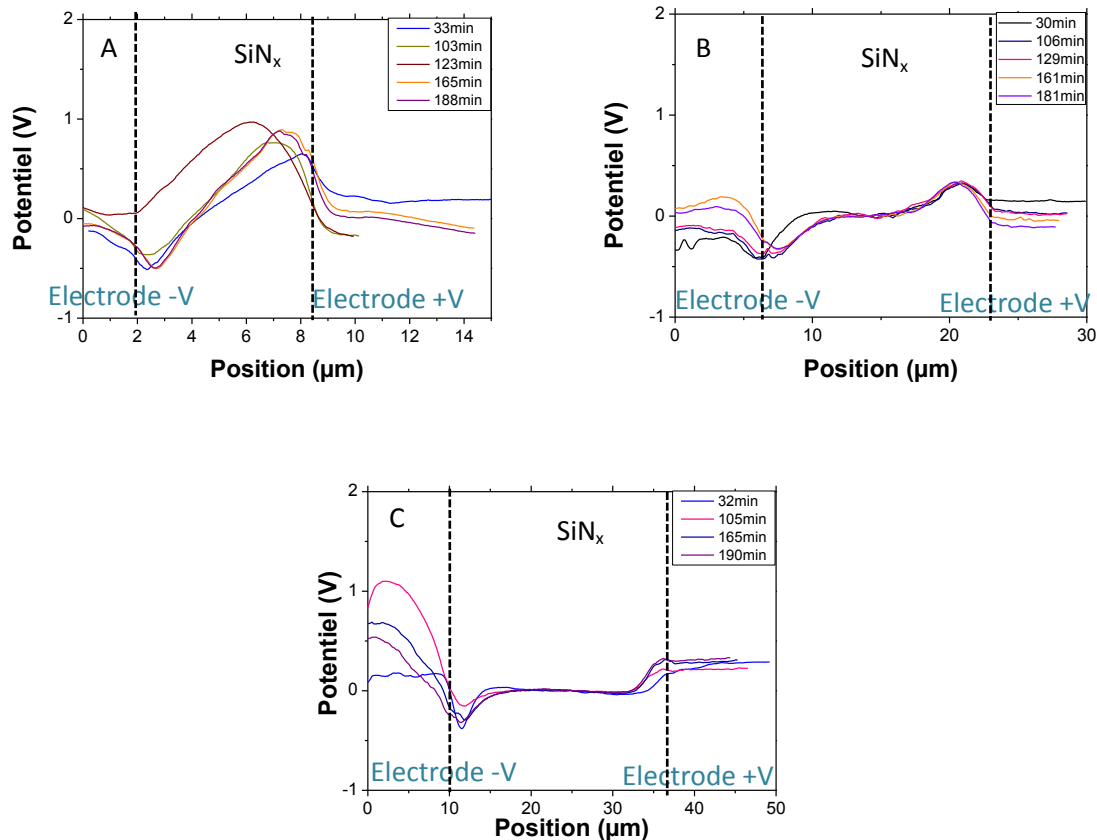


Figure 3.19 : Profil de potentiel pendant la polarisation avec ΔV fixe de 10V et D variant : pour (A) $D=5\mu\text{m}$, pour (B) $D=10\mu\text{m}$ et pour (C) $D=20\mu\text{m}$.

En revanche, les résultats obtenus pour des distances inter-électrode de $10\mu\text{m}$ (Fig. 3.19.B) et $20\mu\text{m}$ (Fig. 3.19.C) sont tout à fait exploitables. En effet, on observe un pic de potentiel négatif à l'interface avec l'anode, un pic positif à l'interface avec la cathode et un plateau (retour à zéro) entre ces deux pics. Le pic positif (P_+) observé proche de la cathode (Fig. 3.19.C) est difficile à isoler car perturbé par le signal de potentiel au-dessus de la cathode. En effet, le pic de potentiel (P_+) est proche de l'interface avec l'électrode et d'amplitude plus faible ou égale aux potentiels mesurés sur la cathode. Le pic P_+ est stable au cours du temps, alors que le pic négatif (P_-) diminue en amplitude et s'élargit. Sur la Fig. 3.19.C, l'augmentation importante du potentiel (pour les temps supérieurs à 95min) au

dessus de l'anode est attribué à un artéfact lié à la poussière attirée par le potentiel appliqué (vu sur le signal de topographie).

IV-1.c) Identification d'un seuil d'injection

Dans le cadre de ces expériences, un potentiel minimum de $\pm 2,5V$ a été appliqué sur les électrodes. Ce potentiel est suffisant pour que le phénomène d'injection soit présent (Fig. 3.18.B). Le seuil de potentiel qui représente le minimum de potentiel appliqué sur les électrodes pour que l'injection ait lieu, est donc inférieur à $2,5V$. Pour trouver la valeur réelle de ce seuil, il serait intéressant dans la configuration présentée (i.e. avec le renforcement de champ électrique aux interfaces) de tester des ΔV appliquées plus faibles, jusqu'à ne plus observer d'injection ; mais aussi de regarder l'impact de l'épaisseur des électrodes sur ce V_{seuil} . A l'aide de ces mesures on pourrait déterminer avec certitude le champ électrique minimum d'injection E_{seuil} , sachant qu'il doit être dépendant du milieu : barrière de potentiel entre le métal et l'isolant, il serait intéressant de tester d'autres matériaux d'électrode.

IV-1.d) Reproductibilité

Maintenant que nous avons identifié les limitations de la technique, nous allons nous intéresser à l'étude de l'injection. De façon à discriminer l'effet du champ moyen (champ constant entre les électrodes) et celui du renforcement de champ aux électrodes deux études ont été envisagées :

- Etude de l'injection à champ constant (entre les électrodes).
- Etude de l'injection pour une distance inter-électrode constante : effet de la tension

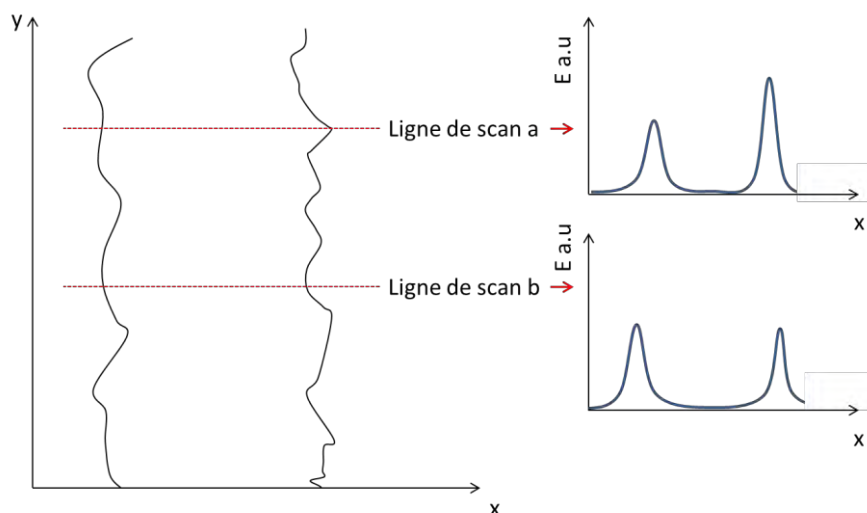


Figure 3.20 : Effet de la géométrie aux interfaces

Il est à noter que les mesures de potentiel présentent une erreur relative estimée à environ 20%. Cette erreur importante provient de facteurs tels que la mesure KPFM elle-même, mais aussi du

conditionnement de l'échantillon et de la pointe et des diverses limitations présentées précédemment. De plus, on doit rajouter une erreur due au facteur géométrique de l'interface couplé au fait que l'on ne mesure que sur une seule ligne (Fig. 3.20) : le phénomène d'injection sera donc d'ampleurs différentes selon les renforcements de champ locaux. De même une erreur relative est faite lors de la mesure de la largeur à mi-hauteur, traditionnellement de $\pm 100\text{nm}$. De plus, pour les pics ayant un maximum en amplitude faible ($< 100\text{mV}$) il devient difficile de définir correctement la largeur à mi-hauteur. L'erreur estimée devient alors de $\pm 250\text{nm}$.

IV-2) Etude de l'injection à champ constant : influence du renforcement de champ électrique

Dans l'hypothèse du condensateur plan infini, le champ électrique ne dépend que de la tension appliquée (ΔV) et de la distance entre les deux électrodes (D). Ainsi, il est possible de trouver plusieurs jeux de paramètres [ΔV ; D] possibles donnant le même champ électrique. Dans notre cas, nous avons montré qu'entre les deux électrodes une zone de l'échantillon présentait un champ électrique quasi-constant. Pour réaliser cette étude à champ électrique constant, nous allons nous placer dans des conditions telles que le champ électrique au centre de l'échantillon est trouvé égal pour les différents jeux de paramètres [ΔV ; D].

