

Défiabilisation des composants nanoélectroniques par des éléments radioactifs naturels

Abdelhakim Kaouache

▶ To cite this version:

Abdelhakim Kaouache. Défiabilisation des composants nanoélectroniques par des éléments radioactifs naturels. Optique / photonique. Université Montpellier II - Sciences et Techniques du Languedoc, 2014. Français. NNT: 2014MON20166 . tel-01810943

HAL Id: tel-01810943 https://theses.hal.science/tel-01810943

Submitted on 8 Jun 2018

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.





Délivré par UNIVERSITE MONTPELLIER 2

Préparée au sein de l'école doctorale Information Structures et Systèmes Et de l'unité de recherche Institut d'Electronique et des Systèmes

Spécialité : Electronique

Présentée par Abdelhakim KAOUACHE

Défiabilisation des composants nanoélectroniques par des éléments radioactifs naturels

Soutenue le 18/12/2014 devant le jury composé de

Mr. Frédéric WROBEL, Pr., UM2 Mr. Frédéric SAIGNE, Pr., UM2 Mr. Jean-Luc LERAY, Dir. de Recherche, CEA Mr. Bruno BARELAUD, Pr., XLIM Mr. Patrick AUSTIN, Pr., Université Toulouse III Mr. François BRAUD, E. Manager, Atmel

Directeur de thèse Co-directeur de thèse Rapporteur Rapporteur Examinateur Examinateur



Table des matières

INT	RODUCTION GENERALE	. 6
CHA	APITRE I	.9
LES DAN	ELEMENTS RADIOACTIFS NATURELS SUSCEPTIBLES DE DECLENCHER DES ALEAS LOGIQUES NS LES MEMOIRES	.9
1.	INTRODUCTION	. 9
2.	LES EFFETS SINGULIERS (SINGLE EVENT EFFECTS)	. 9
3.	LES ALEAS LOGIQUES	10
4.	LA RADIOACTIVITE NATURELLE	11
4. 4.	 1 LOI DE DESINTEGRATION RADIOACTIVE 2 LES EMETTEURS ALPHA NATURELS SUSCEPTIBLES DE DECLENCHER DES ALEAS LOGIQUES DANS LES 	11
м 4.	 4.2.1 Les éléments introduits (ou susceptibles d'être introduits) ayant des isotopes émetteurs alpha 4.2.2 Les impuretés radioactives	12 <i>13</i> <i>14</i> 15
5	QUELQUES NOTIONS UTILES SUR L'INTERACTION ION-MATIERE	16
5. 5. 5. 5.	 LA COLLISION ELASTIQUE ET LE POUVOIR D'ARRET NUCLEAIRE LA COLLISION INELASTIQUE ET LE POUVOIR D'ARRET ELECTRONIQUE LE POUVOIR D'ARRET TOTAL PARCOURS D'UN ION (<i>RANGE R</i>) 	16 17 19 20
6	L'EMISSIVITE	20
6. 6.	.1 L'EMISSIVITE ET LA CLASSIFICATION DES MATERIAUX	20 21
7	LE TAUX D'ERREURS	23
7. 7. 7.	 LE TAUX D'ERREURS DU AUX IMPURETES RADIOACTIVES OBTENU PAR SIMULATION LE TAUX D'ERREURS DECLENCHEES PAR LE SAMARIUM ET LE PLATINE MESURE EXPERIMENTALE DU TAUX D'ERREURS (PRODUIT PAR LES IMPURETES RADIOACTIVES) 	23 24 25
8	CONCLUSIONS	25
REF	FERENCES (CHAPITRE I)	26
СНА	APITRE II	28
L'EF	FET DU DESEQUILIBRE DES CHAINES RADIOACTIVES SUR L'EMISSIVITE ALPHA	28
2.	DETERMINATION ANALYTIQUE DE L'EMISSIVITE	29
2. 2.	.1. APPROCHE SIMPLIFIEE : CAS DE L'EQUILIBRE SECULAIRE .2. CAS DU DESEQUILIBRE	29 32

.1.	APPROCHE SIMPLIFIEE : CAS DE L'EQUILIBRE SECULAIRE 2	9
.2.	CAS DU DESEOUILIBRE	2
2.2.1	Mise en évidence expérimentale	2
2.2.2	2. Expression analytique de l'émissivité	2

3. EN	MISSIVITE DE LA CHAINE DU THORIUM			
3.1.	ENRICHISSEMENT D'UN RADIOELEMENT DE LA CHAINE DU THORIUM			
3.2.	CAS DE L'ENRICHISSEMENT D'UN EMETTEUR ALPHA			
3.3.	CAS DE L'ENRICHISSEMENT D'UN EMETTEUR BETA			
4. EN	AISSIVITE DE LA CHAINE DE L'URANIUM			
4.1.	ENRICHISSEMENT D'UN RADIOELEMENT DE LA CHAINE DE L'URANIUM			
4.2.	CAS DE L'ENRICHISSEMENT D'UN EMETTEUR ALPHA			
4.3.	CAS DE L'ENRICHISSEMENT D'UN EMETTEUR BETA			
5. RE	ESUME DES EMETTEURS CRITIQUES			
6. AF	PPLICATION DU FORMALISME AU DEPOT DE PLOMB SUR UN WAFER			
7. CC	DNCLUSIONS ET PERSPECTIVES			
RÉFÉR	ENCES (CHAPITRE II)			
СНАРІТ		48		
ÉVALU		40		
EVALU	ATION DU TAUX D'ERREURS DU AUX IMPURETES RADIOACTIVES			
1. IN	TRODUCTION			
2. UN	N MODELE BASE SUR DES CONSIDERATIONS GEOMETRIQUES			
2.1.	LA PROBABILITE GEOMETRIQUE			
2.2.	L'EXPRESSION DU TAUX D'ERREURS			
2.2	2.1. Le taux d'erreurs élémentaire			
2.2	2.2. Le taux d'erreurs total			
2.4	<i>L'expression analytique simplifiee du taux d'erreurs</i>			
2.3. 2.4	DESULTATS			
2.4.	IMPACT DU DAVON RS DU VOLUME SENSIBLE SUD LE TAUX D'EDDEUDS			
2.5.	GENERALISATION A UNE STRUCTURE INCLUANT LE PACKAGING			
3. PR	RISE EN COMPTE DE LA CHARGE CRITIOUE			
2 1		64		
3.1.	CORRECTION DE LA PROBABILITE GEOMETPIQUE			
3.2. 3.3	LET SEUIL POUR DECIENCHER UN ALEA LOGIOUE	50		
3.4.	RESULTATS			
4 CC	ONCLUSIONS	60		
T. CO				
KEFEK.	ENCES (UNAFIIKE III)			

CH A	APITRE IV	. 72
INV UTI	ESTIGATION DE L'ETAT DE DESEQUILIBRE DES CHAINES DE L'URANIUM ET DU THORIUM EN LISANT LES TECHNIQUES DE SPECTROSCOPIE ALPHA, GAMMA ET L'ICP-MS	. 72
1.	INTRODUCTION	. 72
2.	LES NOTIONS DE CARACTERISATION ET LES UNITES DE MESURES	. 73
3.	LES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX	. 74

3.1 LA SPECTROSCOPIE GAMMA	74
3.1.1 Le spectromètre gamma utilisé	74
3.1.2 La mesure de l'activité de différents matériaux en fonction de leurs grades de pureté	75
3.2 L'ICP-MS (INDUCTIVELY COUPLED PLASMA MASS SPECTROMETRY)	77
3.2.1 L'équipement ICPMS utilisé	77
3.2.2 Protocole de préparation des échantillons	79
3.2.3 Les mesures ICPMS dans l'aluminium	81
3.3 LA SPECTROSCOPIE ALPHA	82
3.3.1 Le spectromètre Alpha XIA et son principe de fonctionnement	82
3.3.2 Les mesures de l'émissivité dans le silicium et l'aluminium	83
4. ANALYSE D'UN ECHANTILLON D'ALUMINIUM EN UTILISANT LA SPECTROSCOPIE ALPHA ET L'ICPMS	E GAMMA, 85
4.1 LE DESEQUILIBRE RADIOACTIF DANS UNE FEUILLE D'ALUMINIUM	85
4.2 IMPACT DU GRADE DE PURETE	87
4.3 L'EMISSIVITE DUE A L'EVOLUTION TEMPORELLE DE L'ETAT RADIOACTIF DES CHAINES	88
4.3.1 L'état radioactif initial mesuré	88
4.3.2 L'évolution de l'émissivité dans le meilleur cas	89
4.3.3 L'évolution de l'émissivité dans le pire cas	
5. CONCLUSIONS	93
RÉFÉRENCES (CHAPITRE IV)	
CONCLUSION GENERALE	97

ANNEXE I-A LA CHAINE DE L'URANIUM ET DU THORIUM	100
ANNEXE I-B	102
L'EMISSIVITE ALPHA ET LA CONCENTRATION RADIOACTIVE	102
ANNEXE II-A	104
PARCOURS D'UNE PARTICULE ALPHA EN FONCTION DE SON ENERGIE D'EMISSION	104
ANNEXE III-A	106
LE VOLUME SENSIBLE ET LA CHARGE CRITIQUE DES TECHNOLOGIES EN DESSOUS DE 65 NM	106
LISTE DES PUBLICATIONS ET CONFERENCES NATIONALES ET INTERNATIONALES	109

Introduction générale

Dans le cadre de la course à l'intégration des technologies à base de transistors MOS, l'industrie de la microélectronique avancée et de la nanoélectronique a été confrontée à de nombreuses contraintes physiques et technologiques. Parmi ces contraintes, nous pouvons mentionner les interférences et les diffractions qui se produisent pendant l'insolation de la résine, la réduction de la tension de seuil du transistor, la dégradation de la pente sous le seuil et le courant de fuite à travers l'oxyde de grille par effet tunnel.

En plus de ces contraintes, cette industrie doit faire face à des problèmes liés aux effets des radiations sur les composants électroniques. On parle d'effets singuliers, d'effets de dose et de défauts de déplacement. Le déclenchement d'un effet donné dépend du composant électronique en question, du temps considéré et du type d'interaction rayonnement-matière. En effet, les produits d'une telle interaction dépendent de la nature et de l'énergie des particules incidentes ainsi que de la nature des atomes du milieu. Afin d'assurer une meilleure fiabilité des composants et des systèmes électroniques, l'industrie doit prendre en compte ces effets.

Dans le cadre de cette thématique, le sujet de cette thèse est consacré à l'étude de la défiabilisation des composants nanoélectroniques par des éléments radioactifs naturels. En particulier, nous nous intéressons aux aléas logiques issus de la radioactivité naturelle au niveau des mémoires SRAM et DRAM. L'émission d'une particule alpha émise lors du processus naturel de radioactivité est en effet capable de provoquer une erreur logique dans ce type de mémoire.

L'industrie de la microélectronique a introduit de nouveaux matériaux pour faire face aux problèmes liés à l'intégration croissante des technologies MOS. Nous pouvons, par exemple, évoquer le remplacement de l'empilement de grille polysilicium/SiO₂ par de nouveaux couples métal/diélectrique à forte permittivité comme le platine/silicium (Pt/Si), le cobalt/silicium (Co/Si), le tungstène/silicium (W/Si) et aussi d'autres matériaux introduits pour réaliser des oxydes à haute permittivité (*high-K*) comme HfO₂ et Al₂O₃. Malheureusement, certains éléments comme l'hafnium contiennent des isotopes radioactifs capables d'émettre des particules alpha avec des énergies de l'ordre de quelques Mega électron-Volt (MeV). Sous certaines conditions, ces particules ont la possibilité de déclencher un changement d'état logique des bits mémoires.

À ceci s'ajoute les impuretés radioactives naturellement présentes dans tous les matériaux et notamment dans ceux utilisés dans la microélectronique. Ces impuretés sont les radioéléments des chaines de l'uranium ²³⁸U et du thorium ²³²Th. Ces deux chaines sont capables également d'émettre des particules alpha avec des énergies de l'ordre de 4 à 9 MeV largement suffisantes pour déclencher des erreurs logiques.

Un des enjeux actuels concerne l'équilibre séculaire de la chaine de désintégration qui peut être perturbé lors des étapes de purification ou de fabrication. Dans un état de déséquilibre provoqué par un enrichissement d'un isotope ou plusieurs isotopes de la chaine, le taux des erreurs logiques est susceptible d'augmenter et atteindre un niveau inacceptable (typiquement supérieur à 1000 FIT¹/Mbit). Une investigation du déséquilibre permettrait d'anticiper cette augmentation.

La problématique des éléments radioactifs naturels s'est aggravée encore plus par la modification des règles de design nécessaire pour permettre l'intégration croissante des composants électroniques. Cette modification a mis les zones sensibles des mémoires à la portée des particules alpha issues de la radioactivité naturelle des nouveaux matériaux mais aussi des impuretés radioactives que l'on retrouve dans tous les matériaux. Dans tous les cas, cette problématique liée à ces particules se traduit par une information erronée pouvant être critique lorsque la sécurité des biens et des personnes est en jeu. Par suite, l'objectif principal de cette étude est la mise au point de méthodes d'évaluation des risques associés à une technologie donnée en vue de proposer des solutions technologiques.

Pour débuter une telle étude il faut évidemment une large connaissance bibliographique des effets singuliers déclenchés par les particules alpha au niveau des mémoires. Une compréhension profonde des mécanismes de déclenchement des aléas logiques est également nécessaire. Afin d'atteindre l'objectif de cette étude, nous avons opté pour une approche à la fois théorique et expérimentale. Le manuscrit s'articule en quatre chapitres.

Dans le premier chapitre, nous rappelons les définitions des principales notions utilisées dans notre étude (aléa logique, pouvoir d'arrêt nucléaire et électronique, parcours d'un ion dans la matière, émissivité, taux d'erreurs). Nous abordons le processus de radioactivité naturelle responsable de l'émission des différentes particules (α , β , γ) et les lois qui décrivent ces émissions. Par ailleurs, nous décrivons les différentes interactions possibles lorsqu'un ion traverse la matière. Ensuite, nous comparons le taux d'erreurs déclenchées par les particules alpha avec celui des erreurs déclenchées par les neutrons. Finalement, nous présentons l'évaluation du taux d'erreurs obtenue par simulation dans le cadre de l'approximation de l'équilibre séculaire et les mesures expérimentales effectuées sur quelques technologies.

Le second chapitre est consacré à l'étude de l'effet du déséquilibre des chaines radioactives sur l'émissivité des matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires. Un modèle analytique de l'émissivité est généralisé à cet état de déséquilibre et est utilisé ensuite pour étudier l'évolution temporelle de l'émissivité après l'enrichissement d'un émetteur de la chaine de l'uranium ou du thorium.

¹ FIT : Failure In Time

Dans le troisième chapitre, nous proposons une méthode analytique qui permet de donner un ordre de grandeur du taux d'erreurs dû aux impuretés radioactives pour les technologies les plus intégrées dans un état d'équilibre séculaire mais aussi de déséquilibre.

Le dernier chapitre est consacré entièrement à l'approche expérimentale. Cette approche consiste à mener une investigation de l'état radioactif de la chaine de l'uranium et du thorium dans les différents matériaux utilisés pour la fabrication des mémoires en utilisant trois techniques complémentaires : la spectroscopie alpha, la spectroscopie gamma et l'ICPMS.

Chapitre I

Les éléments radioactifs naturels susceptibles de déclencher des aléas logiques dans les mémoires

1. Introduction

Une compréhension profonde des aléas logiques déclenchés au niveau des mémoires par les éléments radioactifs est primordiale pour aborder les différents aspects de notre sujet. À cette fin, après avoir défini le contexte du sujet, nous décrirons les caractéristiques du processus de radioactivité naturelle responsable de l'émission des particules alpha. Ensuite, nous recenserons les différents radioéléments naturels émetteurs alpha connus à ce jour. Nous nous pencherons alors sur les différents types d'interactions qui existent entre une particule alpha et la matière en rappelant la notion de pouvoir d'arrêt qui décrit la perte d'énergie de l'ion au cours de son parcours. Nous présenterons la notion d'émissivité qui permet de classer la qualité des matériaux utilisés dans l'industrie de la microélectronique. Dans la dernière partie de ce chapitre, nous donnerons quelques éléments sur l'évaluation du taux d'erreurs dans les mémoires.

2. Les effets singuliers (Single Event Effects)

Les effets singuliers (SEE : *Single Event Effects*) sont des dysfonctionnements induits par une particule unique dans les composants électroniques. On distingue souvent les effets destructifs (ou hard) et des effets non-destructifs (soft).

Parmi les effets destructifs, on trouve, à titre d'exemple, le SEGR (*Single Event Gate Rupture*) qui correspond au claquage de l'oxyde de grille induit par le passage d'un ion lourd et le SEB (*Single Event Burnout*) qui correspond à la destruction des transistors par échauffement excessif [1].

Les effets non-destructifs sont capables d'entrainer un dysfonctionnement temporaire ou une modification des données stockées au niveau du dispositif. Parmi ces erreurs, on trouve le SEFI (*Single Event Function Interruption*) qui présente un dysfonctionnement temporaire du système électronique causé par un basculement d'un bit mémoire dans un registre critique [2]. Dans cette catégorie, on trouve également le SEL (*Single Event Latchup*) qui correspond à la mise en conduction d'une structure thyristor parasite qui peut être destructif par échauffement dans certains cas et finalement le SEU (*Single Event Upset*) qui fera l'objet de cette étude. La figure 1 résume l'ensemble des effets singuliers.



Figure 1. Les effets singuliers : SEGR (Single Event Gate Rupture), SEB (Single Event Burnout),
 SEFI (Single Event Function Interruption), SHE (Single Hard Error), SEL (Single Event Latchup),
 SEU (Single Event Upset), SBU (Single Bit Upset) et MCU (Multiple Cell Upset).

3. Les aléas logiques

Les *Single Event Upsets* (SEU), ou aléas logiques, correspondent au changement d'état logique (de 0 à 1 ou vice versa) d'un point mémoire, notamment dans les mémoires volatiles (les SRAM et les DRAM). Par conséquent, un SEU peut provoquer un dysfonctionnement temporaire des systèmes électroniques intégrant ce type de mémoires.

Lorsqu'un seul bit est concerné on parle de SBU (*Single Bit Upset*). Par contre, on parle de MCU (*Multiple Cell Upset*) quand la particule provoque le basculement logique de plusieurs bits à la fois. Le MBU est un cas particulier de MCU. Il se produit si les bits affectés appartiennent au même mot logique. Les codes correcteurs d'erreurs basiques sont mis en défaut par ce type de dysfonctionnement.

La première mise en évidence au niveau du sol des erreurs soft dues aux particules alpha émises par les matériaux utilisés dans le packaging a été décrite en 1978 par Timothy C. May et M. H. Woods [3]. En 1979, James Ziegler d'IBM et W. Lanford de l'université de Yale ont décrit le mécanisme par lequel un rayonnement cosmique au niveau de la mer pouvait provoquer un SEU dans les dispositifs électroniques [4].

Au niveau du sol, on peut distinguer trois sources de radiations indépendantes capables de déclencher les aléas logiques dans les systèmes électroniques intégrant des mémoires à base de semiconducteurs [5] :

1. Les particules alpha émises par les éléments radioactifs présents dans les matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires. Ces effets feront l'objet de notre étude.

- 2. Les neutrons de haute énergie $E_n > 1$ MeV issus du rayonnement cosmique. Ces neutrons déclenchent des réactions nucléaires avec les noyaux des atomes de silicium au sein même du composant.
- 3. Les neutrons thermiques (25 meV). Ces neutrons interagissent avec les noyaux des atomes de bore 10 en libérant une énergie de plusieurs MeV.

De manière générale, ces erreurs logiques peuvent être provoquées par des particules non chargées (les neutrons) [6] ou chargées (ions lourds, protons) sous certaines conditions [7]. En effet, l'apparition d'un SEU dépend de la zone du point mémoire dans laquelle la particule interagit. Cette zone est définie par la notion de « **volume sensible** ». De plus, cela dépend de la charge créée par ionisation lors de l'interaction de la particule avec cette zone cible par rapport à la sensibilité du composant définie par la notion de « **charge critique** ». Cette dernière est définie comme étant la quantité de charge minimale à créer dans le volume sensible pour induire un aléa logique. Les valeurs de ces deux paramètres (volume sensible et charge critique) varient en fonction de la technologie.

Le nombre d'aléas logiques par unité de temps s'exprime avec le SER (*Soft Error Rate*) qui est généralement exprimé en FIT/Mbit. Un FIT/Mbit (*Failure In Time per Mbit*) correspond au nombre d'erreurs enregistrées pendant un milliard d'heures de fonctionnement d'un Megabit de mémoire (soit environ 100 000 ans).

4. La radioactivité naturelle

4.1 Loi de désintégration radioactive

La radioactivité naturelle est une propriété des noyaux atomiques au cours de laquelle ces noyaux instables se transforment spontanément pour donner naissance à des noyaux de structure chimique différente contrairement à une réaction chimique. Un radioélément conserve la même radioactivité quelle que soit les atomes de la structure chimique auxquelles ses atomes se trouvent liés. Par exemple, les composés naturels de l'uranium possèdent la même radioactivité que le métal pur extrait de ses minerais. Les études de ce phénomène montrent aussi que les propriétés chimiques des isotopes radioactifs sont les mêmes que celles des isotopes stables.

Ce type de transmutations nucléaires est appelé « désintégration ». Elle s'accompagne, en plus de la formation d'un noyau différent (appelé noyau fils), de l'émission de rayonnements divers en forme de particules chargées (élémentaires ou composées) ou de particules messagères. Les particules chargées peuvent être des noyaux d'hélium ⁴₂He, des électrons β^- ou des positrons β^+ . On parle également de radioactivité gamma lorsqu'un noyau élimine son surplus d'énergie en émettant un photon pour retrouver son état fondamental. Au final, on parle des modes de désintégration α , β et γ .

La quantification de l'activité radioactive d'un échantillon peut être exprimée par le nombre de désintégrations (nombre d'atomes radioactifs désintégrés) par unité de temps. L'instant où la

désintégration survient est imprévisible, autrement dit, la désintégration est régie par le hasard. Cependant, l'expérience a permis à Rutherford et Soddy [8] de formuler la loi de désintégration radioactive qui est le résultat statistique d'un très grand nombre de désintégrations individuelles. Selon cette loi, le nombre N(t) de radioéléments décroit exponentiellement en fonction du temps c'est-àdire :

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} \tag{1}$$

où N_0 est le nombre initial d'atomes radioactifs (à t = 0) et λ est la constante de désintégration de cet élément. Sachant que le temps de demi-vie $T_{1/2}$ d'un radioélément correspond à la durée au bout de laquelle le nombre des atomes radioactifs initialement présents dans l'échantillon est réduit de moitié, la constante de désintégration d'un élément est liée à son temps de demi-vie $T_{1/2}$ par la relation $\lambda =$ $\frac{ln(2)}{T_{1/2}}\,.$

4.2 Les émetteurs alpha naturels susceptibles de déclencher des aléas logiques dans les mémoires

Les données fournies par la librairie RIPL (Reference Inpur Parameter Library) [9] montrent qu'il y a 526 éléments radioactifs (tout émetteur confondu : α , β ou y) parmi tous les noyaux connus.

Les expériences faites depuis la découverte des aléas logiques ont montré que, parmi les particules émises, seules les particules alpha sont capables de déclencher un basculement au niveau des mémoires [3]. Actuellement, ces particules sont toujours considérées parmi les principales causes responsables (en plus des neutrons) des problèmes de fiabilité liés aux aléas logiques pour les applications au niveau du sol. En effet, il est considéré que les interactions des particules β et γ émises par les éléments radioactifs avec la matière ne déposent pas assez d'énergie localement pour avoir un effet singulier significatif sur les composants. Par la suite, nous nous intéressons donc uniquement aux aléas logiques déclenchés par les particules alpha.

Dans l'ensemble des éléments radioactifs (les 526 éléments), il existe dix émetteurs alpha naturels sur Terre. Ces émetteurs alpha sont : ²³⁸U, ²³⁴U, ²³²Th, ¹⁹⁰Pt, ¹⁴⁴Nd, ¹⁵²Gd, ¹⁴⁸Sm, ¹⁸⁷Re, ¹⁸⁶Os et ¹⁷⁴Hf [10]. Les temps de demi-vie assez longs qui caractérisent ces émetteurs expliquent leur existence dans la nature car ils n'ont pas eu assez de temps pour se désintégrer complètement depuis la formation de la Terre.

Afin de remédier aux problèmes générés par l'intégration croissante des technologies à base de transistors MOS (contraintes technologiques et physiques), de nouveaux matériaux sont introduits au niveau de l'oxyde et du métal de grille. Ces matériaux sont susceptibles de contenir des isotopes radioactifs naturels émetteurs des particules alpha. Ainsi, les dix émetteurs alpha naturels peuvent être classés selon deux groupes. Le premier concerne les émetteurs alpha introduits (ou susceptibles d'être introduits) dans les circuits-intégrés : il s'agit de matériaux qui ont des isotopes naturellement radioactifs. Le second groupe concerne les impuretés radioactives contenues dans les chaines de désintégration de l'uranium et du thorium. Concernant l'uranium, on parle des chaines dont les noyaux pères sont l'²³⁸U et l'²³⁴U. Leurs abondances naturelles par rapport à l'uranium sont respectivement 99,2% et 0,7%. Quant au thorium, on parle uniquement du ²³²Th dont l'abondance naturelle est de 100% [10]. Ces impuretés se trouvent naturellement dans tous les matériaux qui nous entourent y compris ceux utilisés dans la fabrication des mémoires comme par exemple le silicium, le cuivre et l'aluminium.