Les différences de potentiel appliquées sont respectivement de 10V et 20V pour des distances inter-électrode de 10 et 20 μm . Dans le cas réel, le champ électrique est identique ($5,54 \cdot 10^5 \text{ V/m}$) au centre de l'échantillon mais pas aux électrodes. Les profils de potentiel obtenus sont représentés sur les Fig. 3.21.A et B respectivement. Ces profils sont obtenus lors de la polarisation, avec les générateurs éteints lors de la mesure.

Sur les profils de la Fig. 3.21, un pic négatif à l'anode et un pic positif à la cathode sont observés. Ces pics évoluent au court du temps mais avec un comportement différent suivant les configurations [ΔV ; D]. En effet, pour la configuration de la Fig. 3.21.B, un ΔV de 20V et un D de 20 μm , le pic négatif diminue en amplitude et s'élargit, alors que le pic positif présente un changement brutal d'aspect (hauteur et position) entre 63min et 120min. Avant 63min le maximum de potentiel mesuré est de 0,26V alors qu'au-delà il est de 0,9V : soit une multiplication par 4 ; alors que la largeur à mi-hauteur reste constante (1,8 μm). Ce changement est accompagné d'un décalage de 3 μm vers l'anode. Ainsi on peut penser que ce changement brutal du pic positif est associé à un changement de position de la sonde par rapport à la surface de l'échantillon. Ce déplacement, à la surface de l'échantillon entraîne ici un renforcement (voir partie IV-1.d). De ces profils nous avons extrait le maximum de

potentiel et la largeur à mi-hauteur des pics à l'anode et à la cathode en fin de polarisation (environ 180min). Ces valeurs ont été reportées dans le tableau 3.7.

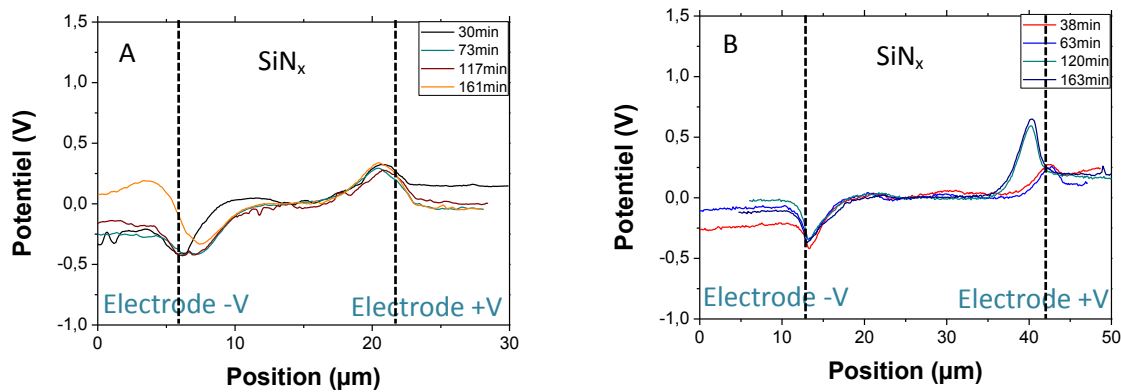


Figure 3.21 : Coupe de profil de potentiel lors de la polarisation pour une différence de potentiel ΔV et une distance inter-électrode D pour : (A) $\Delta V=10V$ et $D=10\mu m$ et (B) $\Delta V=20V$ et $D=20\mu m$.

Après 180min de polarisation, le potentiel aux interfaces augmente avec la tension de polarisation appliquée comme montré dans le tableau 3.7. Pour le pic positif le maximum est multiplié par 2,3 et la largeur à mi-hauteur par 1,7, alors que pour le pic négatif l'amplitude du maximum augmente plus faiblement (30%) et la largeur à mi-hauteur est multipliée par 1,9. Une augmentation globale du potentiel aux interfaces est donc observée. Ainsi, le maximum de potentiel est piloté par le renforcement de champ aux interfaces et non par le champ électrique moyen (calculé sous Comsol Multiphysics®).

	Maximum (V) Pic positif	FWHM (μm) Pic positif	Maximum (V) Pic négatif	FWHM (μm) Pic négatif	Champ électrique à l'interface (V/m)
$\Delta V=10V$ et $D=10\mu m$	0,33	2,0	-0,35	1,7	$1,58 \cdot 10^7$
$\Delta V=20V$ et $D=20\mu m$	0,77	3,4	-0,45	3,2	$2,12 \cdot 10^7$

Tableau 3.7 : Caractéristiques des pics de potentiel après 180min de polarisation

Condition de polarisation	Vitesse du pic positif vers l'anode (nm/min)	Vitesse du pic négatif vers la cathode (nm/min)
$\Delta V=10V$ et $D=10\mu m$	4	10
$\Delta V=20V$ et $D=20\mu m$	-7	6

Tableau 3.8 : Vitesse moyenne de déplacement du maximum des pics de potentiel

A partir des Fig. 3.21 nous avons pu extraire la position des pics au cours du temps et ainsi évaluer une vitesse de déplacement, définie comme l'écart de position du maximum du pic aux temps initial et final divisé par la durée de l'expérience. Ces vitesses de déplacement des pics sont résumées dans le tableau 3.8. Dans la première configuration ($\Delta V=10V$ et $D=10\mu m$) le pic négatif se déplace vers la cathode et le pic positif vers l'anode. Alors que dans la deuxième configuration ($\Delta V=10V$ et $D=20\mu m$) le saut dans la position a pour effet d'introduire une instabilité sur le pic positif. En effet le pic positif se déplace vers la cathode. Alors qu'aucun effet de ce déplacement n'est observé sur le pic négatif. Ainsi, le moindre déplacement ou changement d'angle de scan (Fig. 3.22) peut avoir des effets importants sur la mesure.

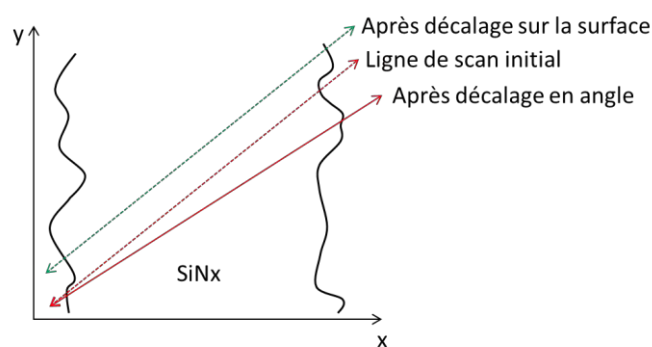


Figure 3.22 : Schéma de la direction de balayage avant et après décalage de la pointe sur la surface

Dans cette partie nous avons pu mettre en évidence que pour un champ constant au centre de l'échantillon et un champ électrique aux interfaces augmentant, l'injection est favorisée. Pour confirmer cet effet, il serait intéressant de trouver des configurations où le champ électrique aux interfaces serait identique pour différentes distances inter-électrodes, et vérifier que l'injection est similaire.

Pour cela, deux configurations nous permettant de comparer à champ électrique constant au niveau des interfaces aluminium-SiN_x (Fig. 3.23) ont été identifiées :

- ΔV de 10V pour une distance inter-électrode de $10\mu m$ (configuration E_{int1}) et ΔV de 14V pour une distance inter-électrode de $20\mu m$ (configuration E_{int2}) qui donne un champ électrique à l'interface de $1,48 \cdot 10^7$ V/m.
- ΔV de 14V pour une distance inter-électrode de $10\mu m$ (configuration E_{int3}) et ΔV de 20V pour une distance inter-électrode de $20\mu m$ (configuration E_{int4}) qui donne un champ électrique à l'interface de $2,09 \cdot 10^7$ V/m.

La comparaison des résultats obtenus pour ces deux configurations n'est pas aisée, d'une part car les profils de potentiel n'ont pas été enregistrés pour des temps identiques, et d'autre part des

perturbations sont apparues à partir de 70min. Dans ces conditions nous réaliserons la comparaison en nous basant sur les temps de 52min pour la configuration E_{int1} et de 63min pour la configuration E_{int2} . Le maximum des pics de potentiel est trouvé plus important dans la configuration E_{int2} (440mV et -450mV) comparativement à la configuration E_{int1} (300mV et -360mV) de 47% pour le pic positif et de 25% pour le pic négatif. La largeur à mi-hauteur est trouvée semblable pour les pics positifs (autour de 2,9 μ m) et pour les pics négatifs (autour de 3,1 μ m), alors que les pics sont trouvés similaires entre les configurations E_{int3} et E_{int4} pour les temps de 55min et 63min respectivement. En prenant en compte l'erreur de 20% décrite précédemment, les deux configurations présentent des comportements similaires. En supposant qu'une singularité s'est produite dans le premier cas (E_{int1} et E_{int2}), ces comparaisons confirment donc que l'injection est favorisée par l'augmentation du champ aux interfaces.