4.2.1 Les éléments introduits (ou susceptibles d'être introduits) ayant des isotopes émetteurs alpha

Les caractéristiques des éléments radioactifs appartenant au premier groupe sont décrites dans le tableau 1. L'application du principe de la conservation de l'énergie énergie et de la quantité de mouvement permettent de trouver les énergies des particules alpha émises.

Isotope radioactif	Elément chimique	T _{1/2} (années)	Abondance naturelle (%)	Energie cinétique des α (MeV)
¹⁷⁴ Hf	Hafnium	$2,0 \cdot 10^{15}$	0,16	2,44
¹⁵² Gd	Gadolinium	1,08 · 10 ¹⁴	0,2	2,14-1,93-1,85
¹⁴⁴ Nd	Néodyme	2,29 · 10 ¹⁵	23,8	1,85
¹⁴⁸ Sm	Samarium	$7,0 \cdot 10^{15}$	11,24	1,93-1,85
¹⁴⁷ Sm		1,06 · 10 ¹¹	15	2,23
¹⁹⁰ Pt	Platine	$6,5 \cdot 10^{11}$	0,014	3,18-2,76
¹⁸⁷ Re	Rhénium	4,34 · 10 ¹⁰	11,24	1,93-1,85
¹⁸⁶ Os	Osmium	$2 \cdot 10^{15}$	1,59	2,76

Tableau I. Les émetteurs alpha introduits ou susceptibles d'être introduits dans l'industrie des circuits-intégrés (groupe I) [10][11].

4.2.2 Les impuretés radioactives

Les impuretés radioactives concernent les chaines de l'uranium et du thorium. Nous nous intéressons aux chaines les plus abondantes c'est-à-dire la chaine de l'uranium ²³⁸U et celle du thorium ²³²Th car la contribution de la chaine ²³⁵U aux aléas logiques est négligeable. Nous avons des désintégrations en cascade pour chaque chaine radioactive. Les figures 2 et 3 illustrent ces chaines de désintégrations. Plus de détails concernant le temps de demi-vie des radioéléments créés, l'énergie des particules émises et leurs probabilités d'émission sont donnés en annexe I-A.



*Figure 2. La chaine de l'uranium*²³⁸*U.*

La chaine du thorium présente une particularité. D'après la figure 3, le bismuth ${}^{212}_{83}Bi$ peut se désintégrer selon deux voies possibles en émettant soit des électrons (β ⁻) avec une probabilité de 64 %, soit des particules alpha avec une probabilité de 36 %.

Les deux tableaux 1 et 2 en annexe I-A montrent que la gamme d'énergie des particules α émises lors de la désintégration des radioéléments de la chaine de l'uranium ²³⁸U et celle du thorium ²³²Th est relativement grande (4-8,8 MeV). Les particules alpha ayant des énergies de cet ordre de grandeur sont capables de parcourir dans le silicium jusqu'à 60 µm environ (cf. I.5.5.4). Par conséquent, la contamination des matériaux autour des zones sensibles est critique jusqu'à plusieurs dizaines de microns.



Figure 3. La chaine du thorium ²³²Th.

4.3 La filiation radioactive et l'équilibre séculaire

De manière générale, lorsqu'un noyau créé par désintégration radioactive est lui-même instable, il se désintègre à son tour et la chaine de désintégrations radioactives ne s'arrête qu'avec la formation d'un noyau stable. L'ensemble des radioéléments qui proviennent du même noyau père constitue une chaine de désintégrations et on parle de filiation radioactive.

Le cas d'une filiation radioactive composée de deux noyaux radioactifs fut étudié par *Rutherford* et *Soddy* et généralisé par Bateman en 1910 [12] à p noyaux radioactifs tel que p > 2. Désignons par n le rang d'un radioélément dans une chaine radioactive composée de p noyaux radioactifs tel que $1 \le n \le p$ (par soucie de simplification, nous avons commencé de compter à partir de 1). Etant donné que l'activité $A_n(t)$ d'un radioélément n est définie par $A_n(t) = \lambda_n \cdot N_n(t)$, l'expression analytique de l'activité de ce radioélément peut être écrite sous la forme suivante :

$$A_n(t) = N_1 \cdot \prod_{i=1}^n \lambda_i \cdot \sum_{i=1}^n \left(\frac{e^{-\lambda_i \cdot t}}{\prod_{j=1}^n D_{i,j}} \right)$$
(2)

où λ_i , λ_j sont les coefficients de désintégration des radioéléments *i* et *j* de la chaine de désintégration et $D_{i,j} = \lambda_j - \lambda_i$ si $i \neq j$ ou $D_{i,j} = 1$ dans le cas contraire. Evidemment, N_1 est le nombre initial des atomes radioactifs (à t = 0) du noyau père, autrement dit, N_1 est lui-même N_0 utilisé dans l'équation (1). Un état d'équilibre séculaire correspond à un état où le noyau père et ses descendants ont tous la même activité. À l'aide de l'équation (2), on peut montrer que cet état est atteint pour la chaine de l'uranium ²³⁸U au bout de 3 millions d'année et seulement 35 ans pour la chaine du thorium ²³²Th. En comparaison avec l'âge de la Terre - environ cinq milliards d'années – on s'aperçoit que cet état d'équilibre est théoriquement atteint dans la nature depuis quelques milliards d'année. Cette condition d'équilibre signifie, en d'autres termes, que les rapports des concentrations relatives des différents radioéléments d'une chaine sont constants car, dans ce cas, on a :

$$\frac{N_j}{N_i} = \frac{\lambda_i}{\lambda_j} \tag{3}$$

À partir de l'instant où cet état est atteint, l'évolution temporelle de l'activité de chaque élément radioactif de la chaine de désintégration est gouvernée par la même équation, en l'occurrence l'équation (1).

Cependant, cet état d'équilibre séculaire est souvent perturbé par des facteurs naturels et industriels. En effet, vu l'âge de la Terre, les processus géologiques que subit un échantillon peuvent contribuer au déséquilibre en enrichissant ou en appauvrissant les noyaux radioactifs les uns par rapport aux autres [13]. Comme exemples de ces processus naturels, on peut mentionner l'érosion, l'évaporation et la sédimentation. En outre, les différents matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires comme le silicium, le cuivre et l'aluminium sont soumis à un nombre important de processus industriels complexes parmi lesquels la purification, l'évaporation et la fusion qui contribuent effectivement au déséquilibre de la chaine radioactive [14]. Néanmoins, la purification modérée des matériaux présentant une émissivité faible (*Low alpha*) ou très faible (*Ultra Low Alpha*) n'a pas un effet remarquable sur l'équilibre séculaire [15].

5 Quelques notions utiles sur l'interaction ion-matière

Etant donné que nous nous intéressons à la contribution des particules alpha au taux d'erreurs en termes d'aléas logiques, nous rappelons ici les différents mécanismes physiques qui se produisent pendant l'interaction d'un ion avec la matière. Quand un ion pénètre dans un matériau cible il y a deux effets principaux responsables de la perte d'énergie de la part de l'ion incident : la collision élastique et la collision inélastique.

5.1 La collision élastique et le pouvoir d'arrêt nucléaire

Ce type de collision se produit entre l'ion qui parcourt la matière et un noyau d'un atome du milieu cible. Dans ce cas, la collision entraine un transfert d'énergie du noyau incident au noyau du milieu et l'énergie cinétique totale du système avant et après cette collision est conservée. Ainsi, l'ion incident subit un ralentissement nucléaire alors que le noyau de l'atome cible, grâce à l'énergie cinétique acquise, vibre autour de sa position d'équilibre ou se déplace pour se fixer plus loin dans le matériau (noyau de recul). L'interaction entre l'ion incident et le champ coulombien de l'atome cible (le noyau chargé positivement et écranté par les électrons) sont responsables de cette collision élastique. La figure 4 illustre cette collision.



Figure 4. Illustration de la collision élastique entre un ion et un atome cible. **E** et **E**' sont les énergies de l'ion incident avant et après la collision respectivement. **E**'' est l'énergie acquise par l'atome cible.

La perte d'énergie de l'ion incident par unité de longueur dans cette collision élastique est quantifiée par **le pouvoir d'arrêt nucléaire** $\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{nuc}$. Il est décrit par une expression analytique proposée par Wilson [16]. Selon cette expression, le pouvoir d'arrêt nucléaire dépend de la masse et des numéros atomiques de l'ion cible et de l'ion incident. Il dépend également de l'énergie cinétique de l'ion incident. La figure 6 représente le pouvoir d'arrêt nucléaire d'une particule alpha en interaction avec le silicium dans une gamme d'énergie qui couvre les énergies d'émission par une impureté radioactive, c'est-à-dire dans la gamme [0-9] MeV.

5.2 La collision inélastique et le pouvoir d'arrêt électronique

La collision inélastique se produit entre l'ion incident et les électrons d'un atome du milieu. Cette interaction coulombienne entraine un transfert d'énergie de l'ion à un électron de l'atome cible. L'énergie cinétique n'est pas conservée puisqu'une partie de l'énergie incidente est utilisée pour briser la liaison atomique (U). Il s'agit donc d'une ionisation.



Figure 5. Illustration de la collision inélastique entre un ion et un atome cible. U est l'énergie de liaison de l'électron à son atome. (W-U) est l'énergie de l'électron avec laquelle est éjecté de l'atome cible.

La perte d'énergie due à l'ionisation de l'atome cible est exprimée par le pouvoir d'arrêt électronique $\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{ion}$.

L'allure du pouvoir d'arrêt électronique peut être expliquée par trois théories :

1. La théorie de Lindhard-Scharff [17] : une théorie valable à basse énergie cinétique (moins de quelques centaines de keV). Lindhard et Scharff ont montré que le pouvoir d'arrêt électronique dépend de façon linéaire de la vitesse de l'ion incident. Empiriquement, les résultats expérimentaux sont plutôt ajustés par une loi en puissance de l'énergie.

2. La théorie diélectrique [18] : cette théorie concerne la zone d'énergie intermédiaire entre les basses et les hautes énergies (80 MeV environ). Elle est basée sur l'équation de Poisson. Le pouvoir d'arrêt électronique atteint son maximum dans cette zone. Ce maximum est appelé **pic de Bragg**.

3. La théorie de Bethe-Bloch [19] : cette théorie est valable à plus hautes énergies (plus de 80 MeV environ). En effet dans cette gamme d'énergie, l'ion incident reste totalement épluché de ces électrons.

En définitive, le ralentissement électronique d'un ion dans la matière dépend du numéro atomique de l'ion cible, de l'ion incident et l'énergie cinétique de ce dernier mais il ne peut pas dépendre de la masse des ions en interaction. Plus un ion est chargé et plus son pic de Bragg a une amplitude élevée. De plus, tous les isotopes d'un même élément ont, à vitesse égale, le même pouvoir d'arrêt électronique.

Dans le cadre de notre étude, les deux premières théories sont suffisantes pour donner une expression analytique au pouvoir d'arrêt électronique d'une particule alpha émise par une impureté radioactive. La figure 6 représente le pouvoir d'arrêt électronique d'une particule alpha en interaction avec le silicium en fonction de l'énergie de cette particule.

5.3 Le pouvoir d'arrêt total

Le pouvoir d'arrêt (nucléaire ou électronique) est une notion qui exprime la perte d'énergie par unité de longueur. Il caractérise le ralentissement d'un ion. Il peut être quantifié en terme de :

- MeV/µm ou keV/µm.
- MeV. cm²/mg ou MeV. cm²/g.
- pC/μm.

Le pouvoir d'arrêt total $\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{tot}$ est défini comme étant la somme du pouvoir d'arrêt électronique et le pouvoir d'arrêt nucléaire, c'est-à-dire :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{tot} = \left(-\frac{dE}{dx}\right)_{nuc} + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_{ion} \tag{4}$$

Il existe des logiciels qui permettent d'obtenir ces pouvoirs d'arrêt en fonction de l'énergie de l'ion incident tel SRIM [20]. La figure 6 compare les deux pouvoirs d'arrêt en question pour une particule alpha en fonction de son énergie dans le silicium.



Figure 6. Pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire d'une particule alpha en fonction de son énergie dans le silicium [21].

5.4 Parcours d'un ion (*Range R*)

Le parcours R d'un ion est la distance parcourue par l'ion avant d'être arrêté. Il se déduit directement du pouvoir d'arrêt total par la formule :

$$R = \int_{E_i}^0 \frac{1}{\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{tot}} \cdot dE$$
(5)

avec E_i l'énergie initiale de l'ion incident.

Le code TRIM [20] nous a permis d'établir la figure 7 qui montre les parcours d'une particule alpha émise avec une énergie de 0 à 10 MeV dans le silicium, l'oxyde de silicium, l'aluminium et le cuivre.



Figure 7. Le parcours d'une particule alpha émise avec une énergie de 0 à 10 MeV dans le silicium, l'oxyde de silicium, l'aluminium et le cuivre [20].

6 L'émissivité

6.1 L'émissivité et la classification des matériaux

L'émissivité alpha AER (*Alpha Emission Rate*) d'un matériau contaminé par des impuretés radioactives exprime le nombre de particules alpha émises depuis une couche de ce matériau par unité de surface et de temps et s'exprime généralement en $\alpha/hr.cm^2$. Cette grandeur peut être déterminée en

utilisant la technique de spectroscopie alpha (cf. chap IV). Selon les valeurs obtenues, les matériaux sont classés en quatre catégories : UA (*Uncontroled Alpha*), NA (*Normal Alpha*), LA (*Low Alpha*) et ULA (*Ultra Low Alpha*). La figure 8 illustre cette classification.



Figure 8. Classification des matériaux en fonction de leurs émissivités.

Cette classification permet de désigner le grade de pureté d'un matériau par rapport aux impuretés radioactives. C'est une information très importante pour les fabricants de mémoires car il leur est recommandé d'utiliser des matériaux de la classe ULA. Le tableau 2 présente la classification de quelques matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires en fonction de leurs émissivités [22].

Matériau	AER (α/hr.cm ²)	Classe de pureté
Wafer en fin de processus de fabrication (Fully Processed Wafer)	< 4 x 10 ^{- 4}	ULA
Couche de cuivre de 30 µm	< 3 x 10 ⁻⁴	ULA
Flip Chip Underfill	$7 \ge 10^{-4} \le \le 4 \ge 10^{-3}$	ULA - LA
Pb based Solder Bump	9 x 10 ⁻⁴ < < 7,2	ULA – LA – NA - UA

Tableau 2. L'émissivité de quelques matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires [22].

6.2 Le spectre d'énergie

Un spectromètre alpha permet d'obtenir le spectre d'énergie d'un matériau. Il exprime le nombre de particules alpha émises par ce matériau en fonction de leur énergie (l'énergie avec laquelle la particule alpha quitte le matériau). Sachant que l'énergie des particules alpha émises par une chaine de désintégration radioactive est bien définie (monoénergétique), l'intérêt de ce type de spectre est de déterminer les rapports des concentrations (descendant/père) dans cette chaine. Ces rapports permettent de recueillir des informations sur l'état radioactif de la chaine par rapport à l'équilibre séculaire.

La figure 9 montre ce spectre acquis expérimentalement pour une feuille épaisse de ²³²Th.



Figure 9. Le spectre d'énergie acquis expérimentalement pour une feuille épaisse de ²³²Th [5].

Ce spectre ne montre pas de pics d'énergie caractéristiques des énergies bien définies des particules alpha émises par la chaine du thorium ²³²Th (Tableau 2 de l'annexe I-A) car il couvre un intervalle continu d'énergie entre 2 MeV et 8,8 MeV. L'élargissement énergétique de ce spectre est dû à la perte d'énergie que les particules alpha subissent dans la couche épaisse de thorium avant de s'échapper du matériau (le parcours d'une particule alpha de 2 MeV dans le thorium est de 2,24 μ m et celui d'un alpha de 8,8 MeV est 30 μ m environ). Chaque spectromètre alpha est caractérisé par une énergie de seuil E_{th} à partir de laquelle la détection des particules alpha est possible. Celle du spectromètre alpha utilisé pour obtenir le spectre de la figure 9 est de 2 MeV. Du fait de l'élargissement des raies, ce spectre ne permet pas de trouver les concentrations des descendants radioactifs par rapport au noyau père. Un spectre d'énergie est exploitable s'il est obtenu depuis une couche suffisamment mince relativement aux parcours des particules alpha dans le matériau étudié.

La simulation Monte Carlo permet également d'obtenir le spectre d'énergie. La figure 10 présente la forme de ce spectre pour un wafer contaminé par la chaine de l'uranium ²³⁸U en supposant que cette chaine est dans un état d'équilibre séculaire.



Figure 10. Le spectre d'énergie obtenu par la simulation Monte Carlo pour un wafer contaminé par la chaine d'uranium ²³⁸U dans le cadre de l'approximation d'équilibre séculaire [11].

Le spectre ainsi obtenu montre approximativement la même allure expérimentale dans la gamme d'énergie [2-7,7] MeV. Cette simulation montre également que seulement 23% des particules émises sont détectées [11].

7 Le taux d'erreurs7.1 Le taux d'erreurs dû aux impuretés radioactives obtenu par simulation

Le taux d'erreurs dû aux impuretés radioactives peut être évalué en utilisant des outils de simulation de type Monte Carlo. Dans ce travail, nous avons utilisé l'outil MC-ORACLE développé dans notre équipe [23]. Il permet de prédire le taux d'erreurs déclenchées dans les mémoires par les neutrons et les particules alpha. Avec cet outil, un aléa logique est compté lorsque la particule traverse un volume sensible de forme parallélépipédique et étant capable de créer la charge critique nécessaire pour basculer une cellule mémoire.

En utilisant cet outil, la simulation d'une structure parallélépipédique de silicium contaminée par une concentration radioactive en ²³⁸U de 90 ppt² dans le cadre de l'approximation d'équilibre séculaire montre que globalement le taux d'erreurs α -SER décroit avec l'intégration technologique. La contribution des huit émetteurs alpha de la chaine de l'uranium ²³⁸U est approximativement la même pour la technologie 250 nm et la 130 nm mais cette contribution devient dépendante de l'émetteur alpha pour les technologies 90 et 65 nm [11]. Ce résultat permet de dire que les technologies modernes sont plus sensibles aux particules alpha émises et que la proportion réelle de radionucléides dans une chaine de désintégration va jouer un rôle important dans le taux d'erreurs produit par les impuretés radioactives. D'où l'intérêt d'étudier l'effet du déséquilibre radioactif des chaines sur l'émissivité et le taux d'erreurs. Ce point sera traité aux chapitres II et III.

² Partie par billion.

7.2 Le taux d'erreurs déclenchées par le samarium et le platine

Supposons qu'une cellule SRAM (composée de six transistors) possède des oxydes de grille à base de samarium sous la forme de SmScO₃ (type *High-k*) et le métal de grille est à base de platine, précisément en Ni-Pt. En prenant la technologie 32 nm comme exemple, les dimensions de volumes de l'oxyde et du métal de grille associées à cette technologie sont typiquement [24] :

- Volume de l'oxyde de grille : 32 nm x 90 nm x 4,6 nm.
- Volume du métal de grille : 32 nm x 90 nm x 26 nm.

où 4,6 nm et 26 nm sont respectivement les épaisseurs de l'oxyde de grille et du métal de grille fournies par l'ITRS (*International Technology Roadmap for Semiconductors*). En outre, la longueur des cellules mémoires *EL* (*Edge Lenth*), la charge critique Q_c et le volume sensible *SV* correspondants à cette technologie sont respectivement 0,35 µm, 0,0011 µm³ et 0,4 fC sachant que les deux derniers paramètres sont obtenus par extrapolation à partir des données de P. Roche *et al.* [25] (voir annexe III-A).

La simulation Monte Carlo d'une structure représentative intégrant une couche de $SmScO_3$ d'une épaisseur de 4,6 nm couverte elle-même par une couche de 26 nm de Ni-Pt en utilisant les paramètres précités associés au nœud technologique 32 nm (*EL*, *SV* et Q_c) permet d'obtenir la contribution au taux d'erreurs de chaque couche (Tableau 3) [24].

Matériau	SBU (FIT/Mbit)	MCU (FIT/Mbit)	SER (FIT/Mbit)
SmScO ₃	5 300	1 600	10 000
Ni-Pt	7	2	13

Tableau 3. Le taux d'erreurs obtenu par la simulation d'une structure représentative d'une mémoire6T-SRAM fabriquée en technologie 32 nm intégrant le samarium et le platine dans l'oxyde de grille etle métal de grille respectivement [24].

Le taux d'erreurs recommandé par l'ITRS pour la technologie 32 nm est 1000 FIT/Mbit. La comparaison des valeurs du taux d'erreurs affichées dans le tableau 3 avec la valeur recommandée montre que l'utilisation du platine ne pose pas de problèmes contrairement au samarium qui produit un

taux d'erreurs total 10 fois supérieur à la valeur recommandée. De plus, la valeur importante du MCU va probablement conduire à un taux élevé de MBU (erreurs dans le même mot) qui ne seront pas détectés par un code correcteur d'erreurs simple. Par conséquent, le samarium dans son état naturel ne doit pas être utilisé dans la fabrication des mémoires.

7.3 Mesure expérimentale du taux d'erreurs (produit par les impuretés radioactives)

La mesure expérimentale en temps réel du taux d'erreurs est possible à condition d'effectuer la mesure dans des circonstances qui éliminent pratiquement la contribution des neutrons. En France, le laboratoire souterrain de Modane (LSM) offre de bonnes conditions pour réaliser ce type de mesure. Dans de telles conditions, les valeurs du taux d'erreurs obtenues sur des SRAM fabriquées par STMicroelectronics en technologie 130 et 65 nm sont respectivement 1530 et 674 FIT/Mbit [26][27]. Ces deux mesures confirment la diminution de la valeur du α -SER pour les technologies les plus intégrées. Cependant, la contribution des particules alpha au taux d'erreurs total (incluant la contribution des neutrons) reste considérable.

8 Conclusions

De nombreux travaux sont actuellement consacrés à l'étude du rôle des neutrons issus des rayonnements cosmiques dans la création d'aléas logiques au niveau des mémoires alors qu'il y en a très peu qui traitent de la contribution des particules alphas issues de la radioactivité naturelle à ce type d'erreurs. Cependant, une contribution importante au taux d'erreurs de ces émetteurs alpha a été mise en évidence expérimentalement et par simulation. Pour donner des exemples, la simulation montre que l'utilisation du samarium comme oxyde de grille est très problématique au vu de sa contribution très importante au taux d'erreurs. Par ailleurs, l'expérience montre que la contribution des particules alpha issues des impuretés radioactives est comparable à celle des neutrons comme on vient de le voir pour des mémoires SRAM fabriquées en technologie 130 et 65 nm.

Une autre problématique qui s'impose est celle du déséquilibre des chaines radioactives. Souvent on considère l'état d'équilibre séculaire de ces chaines mais cet état est en réalité souvent perturbé par des facteurs naturels ou lors des processus de fabrication. La simulation montre que les technologies les plus intégrées deviennent de plus en plus sensibles aux énergies des particules alpha émises. Ainsi, il est intéressant d'étudier l'effet du déséquilibre sur l'émissivité et le taux d'erreurs. Les prochains chapitres traiteront les différents aspects de cette problématique créée par les particules alpha.

Références (chapitre I)

- K. Castellani-Coulié, "Recherche des paramètres déterminants pour la prévision des aléas logiques induits par les protons et les neutrons sur les technologies CMOS avancées," Montpellier 2, 2002.
- [2] "Home | JEDEC." [Online]. Available: http://www.jedec.org/. [Accessed: 11-Apr-2014].
- [3] T. C. May and M. H. Woods, "Alpha-particle-induced soft errors in dynamic memories," *IEEE Transactions on Electron Devices*, vol. 26, no. 1, pp. 2–9, 1979.
- [4] J. F. Ziegler and W. A. Lanford, "Effect of cosmic rays on computer memories," *Science*, vol. 206, no. 4420, pp. 776–788, 1979.
- [5] R. C. Baumann, "Soft errors in advanced semiconductor devices-part I: the three radiation sources," *IEEE Transactions on Device and Materials Reliability*, vol. 1, no. 1, pp. 17–22, Mar. 2001.
- [6] D. Lambert, J. Baggio, V. Ferlet-Cavrois, O. Flament, F. Saigne, B. Sagnes, N. Buard, and T. Carriere, "Neutron-induced SEU in bulk SRAMs in terrestrial environment: Simulations and experiments," *IEEE transactions on nuclear science*, vol. 51, no. 6, pp. 3435–3441, 2004.
- [7] P. E. Dodd, O. Musseau, M. R. Shaneyfelt, F. W. Sexton, C. D'hose, G. L. Hash, M. Martinez, R. A. Loemker, J.-L. Leray, and P. S. Winokur, "Impact of ion energy on single-event upset," *Nuclear Science, IEEE Transactions on*, vol. 45, no. 6, pp. 2483–2491, 1998.
- [8] E. Rutherford and F. Soddy, "LX. Radioactive Change," *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, vol. 5, no. 29, pp. 576–591, 1903.
- [9] J. Kopecky, "Handbook for calculations of nuclear reaction data. Reference Input Parameter Library (RIPL)," IAEA-TECDOC-1034.–1998. http://www.nds.iaea.or. at/ripl, 1998.
- [10] F. Wrobel, J. Gasiot, F. Saigné, and A. D. Touboul, "Effects of atmospheric neutrons and natural contamination on advanced microelectronic memories," *Applied Physics Letters*, vol. 93, p. 064105, 2008.
- [11] F. Wrobel, F. Saigne, M. Gedion, J. Gasiot, and R. D. Schrimpf, "Radioactive Nuclei Induced Soft Errors at Ground Level," *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 56, no. 6, pp. 3437– 3441, Dec. 2009.
- [12] H. Bateman, "The solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations," in *Proc. Cambridge Philos. Soc*, 1910, vol. 15, pp. 423–427.
- [13] A. P. Dickin, Radiogenic isotope geology. Cambridge University Press, 2005.
- [14] R. C. Baumann, "Radiation-induced soft errors in advanced semiconductor technologies," *IEEE Transactions on Device and Materials Reliability*, vol. 5, no. 3, pp. 305–316, Sep. 2005.
- [15] B. M. Clark, M. W. Weiser, and I. J. Rasiah, "Alpha radiation sources in low alpha materials and implications for low alpha materials refinement," *Thin Solid Films*, vol. 462, pp. 384–386, 2004.

- [16] W. D. Wilson, L. G. Haggmark, and J. P. Biersack, "Calculations of nuclear stopping, ranges, and straggling in the low-energy region," *Physical Review B*, vol. 15, no. 5, p. 2458, 1977.
- [17] J. Lindhard and M. Scharff, "Energy dissipation by ions in the keV region," *Physical Review*, vol. 124, no. 1, p. 128, 1961.
- [18] T. M. Tielens, G. E. Bauer, and T. H. Stoof, "Dielectric theory of the electronic stopping power of fast ions in crystals," *Physical Review B*, vol. 49, no. 8, p. 5741, 1994.
- [19] H. Bethe, "Zur theorie der metalle," Zeitschrift für Physik, vol. 71, no. 3–4, pp. 205–226, 1931.
- [20] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, and J. P. Biersack, "SRIM–The stopping and range of ions in matter (2010)," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 268, no. 11, pp. 1818–1823, 2010.
- [21] M. J. Berger, "ESTAR, PSTAR, and ASTAR: computer programs for calculating stopping-power and range tables for electrons, protons, and helium ions," *Unknown*, vol. 1, 1992.
- [22] J. S. JESD89A, "Measurement and reporting of alpha particle and terrestrial cosmic ray-induced soft errors in semiconductor devices," *JEDEC solid state technology association*, 2006.
- [23] F. Wrobel and F. Saigné, "MC-ORACLE: A tool for predicting soft error rate," *Computer Physics Communications*, vol. 182, no. 2, pp. 317–321, 2011.
- [24] M. Gedion, F. Wrobel, F. Saigne, and R. D. Schrimpf, "Alpha-Soft Error Rate due to new generations of high-κ gate oxides and metal gate electrodes in a 32 nm node," in *Radiation and Its Effects on Components and Systems (RADECS), 2011 12th European Conference on*, 2011, pp. 281–284.
- [25] P. Roche, G. Gasiot, K. Forbes, V. O'Sullivan, and V. Ferlet, "Comparisons of soft error rate for SRAMs in commercial SOI and bulk below the 130-nm technology node," *Nuclear Science, IEEE Transactions on*, vol. 50, no. 6, pp. 2046–2054, 2003.
- [26] J. L. Autran, P. Roche, S. Sauze, G. Gasiot, D. Munteanu, P. Loaiza, M. Zampaolo, and J. Borel, "Real-time neutron and alpha soft-error rate testing of CMOS 130nm SRAM: Altitude versus underground measurements," in *IEEE International Conference on Integrated Circuit Design and Technology and Tutorial*, 2008, pp. 233–236.
- [27] J. L. Autran, P. Roche, S. Sauze, G. Gasiot, D. Munteanu, P. Loaiza, M. Zampaolo, and J. Borel,
 "Altitude and underground real-time SER characterization of CMOS 65 nm SRAM," *Nuclear Science, IEEE Transactions on*, vol. 56, no. 4, pp. 2258–2266, 2009.

Chapitre II

L'effet du déséquilibre des chaines radioactives sur l'émissivité alpha

1. Introduction

L'émissivité est souvent déterminée en supposant que l'état d'équilibre séculaire des chaines de désintégration est atteint [1], [2]–[7]. Cependant, cet état n'est pas conservé dans les matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires. Le déséquilibre radioactif est dû principalement aux processus industriels et aux facteurs naturels subis par ces matériaux. Au cours de la purification, les matériaux sont sujets à la fusion ou/et à l'évaporation [8]–[10]. En outre, ces matériaux peuvent être exposés à l'eau et aux produits chimiques contaminés (comme l'acide phosphorique) utilisés lors de la séparation chimique et pendant les différents processus de fabrication (nettoyage, gravure humide, polissage mécano-chimique). Par ailleurs, les matériaux utilisés dans la fabrication du packaging comme l' Sn, l'Ag et le Pb peuvent être source de contamination radioactive. Une concentration élevée en impuretés radioactives (AER ≥ 1 (α /hr-cm²)) contenues dans les boules de soudure (*Solder Bump*) d'un packaging de type *flip-flop* est un exemple [11].

Quant aux facteurs naturels, on peut mentionner les eaux phréatiques. En effet, étant donné que les sels d'uranium sont solubles dans l'eau, les eaux phréatiques peuvent enrichir ou appauvrir la chaine de l'uranium dans les matières premières. On peut ajouter d'autres facteurs naturels comme l'érosion, l'évaporation ou encore la sédimentation. On parle également de contamination indirecte qui pourrait être causée par les isotopes du radon ²²²Rn ou ²²⁰Rn et ses descendants car le radon est un radioélément aérosol.

Une étude approfondie du déséquilibre est très importante pour les fabricants de mémoires, qui veulent évaluer l'effet du déséquilibre sur l'émissivité et le taux d'erreurs. Ils s'intéressent particulièrement aux concentrations radioactives qui entrainent une augmentation du taux d'erreurs à un niveau inacceptable. Un calcul réaliste de l'émissivité doit prendre en compte cet état de déséquilibre. Cette quantification va permettre aux fabricants de programmer uniquement les précautions nécessaires pendant la purification des matériaux et la fabrication des CI, en gagnant ainsi du temps et de l'argent.

Dans ce chapitre, nous généralisons le modèle analytique de l'émissivité proposé par S. Martinie *et al.* [12] dans le cadre de l'équilibre séculaire à un état de déséquilibre radioactif. Cette généralisation est effectuée en établissant préalablement une relation entre l'activité d'un radioélément et sa contribution à l'émissivité alpha dans un milieu quelconque (dans notre étude, nous avons pris une couche de silicium comme exemple). Ce modèle généralisé va nous permettre de quantifier facilement

l'évolution temporelle de l'émissivité dans un état de déséquilibre produit par un enrichissement d'un radioélément de la chaine de l'uranium ²³⁸U ou du thorium ²³²Th.

2. Détermination analytique de l'émissivité

2.1. Approche simplifiée : cas de l'équilibre séculaire

Les valeurs de l'émissivité obtenues en utilisant le modèle analytique proposé par S. Martinie et al. [12] sont validées par comparaison à celles obtenues par simulation Monte Carlo effectuée à l'aide de l'outil MC-Oracle [3]. Ce modèle permet d'évaluer l'émissivité d'une couche ou une structure multicouche de différents matériaux en fonction de leurs épaisseurs et leurs niveaux de contamination radioactive en uranium et en thorium. De plus, l'énergie de seuil E_{th} qui caractérise le détecteur de particules alpha a été prise en compte dans ce modèle. L'activité n'y apparaissant pas explicitement nous nous intéressons maintenant à l'émissivité en fonction de l'activité radioactive initiale A_0 dans un volume donné.

Pour commencer, la probabilité qu'une particule α , émise avec une énergie E_{α} par un élément radioactif se situant dans le substrat à une distance z de la surface, s'échappe de celle-ci est donnée par l'expression suivante :

$$p(z, R\alpha) = \frac{(R\alpha - z)}{2R\alpha} \qquad \text{si} \qquad z < R\alpha \tag{1a}$$

$$p(z, R\alpha) = 0$$
 si $z \ge R\alpha$ (1b)

où $R\alpha$ est le parcours de la particule α correspondant à l'énergie d'émission E_{α} dans le milieu considéré. Dans cette expression, *z* désigne également la position initiale de la particule α par rapport à l'axe *Z* (voir figure 1). L'équation (1b) illustre le fait que la particule alpha reste piégée dans le matériau si la distance qu'elle doit parcourir pour en sortir est supérieure à son parcours $R\alpha$.

Prenons maintenant une couche de silicium parallélépipédique d'épaisseur h et de surface d'échappement de (1 x 1) cm². Considérons aussi un volume élémentaire $dv = dx \cdot dy \cdot dz$ dans cette couche, volume localisé au point z de la surface d'échappement (figure 1). En supposant que les impuretés radioactives sont distribuées de manière homogène dans le volume de silicium, ce volume élémentaire dv a une émissivité élémentaire dAER définie comme suit :

$$dAER = \frac{A_0}{v} \cdot p(z, R\alpha) \cdot dv \tag{2}$$

où v est exprimé en cm³ et représente le volume de la couche de silicium, c'est-à-dire $v = h \cdot 1 \cdot 1$ et $p(z, R\alpha)$ est décrit par les équations (1a) et (1b). A_0 représente l'activité initiale (l'activité radioactive à

t = 0 exprimée en termes de particules alpha émises par heure) d'un noyau père ou ses descendants (cas de l'état d'équilibre séculaire).



Figure 1. Une couche de silicium parallélépipédique d'épaisseur h et d'une surface d'échappement de (1 x 1) cm². Les impuretés radioactives sont supposées distribuées de manière homogène dans le volume de silicium v. Le volume élémentaire dv a une émissivité élémentaire dAER définie par l'équation (2).

L'activité initiale A_0 dans le volume v peut être simplement donnée par la formule suivante :

$$A_0 = \frac{\ln(2)}{T_{1/2}} \cdot N_A \cdot \frac{\rho}{M} \cdot a \cdot C \cdot h \tag{3}$$

où *C* est la contamination radioactive qui désigne ici le rapport entre le nombre d'atomes d'un radioélément et le nombre d'atomes de silicium dans ce volume, *a* est l'abondance naturelle du radioélément, N_A est le nombre d'Avogadro, ρ et *M* sont respectivement la masse volumique et la masse molaire du silicium ($\rho = 2,33$ g/cm³, M = 28,02 g/mol). Les unités sont choisies de telle sorte que l'activité s'exprime par le nombre de particules alpha émises par heure (α /h). On rappelle que la constante de désintégration λ d'un élément radioactif est liée à son temps de demi-vie $T_{1/2}$ par la relation $\lambda = \frac{ln(2)}{T_{1/2}}$.

Dans un état d'équilibre séculaire de la chaine de désintégration, le noyau père et ses descendants ont la même activité. À partir de l'équation (2) on trouve l'expression analytique de

l'émissivité initiale AER_n produite par chacune des particules α_n caractérisée par son parcours $R\alpha_n$ dans le milieu considéré (ici le silicium) en intégrant sur tout le volume de la couche de silicium en utilisant les coordonnées cartésiennes :

$$AER_n = \frac{A_0}{h} \cdot \int_0^{\min(R\alpha_n - R(E_{th}), h)} p(z, R\alpha_n - R(E_{th})) \cdot dz \quad si \quad R(E_{th}) < R\alpha_n$$
(4a)

$$AER_n = 0$$
 sinon (4b)

La fonction $R(E_{th})$ dans cette équation exprime le parcours d'une particule α émise avec une énergie égale à l'énergie de seuil E_{th} du détecteur. Elle est introduite pour tenir compte de l'énergie de seuil du détecteur E_{th} . Le logiciel SRIM [13] permet d'obtenir les parcours d'une particule α correspondants à des énergies d'émission quelconques. L'étude de la courbe présentant ces points permet de proposer l'expression analytique de la fonction $R(E_{th})$ suivante avec une très bonne approximation ne dépassant pas 1,4 µm au pire cas sur l'intervalle d'énergie [0-10 MeV] (voir annexe II-A) :

$$R(E_{th}) = \frac{13}{6} \cdot 10^{-4} \cdot E_{th}^{3/2} \tag{5}$$

avec *R* exprimé en cm et E_{th} en MeV. En conséquence, l'équation (4) ci-dessus donne l'émissivité en (α /hr-cm²).

Finalement, pour trouver l'émissivité *AER* due à une chaine de désintégration on effectue la somme suivante :

$$AER = \sum_{n=1}^{r} \mathcal{P}_n \cdot AER_n \tag{6}$$

L'indice *n* dans cette somme prend en compte toutes les particules alpha émises par une chaine de désintégration et \mathcal{P}_n indique la probabilité de désintégration de chaque émetteur. La chaine de l'uranium ²³⁸U a huit émetteurs alpha (r = 8), tous se désintègrent uniquement en mode α . Par conséquent, $\mathcal{P}_n = 1$ quel que soit *n* pour cette chaine. Quant à la chaine du thorium ²³²Th, il existe sept émetteurs alpha (r = 7) pour cette chaine. Les cinq premiers se désintègrent en mode α uniquement, donc, $\mathcal{P}_n = 1$ pour n = 1 à 5. Le sixième émetteur se désintègre par émission alpha dans 36% des cas, donc, $\mathcal{P}_n = 0,36$ pour n = 6. Le septième émetteur (n = 7) se désintègre en mode α dans 64% des cas, ce qui correspond à $\mathcal{P}_n = 0,64$ (cf. I.4.2.2).

L'émissivité totale est la somme des émissivités dues à la fois à la chaine de l'uranium et à celle du thorium. Cette expression permet d'étudier la variation de l'émissivité en fonction du milieu, l'épaisseur de la couche, la contamination radioactive et l'énergie de seuil du détecteur.

2.2. Cas du déséquilibre2.2.1. Mise en évidence expérimentale

Une étude expérimentale menée par M. Gordon *et al.* a mis en évidence l'effet du déséquilibre radioactif sur l'émissivité [11]. Dans cette étude, trois wafers de 200 mm de diamètre (8 pouces) ont été plaqués avec du plomb. Ensuite, la mesure de l'émissivité sur les trois échantillons a été effectuée pendant plusieurs mois (environ 900 jours). Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 2.



Figure 2. Evolution temporelle de l'émissivité des trois wafers plaqués avec du plomb. L'émissivité présentée par la courbe en ligne continue doit être lue sur l'échelle de gauche et celles présentées par les courbes en ligne discontinue doivent être lues sur l'échelle de droite. L'unité de l'émissivité dans tous les cas est (α/khr-cm²) [11].

Cette figure montre une augmentation de l'émissivité en fonction du temps en suivant la même allure pour les trois wafers. L'émissivité atteint sa valeur maximale dans les trois cas au même moment après approximativement 840 jours ($\approx 2,3$ ans). À partir de ce moment, l'état d'équilibre séculaire de la sous-chaine radioactive responsable de l'émissivité alpha peut être considéré comme atteint.

2.2.2. Expression analytique de l'émissivité

Un état d'équilibre séculaire d'une chaine de désintégrations peut être rompu si un de ses radioéléments est enrichi [14]. Les équations de Bateman [15] décrivent l'évolution temporelle de l'activité de chaque élément radioactif d'une chaine dans un état de déséquilibre. La principale différence par rapport au cas précédent, c'est que l'activité de chaque émetteur est différente. Nous devons considérer non seulement les émetteurs alpha, mais également les émetteurs bêta dans la chaine de désintégration, car ces émetteurs contribuent à l'évolution de la concentration des émetteurs alpha. Afin d'exprimer analytiquement l'émissivité dans un tel état, le terme de l'activité initiale A_0

dans l'équation (4) doit être remplacé par l'expression de l'activité fournie par les équations de Bateman. Considérons l'instant initial (t = 0), l'instant où ce déséquilibre s'est produit (pour t < 0 nous avons un état d'équilibre séculaire). Prenons en compte cette condition initiale et en utilisant les équations de Bateman, l'évolution temporelle de l'activité des éléments radioactifs dans le cas de déséquilibre produit par un enrichissement peut être déterminée comme suit :

$$A_{m,n}(t,DF) = A_0 \cdot e^{-\lambda_0 \cdot t} + DF \cdot N_m \cdot \prod_{i=m}^n \lambda_i \cdot \sum_{i=m}^n \left(\frac{e^{-\lambda_i \cdot t}}{\prod_{j=m}^n D_{i,j}} \right)$$
(7)

Dans cette équation:

- λ_0 est la constante de désintégration du noyau père (²³⁸U ou ²³²Th) défini par la relation $\lambda_0 = \frac{ln(2)}{T_0}$ où T_0 est le temps de demi-vie associé à ce noyau.
- A₀ est l'activité initiale du noyau père, s'il n'est pas enrichi, définit par la relation A₀ = λ₀ · N₀ où N₀ est le nombre des noyaux père initial dans le volume considéré.
- *m* indique le rang de l'élément radioactif dans une chaine de désintégration tel que $1 \le m \le 14$ pour la chaine de l'uranium ²³⁸U et $1 \le m \le 10$ pour la chaine du thorium ²³²Th car on a respectivement 14 et 10 éléments radioactifs dans les chaines de l'uranium et du thorium.
- n indique le rang de l'élément enrichi ou approvisionné dans la chaine ou la sous-chaine générée par l'enrichissement tel que m ≤ n ≤ p où m est l'élément enrichi, p = 14 pour l'uranium et p = 10 pour le thorium.
- N_m est la quantité qui a enrichi l'élément radioactif m parmi les 14 éléments pour l'uranium ou parmi les 10 pour le thorium considérée à t = 0 telle qu'elle vérifie la relation A₀ = λ_m · N_m où λ_m est le coefficient de désintégration de ce radioélément.
- D_{i,j} = λ_j − λ_i si i ≠ j ou D_{i,j} = 1 dans le cas contraire où λ_i, λ_j sont les constantes de désintégration des éléments i et j de la chaine radioactive.
- DF est le facteur d'enrichissement (Disequilibrium factor). Comme exemple, pour avoir une activité initiale multipliée par 10 pour l'élément radioactif m on doit attribuer à DF la valeur 9 car dans ce cas, on a A_{m,m}(0,9) = A₀ + 9 · N_m · λ_m où N_m est choisi tel que A₀ = λ_m · N_m. Il est évident que l'activité d'un élément radioactif qui n'est pas enrichi ou approvisionné est obtenue en mettant DF = 0 dans l'équation (7).

L'enrichissement d'un élément de la chaine de désintégration d'un facteur DF correspond à une multiplication par (DF +1) de l'activité initiale de cet élément. L'élément enrichi autant qu'une source pour ses descendants, contrôlera l'évolution temporelle de l'émissivité totale en particules alpha.

Afin d'exprimer l'évolution temporelle de l'émissivité suite à l'évolution de l'activité causée par un enrichissement, on remplace le terme A_0 dans l'équation (4) par le terme $A_{m,n}(t, DF)$ de

l'équation (7). Ainsi, l'expression analytique de l'émissivité produite par un radioélément de la chaine dans le cas de déséquilibre produit par l'enrichissement de l'élément *m* est la suivante :

$$AER_{m,n}(t,DF) = \frac{A_{m,n}(t,DF)}{h} \cdot \int_0^{\min(R\alpha_n - R(E_{th}),h)} p(z,R\alpha_n - R(E_{th})) \cdot dz$$

si $R(E_{th}) < R\alpha_n$ (8a)

$$AER_{m,n}(t, DF) = 0$$
 sinon (8b)

Comme dans l'équation (6), l'émissivité totale d'une chaine est calculée en effectuant la somme suivante :

$$AER(t, DF) = \sum_{m,n} \mathcal{P} \cdot AER_{m,n}(t, DF)$$
(9)

sachant que *m* et *n* sont choisis de telle sorte que la somme soit faite en comptant uniquement les émetteurs α . De même que dans l'équation (6), \mathcal{P} indique la probabilité de désintégration de chaque émetteur alpha. Ainsi, on somme sur huit et sept termes pour les chaines de l'uranium et du thorium respectivement.

Emissivité de la chaine du Thorium Enrichissement d'un radioélément de la chaine du thorium



Figure 3. La chaine du thorium ²³²Th. m indique le rang de chaque radioélément de cette chaine tel que $1 \le m \le 10$.

La figure 3 représente la chaine de désintégration du thorium dans laquelle il y a sept émetteurs alpha. Ces émetteurs alpha sont le ²³²Th, le ²²⁸Th, le ²²⁴Ra, le ²²⁰Rn, le ²¹⁶Po, le ²¹²Po et le ²¹²Bi. L'élément enrichi dans cette chaine est une source d'approvisionnement de ses descendants. L'isotope du thorium ²²⁸Th, par exemple, fournit les radioéléments suivants : le ²²⁴Ra, le ²²⁰Rn, le ²¹⁶Po, le ²¹²Pb, le ²¹²Bi et le ²¹²Po ou le ²⁰⁸Tl en fonction de la possibilité de désintégration.

En vue de travailler avec des niveaux d'activité réalistes, nous rappelons ici que l'émissivité d'un wafer en fin de processus de fabrication est d'environ 0,4 (α /khr-cm²) [16]. À cette valeur de l'émissivité correspond une contamination en ²³²Th de 0,312 ppb³. Cette concentration radioactive est obtenue par l'application de l'équation (6) dans le cas de la chaine du thorium en considérant une moyenne pondérée par les probabilités de désintégration selon les deux voies et une énergie de seuil du détecteur $E_{th} = 1$ MeV. Cette valeur de concentration radioactive est cohérente avec le travail de S. Martinie *et al.* dans lequel l'énergie de seuil pour le système de détection des particules alpha est fixée à 2 MeV (Fig. 8 de la référence [12]). Nous supposons initialement pour notre étude que cette concentration radioactive contamine une couche parallélépipédique de silicium d'une épaisseur $h = 100 \mu m$ et une surface d'échappement de (1x1) cm² et qu'elle se trouve dans un état d'équilibre séculaire.

Les valeurs attribuées à *n* dans l'équation (9) dépendent de l'élément enrichi. Par exemple, supposons que l'isotope du thorium ²²⁸Th est enrichi de sorte que son activité initiale soit multipliée par dix (donc DF = 9). Dans ce cas, l'élément enrichi correspond à m = 4 et *n* doit être pris entre 4 et 10 à condition de sélectionner seulement les émetteurs alpha. Ainsi, nous trouvons l'émissivité alpha totale comme suit :

$$AER(t,9) = AER_{1,1}(t,0) + AER_{4,4}(t,9) + AER_{4,5}(t,9) + AER_{4,6}(t,9) + AER_{4,7}(t,9) + 0,36 \cdot AER_{4,9}(t,9) + 0,64 \cdot AER_{4,10}(t,9)$$
(10)

Notons aussi que le choix de *n* n'a pas d'importance quand DF = 0.

3.2. Cas de l'enrichissement d'un émetteur alpha

La figure 4 présente l'évolution de l'émissivité alpha totale en fonction du temps après l'enrichissement à t = 0 d'un seul émetteur α de la chaine du thorium par un facteur 10.

D'après cette figure, la première remarque est que l'enrichissement des radioéléments ²³²Th, ²²⁸Th et ²²⁴Ra entrainent une augmentation de l'émissivité totale en particules alpha pendant la durée de vie du composant estimée ici à dix ans. Les autres radioéléments n'ont pas une influence significative

³ un ppb d'impureté radioactive exprime ici le rapport d'un atome radioactif par rapport à un milliard d'atomes.
sur l'émissivité. Ces derniers ont des temps de demi-vie⁴ très courts, et se désintègrent très rapidement en réduisant considérablement l'émissivité après seulement quelques minutes. Par conséquent, l'effet de l'enrichissement par ses émetteurs alpha sur le taux d'erreurs est négligeable.



Figure 4. L'évolution de l'émissivité alpha totale en fonction du temps après l'enrichissement à t = 0 par un facteur 10 d'un seul émetteur alpha de la chaine du thorium. Une moyenne pondérée par les probabilités de désintégration selon les deux voies est considérée. t_{max} est l'instant pour lequel l'émissivité est maximale pendant la durée de vie du composant (dix ans).

Après l'enrichissement du ²³²Th par un facteur 10, ce qui correspond à $(DF + 6) \cdot A_0$ où DF =9 en terme d'activité totale initiale en particules alpha de la chaine, l'émissivité totale reste approximativement stable pendant environ un an (t = 8760 heures) après l'instant d'enrichissement. En effet, à partir de sa valeur initiale 0,73 (α /khr – cm²) selon l'équation (9), elle est 0,79 (α /khr – cm²) à la fin de cette période (1 an). Ensuite, l'émissivité augmente rapidement après un an et atteint

⁴ La durée au bout de laquelle le nombre des atomes radioactifs initialement présents dans l'échantillon est réduit de moitié.

sa valeur maximale de 2,58 (α /khr – cm²) pendant la durée de vie du composant à la fin de dix ans. À cet instant, elle est multipliée par environ 3,3 par rapport à sa valeur initiale (ou juste après l'enrichissement). Cette valeur dépasse la valeur recommandée de l'émissivité égale à 1 (α /khr – cm²) et spécifiée en 2009 [17].

Cette tendance peut être expliquée par les valeurs du temps de demi-vie des radioéléments de la chaine de désintégration du thorium. En effet, le temps de demi-vie du noyau père est largement plus élevé que ceux de ses descendants (tableau 2 de l'annexe I-A). Par conséquent, l'enrichissement du ²³²Th présente un risque potentiel pour les composants électroniques car il entraine une augmentation de l'émissivité à un niveau inacceptable et qui dure plus de dix ans.