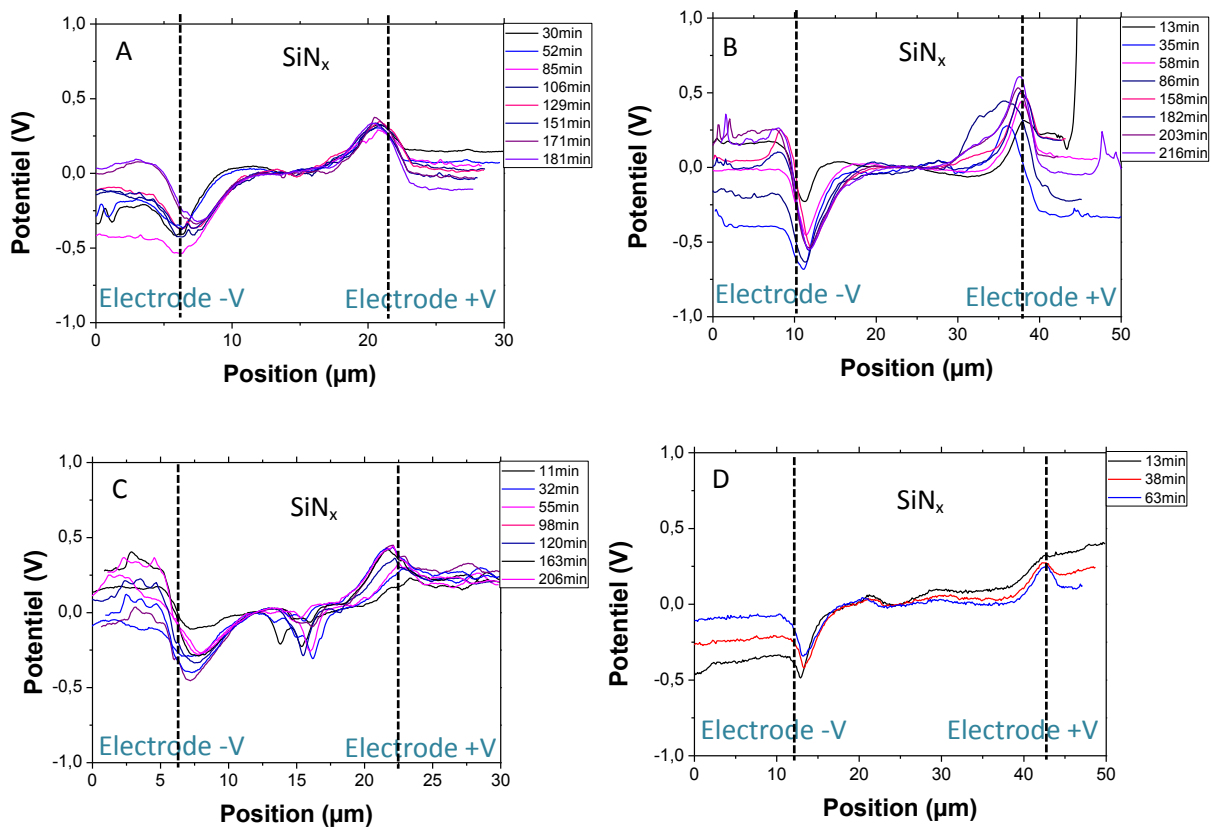


Figure 3.23 : Profil de potentiel mesuré lors de la polarisation pour : (A) $\Delta V=10V$ et $D=10\mu m$ et (B) $\Delta V=14V$ et $D=20\mu m$; (C) $\Delta V=14V$ et $D=10\mu m$ et (D) $\Delta V=20V$ et $D=20\mu m$.

Nous nous proposons maintenant de vérifier l'impact de la tension appliquée sur les profils mesurés, pour chaque distance inter-électrode.

IV-3) Influence de la tension de polarisation

La tension de polarisation a un effet important au niveau de l'injection. Faire augmenter cette différence de potentiel pour une même distance inter-électrode a pour effet d'augmenter le champ électrique global, mais aussi de renforcer le champ aux interfaces entre l'aluminium et le SiN_x (P_{Au/SiN}). L'augmentation du champ électrique E aura surtout pour effet de faire migrer les charges injectées à l'interface. Pour étudier l'influence de la valeur de la tension de polarisation, des mesures ont été réalisées sur :

- l'échantillon présentant des distances inter-électrodes de 5 μm ($E_{5\mu\text{m}}$) ;
- l'échantillon présentant des distances inter-électrodes de 10 μm ($E_{10\mu\text{m}}$) ;
- l'échantillon présentant des distances inter-électrodes de 20 μm ($E_{20\mu\text{m}}$).

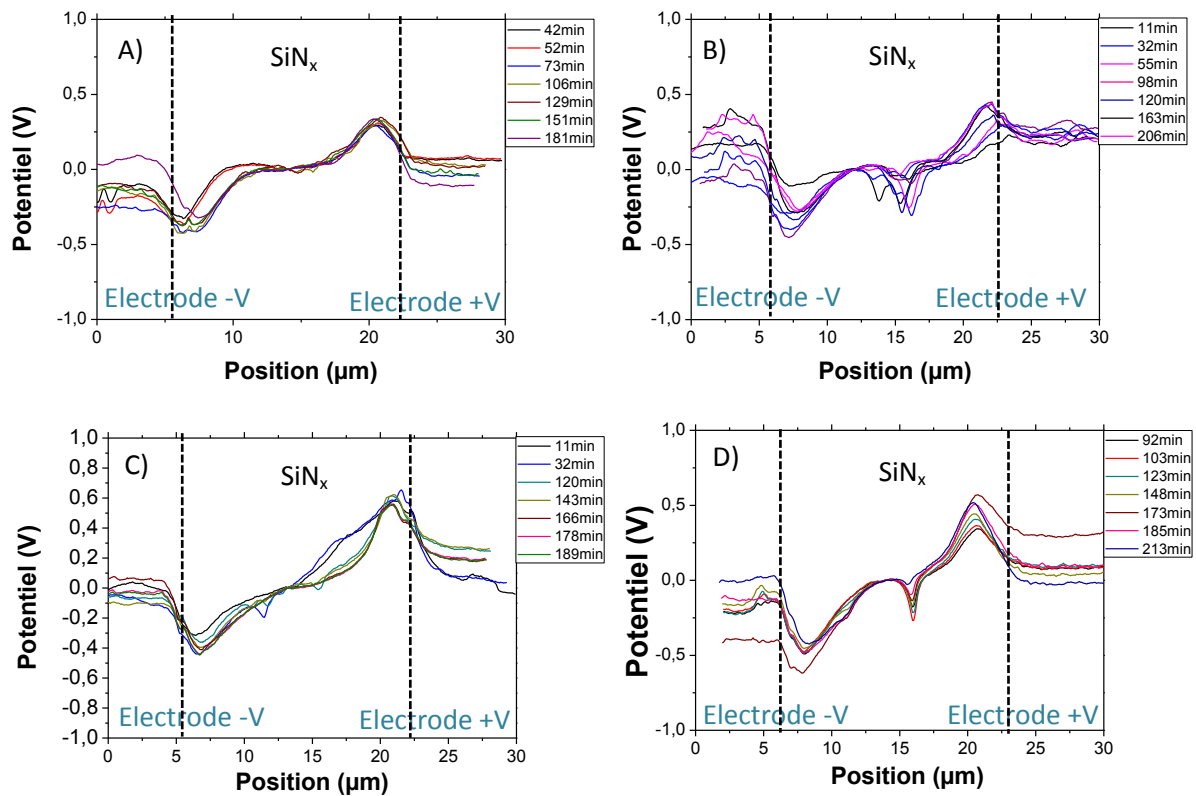


Figure 3.24 : Profil de potentiel en fonction du temps de polarisation pour une distance inter-électrode D de 10 μm en appliquant une (A) différence de potentiel ΔV de 10V pour ; (B) de 14V; (C) de 16V et (D) de 20V.

La Fig. 3.24 donne un exemple des profils obtenus, pour une distance inter-électrodes de 10 μm , avec différents ΔV . Quel que soit la tension appliquée on constate une augmentation de l'amplitude des pics à l'anode et à la cathode au cours du temps. Au milieu des profils de potentiel (Fig. 3.24.b, c et d), un pic négatif est visible. Ce pic diminue au cours du temps pour disparaître complètement. Deux

explications sont possibles pour ce phénomène : soit on dérive suffisamment à la surface de l'échantillon pour ne plus balayer au-dessus de ce point, soit une recombinaison des charges en surface se produit. L'hypothèse privilégiée est que le changement observé est dû à un artéfact.