De la même manière, à partir de la figure 4, l'enrichissement de l'isotope radioactif ²²⁸Th provoque une augmentation rapide de l'émissivité dans les premières heures après l'enrichissement (t ≈ 10 heures) et atteint la valeur maximale de 3,59 (α /khr-cm²) après environ un mois ($t = t_{max} = 653$ heures). Même si l'émissivité diminue après un certain temps, elle reste élevée car elle ne revient à sa valeur d'équilibre séculaire qu'après environ dix ans. La valeur du temps de demi-vie du ²²⁸Th (1,91 ans) explique comment l'enrichissement de cet élément contrôle l'évolution temporelle de l'émissivité alpha totale. Comme il existe une relation linéaire entre l'émissivité et le taux d'erreurs α -SER, cet enrichissement peut mettre en péril la fiabilité des systèmes électroniques.

L'enrichissement du ²²⁴Ra entraine une augmentation rapide de l'émissivité alpha totale. Cette augmentation ne dure pas longtemps car l'émissivité totale revient à sa valeur d'équilibre séculaire au bout de 34 jours. Ainsi, l'enrichissement de cet élément n'est pas critique pour les applications électroniques qui n'ont pas vocation à être en service dans les jours qui suivent leur fabrication.

3.3. Cas de l'enrichissement d'un émetteur bêta

Nous nous intéressons maintenant aux effets de l'enrichissement d'un émetteur beta car cela modifie les concentrations des émetteurs alpha. La figure 5 représente l'évolution de l'émissivité alpha totale en fonction du temps après l'enrichissement d'un émetteur β de la chaine du thorium par un facteur 10.

D'après la figure 5, après l'enrichissement de l'isotope du radium ²²⁸Ra, l'émissivité alpha totale augmente jusqu'à atteindre une valeur maximale de l'émissivité de 2,3 (α /khr-cm²) au bout d'environ 4,5 ans. La valeur du temps de demi-vie du ²²⁸Ra (5,76 ans) explique cette évolution temporelle de l'émissivité. Par conséquent, l'enrichissement du ²²⁸Ra est une problématique pour les systèmes électroniques.

L'enrichissement de la chaine du thorium par l'actinium ²²⁸Ac, le plomb ²¹²Pb et le bismuth ²¹²Bi ne conduit pas à une augmentation dangereuse de l'émissivité alpha totale car elle revient à sa valeur d'équilibre séculaire après quelques jours. Leurs temps de demi-vie très courts expliquent ce retour rapide à l'équilibre.



Figure 5. L'évolution de l'émissivité alpha totale en fonction du temps après l'enrichissement à t = 0 par un facteur 10 d'un seul émetteur beta de la chaine du thorium. Une moyenne pondérée par les probabilités de désintégration selon les deux voies est considérée. t_{max} est l'instant pour lequel l'émissivité est maximale pendant la durée de vie du composant (dix ans).

4. Emissivité de la chaine de l'Uranium4.1. Enrichissement d'un radioélément de la chaine de l'Uranium

Dans cette deuxième partie, nous faisons le même type d'étude pour quantifier l'effet du déséquilibre de la chaine de l'uranium sur l'émissivité alpha totale après l'enrichissement de l'un de ses radioéléments. Afin d'appuyer cette étude, la chaine de l'uranium est représentée sur la figure 6. Cette chaine contient huit émetteurs alpha (α) et six émetteurs beta (β). Ces émetteurs alpha sont le ²³⁸U, le ²³⁴U, le ²³⁰Th, le ²²⁶Ra, le ²²²Rn, le ²¹⁸Po, le ²¹⁴Po et le ²¹⁰Po.

Nous utilisons les mêmes équations (7), (8) et (9) pour étudier l'évolution temporelle de l'émissivité alpha totale produite par la chaine de l'uranium après l'enrichissement de l'un de ses radioéléments. En prenant la même couche parallélépipédique de silicium précédente (épaisseur $h = 100 \,\mu\text{m}$ et une surface d'échappement de (1x1) cm²) et en fixant l'énergie de seuil à une valeur typique $E_{th} = 1 \,\text{MeV}$. Notons qu'à une émissivité de l'ordre de 0,4 (α /khr-cm²) correspond une contamination en ²³⁸U de 0,091 ppb (ou 91 ppt) en état d'équilibre séculaire selon le modèle analytique (équation 6).



Figure 6. La chaine de l'uranium ²³⁸U. m indique le rang de chaque radioélément de cette chaine tel que $1 \le m \le 14$.

Nous illustrons ci-dessous par deux exemples l'application de l'équation (9) en vue de quantifier l'évolution de l'émissivité alpha totale. Supposons que le ²²⁶Ra et le ²¹⁰Pb soient enrichis de sorte que leurs activités initiales soient multipliée par dix (DF = 9). Nous obtenons respectivement les expressions suivantes de l'émissivité alpha totale tel que l'élément enrichi correspond à m = 6 et $6 \le n$ ≤ 14 pour le ²²⁶Ra et m = 12 et $12 \le n \le 14$ pour le ²¹⁰Pb à condition de sélectionner seulement les émetteurs alpha.

$$AER(t,9) = AER_{1,1}(t,0) + AER_{4,4}(t,0) + AER_{5,5}(t,0) + AER_{6,6}(t,9) + AER_{6,7}(t,9) + AER_{6,8}(t,9) + AER_{6,11}(t,9) + AER_{6,14}(t,9)$$
(11)

$$AER(t,9) = AER_{1,1}(t,0) + AER_{4,4}(t,0) + AER_{5,5}(t,0) + AER_{6,6}(t,0) + AER_{7,7}(t,0) + AER_{8,8}(t,0) + AER_{11,11}(t,0) + AER_{12,14}(t,9)$$
(12)

Rappelons que le choix de *n* n'a pas d'importance quand DF = 0.

4.2. Cas de l'enrichissement d'un émetteur alpha

La figure 7 présente l'évolution de l'émissivité alpha totale en fonction du temps après l'enrichissement d'un émetteur α de la chaine de l'uranium par un facteur de 10.



Figure 7. L'évolution de l'émissivité alpha totale en fonction du temps après l'enrichissement à
 t = 0 par un facteur 10 d'un seul émetteur alpha de la chaine de l'uranium. t_{max} est l'instant pour
 lequel l'émissivité est maximale pendant la durée de vie du composant (dix ans).

La figure 7 montre que l'émissivité alpha conserve approximativement sa valeur initiale de 0,7 (α /khr-cm²) pendant la durée de vie du composant après l'enrichissement par les radioéléments ²³⁸U, ²³⁰Th et ²³⁴U. Cette tendance peut être expliquée par les valeurs relativement grandes du temps de demi-vie des radioéléments ²³⁸U, ²³⁰Th et ²³⁴U (ces valeurs sont respectivement 4,47 · 10⁹, 7,54 · 10⁴

et $2,45 \cdot 10^4$ ans). Ces radioéléments présentent un risque pour les systèmes électronique uniquement dans le cas où ils sont enrichis excessivement.

Nous observons également que l'émissivité totale reste constante (c'est-à-dire 0,7 (α /khr-cm²)) pendant environ 1 an après l'enrichissement de l'isotope de polonium ²¹⁰Po avant de revenir à sa valeur avant l'enrichissement. Cette tendance peut être expliquée par le fait que le radioélément ²¹⁰Po est le dernier émetteur alpha de la chaine de l'uranium ²³⁸U et par l'ordre de grandeur de son temps de demi-vie ($T_{1/2} = 138,4$ jours).

Après l'enrichissement de l'isotope radioactif ²²⁶Ra, l'émissivité alpha totale évolue en suivant la même allure qu'après l'enrichissement du ²²⁴Ra de la chaine du thorium. La principale différence est que l'émissivité dans le cas du ²²⁶Ra ne revient à sa valeur d'équilibre séculaire qu'après plus de 1000 ans. Elle atteint sa valeur maximale pendant la durée de vie du composant à l'instant $t_{max} = 10$ ans. Le temps de demi-vie du ²²⁶Ra ($T_{1/2} = 1600$ ans) explique cette tendance. On peut conclure que le radioélément ²²⁶Ra présente un risque potentiel pour les systèmes électroniques.

De la même manière l'enrichissement de ²²²Rn entraine une augmentation rapide de l'émissivité d'une courte durée. Cette allure peut être expliquée par le fait que cet émetteur alpha possède un temps de demi-vie $T_{1/2} = 3,82$ jours. Par conséquent, l'enrichissement du radon ²²²Rn ne mettra pas en cause la fiabilité des mémoires.

En comparaison avec les autres radioéléments de la chaine, le radon ²²²Rn est un nucléide aérosol. Parmi ses descendants l'isotope du plomb ²¹⁰Pb qui présente un risque majeur pour les systèmes électroniques comme nous allons le voir ensuite. Par suite, tous les matériaux utilisés dans les mémoires pendant leur fabrication peuvent être une éventuelle source de contamination par le plomb. C'est la raison pour laquelle les salles blanches sont équipées d'un système qui permet d'évacuer le radon et de réduire ainsi sa concentration.

4.3. Cas de l'enrichissement d'un émetteur bêta

La figure 8 présente l'évolution de l'émissivité alpha totale en fonction du temps après l'enrichissement d'un émetteur β de la chaine de l'uranium par un facteur de 10.

Cette figure montre que l'enrichissement des émetteurs beta ²³⁴Th, ²³⁴Pa, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi et le ²¹⁰Bi n'a pas d'effet significatif sur l'évolution de l'émissivité alpha totale. En revanche, l'enrichissement de l'isotope du plomb ²¹⁰Pb déclenche une augmentation dangereuse de l'émissivité alpha totale. Elle atteint sa valeur maximale pendant la période de vie du composant approximativement à l'instant t = 20 000 h (t \approx 2,3 ans). La source des particules alpha est l'isotope de polonium ²¹⁰Po car il est le seul

émetteur alpha approvisionné par le plomb ²¹⁰Pb dans la chaine de l'uranium. Evidemment, c'est le temps de demi-vie de cet émetteur beta $T_{1/2} = 22,3$ ans qui cadence l'évolution de l'émissivité. En conclusion, l'enrichissement du ²¹⁰Pb montre un risque potentiel capable de mettre la fiabilité des systèmes électroniques à l'épreuve.



Figure 8. L'évolution de l'émissivité alpha totale en fonction du temps après l'enrichissement à
 t = 0 par un facteur 10 d'un émetteur beta à la fois de la chaine de l'uranium. t_{max} est l'instant pour
 lequel l'émissivité est maximale pendant la durée de vie du composant (dix ans).

5. Résumé des émetteurs critiques

Les enrichissements des émetteurs ²³²Th, ²²⁸Th et ²²⁸Ra de la chaine du Thorium et les émetteurs ²³⁸U, ²³⁴U, ²³⁰Th, ²¹⁰Po, ²²⁶Ra et le ²¹⁰Pb de la chaine de l'uranium sont critiques car ils sont en mesure d'augmenter l'émissivité alpha à un niveau inacceptable (supérieur à la valeur recommandée de l'émissivité qui est 1 α /khr-cm²).

Pour une étude réaliste, nous avons besoin de connaître l'activité initiale de chaque radioélément. En vue d'obtenir ces informations, nous devons faire des mesures en utilisant des techniques complémentaires. Nous pouvons, par exemple, utiliser la spectroscopie Gamma pour mesurer la radioactivité des radioéléments ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²²⁸Th et le ²²⁸Ra et l'ICP-MS (*Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry*) pour mesurer celle du ²³²Th dans l'eau et les différents produits chimiques avant de les utiliser dans les procédés industriels de fabrication des mémoires. Malheureusement, il est actuellement difficile d'obtenir toutes les données dont nous avons besoin parce que les concentrations de radioéléments deviennent très faibles pour les matériaux hautement purifiés.

6. Application du formalisme au dépôt de plomb sur un wafer

Le formalisme de l'émissivité alpha développé dans ce chapitre et les équations de Bateman permettent de retrouver l'allure de l'évolution temporelle l'émissivité alpha des wafers plaqués avec du plomb utilisés dans l'expérience de M. Gordon et la radioactivité de chaque radioélément impliqué (voir 2.2.1). Pour cela, on considère une couche cylindrique de plomb dont le diamètre et l'épaisseur sont respectivement 200 mm et 100 μ m. De plus, on suppose que cette couche est contaminée uniquement par une certaine concentration radioactive de l'isotope du plomb ²¹⁰Pb. Dans ces conditions, les équations doivent être appliquées à la sous-chaine (²¹⁰Pb \rightarrow ²¹⁰Bi + $\beta \rightarrow$ ²¹⁰Po + $\alpha \rightarrow$ ²⁰⁶Pb). Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 9.



*Figure 9.a. Allure de l'évolution temporelle de la radioactivité des radioéléments*²¹⁰Pb, ²¹⁰Bi et ²¹⁰Po *produite par un wafer plaqué avec du plomb (obtenue en utilisant les équations de Bateman).*



Figure 9.b. Allure de l'évolution temporelle de l'émissivité alpha produite par un wafer plaqué avec du plomb obtenue en utilisant le formalisme de l'émissivité développé dans ce chapitre. t_{max} correspond au moment où l'équilibre séculaire de la sous-chaine du ²¹⁰Pb est atteint.

Le formalisme de l'émissivité développé dans ce chapitre est en accord avec les résultats expérimentaux de Gordon.

L'origine du ²¹⁰Pb est la chaine de l'uranium ²³⁸U. Evidemment, la source des particules alpha détectées est le ²¹⁰Po approvisionné par le ²¹⁰Pb. L'existence de ce dernier dans une couche de plomb est expliquée par le fait qu'il n'est pas séparable chimiquement des autres isotopes du plomb.

7. Conclusions et perspectives

L'état d'équilibre séculaire de la chaine du thorium et de l'uranium est rarement préservé dans les échantillons de matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires. Un état de déséquilibre est le résultat des nombreux processus industriels subis par ces matériaux pendant la purification des matières premières et la fabrication des mémoires.

Dans ce travail, nous avons développé un formalisme de l'émissivité alpha en utilisant le modèle analytique de l'émissivité proposé initialement par S. Martinie *et al.* pour étudier les effets du déséquilibre de la chaine du thorium et de l'uranium sur l'émissivité alpha totale sans avoir recours à des simulations Monte Carlo qui sont souvent coûteuses en temps de calcul.

L'étude de l'évolution temporelle de l'émissivité après l'enrichissement de l'un des radioéléments de la chaine du thorium et de l'uranium a permis d'identifier les radioéléments capables

d'augmenter l'émissivité alpha totale de manière importante pendant la durée de vie du composant (majorée à dix ans). Nos calculs ont permis de mettre en évidence que ces radioéléments critiques sont le ²³²Th, le ²²⁸Ra et le ²²⁸Th pour la chaine du thorium et le ²³⁸U, le ²³⁴U, le ²³⁰Th, le ²¹⁰Po, le ²²⁶Ra et le ²¹⁰Pb pour la chaine de l'uranium. Après le déséquilibre, la chaine de désintégration tend à atteindre un nouvel état d'équilibre. Le temps nécessaire pour atteindre ce nouvel état d'équilibre dépend du temps de demi-vie du radioélément enrichi mais aussi ceux de ses descendants. Notre conclusion principale est que, même si l'émissivité est à un niveau acceptable à un moment donné, les radioéléments critiques que nous avons identifié sont en mesure d'augmenter de manière significative cette émissivité au cours de la durée de vie du composant électronique.

Les radioéléments critiques peuvent être enrichis par les eaux et les produit chimiques contaminés (ex : les solutions acides comme l'acide phosphorique) utilisés pour la séparation chimique et les différents processus de purification en produisant ainsi un état de déséquilibre. L'application de la méthode proposée à un échantillon initialement en état de déséquilibre exige que les équations de Bateman soient adaptées aux conditions initiales connues. On note que la détermination expérimentale de ces conditions initiales nécessite l'utilisation de techniques d'analyses complémentaires comme la spectroscopie alpha, gamma et l'ICP-MS (cf. chapitre IV).

En outre, la méthode proposée dans cette étude suppose que la couche de silicium est contaminée par la chaine du thorium seule ou par la chaine de l'uranium seule. Cependant, un échantillon réel est susceptible d'être contaminé par les deux chaines radioactives à la fois. Ce cas peut être traité de la même manière en adaptant l'équation (7) aux nouvelles conditions initiales. Si nous supposons par exemple que l'enrichissement concerne uniquement une chaine, il faut ajouter un terme à l'équation (7) pour exprimer la contribution de la chaine non enrichie à l'émissivité totale en particules alpha.

L'effet du déséquilibre d'une chaine radioactive dans les matériaux utilisés peut se manifester par une augmentation du taux d'erreurs au fil du temps, en particulier pour les nouvelles technologies. Même si des matériaux hautement purifiés sont disponibles, les mesures de l'émissivité, la radioactivité ou les concentrations des impuretés radioactives dans ces matériaux sont vivement recommandées.

Références (chapitre II)

- F. Wrobel, F. Saigne, M. Gedion, J. Gasiot, and R. D. Schrimpf, "Radioactive Nuclei Induced Soft Errors at Ground Level," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 56, no. 6, pp. 3437–3441, Dec. 2009.
- [2] F. Wrobel, J. Gasiot, and F. Saigne, "Hafnium and Uranium Contributions to Soft Error Rate at Ground Level," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 55, no. 6, pp. 3141–3145, Dec. 2008.
- [3] F. Wrobel and F. Saigné, "MC-ORACLE: A tool for predicting soft error rate," *Comput. Phys. Commun.*, vol. 182, no. 2, pp. 317–321, 2011.
- [4] M. Gedion, F. Wrobel, F. Saigné, R. D. Schrimpf, and J. Mekki, "Monte Carlo Simulations to Evaluate the Contribution of Si Bulk, Interconnects, and Packaging to Alpha-Soft Error Rates in Advanced Technologies," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 57, no. 6, pp. 3121–3126, Dec. 2010.
- [5] M. Gedion, F. Wrobel, F. Saigne, and R. D. Schrimpf, "Uranium and Thorium Contribution to Soft Error Rate in Advanced Technologies," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 58, no. 3, pp. 1098– 1103, Jun. 2011.
- [6] H. Kobayashi, K. Shiraishi, H. Tsuchiya, M. Motoyoshi, H. Usuki, Y. Nagai, K. Takahisa, T. Yoshiie, Y. Sakurai, and T. Ishizaki, "Soft errors in SRAM devices induced by high energy neutrons, thermal neutrons and alpha particles," in *IEDM'02. International Electron Devices Meeting*, 2002, pp. 337–340.
- [7] H. Kobayashi, N. Kawamoto, J. Kase, and K. Shiraish, "Alpha particle and neutron-induced soft error rates and scaling trends in SRAM," in *IEEE International Reliability Physics Symposium*, 2009, pp. 206–211.
- [8] R. C. Baumann, "Radiation-induced soft errors in advanced semiconductor technologies," *IEEE Trans. Device Mater. Reliab.*, vol. 5, no. 3, pp. 305–316, Sep. 2005.
- [9] T. Mitsugashira, M. Hara, P. Kim, K. Nakashima, and K. Nakayama, "Enrichment of daughter nuclides of natural alpha-decay series in high purity aluminum for LSI fabrication," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 255, no. 1, pp. 201–205, 2003.
- [10] T. Mitsugashira, M. Hara, Y. Suzuki, M. Watanabe, S. Hirai, Y. Okada, and A. Mori, "Natural alpha-active isotopes contained in modern memory device materials," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 239, no. 2, pp. 345–349, 1999.
- M. S. Gordon, K. P. Rodbell, D. F. Heidel, C. E. Murray, H. H. . Tang, B. Dwyer-McNally, and W. K. Warburton, "Alpha-Particle Emission Energy Spectra From Materials Used for Solder Bumps," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 57, no. 6, pp. 3251–3256, Dec. 2010.
- [12] S. Martinie, J.-L. Autran, D. Munteanu, F. Wrobel, M. Gedion, and F. Saigne, "Analytical Modeling of Alpha-Particle Emission Rate at Wafer-Level," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 58, no. 6, pp. 2798–2803, 2011.

- [13] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, and J. P. Biersack, "SRIM–The stopping and range of ions in matter (2010)," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 268, no. 11, pp. 1818–1823, 2010.
- [14] M. Gedion, F. Wrobel, F. Saigne, M. Portier, A. D. Touboul, and R. D. Schrimpf, "Effect of the Uranium Decay Chain Disequilibrium on Alpha Disintegration Rate," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 58, no. 6, pp. 2793–2797, 2011.
- [15] H. Bateman, "The solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations," in *Proc. Cambridge Philos. Soc*, 1910, vol. 15, pp. 423–427.
- [16] J. S. JESD89A, "Measurement and reporting of alpha particle and terrestrial cosmic ray-induced soft errors in semiconductor devices," *JEDEC Solid State Technol. Assoc.*, 2006.
- [17] B. Clark, "Progress Towards Standardization of Alpha Flux Measurements on Electronic Materials," in SEMINAR on Impact of Packaging Materials and Processes on Device Soft Error Rates, Oct. 2009.

Chapitre III

Évaluation du taux d'erreurs dû aux impuretés radioactives

1. Introduction

Les particules alpha émises par les impuretés radioactives (uranium ²³⁸U, thorium ²³²Th et leurs descendants) sont parmi les principales sources capables de déclencher des aléas logiques dans les mémoires SRAM et DRAM [1]–[3].

Il a été montré que le taux d'erreurs dû à la chaine de l'uranium ²³⁸U (supposée en état d'équilibre séculaire) augmente quand le volume sensible augmente et que la charge critique diminue [4]. Etant donné que les mémoires sont fabriquées à base des transistors MOS, la miniaturisation croissante de ces transistors à l'échelle décananométrique atteinte actuellement a augmenté considérablement la densité de ces mémoires. Malheureusement, cette intégration croissante des composants électroniques, qui a nécessité la modification des règles de design, avaient pour conséquence une augmentation du nombre de volumes sensibles qui se trouvent à la portée des particules alpha émises par les radioéléments qui contaminent les matériaux (les semi-conducteurs, les métaux et les oxydes) utilisés dans la fabrication des mémoires. Rappelons que ces particules sont capables de parcourir jusqu'à 60 µm environ dans le silicium (cf. 1.5.5.4). En outre, la charge critique a diminué à une valeur de l'ordre du femtocoulomb pour les technologies actuelles (65 nm). Ce qui résulte de cette intégration technologique est une contribution de plus en plus importante des particules alpha au taux d'erreurs total en comparaison avec la contribution des neutrons.

Ainsi, il a été montré expérimentalement que les contributions des particules alpha et des neutrons (au niveau de la mer) au taux d'erreurs sont équivalentes dans de nombreux cas, particulièrement lors de l'utilisation des matériaux à très basse émissivité alpha (classe ULA) [5]. Les mesures effectuées par Autran *et al.* ont montré que le taux d'erreurs dû aux particules alpha dépasse celui des neutrons au niveau de la mer pour les nœuds technologiques 130 nm et 65 nm [6], [7]. Bien que la même équipe ait montré récemment que le taux d'erreurs dû à ces particules est inférieur à la contribution des neutrons pour la technologie 40 nm [8], les contributions de ces deux composantes au taux d'erreurs restent comparables.

Dans un état d'équilibre séculaire de la chaine radioactive de l'uranium, la simulation Monte Carlo montre également que la contribution du noyau père ²³⁸U et ses descendants au taux d'erreurs est estimé de 2 à 5 fois plus grand que celui déclenché par les neutrons en fonction des technologies allant de la 250 à la 65 nm [9]. Dans le cadre de la même approximation (approximation d'équilibre séculaire), une contamination de l'ordre de 0,4-0,6 ppb⁵ en uranium d'une mémoire SRAM fabriquée en technologie 130 nm, par exemple, peut être responsable d'un taux d'erreurs trois fois plus élevé que celui produit par les neutrons cosmiques [4]. Cela montre l'importance de comprendre les problèmes de dysfonctionnement des composants liés à ces impuretés, même en petites quantités. Ainsi, le taux d'erreurs déclenchées par les particules alpha est devenu une préoccupation pour les technologies futures.

Dans ce chapitre, nous proposons une méthode analytique pour estimer le taux d'erreurs déclenchées au niveau des mémoires les plus intégrées par l'uranium, le thorium et leurs descendants qui contaminent les matériaux utilisés dans la fabrication de ces mémoires et s'y trouvent dans un état d'équilibre séculaire ou de déséquilibre.

2. Un modèle basé sur des considérations géométriques

2.1. La probabilité géométrique

Dans ce paragraphe, nous montrons comment nous pouvons calculer la probabilité pour qu'une particule alpha atteigne un volume sensible. Nous considérons un Mbit d'une mémoire SRAM située dans le silicium à l'interface d'un empilement de couches de métallisation et de passivation (le BEOL⁶) représenté ici par une couche de dioxyde de silicium SiO₂ par soucis de simplification. L'épaisseur de cette couche T_{ox} vérifie la relation $T_{ox} < R\alpha$ où $R\alpha$ indique le parcours de la particule α dans le silicium ou l'oxyde de silicium. Les particules alpha considérées ici sont émises par un noyau père d'une chaine radioactive ou ses descendants qui contaminent le silicium ou le dioxyde de silicium.

Chaque cellule de cette mémoire est considérée comme étant un carré d'arrête *EL* (*Edge Length*) et ces cellules sont supposées adjacentes. Une cellule d'une mémoire SRAM conventionnelle polarisée contient deux transistors en état OFF : un NMOS et un PMOS mais le premier est toujours considéré comme le plus sensible aux effets singuliers. Dans cette étude, nous avons fait référence au modèle empirique du RPP (*Rectangular Parallelepiped model*) [10]. Selon ce modèle, un aléa logique se produit lorsqu'une particule traverse le volume sensible (de forme parallélépipédique) en étant capable d'y créer la charge critique nécessaire. Afin d'être cohérent avec ce modèle, un volume sensible est associé à chaque cellule mémoire tel que le volume considéré (et sa charge critique) exprime un comportement équivalent du système *NMOS Off state - PMOS off state* vis-à-vis les particules incidentes.

Le Mbit de la mémoire SRAM considéré est illustré par la structure simplifiée représentée sur la figure 1. Toutes les particules alpha capables d'atteindre les volumes sensibles proviennent d'un

⁵ un ppb d'impureté radioactive exprime ici le rapport d'un atome radioactif par rapport à un milliard d'atomes.

⁶ Back End Of Line.

volume composé de deux parallélépipèdes de silicium et d'oxyde de silicium dont les largeurs et les longueurs sont ($1024 \cdot EL + 2 \cdot R\alpha$) et les épaisseurs sont égales à $R\alpha$ et T_{Ox} respectivement.

Le logiciel SRIM [11] permet d'obtenir les parcours des particules alpha $R\alpha$. Ils sont typiquement de l'ordre de quelques dizaines de micromètres. Les particules α émises par les isotopes de polonium ²¹⁴Po et ²¹²Po de la chaine de l'uranium et du thorium, respectivement, possèdent les énergies initiales les plus importantes [12] et par conséquent, leurs parcours sont les plus longs. Ces parcours dans le silicium sont $R\alpha = 46 \ \mu m$ et 57 μm pour le ²¹⁴Po et le ²¹²Po respectivement.

Dans la première partie de cette étude, nous proposons un modèle géométrique. Dans ce modèle, un aléa logique est déclenché chaque fois que la particule α est émise selon une direction qui fait qu'elle traverse le volume sensible de la cellule mémoire. Autrement dit, nous faisons l'hypothèse simplificatrice que la charge critique n'a pas d'importance puisque les technologies modernes sont supposées si sensibles que nous considérons que chaque particule alpha qui traverse le volume sensible déclenche une erreur logique. Lors du développement de ce modèle, seules des considérations géométriques sont donc prises en compte pour évaluer le taux d'erreurs.



Figure 1. Illustration d'un Mbit de mémoire SRAM intégré dans deux parallélépipèdes de silicium et d'oxyde de silicium. EL est la longueur de l'arrête d'une cellule mémoire. Rα indique le parcours de la particule α dans le silicium.

Nous supposons que le volume sensible est de forme sphérique de rayon *Rs*. Bien que cette forme ne corresponde pas à la forme habituelle du RPP souvent considérée dans les simulations, elle est actuellement plus réaliste et facilite nos calculs analytiques [13]. Toutes les particules α ayant une probabilité non nulle d'atteindre le volume sensible se localisent dans une sphère de rayon *R* α

dépendant de leur énergie d'émission $E\alpha$ et les milieux traversés avant d'atteindre le volume sensible. Nous considérons une particule α en un point G situé à une distance *r* du centre du volume sensible tel que $r \leq R\alpha$ (voir la figure 2).



Figure 2. Le principe du modèle géométrique. La sphère de rayon Rα représente le volume dans lequel les particules alpha ont une probabilité non nulle d'atteindre le volume sensible.

Puisque les particules α sont émises de façon isotrope, la probabilité qu'une particule α soit émise en direction du volume sensible est le rapport entre l'angle solide $\Omega(r)$ sous lequel la sphère du volume sensible est vue par la particule α depuis le point G et l'angle solide associé à tout l'espace 4π sr :

$$P_{geom}(r) = \frac{1}{2} \cdot \left(1 - \sqrt{1 - \left(\frac{Rs}{r}\right)^2}\right) \quad \text{si } r \ge Rs$$
(1a)

$$P_{geom} = 1 \qquad \qquad \text{si } r < Rs \qquad (1b)$$

Evidemment la probabilité d'atteindre le volume sensible est égale à 1 lorsque r < Rs puisque cela signifie que la particule est émise depuis le volume sensible lui-même. Cette probabilité est notée P_{geom} pour rappeler son origine géométrique.

2.2. L'expression du taux d'erreurs2.2.1. Le taux d'erreurs élémentaire

En utilisant la probabilité décrite dans l'équation (1), nous abordons maintenant le calcul du taux d'erreurs déclenchées par les particules alpha α -SER. Nous considérons un volume élémentaire dv d'une couche sphérique d'épaisseur dr et de rayon r tel que $r \leq R\alpha$. En supposant que les impuretés radioactives sont distribuées de manière homogène dans le milieu considéré, le taux d'erreurs élémentaire dSER déclenchées par le volume élémentaire dv est tout simplement le produit de l'activité volumique dans ce volume et la probabilité géométrique précédemment définie. Ainsi, dSER peut être écrit comme suit :

$$dSER = \frac{A_0}{v} \cdot P_{geom}(r) \, dv \tag{2}$$

où A_0 est l'activité radioactive initiale (à t = 0) d'un noyau père exprimée en $\alpha/10^9$ h (désintégration par milliard d'heures) associée à une contamination du volume de la sphère de rayon $R\alpha$ exprimé en cm³ c'est-à-dire $v = \frac{4}{3} \pi \cdot R\alpha^3$.

Le rapport $A_v = \frac{A_0}{v}$ exprime l'activité volumique initiale où A_0 est définie par la loi de décroissance radioactive formulée par *Rutherford* et *Soddy* [14] :

$$A(t) = A_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} \tag{3}$$

Dans cette équation $A_0 = \lambda \cdot N_0$ avec λ est la constante de désintégration du noyau père radioactif et N_0 son nombre initial de noyaux radioactifs (à t = 0) dans le volume v. Nous rappelons que la constante de désintégration d'un radioélément est définie par la relation $\lambda = \frac{ln(2)}{T_{1/2}}$ où $T_{1/2}$ est son temps de demi-vie. Pour donner un exemple, prenons deux éléments radioactifs pères : l'uranium ²³⁸U et le thorium ²³²Th. L'abondance naturelle de l'²³⁸U est 99,2% et celle du ²³²Th est 100% [15]. Les temps de demi-vie sont 4,47 · 10⁹ ans et 1,41 · 10¹⁰ ans respectivement [12]. Une contamination du silicium par 1 ppb de ces deux noyaux pères donne les activités volumiques 8,8 · 10⁸ et 2,8 · 10⁸ en terme de ($\alpha/10^9$ -cm³) pour l'uranium et le thorium respectivement. Dans un état d'équilibre séculaire, le noyau père et ses descendants ont la même activité radioactive, ce qui signifie qu'ils ont la même activité volumique également.

2.2.2. Le taux d'erreurs total

En supposant que les impuretés radioactives sont distribuées de manière homogène dans le même milieu et à partir de la relation (2), nous calculons le taux d'erreurs SER_n en FIT/Mbit à t = 0 déclenchées par toutes les particules alpha α_n caractérisées par son parcours correspondant à son énergie d'émission $E\alpha_n$, en intégrant sur le volume de la sphère v en utilisant les coordonnées sphériques :

$$SER_n = (1024)^2 \cdot A_{\nu} \cdot \int_{\theta_i}^{\theta_f} \{\int_{r_i}^{r_f} P_{geom}(r) r^2 dr\} \sin \theta \, d\theta \cdot \int_{\varphi_i}^{\varphi_f} d\varphi \tag{4}$$

Les indices f et i font référence respectivement aux valeurs initiales et finales des coordonnées sphériques pour le volume du milieu considéré. Ces valeurs sont illustrées sur le schéma de la figure 3 et résumées dans le tableau 1. Nous distinguons dans ce tableau trois régions : la région intérieure du volume sensible (SV), la région de silicium extérieure au volume sensible (OSV) et la région de l'oxyde de silicium. Notons que la valeur initiale de la coordonnée r dépend de l'angle θ dans les zones (3) et (4) de la région de l'oxyde de silicium et sa valeur finale dépend de θ dans la zone (1) de la région de silicium extérieure du volume sensible OSV et la zone (3) de la région de l'oxyde de silicium (voir figure 3 et tableau 1). L'indice n dans l'équation (4) fait référence à un type de particules alpha α_n parmi 8 types émis par la chaine de l'uranium et 7 types émis par la chaine du thorium.



Figure 3. Illustration des valeurs initiales et finales des coordonnées sphériques dans le volume sensible de rayon Rs et les zones associées à chaque région du milieu considéré. Ra_m est le parcours d'une particule alpha dans le milieu m. Si pour le silicium, Ox pour l'oxyde de silicium et SiOx pour la bicouche Si-SiO₂. T_{Ox} est l'épaisseur de l'oxyde de silicium.

r	Silicium			Oxyde de silicium	
θ	GW	OSV		SiO ₂	
φ	57	Zone 1	Zone 2	Zone 3	Zone 4
r _i	0	Rs	Rs	<u>Rs</u> cosθ	Rs cosθ
r _f	Rs	<u>Rs</u> cosθ	$R\alpha_{Si}$	$\frac{Rs + Tox}{cos\theta}$	$R\alpha_{SiOx}$
$ heta_i$	0	0	$a\cos\left(\frac{Rs}{R\alpha_{Si}}\right)$	0	$a\cos\left(\frac{Rs+Tox}{R\alpha_{SiOx}}\right)$
$ heta_{f}$	π	$a\cos\left(\frac{Rs}{R\alpha_{Si}}\right)$	π	$a\cos\left(\frac{Rs+Tox}{R\alpha_{SiOx}}\right)$	$a\cos\left(\frac{Rs}{R\alpha_{siox}}\right)$
φ_i	0				
φ_f	2π				

Tableau 1. Les valeurs initiales et finales des coordonnées sphériques dans le volume sensible de rayon Rs et les zones associées à chaque région du milieu considéré. r_i dépend de l'angle θ dans les zones (3) et (4) de la région de l'oxyde de silicium et sa valeur finale dépend de θ dans la zone (1) de la région de silicium extérieure du volume sensible (OSV) et la zone (3) de la région de l'oxyde de silicium (voir la fig. 3). SV pour la région intérieure du volume sensible.

Nous avons considéré une répartition homogène des impuretés radioactives en vue de faciliter l'intégration sur différentes régions en utilisant les coordonnées sphériques. Dans le cadre de cette approche, l'activité volumique est uniforme. Si cette hypothèse n'était pas respectée, nous aurions besoin de connaître le profil de distribution des impuretés radioactives en fonction des coordonnées sphériques dans chaque milieu pour pouvoir calculer le SER_n correspondant. L'approche simplifiée permet d'obtenir une tendance du taux d'erreurs.

Dans le tableau 1, $R\alpha_{Si}$ et $R\alpha_{SiOx}$ présentent respectivement les parcours des particules α dans le silicium et la bicouche silicium-oxyde. Nous avons pris une structure de deux couches car les particules α émises par l'oxyde traversent deux milieux différents avant d'atteindre le volume sensible. Dans une telle structure, la valeur du $R\alpha_{SiOx}$ doit vérifier la relation $R\alpha_{Ox} < R\alpha_{SiOx} < R\alpha_{Si}$ où $R\alpha_{Ox}$ est le

parcours des particules alpha dans l'oxyde de silicium (SiO₂). Comme $R\alpha_{Si}$ et $R\alpha_{Ox}$ sont des quantités bien connues (cf. SRIM), nous pouvons obtenir le parcours d'une particule alpha dans la bicouche silicium-oxyde $R\alpha_{SiOx}$ de la même manière. En utilisant ce logiciel, ces parcours sont obtenus après avoir simulé 1000 particules alpha à travers une couche de 7 µm d'oxyde qui recouvre une couche de silicium dont l'épaisseur est supérieure à 60 µm (pour tenir compte de tous les radioéléments dans le bulk). Nous présentons leurs valeurs dans le tableau 2 pour l'uranium et le thorium respectivement.

Chaine radioactive	Emetteur alpha	$R\alpha_{SiOx}$ (µm)
	²³⁸ U	18
	²³⁴ U	21,9
	²³⁰ Th	21,3
	²²⁶ Ra	22
Uranium	²²² Rn	27,2
	²¹⁸ Po	31,2
	²¹⁴ Po	45,7
	²¹⁰ Po	25,8
	²³² Th	16,9
	²²⁸ Th	26,6
	²²⁴ Ra	28,6
Thorium	²²⁰ Rn	33,5
	²¹⁶ Po	37,6
	²¹² Po	56,4

Tableau 2. Les parcours des particules α émises par les chaines de l'uranium et du thorium $R\alpha_{SiOx}$ dans une bicouche silicium-oxyde. L'épaisseur de la couche d'oxyde considérée est 7µm et celle de silicium est plus grande que 60 µm.

Il est évident que les valeurs initiales et finales des coordonnées sphériques dépendent du nœud technologique (*Rs*), de l'énergie d'émission de la particule alpha $E\alpha$ et de la nature du milieu traversé (parcours).

2.2.3. L'expression analytique simplifiée du taux d'erreurs

Afin de faciliter le calcul de SER_n en utilisant l'équation (4), la probabilité P_{geom} est simplifiée par son développement en série de Taylor du premier ordre qui donne :

$$P_{geom} = \frac{1}{4} \cdot \left(\frac{Rs}{r}\right)^2 \quad \text{si} \quad r \gg Rs \tag{5}$$

Cette approximation est justifiée par le fait que le rayon Rs d'un volume sensible est de l'ordre de quelques dixièmes à quelques centièmes de micron pour les technologies les plus intégrées (voir tableau 4) alors que le rayon r s'étend à des ranges $R\alpha$ de quelques dizaines de µm. La différence entre l'expression de la probabilité P_{geom} dans les équations (1a) et (5) produit une erreur relative qui décroit rapidement en fonction de r indépendamment de la technologie. La figure 4 montre cette chute en fonction du nombre de rayon Rs.



Figure 4. L'erreur relative commise sur la probabilité P_{geom} en fonction du nombre de Rs.

L'erreur relative commise sur la probabilité géométrique est 50% pour r = Rs, 6,7% pour r = 2Rs, 2,86% pour r = 3Rs et atteint 1% pour r = 5Rs. La partie de l'espace intégrée où l'erreur relative sur la probabilité géométrique est supérieure à 1% se situe dans la zone $Rs \le r \le 5Rs$. Cette couche sphérique devient plus petite pour les technologies les plus intégrées. Son épaisseur est d'environ 0,25

µm pour la 45 nm et environ 0,18 µm pour la 32 nm. Nous nous attendons à ce que sa contribution soit négligeable par rapport à l'espace d'intégration total. En effet, la comparaison entre la solution numérique du taux d'erreur SER_n et sa solution analytique (tableau 3) pour différentes technologies donne une erreur relative qui ne dépasse pas 0,3%. C'est la raison pour laquelle nous préférons utiliser la forme simplifiée de P_{aeom} pour obtenir la solution analytique du taux d'erreurs SER_n .

Chaque nœud technologique est caractérisé par son volume sensible. Le rayon *Rs* de la sphère présentant ce volume est de l'ordre de 0,39 µm pour la 250 nm et il diminue en allant de la 250 à la 22 nm [15][16]. En négligeant le rayon *Rs* devant le parcours de la particule α dans les différents milieux ($R\alpha_{Si}$ et $R\alpha_{SiOx}$), les équations (4) et (5) permettent d'obtenir les expressions analytiques du *SER_n* correspondantes à chaque milieu de la structure présentée dans la figure 1. Ces expressions sont résumées dans le tableau 3 où A_{vsi} et A_{vox} sont les activités volumiques initiales dans le silicium et l'oxyde de silicium respectivement. La somme de ces expressions donne l'expression analytique du taux d'erreurs *SER_n* dans toute la structure.

Milieu		SER _n (FIT/Mbit)	
Région intérieure sensible	du volume	$(1024)^2 \cdot A_{\nu si} \cdot \frac{4\pi}{3} \cdot Rs^3$	
Région extérieure	Zone 1	$(1024)^2 \cdot A_{vsi} \cdot \frac{\pi}{2} \cdot Rs^3 \cdot [ln\left(\frac{R\alpha_{si}}{Rs}\right) - 1]$	
du volume	Zone 2	$(1024)^2 \cdot A_{\nu si} \cdot \frac{\pi}{2} \cdot Rs^2 \cdot R\alpha_{Si}$	
Région de l'oxyde de silicium	Zone 3	$(1024)^{2} \cdot A_{vox} \cdot \frac{\pi}{2} \cdot Rs^{2} \cdot T_{Ox} \cdot ln\left(\frac{R\alpha_{SiOx}}{Rs + Tox}\right)$	
	Zone 4	$(1024)^2 \cdot A_{vox} \cdot \frac{\pi}{2} \cdot Rs^2 \cdot [T_{ox} - Rs \cdot ln(\frac{Rs + Tox}{Rs})]$	

Tableau 3. Les expressions analytiques du SER_n correspondantes à chaque milieu de la structure présentée dans la figure 1. A_{vsi} et A_{vox} sont les activités volumiques initiales dans le silicium et l'oxyde du silicium respectivement. Rs est le rayon du volume sensible. T_{ox} est l'épaisseur de l'oxyde de silicium. $R\alpha_{Si}$ et $R\alpha_{SiOx}$ sont respectivement les parcours des particules α dans le silicium et la bicouche silicium-oxyde.

Finalement, pour trouver le taux d'erreurs totale *SER* produit par toutes les particules α_n à t = 0, nous effectuons la somme suivante :

$$SER = \sum_{n=1}^{m} SER_n \tag{6}$$

où *n* permet de tenir compte de tous les émetteurs alpha dans une chaine de désintégration. Nous avons m = 8 pour la chaine de l'uranium et m = 6 pour la chaine du thorium (m = 7 si la probabilité d'émission est prise en compte pour cette chaine comme dans le chapitre II).

2.3. Le volume sensible

Pour calculer le taux d'erreurs *SER* selon notre modèle pour différentes technologies, nous assimilons le volume sensible de chaque technologie à une sphère et nous calculons son rayon *Rs* correspondant définie par la relation $V_s = \frac{4}{3}\pi \cdot Rs^3$ (tableau 4). Concernant la couche d'oxyde, nous prenons une épaisseur typique $T_{Ox} = 7 \mu m$. Nous avons utilisé la même épaisseur d'oxyde (7 μm) dans tous nos calculs associés à chaque technologie. Cette épaisseur dépend de la technologie mais sa variation d'une technologie à une autre est de l'ordre du micromètre. En utilisant les valeurs de la masse volumique et la masse molaire du silicium et son oxyde et en considérant une contamination unitaire d'un ppb en uranium ²³⁸U et en thorium ²³²Th, nous calculons l'activité volumique A_v associée à chaque milieu. Dans un état d'équilibre séculaire, A_v est la même pour tous les radioéléments de la même chaine (à titre indicatif elle est dans le silicium de 8,8 · 10⁸ et 2,8 · 10⁸ $\alpha/10^9$ h-cm³ pour l'uranium et le thorium respectivement).

Nœud technologique (nm)	Volume sensible (µm ³)	<i>Rs</i> (µm)
250 130 90 65 45 32 28 25 22	0,245 0,025 0,01 0,0035 0,0011 0,00037 0,00031 0,00025 0,00019	0,388 0,181 0,134 0,0942 0,0640 0,04454 0,04198 0,03908 0,03566
	0,00017	.,

Tableau 4. Le volume sensible de chaque technologie et le rayon Rs correspondant [16], [17].

2.4. Résultats

Afin d'étudier la validation de ce modèle pour différentes technologies, nous comparons les valeurs du *SER* attribuées à 1 ppb de l'uranium (²³⁸U et ses descendants) et 1 ppb du thorium (²³²Th et ses descendants) obtenues en utilisant ce modèle avec celles obtenues par la simulation Monte Carlo (MC-ORACLE) qui permet de prédire le taux d'erreurs dû aux particules alpha [18]. Notre simulation utilise le critère empirique du taux d'erreurs qui considère la charge critique déposée dans un volume sensible parallélépipédique. En se basant sur ce critère empirique, il s'agit ici de proposer une expression analytique du taux d'erreurs. L'intérêt est de ne pas avoir à lancer un calcul Monte Carlo qui demande des ressources de calcul importantes.

Notons que les charges critiques utilisées dans les simulations Monte Carlo pour les nœuds technologiques 250, 130, 90 et 65 nm sont celles prises de la référence [16] (*STMicroelectronics's parameters*). Au vu du caractère confidentiel de ce type d'informations, les valeurs de charge critique pour les technologies les plus avancées 45, 32, 28, 25 et 22 nm discutées dans cette étude sont obtenues par extrapolation (les détails de cette extrapolation sont présentés en annexe III-A). Ainsi, les charges critiques utilisées pour les nœuds étudiés en allant de la 250 à la 22 nm sont respectivement 8, 2,5, 1,25, 0,8, 0,4, 0,2, 0,15, 0,12 et 0,1 fC. La longueur de l'arête de la cellule mémoire de chaque technologie utilisée est également mentionnée en annexe III-A. Les figures 5 et 6 montrent le taux d'erreurs *SER* obtenu en fonction de la technologie pour l'uranium et le thorium respectivement, et cela pour la structure présentée en figure 1.



Figure 5. La comparaison entre le taux d'erreurs SER dû à 1 ppb d'uranium (²³⁸U et ses descendants) obtenu par le modèle géométrique et celui obtenu par la simulation Monte Carlo pour la structure présentée en figure 1.



Figure 6. La comparaison entre le taux d'erreurs SER dû à 1 ppb de thorium (²³²Th et ses descendants) obtenu par le modèle géométrique et celui obtenu par la simulation Monte Carlo pour la structure présentée en figure 1.

La comparaison montre que la différence entre les valeurs du taux d'erreurs *SER* obtenues par ces deux méthodes différentes diminue avec la miniaturisation du nœud technologique en allant de plusieurs milliers de FIT/Mbit pour la 250 nm à quelques dizaines de FIT/Mbit pour la 22 nm (erreur relative 10% environ). Ce résultat montre que la précision du modèle géométrique augmente avec l'intégration. Cela est dû au fait que les nouvelles technologies intégrées de mémoires sont très sensibles aux particules alpha au point que la charge critique ne joue plus un rôle essentiel (quasiment toutes les particules alpha traversant le volume sensible créent suffisamment de charge pour déclencher des aléas logiques). Autrement dit, pour les technologies fortement intégrées, l'apparition du *SEU* dépend principalement de la condition de passage de la particule alpha à travers le volume sensible. Ainsi, selon les courbes obtenues en figures 5 et 6, nous n'avons pas besoin de connaitre avec précision la charge critique pour les nœuds plus intégrés que de la 65 nm car nous pouvons considérer que toutes les particules alpha traversant le volume sensible déclenchent des erreurs logiques.

2.5. Impact du rayon Rs du volume sensible sur le taux d'erreurs

Les expressions analytiques SER_n du tableau 3 montrent que le taux d'erreurs dues aux particules alpha suit une loi en puissance de Rs seulement à l'intérieur du volume sensible et la zone 2 de la région du silicium extérieure du volume sensible. Ce comportement en puissance n'est plus valable dans les autres zones couvertes par cette étude. En utilisant ces expressions, nous présentons sur la figure 7 la tendance du taux d'erreurs *SER* déclenchées par les chaines de l'uranium ²³⁸U et du thorium ²³²Th en fonction du rayon *Rs* du volume sensible pour la même structure présentée en figure 1.



Figure 7. Evolution du taux d'erreurs dues à l'²³⁸U, au²³²Th et leurs descendants en fonction du rayon Rs du volume sensible. Les diamants et les triangles pleins (noirs) correspondent aux différents nœuds technologiques présentés dans le tableau 4.

La figure 7 confirme la réduction du taux d'erreurs quand le rayon du volume sensible diminue c'est-à-dire pour les technologies les plus intégrées, et cela pour l'uranium et le thorium. Les systèmes électroniques modernes ont tendance à utiliser des mémoires dont la capacité est de plus en plus grande. Par conséquent, même si les calculs montrent un *SER* (par bit) causé par les particules alpha faible pour les technologies les plus intégrées, leur contribution au taux d'erreurs total dans un système va augmenter.

En supposant que les deux milieux (le silicium et l'oxyde de silicium) sont contaminés par la même concentration radioactive d'un ppb d'uranium (²³⁸U), nous présentons sur la figure 8 la contribution par zone relativement au taux d'erreurs total *SER* produit par la structure présentée en figure 1 pour les nœuds technologiques ≤ 65 nm.



Figure 8. La contribution par zone relativement au taux d'erreurs total SER produit par la structure présentée en figure 1 pour les nœuds technologiques ≤ 65 nm.

D'après la figure 8, la contribution de chaque zone montre une très faible variation pour ces technologies intégrées. Dans l'ensemble, la contribution du volume sensible et la zone 1 du silicium est au mieux de l'ordre de 1% seulement du fait de leurs faibles dimensions. La couche d'oxyde de silicium qui présente le BEOL contribue à hauteur de 20% au taux d'erreurs *SER* total. Enfin, la plus grande contribution vient de la zone 2 de la région du silicium extérieure du volume sensible. Cette zone est responsable approximativement de 79% du *SER*.

Notons que le *SER* est calculé pour un volume sensible seul et isolé, cela signifie que nous sommes seulement intéressés au changement de l'état logique d'un bit unique (*SBU*). Pour les technologies intégrées, les bits de mémoire deviennent de plus en plus proche [17]. Ainsi, une particule alpha émise serait capable de déclencher plusieurs bits au cours de son parcours dans le milieu traversé (MCU). Dans l'avenir, il serait intéressant de développer un modèle afin d'inclure la contribution des MCU au α -SER total. Cependant, ce modèle serait assez difficile à mettre au point si nous voulons tenir compte de toutes les possibilités de MCU (2 bits, 3 bits ...).