Les mesures présentées sur la Fig. 3.24 ont été réalisées pour une distance inter-électrode de 10 μ m et un comportement similaire est observé pour une distance inter-électrodes de 20 μ m. Les quatre profils de potentiel ont été obtenus en appliquant des différences de potentiel de 10, 14, 16 et 20V entre les deux électrodes. On observe pour les différents profils :

- Pour un ΔV de 10V (Fig. 3.24.a) : le maximum du pic positif augmente rapidement autour d'une valeur de 220mV, puis se stabilise, alors que d'importantes variations sont visibles sur le pic négatif au cours du temps. Ces variations sont attribuées aux variations du potentiel au-dessus de l'anode. La largeur à mi-hauteur du pic positif ne varie pas alors que celle du pic négatif augmente de 43% au cours du temps.
- Pour un ΔV de 14V (Fig. 3.24.b) : le maximum et la largeur à mi-hauteur du pic positif augmente au cours du temps de 100% et 50% respectivement. Un fort déplacement du pic positif vers l'anode (1,3 μ m en 200min) est aussi à noter. Le maximum et la largeur à mi-hauteur du pic négatif suivent une tendance similaire et augmente au cours du temps de 300% et 35%.
- Pour un ΔV de 16V (Fig. 3.24.c) : le maximum du pic positif croît rapidement et se stabilise, alors que l'épaule visible avant 32min disparaît. La largeur à mi-hauteur est stable après la disparition de cet épaulement. Le maximum et la largeur à mi-hauteur du pic négatif augmentent en amplitude de 20% et 50% respectivement.
- Pour un ΔV de 20V (Fig. 3.24.d) : le maximum du pic positif et la largeur à mi-hauteur augmente au cours du temps de 60% et 5% respectivement. La relative faible augmentation de la largeur à mi-hauteur est cohérente avec les résultats précédents. Le maximum d'amplitude et la largeur à mi-hauteur du pic négatif varie peu au cours du temps, hormis une variation en potentiel qui correspond à l'incertitude observée sur la Fig. 3.23.a et qui provient des variations de potentiel au-dessus de l'anode.

Pour les différentes configurations étudiées nous avons relevé le maximum et la largeur à mi-hauteur des pics pour un temps compris entre 178 et 185min, ces valeurs sont reportées dans le tableau 3.9.

D'autre part en comparant les différents profils obtenus en fin de polarisation (tableau 3.9), les résultats obtenus confirment les précédentes affirmations. Pour $E_{5\mu m}$, le maximum de pic de potentiel est trouvé croissant puis se stabilise pour une différence de potentiel de 16V et 20V. Alors que les largeurs à mi-hauteur sont similaires aux erreurs de mesures près. La saturation de la couche

a été atteinte, ou alors la recombinaison au centre compense l'injection aux interfaces. Dans cette configuration il serait intéressant de compléter ces observations avec des mesures de courants entre les électrodes pour vérifier cette hypothèse. Pour des distances inter-électrodes de 10 et 20 μm on retrouve une charge injectée croissante avec la tension appliquée.

Dans le cas d' $E_{10\mu\text{m}}$, le maximum de potentiel augmente avec la tension appliquée pour les pics négatif et positif (70% et 90% respectivement). La largeur à mi-hauteur du pic négatif croît de 40%, alors que la largeur à mi-hauteur du pic positif décroît de 25% pour des amplitudes de tension variant de 5 à 10V. Le champ électrique est doublé aux interfaces entre l'or et le SiN_x dans ces conditions.

Pour $E_{20\mu\text{m}}$, une augmentation du maximum de potentiel des pics négatifs et positifs (50% et 60%) est observée, comme pour $E_{10\mu\text{m}}$. De plus, le même phénomène de rétrécissement (10%) du pic de potentiel positif est observé, accompagné d'un élargissement du pic négatif de 70%.

Distance Inter-électrode (μm)	ΔV (V)	Maximum (V) Positif	Maximum (V) Négatif	FWHM (μm) Positif	FWHM (μm) Négatif	$E_{\text{interface}}$ (V/m)	E_{ref} (V/m)
5	5	0,223 \pm 0,04	-0,098 \pm 0,02	0,822	0,783	1,08.10⁷	5,90.10⁵
	10	0,809 \pm 0,16	-0,287 \pm 0,05	1,723	0,979	2,16.10⁷	1,17.10⁶
	14	0,515 \pm 0,11	-1,276 \pm 0,25	0,94	1,645	3,02.10⁷	1,65.10⁶
	16	0,903 \pm 0,18	-0,829 \pm 0,16	1,097	1,41	3,46.10⁷	1,88.10⁶
	20	0,919 \pm 0,19	-1,002 \pm 0,20	0,901	1,606	4,32.10⁷	2,36.10⁶
10	10	0,329 \pm 0,06	-0,349 \pm 0,06	2,037	1,702	1,48.10⁷	5,90.10⁵
	14	0,374 \pm 0,07	-0,37 \pm 0,07	1,958	2,272	2,07.10⁷	8,26.10⁵
	16	0,613 \pm 0,13	-0,594 \pm 0,12	1,723	2,507	2,36.10⁷	9,44.10⁵
	20	0,567 \pm 0,11	-0,536 \pm 0,11	1,567	2,585	2,95.10⁷	1,17.10⁶
20	10	0,239 \pm 0,04	-0,25 \pm 0,04	1,958	1,958	1,07.10⁷	2,95.10⁵
	14	0,573 \pm 0,11	-0,687 \pm 0,11	3,394	2,611	1,49.10⁷	4,13.10⁵
	16	0,229 \pm 0,04	-0,32 \pm 0,06	1,305	2,089	1,70.10⁷	4,72.10⁵
	20	0,832 \pm 0,16	-0,311 \pm 0,06	1,828	3,264	2,13.10⁷	5,90.10⁵

Tableau 3.9 : Maximum de potentiel et largeur à mi-hauteur des profils de potentiel mesurés à la fin de la polarisation (205min).

De manière générale, les pics positifs sont plus stables que les pics négatifs (problème de décalage du potentiel dû aux variations au-dessus de l'anode). Cela peut provenir du fait que leurs maxima sont plus importants et ainsi moins sujets aux petites variations de l'environnement proche (rugosité de l'interface). De plus, la forme et la dynamique de polarisation sont différentes pour les deux pics : ceci est probablement lié à la nature des porteurs de charges, le type de pièges disponibles ou bien à la différence de mobilité entre les électrons et les trous dans la couche de SiN_x. Pour rappel, le travail de sortie de l'aluminium est de 4eV, tester d'autres métaux permettrait peut-être d'étudier plus précisément ce phénomène.

En comparant les résultats trouvés pour un champ électrique moyen équivalent (5,90.10⁵ V/m) pour les trois configurations (E_{5μm} ΔV=5V, E_{10μm} ΔV=10V et E_{20μm} ΔV=20V), on remarque que le potentiel lié aux charges injectées augmente avec la tension appliquée sur les électrodes : le maximum de potentiel est quadruplé et la largeur à mi-hauteur est multiplié par deux. L'injection est donc bien pilotée par le renforcement de champ électrique aux interfaces comme pressentie lors des simulations et présenté précédemment.

Comme précédemment, l'évolution de la position des pics au cours du temps a été mesurée de façon à extraire une vitesse de déplacement (tableau 3.10). Trois observations peuvent être faites : les charges positives se dirigent vers l'anode ; les charges négatives se dirigent vers la cathode ; et les charges négatives se déplacent plus vite que les charges positives. La vitesse de déplacement des charges est de quelques nanomètres par minute pour des champs électriques de l'ordre de 10⁵ à 10⁶ V/m pour du SiN_x.

Condition de polarisation	Vitesse du pic positif vers l'anode (nm/min)	Vitesse du pic négatif vers la cathode (nm/min)
ΔV=10V et D=10μm	4	10
ΔV=14V et D=10μm	7	8
ΔV=16V et D=10μm	2	4
ΔV=20V et D=10μm	3	12
ΔV=10V et D=20μm	0	0
ΔV=14V et D=20μm	2	3
ΔV=16V et D=20μm	6	2
ΔV=20V et D=20μm	-7	6

Tableau 3.10 : Vitesse de déplacement du maximum des pics de potentiel

Le champ moyen ne contrôlant pas l'injection (trop faible), on s'attendrait à ce qu'il influe sur les déplacements des charges électriques au cours du temps. Il semble que pour les pics négatifs la vitesse augmente légèrement avec le champ moyen. Toutefois, à cause du manque de résolution latérale de la technique et des faibles champs impliqués nous sommes incapables de conclure positivement en ce sens. Deux comportements différents ont été mis en évidence pour les pics de potentiels positifs et négatifs, preuve d'une dissymétrie dans les mécanismes de chargement en fonction du signe des porteurs et des pièges. Nous avons également montré que l'injection des charges aux interfaces était pilotée par le renforcement de champ électrique local aux interfaces $E_{\text{au/SiN}}$.