2.6. Généralisation à une structure incluant le packaging

Dans notre modèle basé sur des considérations géométriques, nous n'avons considéré que les particules alpha émises depuis la puce (le circuit intégré) pour calculer le taux d'erreurs. Afin de faciliter le développement de notre modèle, nous avons assimilé cette puce à deux parallélépipèdes de silicium et d'oxyde de silicium (figure 1). Cela signifie que nous avons supposé implicitement que

toutes les cellules mémoires d'un Mbit sélectionné sont entourées par les mêmes volumes de matériaux.

Une puce mémoire est toujours supportée par un packaging. Les régions contaminées de ce dernier (boules de soudures, *underfîll, under bump metallurgy*) contribuent à l'augmentation du taux d'erreurs car les zones sensibles des mémoires se trouvent à la portée des particules alpha émises depuis ces régions [17]. La même référence montre que la contribution du packaging au taux d'erreurs α -SER reste constante pour les technologies avancées d'après les simulations Monte Carlo effectuées pour les nœuds 65, 45 et 32 nm dans le cas où les matériaux utilisés dans le packaging sont de la classe ULA. Dans un tel cas, les matériaux utilisés pour le FEOL⁷ et le BEOL (le substrat, les différents niveaux de métallisation et les interconnections) deviennent la source dominante des erreurs (près de 75 %) même avec une émissivité deux fois inférieure à celle des matériaux du packaging. Mais si les fabricants de composants n'effectuent pas suffisamment de purification dans le but de limiter la contamination des matériaux utilisés dans le packaging, la contribution de ce dernier pourrait devenir la principale source du α -SER.

Par suite, il est intéressant de discuter la possibilité de généraliser le modèle géométrique à une structure incluant le packaging. Si nous choisissons un ensemble de cellules d'une mémoire (pas nécessairement un Mbit) situé dans une configuration contenant le packaging tel que cette configuration puisse être simplifiée à un ensemble de parallélépipèdes superposés de différents matériaux, nous pouvons facilement compléter notre modèle pour les particules alpha qui proviennent du packaging en utilisant la même méthode. Evidemment, nous aurions besoin de connaître les propriétés de différentes régions du packaging pour le calcul du *SER* (les dimensions, la densité, la masse molaire et la contamination de chaque région).

3. Prise en compte de la charge critique

Nous avons vu (voir figure 5) que le modèle géométrique surestime le taux d'erreurs pour les technologies les plus anciennes (typiquement avant la 90 nm). L'écart observé est justifié par le fait que le passage de la particule α à travers le volume sensible est une condition nécessaire mais non suffisante pour les technologies les moins intégrées. En effet, une particule α qui traverse le volume sensible doit parcourir une distance suffisante dans ce volume afin de pouvoir créer la charge critique nécessaire pour déclencher une erreur logique. Pour des charges critiques assez grandes, une particule α n'est pas forcément capable de générer cette charge même si elle traverse le volume sensible avec un pouvoir d'arrêt maximum (i.e. au pic de Bragg). Dans cette partie, nous introduisons la notion de charge critique que nous intégrons à notre modèle purement géométrique.

⁷ Front End Of Line.

3.1. Hypothèses simplificatrices

Dans le modèle purement géométrique de la partie précédente nous avons voulu démontrer qu'il est possible de modéliser une structure Si-SiO₂ sans avoir recours à une méthode Monte Carlo. Les expressions obtenues sont relativement lourdes et n'ont finalement pas permis de reproduire les sections efficaces des technologies les moins intégrées, sections efficaces obtenues avec un outil Monte Carlo simulant la même structure. Nos résultats mettent en évidence les limitations du modèle géométrique et la nécessité de tenir compte du dépôt d'énergie, au moins pour les technologies un peu anciennes.

Dans cette partie nous nous attachons à intégrer la notion de charge critique au modèle précédent avec dans l'idée d'obtenir une formulation analytique du taux d'erreurs. Au vu de la complexité du modèle géométrique précédent, nous avons décidé de faire une hypothèse simplificatrice sur la structure que nous étudions. Ainsi, nous considérons maintenant une structure infinie uniquement constituée de silicium. Du point de vue géométrique, cela permet de conserver la symétrie sphérique et de ne pas avoir à déterminer des bornes d'intégrations non triviales pour les angles θ et φ . Dans ces conditions, les équations (4) et (6) donnent simplement :

$$SER = (1024)^2 \cdot m \cdot A_{\nu} \cdot 4\pi \int_{r_i}^{r_f} P_{geom}(r) r^2 dr$$
(7)

Nous nous sommes placés ici dans le cas de l'équilibre séculaire, les *m* émetteurs ayant une activité volumique initiale A_{ν} . La prise en compte du déséquilibre est simple mais alourdit les équations.

Toujours par soucis de simplification la probabilité P_{geom} sera approximée par l'équation (5) et les désintégrations ayant lieu à l'intérieur du volume sensible seront négligées (compte tenu du faible volume en jeu), ce qui permet d'écrire :

$$SER = (1024)^2 \cdot m \cdot A_{\nu} \cdot \pi \cdot R_S^2 \int_{r_i}^{r_f} dr$$
$$= (1024)^2 \cdot m \cdot A_{\nu} \cdot \pi \cdot R_S^2 (r_f - r_i)$$
(8)

Finalement chaque coquille sphérique contribue de la même façon au taux d'erreurs puisque le volume d'une coquille est proportionnel à r^2 tandis que la probabilité que la particule atteigne le volume sensible est inversement proportionnel à r^2 . C'est pour cette raison que l'intégrale qu'il nous reste à calculer possède une expression aussi simple. Cette simplicité n'est en fait qu'apparente

puisque les bornes de cette intégrale ne sont, *a priori,* pas connues. Nous verrons, dans la suite, comment les déterminer.

3.2. Correction de la probabilité géométrique

Le fait que le modèle géométrique soit peu précis pour les technologies les moins intégrées tient au fait que la distance parcourue dans le volume sensible n'est pas suffisamment longue pour que la particule alpha puisse déposer suffisamment d'énergie. De façon schématique, il est facile de comprendre que les particules passant près du centre du volume sensible parcourront une distance plus longue dans le volume sensible comparé à celles qui seront plus éloignées. Ainsi, pour un LET donné, on peut définir une distance minimum (ou distance critique notée R_c) que la particule doit impérativement parcourir dans le volume sensible pour y déposer suffisamment d'énergie. Pour que cette distance critique soit parcourue il faut que la particule passe suffisamment proche du centre du volume sensible. Ainsi à la distance R_c parcourue dans le volume sensible correspond une distance R_e , distance à laquelle l'ion s'approche du centre du volume sensible. En d'autres termes, pour que la particule alpha parcourt au moins la distance R_c dans le volume sensible, elle doit s'approcher à une distance égale ou plus petite que R_e du centre du volume sensible. La figure 9 illustre les différentes grandeurs impliquées.



Figure 9. Le volume sensible effectif défini par son rayon R_e. Le parcours critique R_c correspondant à un LET donné est indiqué en rouge.

Finalement, pour corriger la probabilité géométrique, tout se passe comme-ci la particule alpha devait atteindre un volume sphérique (plus petit que le volume sensible) de rayon R_e pour pouvoir déclencher un événement. Ce volume est ce que nous appelons le volume sensible effectif. Son rayon R_e est défini par la relation suivante issue du théorème de Pythagore :

$$R_e^2 = Rs^2 - \left(\frac{R_c}{2}\right)^2 \tag{9}$$

Evidemment, la distance critique dépend du *LET* de la particule à son arrivée dans le volume sensible, ce qui signifie qu'elle dépend du point de génération. Afin de conserver un modèle simple nous raisonnons sur un pire cas dans lequel la distance critique est simplement la distance nécessaire pour créer la charge critique avec le *LET* maximum d'une particule alpha (*LET_{Bragg}* = 0,34 MeV/µm). Ainsi, le parcours critique R_c et la charge critique (représentative du nœud caractéristique) sont simplement reliés par la relation :

$$R_c = \frac{Q_c/_{44,4}}{LET_{Bragg}} \tag{10}$$

3.3. LET seuil pour déclencher un aléa logique

Si on se rattache au modèle purement géométrique, les bornes d'intégration dans l'équation (8) expriment simplement la capacité d'une particule alpha à atteindre le volume sensible, quelle que soit son énergie. Ainsi, dans ces conditions nous aurions r_i nulle et r_f égale au parcours maximum des particules alpha. Dans la suite, c'est la façon dont nous choisissons les bornes d'intégration qui va permettre de prendre en compte la charge critique dans notre calcul.

Pour cela, nous considérons que le pouvoir d'arrêt varie faiblement dans le volume sensible car ce dernier a des dimensions faibles devant la distance parcourue par la particule alpha. Pour qu'un aléa logique survienne il faut que l'ion crée suffisamment de charge sur une distance inférieure au diamètre du volume sensible. En d'autres termes, l'ion doit atteindre le volume sensible avec un pouvoir d'arrêt (exprimé en MeV/ μ m) au moins égal à :

$$LET_{min} = \frac{Q_{c/_{44,4}}}{2 \cdot R_S}$$
(11)

Pour avoir ce *LET* minimal, l'ion aura à parcourir une distance *R* et compte tenu de la courbe en cloche du *LET*, il ne conservera un *LET* suffisamment important que sur une distance *l*. Ainsi les bornes d'intégration que nous recherchons sont simplement $r_i = R$ et $r_f = R + l$. La valeur de R importe peu puisque, d'après l'équation (8), c'est $r_f - r_i$ qui intervient dans le calcul. La distance $l = r_f - r_i$ n'est en fait rien d'autre que l'épaisseur de la coquille sphérique à partir de laquelle l'ion est émis et atteint

le volume sensible avec un *LET* supérieur à LET_{min} . La valeur de *l* peut être facilement calculée en utilisant les données du logiciel SRIM. Les résultats sont représentés sur la figure 10 sur laquelle nous remarquons qu'une loi exponentielle s'ajuste bien aux points calculés. Ainsi, la longueur *l* est donnée par :

$$l = Min(R_{\alpha}; 214, 7 \cdot e^{-14,99 \times LET_{min}})$$
(12)

L'utilisation de la fonction « Min» assure ici que l'épaisseur de la coquille reste inférieure au parcours de la particule alpha. Puisque nous avons considéré l'équilibre séculaire, nous pouvons prendre $R_{\alpha} = 27 \mu m$ qui est le parcours moyen des alpha issues de la chaine de l'uranium.



Figure 10 : Epaisseur de la coquille à partir de laquelle l'ion est émis en atteignant le volume sensible avec un LET supérieur à LET_{min}.

Compte tenu de cette paramétrisation, l'équation (8) peut s'écrire :

$$SER \approx (1024)^2 \cdot m \cdot A_{\nu} \cdot \pi \cdot \left(Rs^2 - \left(\frac{Q_{c/_{44,4}}}{2 \times LET_{Bragg}} \right)^2 \right) \cdot Min(R_{\alpha}; 214, 7 \cdot e^{-14,99 \times \frac{Q_{c/_{44,4}}}{2 \times R_S}})$$
(13)

qui est exprimé en FIT/Mbit.

L'équation (13) présente l'avantage d'exprimer analytiquement le SER en fonction des deux paramètres technologiques Rs et Q_c . Le terme associé à la fonction « Min » tient compte de la charge

critique de la technologie tandis que le terme possédant un signe négatif représente la correction géométrique liée au fait que nous pouvons exclure les particules alpha qui passent dans le volume sensible mais suffisamment loin du centre du volume sensible (notion de volume sensible effectif).

3.4. Résultats

La figure 11 représente la comparaison de notre modèle analytique avec le calcul Monte Carlo en fonction de la technologie. Nous remarquons que la prise en compte de la charge critique et l'adaptation de la probabilité géométrique permettent d'améliorer nos résultats par rapport au modèle géométrique pur, en particulier pour les technologies les moins intégrées (90 nm, 130 nm et 250 nm). Cependant, un écart important peut encore être observé pour ces technologies, écart qui est attribué principalement à l'estimation pire cas de la distance parcourue dans le volume sensible (équation (10)). Il est vrai qu'il serait facile de prendre en compte le LET réel de l'ion à son entrée dans le volume sensible mais le calcul de l'intégrale dans l'équation (7) ne pourrait plus se faire analytiquement et nous perdrions le bénéfice d'avoir une équation analytique du SER (équation (13)). Cette expression analytique est très intéressante pour comprendre la variation du SER en fonction du rayon du volume sensible et de la charge critique, même dans le pire cas. En particulier, au premier ordre, le SER est simplement proportionnel à Rs^2 donc à la surface du volume sensible. Un terme proportionnel au carré de la charge critique permet d'affiner le calcul en éliminant les particules qui traversent le volume sensible avec un parcours trop court. Enfin, le terme associé à la fonction « Min » est l'épaisseur de la coquille sphérique permettant de produire des particules alphas avec les énergies capables de déclencher des aléas logiques.



Figure 11. Comparaison du SER obtenu par méthode Monte Carlo avec le modèle analytique.

4. Conclusions

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons proposé un modèle géométrique simple pour estimer le taux d'erreurs *SER* dû aux émetteurs des particules alpha. Ce modèle est basé sur le fait que tout passage d'une particule alpha à travers le volume sensible d'une technologie fortement intégrée, déclenchera un aléa logique puisque ce type de technologie est très sensible à ces particules lorsqu'elles sont caractérisées par des charges critiques faibles.

La comparaison entre les valeurs du taux d'erreurs obtenues en utilisant ce modèle avec celles obtenues via la simulation Monte Carlo montre un accord entre ses valeurs pour les technologies les plus intégrées (≤ 45 nm) sachant que ces dernières sont caractérisées dans la première partie par les valeurs de volume sensible et de la charge critique obtenues par extrapolation. Etant donné que le modèle géométrique montre une précision acceptable pour ces technologies (erreur relative de 10% environ pour la 22 nm), l'évaluation du taux d'erreurs en utilisant ce modèle est plutôt raisonnable lorsque ces technologies fortement intégrées sont caractérisées par des valeurs de volume sensible et de la charge critique qui sont du même ordre que celles obtenues par extrapolation car la charge critique ne joue pas un rôle essentiel dans ce cas. L'inconvénient majeur de ce modèle est la lourdeur des équations obtenues (lourdeur liée à la structure Si/SiO₂). Par ailleurs, les charges critiques obtenues sont relativement basses et la prise en compte de valeurs plus élevées n'est pas possible dans le cadre de ce modèle.

Nous nous sommes alors attachés à obtenir une expression analytique du taux d'erreurs en fonctions des paramètres de la technologie (rayon du volume sensible et charge critique). Pour cela nous avons pris une structure simple, uniquement composée de silicium. Le modèle apporte une amélioration significative au modèle géométrique même si un facteur 2 est encore observé pour la 130 nm. Cependant, nous mettons en avant l'intérêt pratique d'avoir une équation aussi simple que l'équation (13) qui soit capable de fournir le *SER* approximatif en fonction de R_s et de Q_c . Cette équation permet d'exprimer les grandes tendances du *SER* en fonction des paramètres caractéristiques de la technologie.

Enfin, même si nous avons considéré l'équilibre séculaire dans nos équations, ces dernières sont facilement transposables au cas où cet équilibre n'est pas atteint. Dans ce dernier cas, il est cependant nécessaire de connaître les concentrations de chaque radioélément de la chaine considérée.

Références (chapitre III)

- T. C. May and M. H. Woods, "Alpha-particle-induced soft errors in dynamic memories," *IEEE Trans. Electron Devices*, vol. 26, no. 1, pp. 2–9, 1979.
- [2] C. M. Hsieh, P. C. Murley, and R. R. O'Brien, "Dynamics of charge collection from alpha-particle tracks in integrated circuits," in *Reliability Physics Symposium*, *1981*. *19th Annual*, 1981, pp. 38–42.
- [3] R. C. Baumann, "Radiation-induced soft errors in advanced semiconductor technologies," *IEEE Trans. Device Mater. Reliab.*, vol. 5, no. 3, pp. 305–316, Sep. 2005.
- [4] F. Wrobel, J. Gasiot, and F. Saigne, "Hafnium and Uranium Contributions to Soft Error Rate at Ground Level," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 55, no. 6, pp. 3141–3145, Dec. 2008.
- [5] E. H. Cannon, D. D. Reinhardt, M. S. Gordon, and P. S. Makowenskyj, "SRAM SER in 90, 130 and 180 nm bulk and SOI technologies," in *IEEE International Reliability Physics Symposium Proceedings, 42nd Annual.*, 2004, pp. 300–304.
- [6] J. L. Autran, P. Roche, S. Sauze, G. Gasiot, D. Munteanu, P. Loaiza, M. Zampaolo, and J. Borel, "Real-time neutron and alpha soft-error rate testing of CMOS 130nm SRAM: Altitude versus underground measurements," in *IEEE International Conference on Integrated Circuit Design and Technology and Tutorial*, 2008, pp. 233–236.
- [7] J. L. Autran, P. Roche, S. Sauze, G. Gasiot, D. Munteanu, P. Loaiza, M. Zampaolo, and J. Borel,
 "Altitude and underground real-time SER characterization of CMOS 65 nm SRAM," *Nucl. Sci. IEEE Trans. On*, vol. 56, no. 4, pp. 2258–2266, 2009.
- [8] J. L. Autran, S. Serre, D. Munteanu, S. Martinie, S. Semikh, S. Sauze, S. Uznanski, G. Gasiot, and P. Roche, "Real-time soft-error testing of 40nm SRAMs," in *IEEE International Reliability Physics Symposium (IRPS)*, 2012, p. 3C. 5.1–3C. 5.9.
- [9] F. Wrobel, F. Saigne, M. Gedion, J. Gasiot, and R. D. Schrimpf, "Radioactive Nuclei Induced Soft Errors at Ground Level," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 56, no. 6, pp. 3437–3441, Dec. 2009.
- [10] E. L. Petersen, J. C. Pickel, E. C. Smith, P. J. Rudeck, and J. R. Letaw, "Geometrical factors in SEE rate calculations," *Nucl. Sci. IEEE Trans. On*, vol. 40, no. 6, pp. 1888–1909, 1993.
- [11] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, and J. P. Biersack, "SRIM–The stopping and range of ions in matter (2010)," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 268, no. 11, pp. 1818–1823, 2010.
- [12] R. C. Baumann, "Soft errors in advanced semiconductor devices-part I: the three radiation sources," *IEEE Trans. Device Mater. Reliab.*, vol. 1, no. 1, pp. 17–22, Mar. 2001.
- [13] F. Wrobel, J.-M. Palau, M. C. Calvet, O. Bersillon, and H. Duarte, "Incidence of multi-particle events on soft error rates caused by n-Si nuclear reactions," *Nucl. Sci. IEEE Trans. On*, vol. 47, no. 6, pp. 2580–2585, 2000.

- [14] E. Rutherford and F. Soddy, "LX. Radioactive Change," Lond. Edinb. Dublin Philos. Mag. J. Sci., vol. 5, no. 29, pp. 576–591, 1903.
- [15] M. Gedion, F. Wrobel, F. Saigne, and R. D. Schrimpf, "Uranium and Thorium Contribution to Soft Error Rate in Advanced Technologies," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 58, no. 3, pp. 1098– 1103, Jun. 2011.
- [16] P. Roche, G. Gasiot, K. Forbes, V. O'Sullivan, and V. Ferlet, "Comparisons of soft error rate for SRAMs in commercial SOI and bulk below the 130-nm technology node," *Nucl. Sci. IEEE Trans. On*, vol. 50, no. 6, pp. 2046–2054, 2003.
- [17] M. Gedion, F. Wrobel, F. Saigné, R. D. Schrimpf, and J. Mekki, "Monte Carlo Simulations to Evaluate the Contribution of Si Bulk, Interconnects, and Packaging to Alpha-Soft Error Rates in Advanced Technologies," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 57, no. 6, pp. 3121–3126, Dec. 2010.
- [18] F. Wrobel and F. Saigné, "MC-ORACLE: A tool for predicting soft error rate," *Comput. Phys. Commun.*, vol. 182, no. 2, pp. 317–321, 2011.
- [19] http://www.itrs.net/Links/2010ITRS/Home2010.htm.
Chapitre IV

Investigation de l'état de déséquilibre des chaines de l'uranium et du thorium en utilisant les techniques de spectroscopie Alpha, Gamma et l'ICP-MS

1. Introduction

Les particules alpha émises par les impuretés radioactives des chaines de l'uranium ²³⁸U et du thorium ²³²Th sont parmi les sources principales responsables des aléas logiques au niveau des mémoires volatiles SRAM et DRAM [1]–[3].

L'état de l'équilibre séculaire d'une chaine radioactive est souvent supposé pour calculer le taux d'erreurs. Cet état signifie que l'activité du noyau père et ses descendants ont la même activité. Cependant, cet état généralement n'est pas conservé dans les matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires. L'état de déséquilibre peut se produire dans ces matériaux au cours des procédés industriels de purification des matières premières et la fabrication des circuits intégrés.

M. Gedion *et al.* ont montré qu'un état de déséquilibre de la chaine de l'uranium causé par un enrichissement de certains radioéléments peut augmenter considérablement l'activité totale des particules alpha dans les matériaux utilisés [4]. Nous avons nous même abouti à cette conclusion pour les chaines de l'uranium mais aussi du thorium (chap II). De plus, une étude expérimentale de wafers de silicium recouverts par une couche de plomb a montré que l'émissivité alpha augmente au cours du temps et atteint son maximum après deux ans environ [5]. Le principal problème est que ce déséquilibre d'une chaine de désintégration peut accroitre le taux d'erreurs dans les mémoires à des niveaux inacceptables. Par suite, il est utile d'effectuer une investigation expérimentale de cet état de déséquilibre des chaines radioactives dans les matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires.

Actuellement, il n'existe pas de technique d'analyse qui permette d'obtenir l'activité de tous les éléments radioactifs d'une chaine de désintégration. Par conséquent, l'utilisation de plusieurs techniques complémentaires est nécessaire afin de pouvoir recueillir le maximum de données possibles sur l'état radioactif des chaines radioactives dans différents matériaux. Lors de la désintégration de ces chaines, des électrons, des particules alpha et des photons gamma sont émis. Afin d'exploiter les informations qui pourraient être véhiculées par ces particules, nous utilisons dans notre investigation la spectroscopie alpha et gamma. De plus, notre analyse sera complétée par l'ICPMS (*Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry*).

Dans ce chapitre, nous commençons par décrire ces différentes techniques. Ensuite, nous analysons les informations qui peuvent être extraites par chaque technique dans différents matériaux et en fonction de leurs grades de pureté. Dans la dernière partie, nous poursuivons notre investigation de l'état radioactif dans le même échantillon d'aluminium en utilisant les trois techniques précitées.

2. Les notions de caractérisation et les unités de mesures

Afin d'évaluer l'activité d'un échantillon contaminé par des impuretés radioactives, on utilise souvent comme unité le Becquerel (Bq) qui exprime le nombre de désintégrations qui se produisent par seconde. Cette grandeur dépend de la masse de l'échantillon considéré. Pour estimer l'activité de manière indépendante de ce paramètre, l'activité spécifique est préférée dans notre étude. Elle est exprimée en Bq/kg.

Dans le chapitre II nous avons introduit la notion d'émissivité alpha qui exprime le nombre de particules alpha capables de quitter l'échantillon par unité de surface et de temps (généralement exprimée en α /hr-cm²). Pour des échantillons minces, l'activité spécifique et l'émissivité sont deux grandeurs proportionnelles. Le facteur de proportionnalité dépend de la densité de l'échantillon, la probabilité d'émission alpha et l'épaisseur de la couche considérée [6].

Les concentrations d'impuretés radioactives dans un échantillon sont généralement estimées en termes de ppb (une partie par milliard). Elle exprime soit une proportion atomique, soit une proportion de masse par rapport au milieu contaminé. Ainsi, dans le premier cas, un ppb d'impuretés radioactives est le rapport d'un atome radioactif par rapport à un milliard d'atomes du milieu contaminé, alors que dans le second cas, un ppb d'impureté radioactive signifie qu'il y a 1 ng d'impuretés dans 1 g de l'échantillon (y compris les impuretés radioactives). C'est la deuxième définition qui est adoptée pour exprimer les mesures obtenues par l'ICP-MS. Dans les deux définitions, la concentration radioactive est simplement proportionnelle à son activité (ou son activité spécifique) correspondante [6].

L'utilisation de l'activité spécifique est en fait plus appropriée car elle nous permet de donner directement des informations sur l'état de la chaine de désintégration par rapport à l'équilibre séculaire sans faire de calculs. Cependant, les fabricants de semi-conducteurs ont plutôt tendance à effectuer des mesures d'émissivité alpha pour déterminer le grade de pureté en termes de contamination radioactive des matériaux utilisés. Pour ces raisons, nous avons utilisé à la fois l'activité spécifique et l'émissivité pour effectuer notre analyse.

- 3. Les dispositifs expérimentaux
- 3.1 La spectroscopie gamma

3.1.1 Le spectromètre gamma utilisé

La désintégration d'un radioélément d'une chaine radioactive est souvent accompagnée de l'émission de photons gamma avec une énergie bien définie qui caractérise ce radioélément. Les valeurs de ces énergies associées aux différents radioéléments sont indiquées dans les tableaux 1 et 2 de l'annexe I-A. En vue d'exploiter les informations qui pourraient être fournies par ces photons gamma, nous avons utilisé l'instrument de la spectroscopie gamma installé au Laboratoire Souterrain de Modane (LSM) en France [7] pour mesurer l'activité de ces émetteurs gamma. Cet instrument utilise un détecteur à base de Germanium (HPGe). Le cristal de Germanium utilisé a une géométrie plane et un volume de 150 cm³ [8]. Le bruit de fond de ce détecteur est diminué d'un facteur supérieur à 100 entre le niveau du sol et le laboratoire souterrain. En effet, dans cet environnement souterrain, les neutrons issus du rayonnement cosmiques sont complètement supprimés [9], ce qui rend la contribution d'un rayonnement gamma produit par une éventuelle fission nucléaire pratiquement nulle. C'est la raison pour laquelle nous avons choisi ce détecteur car il permet d'envisager des mesures de très faible radioactivité. En outre, ce détecteur est protégé contre les autres sources de rayonnement gamma par le plomb archéologique dans lequel l'isotope du plomb ²¹⁰Pb a décru. Notons qu'il faut environ $10 \cdot T_{1/2}$ pour qu'un élément radioactif disparaisse à 99,9%. Cela correspond à environ 223 ans pour le plomb ²¹⁰Pb. Le plomb est ici utilisé pour arrêter les rayonnements gamma émis par d'autres sources extérieures et qui pourraient interférer avec la mesure.

L'instrument est capable d'accueillir un échantillon de forme cylindrique avec un diamètre D < 80 mm, une épaisseur e < 21 mm et une masse maximale de 500 g (fig 1.a). L'avantage de cette technique est qu'elle ne nécessite pas une grande préparation préalable de l'échantillon.

Les photons gamma sont détectés suite à la création de paires électrons-trous (e⁻.h⁺) au niveau du Germanium par effet photoélectrique et diffusion Compton. En effet, les impuretés radioactives émettent les photons gamma avec des énergies qui favorisent l'ionisation du Germanium selon ces deux mécanismes. Ensuite, une haute tension est appliquée pour séparer les électrons des trous, ce qui permet d'obtenir un signal électrique. Ce dernier est récupéré sous forme numérique à l'aide d'un convertisseur analogique numérique CAN avant d'être traité et visualisé par un logiciel approprié (fig1.b). Le signal numérique correspondant à un radioélément a la forme d'une gaussienne dont la position sur l'échelle des énergies dépend de l'énergie des photons gamma émis par ce radioélément et sa hauteur dépend du nombre de coups enregistrés. Ainsi, ce signal permet de remonter à l'activité des éléments radioactifs émetteurs gamma. Ce spectromètre est équipé d'un système de refroidissement permettant d'élargir le gap du Germanium et ainsi obtenir une meilleure résolution.

Chapitre IV. Investigation de l'état de déséquilibre des chaines de l'uranium et du thorium en utilisant les techniques de spectroscopie Alpha, Gamma et l'ICP-MS



Schoo ap arguno 10 10 10 10 10 10 10 100 150 20 100 150 20 Energie (keV)

Figure 1.a Le spectromètre Gamma du Laboratoire Souterrain de Modane (LSM)

Figure 1.b Le type de spectre d'énergie obtenu par le spectromètre Gamma.

La limite de détection associée à chaque radioélément de cette technique dépend de la probabilité d'émission des rayonnements gamma, du temps de mesure (elle est inversement proportionnelle à la racine carrée de ce temps), de la masse de l'échantillon analysé et du rendement de détection (sachant qu'on perd initialement environ 50% des photons émis). Cette limite de détection des rayonnements gamma est d'autant plus basse que la probabilité d'émission est grande. Pour deux radioéléments ayant la même probabilité d'émission de rayonnement gamma, on peut s'attendre à une limite de détection plus basse du radioélément qui a un temps de demi-vie plus court.

3.1.2 La mesure de l'activité de différents matériaux en fonction de leurs grades de pureté

Afin d'investiguer l'état des chaines radioactives de l'uranium ²³⁸U et du thorium ²³²Th par rapport à l'équilibre séculaire dans les matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires, nous avons mesuré les activités des masses connues de différents matériaux en utilisant le spectromètre gamma décrit précédemment. Ces mesures ont été réalisées sur le plomb, l'étain, le nickel et le tungstène dont les grades de pureté sont reportés dans le tableau 1. Ces échantillons sont fournis par 'Alfa Aesar' et 'Good Fellow' en forme de grains (ou en poudre) et par 'Albal' pour la feuille d'aluminium.

Matériau	Plomb	Etain	Nickel	Tungstène	Cuivre	Aluminium
grade de pureté	5N (99,999%)	5N (99,999%)	4N (99,995%)	2N (99%)	6N (99,9999%) 5N (99,999%) 4N (99,995%)	6N (99,9999%) 5N (99,999%) 3N (99,9%) 2N (99%)

Tableau 1. Les différents matériaux analysés en utilisant la spectroscopie Gamma.

Les mesures que nous avons obtenues en termes de Bq/kg sont indiquées dans le tableau 2. Pour le reste des échantillons (particulièrement les échantillons hautement purifiés), les activités sont en dessous des limites de détection pour la totalité des radioéléments recherchés.

	Activité spécifique A_m (Bq/kg)						
Matériau (grade de pureté)	Ι	La chaine ²³⁸ U	La chain	e ²³² Th			
	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²¹⁰ Pb	²²⁸ Ra	²²⁸ Th		
Plomb de 'Alfa Aesar' 5N (99,999%)	< 0,55	< 0,031	28,4 ± 1,28	< 0,16	< 0,096		
Aluminium de 'Good Fellow' 3N (99,9%)	4,78 ± 0,209	< 0,0211	72,6 ± 4,1	< 0,16	< 0,0211		
Feuille d'aluminium 'Albal' 2N (99%)	11,4 ± 1,07	< 0,342	101,82 ± 18,54	< 0,16	2,72 ± 0,248		

Tableau 2. Les mesures de l'activité de certains radioéléments dans des échantillons du plomb etd'aluminium en fonction de leurs grades de pureté en utilisant la spectroscopie gamma.

Cette technique a permis de donner des informations à propos de l'activité de certains radioéléments émetteurs gamma dans les échantillons de l'aluminium dont le grade de pureté est en dessous de 4N. Dans le cas 3N, les activités de l'²³⁸U et du plomb ²¹⁰Pb sont bien déterminées. Pour l'aluminium 2N, il est possible de déterminer en plus l'activité du ²²⁸Th. Nous remarquons que la probabilité d'émission gamma et le temps de demi-vie de ces radioéléments sont suffisamment grands (rappelons que les probabilités d'émission gamma des radioéléments ²³⁸U, ²¹⁰Pb et ²²⁸Th sont respectivement 23%, 81% et 28% [10]). Toutefois, la détection de ces radioéléments par spectroscopie

gamma dépend du matériau et de son grade de pureté. À titre d'exemple, cette technique est capable de déterminer l'activité de l'isotope du plomb ²¹⁰Pb dans le plomb 5N.

Malgré les limitations constatées de cette technique de mesure dans les matériaux hautement purifiés, elle peut être envisagée pour faire un tri préalable des matériaux bruts en fonction de leurs provenances. De plus, cette technique a l'avantage de pouvoir mesurer des activités très basses qui correspondent à des concentrations radioactives de l'ordre de quelques dixièmes de ppq (rapport des masses de 10⁻¹⁵) comme c'est typiquement le cas pour le ²²⁸Th dans l'aluminium 2N analysé ici. Il est à noter que cet ordre de grandeur de concentrations radioactives n'est pas accessible actuellement par la technique de l'ICP-MS qui sera décrite par la suite. La détermination précise de l'activité de certains radioéléments avec la spectroscopie gamma permet également d'identifier l'état radioactif de la chaine de l'uranium et du thorium par rapport à l'équilibre. En effet, la chaine de l'uranium se trouve dans un état de déséquilibre dans le plomb 5N, l'aluminium 3N et 2N. Quant à la chaine du thorium, elle se trouve également en déséquilibre dans l'aluminium 2N. Par contre, on ne peut rien dire à propos de l'état radioactif d'une chaine quand toutes les activités de ces radioéléments sont en dessous des limites de détection. C'est le cas de la chaine du thorium dans les échantillons de l'étain, du cuivre, du nickel, du tungstène et de l'aluminium 3N.

Malheureusement cette technique de mesure présente d'autres inconvénients. Nous ne pouvons pas déterminer l'activité du ²³²Th, de l' ²³⁴U et du ²³⁰Th car ses isotopes sont émetteurs alpha purs (pas d'émission de rayonnement gamma). Par suite, l'utilisation d'une seule technique d'investigation s'avère insuffisante pour pouvoir prédire l'évolution de l'état radioactif d'une chaine par rapport à l'équilibre. D'où la nécessité de compléter les analyses précédentes par d'autres techniques permettant d'extraire des informations complémentaires. Dans ce travail, nous avons opté pour l'ICP-MS (*Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry*) et la spectroscopie alpha.

3.2 L'ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry)

3.2.1 L'équipement ICPMS utilisé

Pour extraire plus de données, nous avons également utilisé le spectromètre de masse ICP-MS pour mesurer les concentrations des impuretés radioactives dans l'aluminium. Ainsi, nous avons analysé une feuille d'aluminium et un deuxième échantillon de ce matériau en forme de poudre. L'équipement ICP-MS que nous avons utilisé est celui du laboratoire Géoscience de l'Université Montpellier 2. Il est de type Agilent 7700x. La figure 2 indique les principaux composants de cet équipement.

Chapitre IV. Investigation de l'état de déséquilibre des chaines de l'uranium et du thorium en utilisant les techniques de spectroscopie Alpha, Gamma et l'ICP-MS



Figure 2. Les principaux composants de l'ICP-MS Agilent 7700.

C'est un spectromètre de masse à filtre quadripolaire (*Hyperbolic Quadrupole*) équipé d'une source plasma d'Argon créée à l'aide d'un générateur radiofréquence (*Plasma RF Generator*). Ce plasma étant une source de chaleur sert à ioniser les atomes de l'échantillon introduit en faisant varier la température dans la gamme de 5000-8000 °C. L'appareil est doté d'un système d'introduction direct (automatisé) des échantillons (*kit High Matrix Introduction*) permettant d'analyser, sans dilution préalable, des échantillons sous forme liquide dont le taux de solide dissout dépasse largement les 1g/litre (i.e. eau de mer).

Dans ce type d'appareillage, les problèmes d'interférences rendent difficile la distinction entre certains éléments. Ces interférences se produisent lorsque des éléments ou des ions polyatomiques ayant le même nombre de masse que l'élément chimique recherché (analyte) sont détectés par l'ICP-MS. Ils sont appelés les interférents. Dans la chaine de l'uranium, par exemple, ce type de problème peut se produire dans les groupes de radioéléments suivants :

- Le 234 Th, le 234 Pa et le 234 U.
- Le 214 Pb, le 214 Bi et le 214 Po.
- Le ²¹⁰Pb, le ²¹⁰Bi et le ²¹⁰Po.

Quant à la chaine du thorium, il s'agit des groupes de radioéléments suivants :

- Le 228 Ra, le 228 Ac et le 228 Th.
- Le 212 Pb, le 212 Bi et le 212 Po.

Afin de surmonter ces contraintes, l'ICP-MS Agilent 7700 est muni d'un dispositif de collisionréaction (*Octopole reaction system*). Ce dernier enferme une cellule pressurisée au moyen d'un gaz post-plasma injecté pour interagir avec l'interférent ou l'analyte. La première méthode utilisée consiste à éliminer les interférences polyatomiques par un mécanisme collisionnel qui dissocie l'ion polyatomique ou un mécanisme réactionnel qui neutralise par exemple l'espèce interférente. La deuxième méthode consiste à modifier la masse de l'analyte et permettre ainsi la mesure à des masses non interférées. Ainsi, le gaz sera choisi inerte ou potentiellement réactif en fonction de la méthode adoptée et l'élément recherché. Dans notre cas c'est l'hélium He qui est utilisé. On parle d'un mode de fonctionnement dit *« He collision mode ».* Notons que des tensions alternatives sont appliquées à chacun des pôles de ce dispositif afin d'assurer un guidage des ions vers la sortie de la cellule. Ces ions se trouvent ensuite dans le filtre quadripolaire (spectromètre de masse) qui sépare les ions de l'élément recherché des autres ions en fonction du rapport entre leurs masses et leurs charges.

Finalement, le détecteur (*Electron Multiplier Detector*) génère une impulsion mesurable à chaque collision de l'ion de l'élément chimique recherché avec ce détecteur et permet ainsi d'enregistrer le nombre de coups correspondants. Ce nombre de coup est proportionnel à la concentration de cet élément dans le matériau analysé conformément à sa courbe de calibration. Les concentrations minimales détectables par cet équipement sont de l'ordre de quelques ppt.

3.2.2 Protocole de préparation des échantillons

Dans cette partie, nous décrivons le protocole de préparation d'un échantillon d'aluminium avant qu'il ne soit introduit dans l'équipement ICP-MS. Pour cette préparation, nous avons utilisé des piluliers de 10 ml et un bécher de 1 litre fabriqués en Téflon capables de résister à des températures élevées (> 200 °C). Etant donné que nous cherchons des concentrations très basses d'impuretés radioactives (quelques centaines de ppb au maximum), un nettoyage préalable et minutieux doit être effectué sur les récipients (piluliers et bécher).

En première étape, on remplit les piluliers avec de l'eau distillée puis on les met à l'intérieur du bécher. Ce dernier va être ensuite rempli par un mélange dit « eau régale ». Pour l'obtenir, on verse un tiers du volume de bécher (1/3 l) d'acide nitrique ultra pur fourni par la société ROTH dont la concentration massique est 69% (15,44 mol/l). Cet acide est caractérisé par une concentration radioactive en uranium et en thorium inférieure à 0,1 ppb. Puis, on rajoute le même volume d'acide chlorhydrique 35% (environ 11,33 mol/l) dont la concentration en impuretés radioactives (uranium et thorium) est également inférieure à 0,1 ppb. Enfin, on accomplit le remplissage du bécher avec de l'eau distillée. Après l'avoir couvert, le bécher est placé sur une plaque chauffante afin de porter la

température du contenu du bécher à 104 °C. Le chauffage du mélange se déroule sous une hotte pendant 48 h. À la fin de cette période de chauffage, on vide l'eau régale dans un récipient approprié. Après cela, on remplit le bécher contenant les piluliers avec de l'eau distillée. En maintenant la couverture du bécher, on procède au rinçage en le secouant. Ce lavage à l'eau distillée doit être répété plusieurs fois pour enlever les dernières traces d'eau régale. À la fin du rinçage, on sort les piluliers (et leurs bouchons) et on les dépose verticalement afin de les vider complètement. Dans une seconde étape, on refait le lavage de la même façon mais cette fois on utilise uniquement un volume d'un demi-litre d'acide nitrique 69% dilué par un demi-litre de l'eau distillée.

Après avoir nettoyé les piluliers, l'échantillon doit être traité avec des solutions acides avant d'être analysé par l'ICPMS. Dans notre cas, l'aluminium est traité avec de l'acide nitrique ultra pur dont la concentration massique est 65% (environ 13,28 mol/l). Nous avons manipulé des échantillons d'aluminium en forme de feuille et en poudre. Dans le cas des feuilles d'aluminium, la surface de ces dernières doit être nettoyée à l'aide d'un papier approprié imprégné avec de l'eau distillée et quelques gouttes d'acide nitrique avant le traitement par acide. De plus, ces feuilles sont coupées en petits morceaux afin d'augmenter la surface de réaction avec l'acide. Afin de pouvoir comparer nos analyses et nos mesures, nous avons pris deux échantillons de feuilles d'aluminium et deux autres échantillons en poudre. Leurs masses mesurées sont respectivement $m_{feuille1} = 19,8 \pm 0,1 \text{ mg}, m_{feuille2} = 15,4 \pm 0,1$ mg, $m_{poudre1} = 55.8 \pm 0.1$ mg, $m_{poudre2} = 52 \pm 0.1$ mg. Une fois les échantillons mis dans les piluliers, on ajoute 3 ml d'acide nitrique pur (65%) à chacun d'eux et on ferme les piluliers pour éviter l'évaporation de l'acide. Dans les analyses des concentrations à l'aide de l'ICPMS, il faut ajouter un témoin appelé « blanc ». Dans notre cas, c'est un pilulier remplit de 3 ml d'acide nitrique utilisé précédemment (i.e. pas d'échantillon). Finalement, on met les piluliers (au nombre de cinq) sur une plaque chauffante pour que la réaction se déroule à température T = 110-115 °C, et cela pendant 24 h environ. À la fin de cette période, on s'assure de l'aboutissement des réactions en examinant les piluliers ouverts à l'œil nu. Après, ils sont remis ouverts sur la plaque chauffante afin de les sécher avant d'être refermés et couverts par un film plastique pour éviter toute contamination.

En dernière étape, les produits de la réaction chimique dans chaque pilulier doivent être transférés dans un tube à essai. Pour cela, on ajoute 0,25 ml d'acide nitrique pur (65%) et quelques goutes d'eau distillée dans chacun des piluliers. Ces derniers sont remis sur la plaque chauffante à T = 80 °C pendant 10 à 15 min pour s'assurer que les produits sont bien dilués. Ensuite, le contenu de chaque pilulier est transféré dans un tube à essai qui va être rempli avec de l'eau distillée et 0,1 g d'une solution standard jusqu'à avoir une solution d'une masse d'environ 10 g. La solution standard permet de vérifier la calibration de l'ICPMS. Elle est caractérisée par une concentration de 0,1 ppb de

bismuth ²⁰⁹Bi et d'indium ¹¹⁵In. Les échantillons ainsi traités sont prêts pour être introduits dans l'ICPMS.

3.2.3 Les mesures ICPMS dans l'aluminium

Ainsi, en suivant un protocole de préparation qui consiste à dissoudre les échantillons d'aluminium dans l'acide nitrique 65% sur une plaque chauffante [11], nous avons obtenu les concentrations des noyaux pères ²³⁸U et ²³²Th dans les quatre échantillons d'aluminium et l'acide nitrique utilisé (le blanc) pour traiter ces échantillons. Ces concentrations et leurs activités spécifiques correspondantes sont résumées dans le tableau 3 sachant que, pour le blanc, nous avons indiqué uniquement les concentrations qui indiquent clairement que l'échantillon témoin est très faiblement contaminé par l'uranium et le thorium. À titre comparatif, nous avons ajouté également une colonne pour rappeler les activités obtenues précédemment par la spectroscopie gamma.

Les résultats des mesures pour deux échantillons du même matériau sont très proches. La petite différence constatée reste acceptable dans le cadre des incertitudes et tenant compte d'une répartition des impuretés radioactives qui n'est pas exactement la même dans les deux échantillons. La comparaison avec les valeurs de l'activité de l'²³⁸U obtenues précédemment par la spectroscopie gamma montre une bonne cohérence pour les échantillons de l'aluminium 'Good Fellow' mais une cohérence plutôt moyenne pour les échantillons de la feuille d'aluminium. Dans l'ensemble, les résultats valident notre protocole de préparation.

Concernant le blanc, les incertitudes relatives sur les concentrations mesurées sont plus de 100% pour l'²³⁸U et environ 40% pour le ²³²Th. Cependant ces concentrations restent compatibles avec celles avancées par le fournisseur de l'acide nitrique c'est-à-dire moins de 0,1 ppb. Autrement dit, notre protocole et les conditions de préparation deviennent insuffisants pour des concentrations aussi basses. On note que le traitement d'un échantillon et les moyens utilisés varient selon l'élément chimique traité et l'ordre de grandeur de la concentration recherchée [11], [12] (l'utilisation de la salle blanche est plutôt indispensable dans certains cas).

L'ICPMS a permis d'obtenir l'activité de l'isotope du thorium ²³²Th, une information qui n'était pas mesurable par la spectroscopie gamma. Ainsi, l'ICPMS est une technique complémentaire pour l'investigation de l'état radioactif des chaines de désintégration. Malheureusement, cette technique devient inutile pour des concentrations très faibles (moins de quelques ppt), ce qui est le cas pour les radioéléments ayant un temps de demi-vie relativement court comme le ²²⁶Ra, le ²¹⁰Pb, le ²²⁸Ra et le ²²⁸Th.

Matériau (grade de pureté)	Echantillon	Concentration C (ppb)		Actir spécif A (Bq/	vité fique ^m kg)	Activité spécifique <i>A_m</i> par Spectroscopie Gamma (Bq/kg)
		²³⁸ U	²³² Th	²³⁸ U	²³² Th	²³⁸ U
Aluminium en poudre de	1	380,35 ± 2,10	25,37 ± 0,34	4,73 ± 0,03	0,103 ± 0,001	4,78
3N (99,9%)	2	402,84 ± 4,07	26,98 ± 0,23	5,01 ± 0,05	0,109 ± 0,001	± 0,209
Feuille d'aluminium	3	1338,14 ± 11,37	45,36 ± 0,61	16,66 ± 0,14	0,184 ± 0,002	11,4
'Albal' 2N	4	1366,5 ± 17,01	48,60 ± 0,42	17,01 ± 0,14	0,197 ± 0,002	± 1,07
Blanc	5	0,04 ± 0,05	0,18 ± 0,07		_	

Tableau 3. Les mesures par l'ICPMS des concentrations des noyaux pères ²³⁸U et ²³²Th et leurs activités spécifiques correspondantes dans quatre échantillons d'aluminium en fonction de leurs grades de pureté. Ces concentrations sont également indiquées pour le blanc. La première colonne à droite rappelle les activités obtenues précédemment par la spectroscopie Gamma.

3.3 La spectroscopie Alpha

3.3.1 Le spectromètre Alpha XIA et son principe de fonctionnement

La spectroscopie alpha est une technique qui permet d'obtenir l'émissivité en termes de particules alpha émises par unité de temps et de surface depuis une couche de matériau. Pour notre investigation, nous avons utilisé le compteur de particules alpha XIA [13] (UltraLo-1800 α-counter)

installé à l'Institut des Matériaux, de Microélectronique et des Nanosciences de Provence (IM2NP) à Marseille pour mesurer l'émissivité totale de la feuille d'aluminium. L'énergie de seuil E_{th} caractéristique de ce détecteur est 1MeV. Cela signifie que les particules alpha qui quittent la couche du matériau ayant une énergie égale ou en dessous de 1MeV ne seront pas détectées par le compteur. Dans ce spectromètre alpha, les particules alpha émises viennent ioniser les atomes de l'Argon (gaz neutre) suite à des collisions inélastiques. Les particules alpha sont émises par les impuretés radioactives avec des énergies $E\alpha \ge 4$ MeV qui favorisent la perte d'énergie par ce type de collisions [14]. La haute tension appliquée va permettre la collecte des électrons ainsi créés et d'avoir ainsi une information sur l'énergie de la particule alpha émise.



Figure 3. Le spectromètre XIA (UltraLo-1800 α-conter) installé à l'IM2NP.

3.3.2 Les mesures de l'émissivité dans le silicium et l'aluminium

Avant d'effectuer des mesures de l'émissivité sur une surface quelconque, cette dernière doit être nettoyée successivement avec de l'acétone, de l'alcool méthylique, de l'eau distillée et finalement il faut sécher cette surface en utilisant un gaz neutre (exemple : l'Argon). Cette opération de nettoyage a pour but de dégraisser la surface des matières organiques et également la nettoyer du Radon (²²²Rn et ²²⁰Ra) et ses descendants.

Il est conseillé de supprimer les premières heures de mesure (voire les premiers jours) pour assurer une mesure fiable de l'émissivité. Cela est dû au fait que l'Argon est initialement humidifié par des traces d'air chargées en vapeur d'eau. Ceci peut empêcher la bonne collecte des électrons créés dans le spectromètre car la vapeur d'eau contient les ions d'hydronium (H_3O^+) et d'hydroxyde (OH^-) qui sont très réactifs chimiquement.

Le spectromètre XIA (UltraLo-1800 α -counter) donne le nombre de coups enregistrés ou l'émissivité pour des intervalles de temps identiques. Il peut détecter les particules alphas émises depuis une surface de 707 cm² (la surface d'un wafer 300 mm ou 12''). Il fournit également le spectre d'énergie correspondant. Nous avons résumé dans le tableau 4 les valeurs moyennes (stables) de l'émissivité mesurées pour différentes couches de matériaux (principalement du silicium et d'aluminium).

Matériau	Date	Nombre de particules alpha détectées	Temps de mesure (h)	Emissivité (α/hr-cm ²)
Wafer 300 mm ⁸ de Si-MAT	Non indiqué	Non indiqué	48	$0,00078 \pm 0,00015$
Wafer ATMEL 8'' intégrant une technologie 0,35 µm	03/06/2013	427 (les 3 premiers jours sont supprimés)	96	$0,0071 \pm 0,00023$
Feuille d'aluminium 'Good Fellow' (0, 8 µm et 99,1%)	25/05/2013	494	156 (les 12 premières heures sont supprimées)	0,00447
Feuille d'aluminium 'Albal' 2N (99%)	14/03/13	1344	23,765	0,08661 ± 0,00236

Tableau 4. Mesure de l'émissivité de différentes couches de matériaux (principalement du silicium et d'aluminium).

Les résultats montrent que l'émissivité d'un wafer intégrant une technologie 0,35 μ m est environ 9 fois plus grande que celle obtenue d'un wafer non '*processed*'. Elle est au-delà de 0,002 (α /hr-cm²). Ainsi, le wafer intégrant des CI fait partie de la classe LA au lieu de la classe ULA recommandée.