Il est intéressant de noter que l'on pourrait calculer un profil de charges grâce aux profils de potentiel mesurés. Une méthode classique, utilisée dans le domaine des semi-conducteurs, consiste à intégrer une première fois le profil de potentiel pour obtenir le champ électrique, puis de réintégrer le résultat obtenu pour obtenir une distribution de charges électriques [6].

Toutefois, à cause des capacités parasites dans la mesure KPFM, on surestimerait grandement le nombre de charge. Pour limiter cet effet, des méthodes de déconvolution de type « point spreading function » [7] pourraient être utilisées. Mais avant cette étape, une amélioration de la reproductibilité de la méthode ainsi qu'une estimation plus précise de sa reproductibilité sont nécessaires pour interpréter clairement les variations significatives.

V) Etude de la phase de dépolarisation

Lors de la dépolarisation les générateurs sont éteints et le potentiel sur les électrodes est laissé flottant. Dans cette configuration, on observe la dissipation des charges injectées dans le SiN_x, à la suite des étapes de polarisation décrites précédemment.

IV-1) Observations préliminaires

L'enregistrement de la dépolarisation est réalisé durant 1150min (soit 19h et 10min). La Fig. 3.25.A représente les données brutes obtenues pour une distance inter-électrode de 10 μ m après une polarisation correspondant à $\Delta V=20V$ pendant 180-200min. Le potentiel moyen mesuré présente une bonne stabilité au centre mais aussi au-dessus des électrodes. Dans ce sens, il sera plus facile de normaliser les courbes en ramenant le potentiel moyen à zéro. De plus, cela conforte l'hypothèse selon laquelle le potentiel moyen mesuré au-dessus des électrodes dépend du temps de relaxation du système : il faut $24\pm 2s$ pour que le potentiel moyen au-dessus des électrodes se stabilise. Cette

observation permettra d'améliorer le protocole expérimental en introduisant un délai d'attente avant la mesure du profil de potentiel quand cela sera possible.

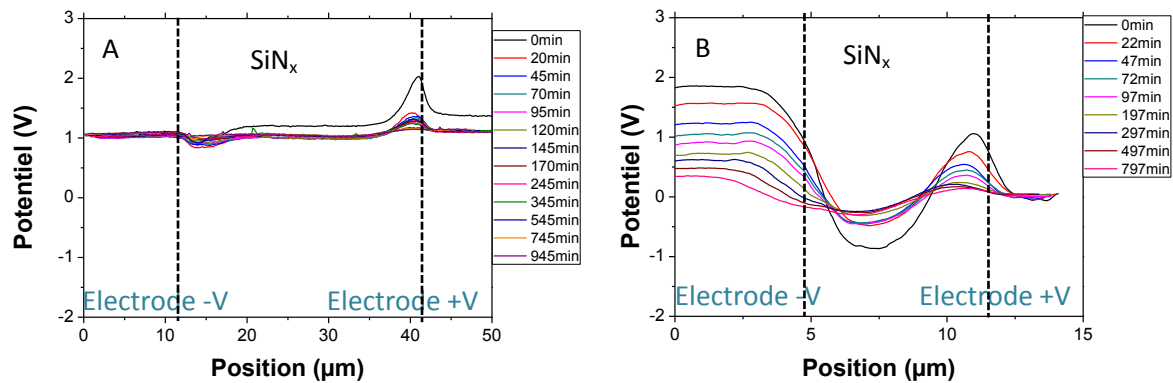


Figure 3.25 : Profil de potentiel durant la dépolarisation pour une différence de potentiel ΔV de 20V pour les différentes distances inter-électrode : (A) 20 μm et (B) 5 μm .

Grâce à la stabilité du potentiel moyen, il devient alors possible d'observer le comportement sur les échantillons $E_{5\mu\text{m}}$ (Fig. 3.25.B). Pour cela, nous recherchons une position où le potentiel varie peu, ici la cathode (droite) et l'on repositionne les profils en potentiel à zéro. Au cours de la dépolarisation, le plateau de potentiel présent au-dessus de l'anode diminue progressivement de manière homogène et comparable à celle observée sur le pic positif. Ce plateau de potentiel confirme l'hypothèse selon laquelle des charges électriques sont injectées dans la couche de passivation au-dessus des électrodes. De plus, deux comportements lors de la décroissance du potentiel mesuré au-dessus des électrodes, pour la couche de passivation, sont observés :

- Une décroissance rapide ($<24\text{s}$) : l'amplitude du potentiel au-dessus des électrodes décroît rapidement jusqu'à retrouver une stabilité.
- Une décroissance lente ($24\text{s} < t < 20\text{h}$) : comparable à la décroissance des pics de potentiel issus des charges injectées dans le volume de la couche de SiN_x .

Toutes les données présentées pour la dépolarisation seront traitées comme celles obtenues lors de la polarisation. C'est-à-dire, on repositionne en x grâce à la position de la marche observée en topographie, puis on repositionne en potentiel en ramenant le potentiel moyen à zéro.

Sur un temps d'observation relativement long, la mesure AFM a le temps de dériver de plusieurs centaines de nanomètres parallèlement aux interfaces (axes y de mesure). Ainsi, il se peut que l'on retrouve des sauts dans les mesures de potentiel provenant d'effet local de la géométrie de l'interface dû à la dérive.

IV-2) Comportement lors de dépolarisation

La dépolarisation d'un isolant peut être très lente et les phénomènes en jeu divers. On peut cependant distinguer deux comportements :

- Les charges s'évacuent dans le volume du diélectrique : du point de vue de la mesure de potentiel de surface, ce comportement se caractérise par une largeur à mi-hauteur constante conjoint avec une diminution du maximum et de l'aire.
- Les charges s'étalent en surface du diélectrique : ce comportement se caractérise par une diminution du maximum et une augmentation de la largeur à mi-hauteur (l'aire du pic reste alors constante).

La Fig. 3.26 présente des profils de dépolarisation pour les échantillons $E_{10\mu\text{m}}$ (A) et $E_{20\mu\text{m}}$ (B). Une décroissance globale de l'amplitude est observée au cours du temps. Toutefois, après 19h et 10min les pics de potentiel sont toujours observables. Les pics de potentiel se déplacent à la vitesse moyenne de 1nm/min : en général le pic positif se déplace vers l'anode et le pic négatif vers la cathode. Cette vitesse est bien plus faible que celle observée pendant les phases de polarisation. Cela est dû au fait que lors de la dépolarisation les charges bougent sous l'effet de leur champ électrique propre, bien inférieur à celui utilisé pendant la polarisation.

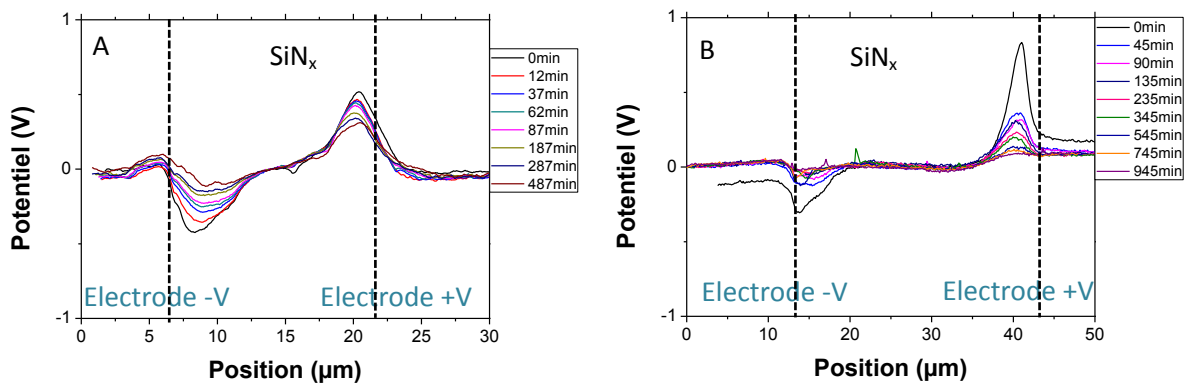


Figure 3.26 : Profil de potentiel durant la dépolarisation pour une différence de potentiel ΔV de 20V préalablement appliquée pour les différentes distances inter-électrode : (A) $10\mu\text{m}$ et (B) $20\mu\text{m}$.

- Pour $E_{10\mu\text{m}}$: le pic positif de l'échantillon se déplace vers l'anode jusqu'à 400min, puis il se dirige vers la cathode. Le pic négatif de l'échantillon se déplace de manière constante vers la cathode.
- Pour $E_{20\mu\text{m}}$: le pic positif ainsi que le pic négatif se déplacent de manière constante vers l'anode. De plus, le pic négatif comporte un épaulement. Le pic principal disparaît et seul

l'épaulement demeure présent. La largeur à mi-hauteur diminue, et le maximum augmente. Ce qui pourrait s'expliquer par une légère dérive sur la surface.

Pour mieux comprendre ce comportement la Fig. 3.27 présente l'évolution en fonction du temps de dépolarisation des maxima et des largeurs à mi-hauteurs des pics de potentiel. La Fig. 3.27.A représente le maximum des pics positifs et négatifs. On constate que la décroissance se fait en deux étapes : une première est caractérisée par une décroissance rapide sur les 200 premières minutes, la seconde est caractérisée par une décroissance plus lente sur le reste du temps d'observation ($t > 200 \text{ min}$).

Un comportement en deux temps est également trouvé pour l'évolution de la largeur à mi-hauteur (Fig. 3.27.B) au cours du temps :

- la largeur à mi-hauteur est stable pour les temps inférieurs à 200min.
- la largeur à mi-hauteur augmente pour les temps supérieurs à 200min.

Toutefois deux exceptions sont à noter : les pics négatifs des échantillons $E_{10\mu\text{m}}$ et $E_{20\mu\text{m}}$. Dans le premier cas, on observe une diminution de la largeur à mi-hauteur ainsi qu'une diminution du maximum. L'explication la plus plausible quant à ce comportement singulier est un déplacement sur la surface de l'échantillon de la pointe. Dans le deuxième cas, on retrouve la stabilité initiale de la largeur à mi-hauteur, mais au-delà de 200min, la largeur à mi-hauteur chute brusquement d'un facteur quatre. Ce comportement concorde avec l'observation de l'épaulement sur le pic négatif qui disparaissait rapidement.

Les mesures montrent également que les pics positifs ont une amplitude plus élevée de 35% que les pics négatifs, ces derniers étant plus étalés (de 40%). En émettant l'hypothèse que seuls les électrons se déplacent, il est plus facile d'injecter un électron dans le SiN_x que d'en extraire un.

En regroupant les observations réalisées sur le maximum et la largeur à mi-hauteur, on peut conclure que deux comportements différents apparaissent lors de la dépolarisation. Une tendance aux temps courts ($< 200 \text{ min}$) où les charges s'évacuent en volume, puis une tendance aux temps longs ($> 200 \text{ min}$) où les charges s'étalent à la surface.

En première approximation, la multiplication du maximum du pic par la largeur à mi-hauteur donne l'aire (à un facteur de forme près). En suivant l'évolution de ce produit au cours du temps, on remarque qu'à la fin de la mesure (après 19 heures) environ 30% de la charge initiale reste présente dans le film de SiN_x .

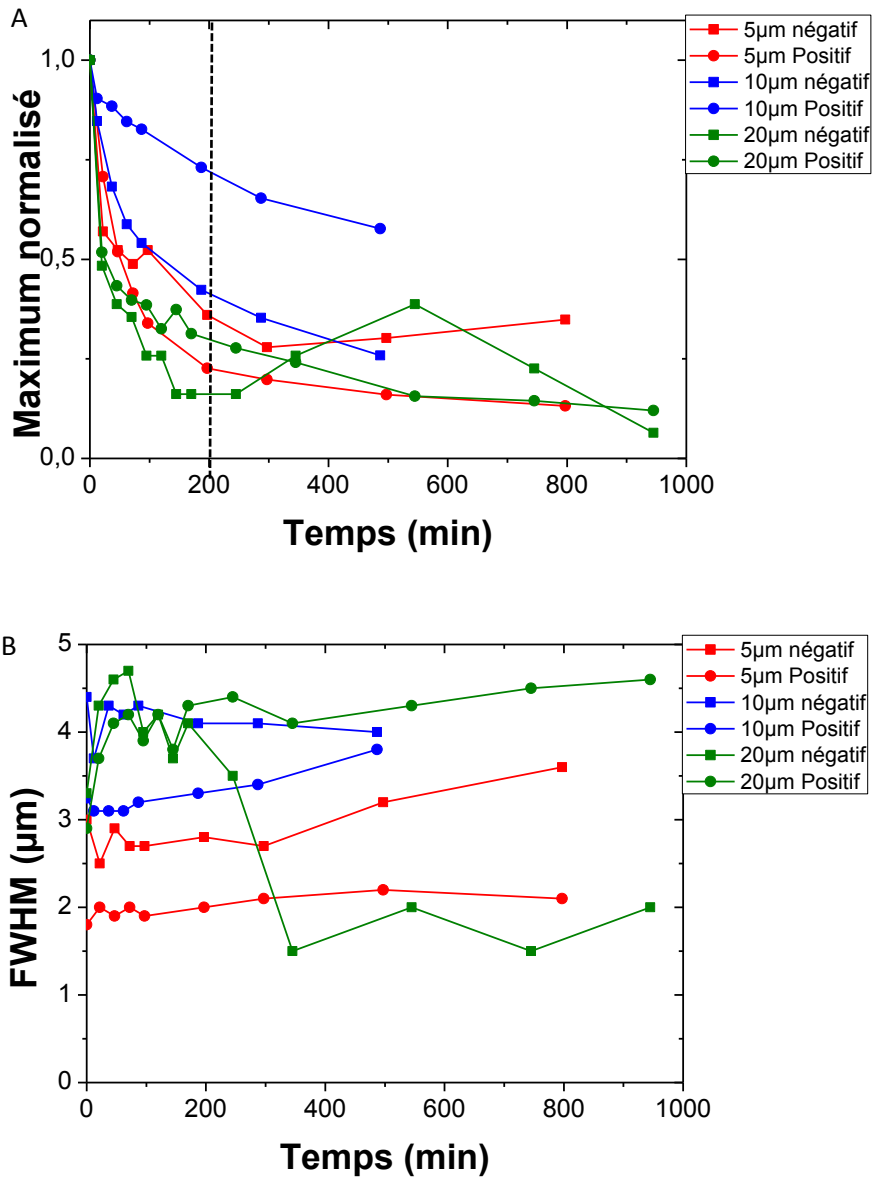


Figure 3.27 : Evolution temporelle (A) des maxima de potentiel et (B) de la largeur à mi-hauteur pendant la dépolarisation des échantillons (5, 10, 20µm de distance inter-électrode) préalablement polarisés avec une différence de potentiel de 20V pendant 205min.

Un point intéressant est la direction d'expansion des charges en surface après 200min. Dans le cas où les deux pics ($E_{10\mu\text{m}}$ et $E_{20\mu\text{m}}$) sont suffisamment éloigné l'un de l'autre (retour à zéro visible), l'expansion se fait dans les deux directions : vers les électrodes et vers le centre. Ce mode d'étalement des charges en surface est en accord avec le fait que les électrodes sont laissées au potentiel flottant, c'est-à-dire que le générateur de tension est éteint durant la dépolarisation. Les charges n'étant pas attirées par une masse, elles s'étaient dans les différentes directions disponibles sans discernement.

Pour vérifier cette hypothèse, le cas de l'échantillon $E_{5\mu m}$ représente une aubaine. En effet, les pics de potentiel positif et négatif sont très proches. Dans ce cas, il est observé un étalement uniquement vers les électrodes. Ce qui correspond à dire qu'un phénomène de recombinaison a probablement lieu au centre de l'échantillon.

Dans le futur il serait intéressant d'appliquer un potentiel nul (masse) sur les électrodes lors de la dépolarisation afin de vérifier si les charges sont attirées par les électrodes, et si la dynamique de décroissance en est influencée.

Dans cette partie, nous avons montré que deux comportements apparaissent lors de la dissipation des charges électriques. Dans un premier temps les charges s'évacuent en volume puis elles s'étaient à la surface. De plus, l'étalement se fait dans toutes les directions simultanément quand cela est possible. Enfin la vitesse de déplacement des charges électriques observées en surface est inférieure (de l'ordre du nanomètre par minute) à celle observée lors de la polarisation (4-5 nm/min), preuve que les charges électriques se déplacent sous l'effet du champ électrique qu'elles génèrent.

VI) Déplacement d'une charge injectée par la pointe AFM

Notre objectif initial était de faire déplacer des charges injectées localement avec une pointe AFM sous l'effet d'un champ électrique appliqué entre les électrodes latérales, et ainsi de calculer la mobilité des charges. La preuve de concept a été apportée par J. Lambert [8]. Deux observations ont été faites par J. Lambert : les charges piégées dans des pièges profonds en énergie ne se déplacent que faiblement ; et les charges piégées dans les pièges peu profonds se déplacent vers les électrodes. Toutefois, peu de résultats, issue d'expériences réalisées par AFM, sont disponibles dans la littérature. De plus l'étude de J. Lambert s'est arrêtée à la preuve de concept.

Notre étude a été réalisée pour des échantillons présentant un gap d'air de 500nm entre le métal et le SiO_xN_y . Le gap d'air est utilisé pour limiter l'injection de charges électriques aux interfaces, comme mis en évidence par la modélisation du champ électrique décrit au chapitre 2.

L'injection localisée de charges a été réalisée en utilisant la pointe de l'AFM, en contact avec la surface du diélectrique, et portée à un potentiel de 12V pendant 2min (procédure décrite dans le chapitre 2). Le profil de potentiel induit par les charges injectées possède une largeur à mi-hauteur plus importante que lors d'une injection loin des électrodes. Ceci montre que même si ces dernières sont laissées en potentiel flottant lors de l'injection, elles influencent le phénomène d'injection. Ensuite, une différence de potentiel de 200V a été appliquée sur des électrodes latérales séparées de $5\mu m$ avec un gap d'air de 500nm, ce qui correspond à un champ électrique de $2,33 \cdot 10^7$ V/m dans la

zone où la charge est injectée. Comme le montre la Fig. 3.28, l'amplitude du pic de potentiel diminue de moitié après 30min de polarisation : il est possible que les charges faiblement piégées aient été attirées par une électrode (probablement l'anode).

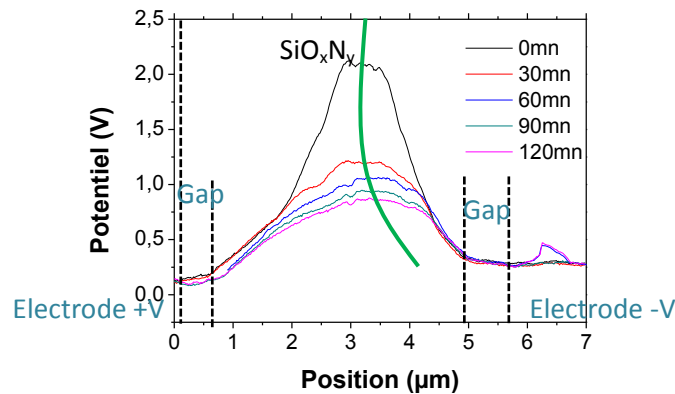


Figure 3.28 : Profil de potentiel après injection par contact entre la pointe et la surface (12V/2min) pour différents temps de polarisation entre deux électrodes portées à $\pm 100V$ et séparées de $5\mu m$

Le pic positif se déplace ensuite lentement vers l'électrode négative : mouvement correspondant probablement à des charges piégées profondément. La vitesse estimée de déplacement de ces charges est de $4nm/min$, ce qui correspond aux vitesses observées lors de la polarisation avec un champ électrique moyen de quelque $10^6V/m$, et un champ aux interfaces de quelques $10^7V/m$. Ainsi, il est probable que dans le cas des charges injectées aux interfaces, les charges soient mises en mouvement par le renforcement de champ électrique aux interfaces. Ainsi, elles cherchent à s'éloigner de l'électrode de même polarité, et donc se rapprocher de l'autre électrode. Un essai serait à mener en n'appliquant pas de tension sur l'une des électrodes pendant la polarisation, pour vérifier cette hypothèse.

VII) Conclusion

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés aux effets d'un champ électrique latéral sur un film mince diélectrique (SiN_x). Pour cela, nous avons établi un protocole expérimental permettant d'étudier les mécanismes d'injection et de piégeage de charge dans un diélectrique grâce à des mesures KPFM sur des structures dites à électrodes latérales enfouies. Les résultats obtenus mettent en avant plusieurs caractéristiques :

- **Limitation de l'étude** : dans ces structures les charges sont injectées aux électrodes et migrent vers le volume du diélectrique. Pour les distances inter-électrodes trop petites

(inférieures à 5µm), il n'existe pas de plateau de potentiel nul au centre de l'échantillon, ce qui ne permet pas d'avoir une référence de potentiel fiable pour le traitement des données. De plus, la présence d'un gap d'air entre les électrodes et le diélectrique a pour effet d'empêcher la polarisation du diélectrique par les électrodes. Il faut donc veiller à fabriquer des échantillons suivant un protocole permettant d'éviter la présence de ce gap d'air, sauf si l'on souhaite limiter l'injection de charges aux électrodes. Enfin, la couche de passivation au-dessus des électrodes n'est pas une référence fiable : des charges sont piégées et dépiégées en fonction de la tension appliquée.

- **Les mécanismes d'injections aux interfaces** : D'après la position du pic de potentiel (proche des électrodes), l'étalement latéral (quelques micromètres) et les déplacements au cours du temps (quelques nanomètres par minutes), on constate que les charges sont injectées à proximité des électrodes, et qu'elles se déplacent vers l'électrode opposée. De plus, le potentiel résultant de la charge injectée augmente avec le temps de polarisation jusqu'à une saturation du film. Le phénomène de saturation ressemble à celui observé dans le chapitre précédent. Ainsi, on observe un mécanisme d'injection dirigé par le piégeage avec un faible déplacement induit par le champ électrique. De plus, l'injection est principalement pilotée par le renforcement du champ électrique (10^7 - 10^8 V/m) au niveau de l'électrode et moins par le champ électrique global (10^5 - 10^6 V/m au centre du SiN_x). Ce renforcement de champ peut être créé par des effets locaux de géométrie liés à l'irrégularité de l'interface (défaut ponctuel : pointe, creux, bosse ...).
- **Le déplacement** des charges électriques au cours du temps est probablement dû à un phénomène de répulsion avec les électrodes adjacentes. De plus, un renforcement local du champ électrique est présent à l'interface métal/diélectrique. De plus, le déplacement entre les électrodes est relativement faible (quelque nanomètre par minute) ce qui peut s'expliquer par un champ électrique moyen relativement faible. Les charges restent dans les zones de champ électrique fort.
- **L'effet du gap** : le gap a pour effet de réduire l'injection aux interfaces du diélectrique. Ce phénomène empêche les études de polarisation, mais permettra d'étudier la mobilité de charges injectées par la pointe AFM. Le champ électrique global reste identique à l'intérieur du diélectrique.

On retrouve un mécanisme de diffusion classique en volume et en surface. Les charges injectées dans le diélectrique sont au maximum à quelques micromètres de l'interface. Ainsi, il est fort probable que dans le cas d'une injection locale sur un film d'épaisseur supérieure à 70nm il y ait des charges

piégées sur toute l'épaisseur. De plus, l'électrode joue un rôle probable dans la dépolarisation en drainant une partie des charges.

Toutefois, cette étude n'est qu'au stade initial et de nombreuses questions demeurent. Premièrement, la répétabilité de ce système de mesure doit être étudiée pour pouvoir définir précisément l'erreur expérimentale commise dans le but d'évaluer la précision de la mesure. Deux configurations sont envisagées pour poursuivre cette étude :

- **Avec gap** : l'étude de la mobilité des charges sous l'effet d'un champ électrique latéral. Le gap est introduit entre l'électrode et le diélectrique pour bloquer l'injection de charges dans le diélectrique par les électrodes latérales. Les charges sont injectées dans un endroit choisi du diélectrique grâce à la pointe AFM.
- **Sans gap** : l'étude de la polarisation du diélectrique par les électrodes, puis de la mobilité des charges injectées sous l'effet du champ latéral affecté par le champ électrique induit par les charges. En changeant le métal utilisé pour les électrodes, on peut faire varier la barrière de potentiel et ainsi mieux comprendre les mécanismes d'injections aux interfaces. Cette configuration permettra d'étudier les interfaces métal/diélectrique.

Dans le but d'obtenir l'équivalent d'une répartition de charges en volume, également appelé profil de charge d'espace, nous avons développé des structures à électrodes latérales et utilisé la technique AM-KPFM pour sonder les charges. On contourne ainsi le problème de la faible résolution des techniques classiques de mesures de charge d'espace, non applicables pour des films minces. Toutefois, la résolution latérale du AM-KPFM dans la configuration utilisée est au mieux de 100nm, ainsi il serait intéressant d'utiliser d'autres techniques avec une meilleure résolution latérale (FM-KPFM, EFM) pour affiner les résultats obtenus.

De plus, le rôle de l'électrode lors de la dépolarisation est encore relativement flou. Ainsi des tests devront être effectués avec les électrodes à la masse pendant la dépolarisation, avec une tension appliquée de 0V, ou encore en appliquant une tension opposée. Ces tests permettront d'établir le rôle des électrodes dans la dépolarisation et ainsi de déconvoluer l'effet des électrodes avec les mécanismes de dissipation de charges.

Enfin, des mesures de courants entre les électrodes lors de la polarisation permettraient d'obtenir des informations sur les mécanismes de transport entre les électrodes.

Bibliographie :

- [1] U. Zaghloul, *“Caractérisation à l’échelle nanométrique et macroscopique, des phénomènes de chargement des diélectriques et des mécanismes d’adhérence pour la fiabilité des micro-nano système à actionnement électronique”*, Thèse, LAAS-CNRS, 2011
- [2] D. Ziegler, N. Naujoks and A., *“Stemmer Feed-forward compensation of surface potential in atomic force microscopy”*, Review of Sci. Instrum., vol. 79, 063704, 2008
- [3] H. O. Jacobs, P. Leuchtman, O. J. Homan, and A. Stemmer, *“Resolution and contrast in Kelvin probe force microscopy”*, J. App. Phys., vol. 84, 3, 1998
- [4] K. Makasheva, B. Despax, L. Boudou and G. Teyssedre, *“Dielectric layer for RF-MEMS switches: design and study of appropriate structures preventing electrostatic charging”*, IEEE Trans. Dielectr. Insul., vol. 19, 1195, 2012.
- [5] T. Okamoto, S. Kitagawa, N. Inoue, and A. Ando, *“Electric Field concentration in the vicinity of interface between anode and degraded BaTiO₃-based ceramics in multilayer ceramic capacitor”*, App. Phys. Lett., vol. 98, 072905, 2011
- [6] F. Robin, H. Jacobs, O. Homan, A. Stemmer, and W. Bächtold, *“Investigation of the cleaved surface of a p-i-n laser using Kelvin Probe Microscopy and two-dimensional physical simulation”*, App. Phys. Lett., Vol. 76, num. 20, 2000
- [7] P. J. Shaw and D. J. Rawlins, *“The point-spread function of a confocal microscope: its measurement and use in deconvolution in 3-D data”*, J. Microscopy, vol. 163, pp. 151-165, 1991
- [8] J. Lambert, G. de Loubens, C. Guthmann, and M. Saint-Jean, *“Dispersive charge transport along the surface of an insulating layer observed by electrostatic force microscopy”*, Phys. Rev. B, vol. 71, 155418, 2005

Conclusions générales et perspectives

Dans cette thèse nous recherchions à mettre en évidence les mécanismes d'injection, la localisation des charges en volume, ainsi que la mobilité des charges injectées sous l'effet d'un champ électrique.

Pour cela, nous avons étudié l'effet de l'épaisseur du film de SiO_xN_y sur les mécanismes d'injection, puis nous nous sommes concentrés sur l'étude en surface d'un film mince de SiN_x soumis à un champ électrique latéral (pour reproduire au mieux une polarisation en volume). Pour les deux cas étudiés les structures proposées ont permis d'obtenir des informations intéressantes.

Pour le cas de l'injection locale par la pointe AFM dans une couche de SiO_xN_y d'épaisseur variable (6, 11, 15, 31, 50, 68 et 130nm), nous avons pu observer et mettre en évidence différents phénomènes, grâce aux mesures de potentiel de surface et de courant couplées à la modélisation du champ électrique par éléments finis. Nous avons montré que l'épaisseur de la couche de diélectrique joue un rôle important:

- Pour de faibles épaisseurs (inférieures à 11nm), les conditions d'injection n'ont que peu d'influence sur la densité de charges injectées dans la couche car une partie des charges injectées passe directement dans le plan d'or sous-jacent. Ainsi, nous montrons que pour les très faibles épaisseurs deux mécanismes d'injection sont en compétition : la conduction et le piégeage de charges, avec la conduction comme mécanisme prépondérant.
- Pour un film d'épaisseur moyenne (15-50nm), la durée et le champ d'injection influencent le profil de potentiel induit par les charges. Une augmentation progressive de la densité de charges injectées avec la durée d'injection est observée, puis un phénomène de saturation apparaît (plus tardivement lorsque l'épaisseur du film de SiO_xN_y augmente). De plus, un courant a pu être mesuré, lors de l'injection, entre la pointe et le plan d'or, avec un seuil d'apparition augmentant avec l'épaisseur. Pour ces épaisseurs le phénomène de piégeage semble prépondérant par rapport à la conduction.
- Enfin pour les films d'épaisseurs supérieures à 68nm, seule une augmentation de la densité de charges injectées avec la durée et le champ d'injection est observée, ce qui va de pair avec l'absence de courant d'injection mesuré. Les durées d'injection testées n'excédant pas 10min, il est possible que le phénomène de saturation apparaisse au-delà. Ainsi, le mécanisme majoritaire est le piégeage de charges, en surface et en volume.

La saturation observée a été attribuée soit à l'occupation des pièges disponibles, soit à un état d'équilibre entre la conduction et l'injection, soit à une autolimitation de l'injection par le champ induit par les charges piégées. Les deux premières hypothèses sont plus probables. Un moyen de les discriminer serait de mener une étude avec différents métaux recouvrant la pointe, ce qui permettrait de faire varier le travail de sortie et ainsi le nombre de charges injectées en conservant un champ électrique identique.

La problématique de la répartition des charges en volume n'a été que partiellement abordée. En effet, si pour un film de faible épaisseur on peut émettre l'hypothèse d'une répartition homogène des charges dans le volume, cela n'est plus le cas pour les films d'épaisseur supérieure. Ainsi la répartition des charges dépendra de l'épaisseur de la couche mais aussi du champ électrique appliquée lors de l'injection. Toutefois, grâce à l'étude de la polarisation par des électrodes latérales, nous avons pu mettre en évidence que les charges sont injectées de la surface du diélectrique à plusieurs micromètres des électrodes. Ce qui montre en première approximation que la répartition des charges dans le volume pour une injection locale serait sur toute l'épaisseur des films que nous avons testés. Ainsi la densité de charge dépend de l'épaisseur de la couche, du champ électrique mais aussi de la position dans le volume.

Dans le but d'améliorer la compréhension concernant la localisation des charges à la surface et en volume, il serait intéressant d'essayer d'autres techniques de mesure (tel que le FM-KPFM), ou encore de modéliser le potentiel de surface dû à une distribution de charges électriques dans le volume en faisant varier l'enfouissement et la densité. En comparant la modélisation avec des résultats plus précis latéralement, on devrait obtenir des informations sur la densité de charge à la surface.

L'étude sur les électrodes latérales a permis de montrer quatre aspects : le développement de la méthode et ses limites, les mécanismes d'injection aux interfaces, la mobilité des charges sous l'effet d'un champ électrique et l'effet d'un gap entre l'électrode et le diélectrique.

Un des résultats majeurs de cette partie porte sur la mise au point du protocole de mesure de charges lors de l'injection par des électrodes latérales. Nous avons pu montrer l'importance de la qualité de l'interface entre le diélectrique et les électrodes ainsi que l'importance de réaliser les mesures hors polarisation. Les résultats obtenus, bien que préliminaires, sont très prometteurs. D'un point de vue expérimental, nous avons montré que la résolution de la mesure est limitée par l'expansion latérale du profil de potentiel induit par la charge injectée, et par la référence de potentiel qui doit être prise (ici le retour à zéro entre les deux pics de potentiel dû aux charges injectées aux interfaces). L'injection aux interfaces est pilotée principalement par le renforcement de

champ local (dix fois le champ électrique global dans notre configuration). De plus, le champ électrique latéral induit un déplacement des charges vers les électrodes opposées, et on retrouve un phénomène de saturation après une certaine durée d'injection (variable selon l'électrode). La mobilité des charges injectées aux interfaces est probablement due à un phénomène de répulsion avec les électrodes adjacentes, et est principalement piloté par le champ électrique global (champ électrique moyen entre les électrodes plus le champ induit par les charges). Et enfin, le gap a pour effet de bloquer l'injection de charges aux interfaces sans perturber le champ électrique moyen entre les électrodes.

Pour améliorer la compréhension des mécanismes d'injection, la détermination d'un seuil d'énergie ou de barrière de potentiel en fonction des paramètres de la pointe (rayon de courbure, métal) est envisageable. De plus, développer un modèle prenant en compte des charges électriques piégées et réparties dans le volume du diélectrique lors du calcul du champ électrique permettrait de mieux comprendre les phénomènes de saturation observés. Enfin, un couplage entre les mesures KPFM avec d'autres techniques (telle que l'EFDC – Electrostatic Force Distance Curve) pourrait apporter des informations supplémentaires sur la répartition des charges dans le volume.

En outre, la précision de la méthode de mesure proposée pour la polarisation latérale d'un film diélectrique est encore mal définie, la répétabilité de la mesure doit être étudiée. Les effets locaux de la géométrie doivent être appréciés pour en estimer l'importance. Les deux configurations avec et sans gap d'air entre les électrodes et le diélectrique pourront donner des réponses sur les mécanismes d'injection aux interfaces, de conduction et sur la mobilité des charges sous l'effet d'un champ électrique (le gap d'air pouvant être utilisé comme électrode bloquant l'injection). En effet, il sera possible de faire varier la barrière de potentiel entre le diélectrique et le métal en changeant le métal, ainsi on pourra observer les variations sur les profils de potentiel pour en déduire des comportements d'injection. On pourrait également envisager de coupler la polarisation entre des électrodes latérales avec une mesure du courant entre ces mêmes électrodes, ce qui permettrait de vérifier la présence ou non d'un phénomène de conduction au travers du diélectrique.