L'émissivité de la feuille d'aluminium 'Albal', dont l'épaisseur est estimée à 14,4 μ m, est environ 18 fois celle obtenue pour la feuille d'aluminium 'Good Fellow' (épaisseur 0,8 μ m). Les deux

⁸ S. Serre, J.L. Autran, D. Munteanu, S. Sauze, S. Martinie 'Soft-Error characterization of deca-nanometer technologies: *From atmospheric radiation up to radioactive contamination constraints,' RADSOL (électronique et RAyonnements naturels au niveau Du SoL), Paris, 2012.*

échantillons possèdent le même grade de pureté et nous pouvons constater que le rapport des émissivités est le même que le rapport des épaisseurs. Cela est attribué au fait que les matériaux étudiés sont peu épais et que l'émissivité est alors quasiment proportionnelle à l'épaisseur.

Dans le cas de la feuille d'aluminium la plus mince $(0,8 \ \mu m)$, il nous a fallu étendre la mesure sur une semaine afin d'enregistrer un nombre suffisant de particules alpha et obtenir une valeur statistiquement fiable de l'émissivité. Nous avons choisi une telle épaisseur afin de visualiser les pics susceptibles d'être formés par les particules alpha émises en évitant que ces dernières perdent beaucoup d'énergie avant quelles soient détectées par le spectromètre alpha. Le spectre d'énergie produit par cette feuille d'aluminium est présenté sur la figure 4.



Figure 4. Le spectre d'énergie de la feuille d'aluminium 'Good Fellow' dont l'épaisseur est 0, 8 µm et son grade de pureté est 99,1%. E est l'énergie avec laquelle la particule alpha est détectée.

L'émissivité peut être considérée assez forte car elle se trouve dans la gamme LA. Le spectre de la figure 4 montre 3 pics assez distincts mais avec tout de même un fond continu assez important compte tenu de l'épaisseur qui cause des pertes malgré une épaisseur assez mince. Les 3 pics peuvent être associés aux groupes des émetteurs suivants : {²³²Th}, {²³⁸U, ²³⁰Th, ²³⁴U}, {²²⁶Ra, ²¹⁰Po} (voir figure 4). La distinction est assez difficile entre les émetteurs alpha du même groupe car ils émettent des particules alpha avec des énergies très proches (voir annexe I-A).

- 4. Analyse d'un échantillon d'aluminium en utilisant la spectroscopie gamma, alpha et l'ICPMS
- 4.1 Le déséquilibre radioactif dans une feuille d'aluminium.

Etant donné que la spectroscopie Gamma, Alpha et l'ICPMS présentées ci-dessus montrent une complémentarité avérée, nous avons effectué nos mesures sur une feuille d'aluminium dont le grade de pureté est 2N (99%) en utilisant ces techniques. Le choix d'un échantillon en forme de feuille est volontaire car cette forme permet d'effectuer les mesures avec ces trois techniques différentes sans beaucoup de difficultés. Evidemment, le but est de pouvoir extraire le maximum d'informations possibles concernant l'état radioactif de cet échantillon.

Nous résumons dans le tableau 5, les résultats de mesure de l'activité spécifique A_m en termes de Bq/kg des radioéléments de la chaine de l'uranium et du thorium en utilisant la spectroscopie gamma et l'ICP-MS et ainsi de l'émissivité alpha totale obtenue en utilisant la spectroscopie alpha.

Chaine radioactive	Radioélément	Temps de demi-vie T _{1/2} (ans)	L'activité spécifique A _m (Bq/kg)		
			Spectroscopie Gamma	ICPMS	
	²³⁸ U	4,47 x 10 ⁹	$11,4 \pm 1,07$	16,21 ± 0,15	
238U	²²⁶ Ra	1,60 x 10 ³	< 0,342	Non mesuré	
	²¹⁰ Pb	22,3	101,82 ± 18,54	Non mesuré	
	²³² Th	1,41 x 10 ¹⁰	Indétectable	0,190 ± 0,001	
²³² Th	²²⁸ Ra	5,76	< 0,16	Non mesuré	
	²²⁸ Th	1,91	$2,72 \pm 0,248$	Non mesuré	
L'émissivité totale (spectroscopie Alpha)		0,0866	$51 \pm 0,00236 (\alpha/hr-cm2)$		

Tableau 5. L'activité spécifique A_m et l'émissivité alpha totale dû aux impuretés radioactives (les chaines de l'uranium ²³⁸U et du thorium ²³²Th) obtenues en utilisant la spectroscopie gamma, l'ICP-MS et la spectroscopie alpha sur une feuille d'aluminium 2N (99%).

D'après ce tableau, les activités spécifiques des radioéléments ²³⁸U et ²¹⁰Pb de la chaine de désintégration de l'uranium sont bien définis, tandis que celle du ²²⁶Ra est en dessous de la limite de détection. Ce résultat peut s'expliquer par le fait que le ²²⁶Ra se désintègre avec une très faible probabilité d'émission de rayons gamma (4%) [10]. Quant à la chaine du thorium, le tableau 5 montre que seules les activités spécifiques des isotopes du thorium ²³²Th et ²²⁸Th peuvent être déterminées dans la feuille d'aluminium. Par contre, ces techniques de mesure ne révèlent pas d'informations sur les activités spécifiques des autres émetteurs gamma dans les deux chaines de désintégration parce qu'elles sont en dessous des limites de détection (le ²²⁸Ra à titre d'exemple). Nous notons que les émetteurs alpha ²³⁴U, ²³⁰Th de la chaine de l'uranium et l'isotope du thorium ²³²Th n'émettent pas de rayons gamma et leurs activités ne peuvent donc pas être mesurées par la spectroscopie Gamma. Néanmoins, l'utilisation de l'ICPMS a permis d'estimer l'activité spécifique du ²³²Th.

On distingue l'état d'une chaine radioactive par rapport à l'équilibre séculaire en comparant les activités de ses radioéléments les uns par rapport aux autres. Par exemple, on compare les activités des descendants par rapport au noyau parent. La comparaison entre les activités spécifiques de radioéléments présentées dans le tableau 5 indique que l'état d'équilibre séculaire est rompu pour la chaine de l'uranium dans la feuille d'aluminium. Le même résultat peut être obtenu à propos de la chaine du thorium. L'état de déséquilibre révélé ici est une conséquence de processus chimiques subis par l'aluminium. La première conclusion est que l'équilibre séculaire ne doit pas être supposé dans tout matériau sans vérification.

4.2 Impact du grade de pureté

En utilisant la spectroscopie Gamma et l'ICPMS, nous avons mesuré les activités spécifiques dans un second échantillon d'aluminium sous forme de poudre dont le grade de pureté est 3N (99,9%) (tableaux 2 et 3). Ces mesures donnent les valeurs suivantes (4,78 \pm 0,209), (72,6 \pm 4,1) et (0,106 \pm 0,001) (Bq/kg) pour les radioéléments ²³⁸U, ²¹⁰Pb et ²³²Th respectivement. Les activités spécifiques des autres radioéléments sont en dessous des limites de détection.

La comparaison des résultats obtenus pour les deux échantillons d'aluminium montre une diminution de la radioactivité lorsque le grade de pureté passe de 2N à 3N. La diminution la plus importante est celle de l'isotope du thorium ²²⁸Th. Les activités spécifiques de l'isotope de l'uranium ²³⁸U et du thorium ²³²Th sont divisées par deux environ, mais la réduction de celle de l'isotope du plomb ²¹⁰Pb est relativement faible. Cela signifie que le procédé de purification (la séparation chimique) utilisé dans le cas de l'aluminium assure de manière générale une diminution de la concentration des impuretés radioactives en particulier pour le thorium et l'uranium.

La purification d'un échantillon d'un grade de pureté 2N à un grade 3N signifie que le taux des impuretés (y compris les impuretés radioactives) est divisé par dix. Ceci étant, nos mesures montrent que cela ne signifie pas que les radioactivités sont divisées par ce même facteur. En effet, dans nos échantillons, le gain d'un N de grade de pureté ne divise que par 2,4 l'activité de l'uranium ²³⁸U, par 1,8 l'activité du ²³²Th et seulement par 1,4 celle du plomb ²¹⁰Pb.

4.3 L'émissivité due à l'évolution temporelle de l'état radioactif des chaines4.3.1 L'état radioactif initial mesuré

Dans les matériaux ayant subi des procédés de purification chimique, les descendants de l'uranium ²³⁸U et du thorium ²³²Th ayant des temps de demi-vie suffisamment longs (à partir de quelques dizaines de mois) peuvent rompre l'équilibre séculaire et présenter des activités nettement différentes de celle du noyau père de la chaine. Il s'agit des radioéléments ²³⁴U, ²³⁰Th, ²²⁶Ra et le ²¹⁰Pb pour la chaine de l'uranium et du ²²⁸Ra et du ²²⁸Th pour la chaine du thorium. Au cours de la purification des matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires par séparation chimique, l'élimination des impuretés radioactives et leurs descendants dépend de leurs propriétés chimiques et du matériau contaminé. Si les éléments mentionnés ci-dessus (²³⁴U, ²³⁰Th, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra et le ²¹⁰Pb) résistent à une telle séparation ils peuvent jouer le rôle d'un noyau père formant ainsi des sous-chaines. Ces sous-chaines à leurs tours peuvent atteindre l'état d'équilibre séculaire au bout d'une certaine période qui dépend du temps de demi-vie du nouveau noyau père considéré. Dans un tel état, les contributions de ces sous-chaines à l'émissivité deviennent très importantes.

Afin de mener une investigation à propos de l'évolution temporelle de l'état des chaines radioactives dans la feuille d'aluminium, nous exploitons à la fois les informations fournies par la spectroscopie gamma, la spectroscopie alpha et l'ICPMS.

Le modèle analytique proposé par S. Martinie *et al.* nous permet de calculer l'émissivité alpha produite par un radioélément dont on connaît l'activité sans avoir recours à des simulations Monte Carlo [6] [15]. Connaissant la masse de notre échantillon de la feuille d'aluminium, nous pouvons calculer l'émissivité initialement produite par chaque émetteur alpha (tableau 5) en utilisant ce modèle analytique. Les résultats du calcul sont résumés dans le tableau 6.

D'après le tableau 6, la somme des émissivités produites uniquement par le ²²⁸Th et l'²³⁸U donne $(0,054 \pm 0,016)$ (α /hr-cm²). Elle présente 62,35 % de l'émissivité alpha totale obtenue par la spectroscopie alpha. La contribution du ²³²Th est très faible car il ne présente qu'environ 0,74 % de l'émissivité alpha totale. Le taux de l'émissivité restant 36,91 % est dû aux autres émetteurs alpha dont on ne connait pas les contributions individuelles car la spectroscopie gamma et l'ICPMS ne nous ont pas fourni des informations à propos de leurs activités.

Emetteur alpha	AER (α/hr-cm ²)
²³⁸ U	$0,041 \pm 0,0085$
²³² Th	$0,00064 \pm 0,00007$
²²⁸ Th	0,013 ± 0,007
Emissivité totale (spectroscopie Alpha)	0,08661 ± 0,00236
Autres émetteurs alpha	0,03261 ± 0,01836

Tableau 6. La contribution initiale des émetteurs alpha de la chaine de l'uranium et du thorium à l'émissivité alpha totale de la feuille d'aluminium 2N. AER pour Alpha Emission Rate.

4.3.2 L'évolution de l'émissivité dans le meilleur cas

En utilisant le modèle généralisé de l'émissivité développé dans le chapitre II [6] à l'aide des équations de Bateman, nous étudions l'évolution de l'émissivité due à l'évolution temporelle de l'état radioactif des sous-chaines et des chaines radioactives. Préalablement, on commence à étudier l'évolution de l'émissivité due aux radioéléments dont les activités sont bien déterminées expérimentalement (tableau 5). Il s'agit des radioéléments ²³⁸U, ²¹⁰Pb, ²³²Th et ²²⁸Th. Les émissivités des autres éléments sont considérées comme nulles à l'instant initial, ce qui permet d'obtenir une minoration de l'émissivité (meilleur cas).

Etant donné que les mesures (tableau 5) montrent que les chaines de l'uranium et du thorium se trouvent dans un état de déséquilibre dans la feuille d'aluminium, les équations de Bateman doivent être adaptées aux conditions initiales mesurées (le terme $A_0 \cdot e^{-\lambda_0 \cdot t}$ qui correspond à l'équilibre séculaire dans l'équation (7) du chapitre II doit être supprimé). Ainsi, on considère les valeurs des activités mesurées des radioéléments ²³⁸U, ²¹⁰Pb, ²³²Th et ²²⁸Th comme valeurs initiales (tableau 5). Pour chaque radioélément, le terme N_m dans l'équation (7) du chapitre II doit être choisi tel que $\lambda_m \cdot N_m$ correspond à son activité initiale. En utilisant l'équation (9) du chapitre II et en prenant DF = 1, nous obtenons respectivement les équations de l'émissivité produite par les chaines et les sous-chaines dont les radioéléments ²³⁸U, ²¹⁰Pb, ²³²Th et ²²⁸Th sont les noyaux pères :

 $AER_{U238}(t,1) = AER_{1,1}(t,1) + AER_{1,4}(t,1) + AER_{1,5}(t,1) + AER_{1,6}(t,1) + AER_{1,7}(t,1) + AER_{1,8}(t,1) + AER_{1,11}(t,1) + AER_{1,14}(t,1)$ (1)

$$AER_{Pb210}(t,1) = AER_{12,14}(t,1)$$
(2)

 $AER_{Th232}(t,1) = AER_{1,1}(t,1) + AER_{1,4}(t,1) + AER_{1,5}(t,1) + AER_{1,6}(t,1) + AER_{1,7}(t,1) + 0,36 \cdot AER_{1,9}(t,1) + 0,64 \cdot AER_{1,10}(t,1)$ (3)

$$AER_{Th228}(t,1) = AER_{4,4}(t,1) + AER_{4,5}(t,1) + AER_{4,6}(t,1) + AER_{4,7}(t,1) + 0.36 \cdot AER_{4,9}(t,1) + 0.64 \cdot AER_{4,10}(t,1)$$
(4)

La figure 5 présente les courbes qui décrivent l'évolution temporelle de l'émissivité due à ces radioéléments pour une durée qui correspond à une durée de vie caractéristique d'un composant (estimée ici à dix ans).



Figure 5. L'évolution temporelle de l'émissivité due aux radioéléments ²³⁸U, ²¹⁰Pb, ²³²Th et ²²⁸Th dont les activités sont déterminées par la spectroscopie Gamma et l'ICPMS. AER mesurée indique l'émissivité alpha totale initiale mesurée par la spectroscopie Alpha (temps de mesure 23 h 45 mn).
(U238 + Th232 + Th228 + Po210) indique la limite inférieure de l'émissivité totale en fonction du temps (le meilleur cas).

La contribution de 63,09 % à l'émissivité totale initiale attribuée à l'uranium ²³⁸U et aux isotopes du thorium ²³²Th, ²²⁸Th et la détermination de l'activité du plomb ²¹⁰Pb permettent de calculer l'évolution temporelle de l'émissivité due à ses radioéléments. Le taux restant de 36,91 % n'est pas pris en compte car les mesures ne permettent pas d'identifier les émetteurs qui produisent ce taux (hypothèse du meilleur cas). La figure 5 illustre ce meilleur cas en fonction du temps (la courbe violette). L'émissivité dans ce meilleur cas a initialement la valeur mesurée 0,054 (α /hr-cm²). Ensuite, elle commence à augmenter pendant plusieurs mois et atteint sa valeur maximale 0,52 (α /hr-cm²) après environ 2,28 ans. Après cet instant, l'émissivité diminue très lentement de sorte qu'elle reste relativement élevée au bout de dix ans.

Pendant l'évolution de l'émissivité totale sur dix ans, la contribution de l'uranium reste constante. Cependant, celle de l'isotope du thorium ²²⁸Th évolue dans le temps de sorte qu'elle dépasse la contribution de l'uranium ²³⁸U pendant un an et demi environ. Quant à la contribution du thorium ²³²Th, elle reste très faible (0,74%). Or, la contribution du plomb via son descendant émetteur alpha (le ²¹⁰Po), initialement nulle, apporte une contribution du même ordre de grandeur que l'uranium et le thorium à t \approx 1 mois. Cette contribution commence à dominer les autres contributions par la suite de sorte qu'elle apporte à la valeur maximale une contribution de 85%. Cette contribution élevée peut être expliquée par la valeur de l'activité spécifique mesurée du ²¹⁰Pb qui est relativement élevée (tableau 5). De plus, les temps de demi-vie du plomb ²¹⁰Pb (22,3 ans) et son descendant ²¹⁰Po (138,4 jours) justifient cette tendance de l'émissivité totale. On peut conclure que l'isotope du plomb ²¹⁰Pb produit par la chaine de l'uranium ²³⁸U présente une problématique évidente lors de l'utilisation de l'aluminium dans la fabrication des mémoires.

L'augmentation de l'émissivité de rayonnement alpha en fonction du temps obtenue ici montre que la valeur de l'émissivité mesurée à un instant donné est susceptible de changer au cours du temps. Par conséquent, le taux d'erreurs produites dans les mémoires par les particules alpha peut augmenter de manière significative.

4.3.3 L'évolution de l'émissivité dans le pire cas

En ce qui concerne les 36,91 % restants de l'émissivité, on peut imaginer un grand nombre de cas puisque l'activité correspondante peut être répartie entre tous les autres émetteurs alpha (qui n'ont pas été identifiés par la spectroscopie Gamma et l'ICPMS). Etant donné que cette répartition n'est pas connue, nous allons essayer de trouver le pire cas. En d'autres termes, la question est de déterminer l'émetteur le plus dangereux et de lui attribué, à lui seul, les 36,91 % que nous ne savons pas attribuer expérimentalement.

La plupart des émetteurs alpha candidats ont un temps de demi-vie très court (au maximum quelques jours). Par conséquent, ils doivent être exclus de notre pire cas car ils se désintègrent si rapidement qu'ils n'auront pas d'impact sur le composant après plusieurs jours ou quelques semaines. La spectroscopie gamma a montré que les activités spécifiques des isotopes du radium ²²⁶Ra et ²²⁸Ra sont en dessous des limites de détection. Les calculs montrent que même en égalant leurs activités spécifiques aux limites de détection (0,342 et 0,16 (Bq/kg) respectivement pour le ²²⁶Ra et le ²²⁸Ra), le maximum de la somme de leurs contributions ne dépasse pas 10,8 % de la valeur de l'émissivité initialement mesurée. Par conséquent, ces radioéléments doivent être exclus également de notre pire cas.

En revanche, les émetteurs alpha dont le temps de demi-vie est assez long comme l'²³⁴U, le ²³⁰Th et le ²¹⁰Po sont capables de maintenir une activité importante pendant plusieurs années. Or, l'isotope de polonium ²¹⁰Po a un temps de demi-vie largement inférieur à ceux de l'uranium ²³⁴U et du thorium ²³⁰Th. Si on attribue le taux restant de l'émissivité alpha à ce radioélément, l'émissivité totale rejoindra le meilleur cas après seulement 1,14 ans. En revanche, les calculs montrent que le ²³⁴U et le ²³⁰Th peuvent être choisis en tant que candidat pour le pire cas. Cela signifie que l'attribution des 36,91 % de l'émissivité exclusivement au radioélément ²³⁴U (ou au ²³⁰Th ce qui conduit au même résultat) permettra le calcul de la limite supérieure de l'émissivité alpha en fonction du temps. Ce pire des cas est illustré avec le meilleur cas sur la figure 6.



Figure 6. L'évolution de l'émissivité alpha totale en fonction du temps dans la feuille d'aluminium. Le meilleur cas (en bleu) est la limite inférieure de l'émissivité obtenue en considérant uniquement les émetteurs dont les activités sont déterminées expérimentalement (²³⁸U, ²¹⁰Pb, ²³²Th et le ²²⁸Th). Le pire cas (en rouge) est la limite supérieure obtenue en considérant que le ²³⁴U (ou le ²³⁰Th) est exclusivement responsable de l'émissivité produite par les émetteurs dont les activités n'ont pas été identifiées.

La courbe de l'émissivité dans le pire cas a la même allure que dans le meilleur cas. Les valeurs initiale et maximale sont respectivement 0,08661 et 0,559 (α /hr-cm²). Le rapport entre ces deux valeurs est environ 6,5 à t = 2,28 ans. Cette allure semblable au meilleur cas est expliquée par le fait que la contribution de la sous-chaine ²³⁴U ou de la sous-chaine ²³⁰Th reste constante pendant la durée de vie du composant car les temps de demi-vie de l'uranium ²³⁴U et du thorium ²³⁰Th sont quelques dizaines (voire quelques centaines) de milliers d'années (respectivement 2,45 x 10⁵ ans et 7,54 x 10⁴ ans).

Théoriquement, le taux restant de l'émissivité 36,91 % peut être produit par tous les émetteurs alpha à l'exception des radioéléments ²³⁸U, ²³²Th et ²²⁸Th. Ainsi, le cas réel se trouve entre le meilleur et le pire cas. Cependant, quel que soit le cas réel, notre méthodologie montre clairement que l'utilisation d'un matériau contaminé par le même état de déséquilibre mesuré ici est susceptible d'augmenter le taux d'erreurs au niveau des mémoires à des niveaux inacceptables pendant la durée de vie du composant. Dans notre exemple, la figure 6 montre que le taux d'erreurs peut augmenter d'un facteur 6,5 après environ 2,3 années. Ces prédictions peuvent être améliorées si les activités (ou les concentrations) des radioéléments ²³⁴U, ²³⁰Th et ²³⁰Po sont déterminées. On note que le ²³⁰Th semble plus facile à détecter par l'ICPMS car il n'interfère pas avec d'autres radioéléments des deux chaines radioactives (l'uranium ²³⁸U et le thorium ²³²Th).

5. Conclusions

L'état de la chaine de désintégration radioactive par rapport à l'équilibre séculaire dans les matériaux utilisés dans l'industrie des semi-conducteurs peut être responsable d'une augmentation du taux d'erreurs à des niveaux inacceptables. Afin d'étudier l'évolution de l'état de la chaine de l'uranium et du thorium dans des échantillons d'aluminium, nous avons utilisé trois techniques d'analyse différentes car l'utilisation d'une seule technique ne fournit pas toutes les informations nécessaires. Ces techniques sont la spectroscopie gamma, la spectroscopie alpha et l'ICP-MS.

La spectroscopie gamma est utilisée pour analyser plusieurs échantillons de matériaux en fonction de leurs grades de pureté. Parmi ces matériaux, deux échantillons d'aluminium sous forme de feuille et en poudre ont été analysés. Leurs grades de pureté sont respectivement 2N (99%) et 3N (99,9%). Notre étude a permis de déterminer l'activité spécifique des radioéléments ²³⁸U et ²¹⁰Pb pour la chaine de l'uranium dans les deux échantillons et celle du ²²⁸Th uniquement dans la feuille d'aluminium. Les activités spécifiques des autres radioéléments étaient inférieures aux limites de détection. Nos résultats montrent que l'état d'équilibre séculaire des chaines de l'uranium et du thorium est rompu dans la feuille d'aluminium. La comparaison des activités spécifiques mesurées dans les deux échantillons indique que le procédé de purification utilisé pour l'aluminium assure une diminution des concentrations en impuretés radioactives, en particulier pour l'uranium et le thorium. Par contre, la concentration du plomb ²¹⁰Pb reste élevée.

Nous avons comparé l'émissivité alpha totale obtenue grâce à la spectroscopie alpha avec la somme des valeurs de l'émissivité due aux émetteurs alpha dont les activités spécifiques sont déterminées dans la feuille d'aluminium en utilisant la spectroscopie gamma et l'ICP-MS. Sur la base de cette comparaison et en utilisant le modèle analytique d'émissivité généralisé développé dans le chapitre II, nous avons étudié l'émissivité due à l'évolution temporelle de l'état radioactif de la chaine et des sous-chaines qui pourraient être créées dans la chaine de l'uranium par les descendants ²³⁴U, ²³⁰Th, ²²⁶Ra et le ²¹⁰Pb et dans la chaine du thorium par le ²²⁸Ra et le ²²⁸Th.

Notre étude montre que l'émissivité alpha commence à augmenter après quelques dizaines d'heures et atteint une valeur maximale qui est environ 6 fois supérieure à sa valeur initiale mesurée et cela après environ t \approx 2,28 années. Ce maximum est principalement dû à la contribution de la souschaine dont le ²¹⁰Pb est son noyau père (85%). Cela signifie que nous devons être très prudents lors de l'analyse des résultats de mesure de l'émissivité alpha : étant donné que l'équilibre séculaire n'est probablement jamais atteint juste après un processus industriel, l'émissivité et le taux d'erreurs α -SER peuvent augmenter plusieurs mois voire plusieurs années après. Notre étude de la feuille d'aluminium montre que le plomb ²¹⁰Pb est le principal responsable d'une telle augmentation.

Les trois techniques utilisées dans ce travail sont complémentaires car elles permettent de recueillir plus de détails sur l'évolution de l'état de la chaine de l'uranium et du thorium dans une feuille d'aluminium.

Notre méthodologie permet de déduire des scénarii (meilleur cas et pire cas) pour l'évolution de l'émissivité alpha en fonction du temps afin d'indiquer si une augmentation du taux d'erreurs pourrait se produire au cours de la durée de vie du composant. Le meilleur cas est obtenu lorsque seules les activités spécifiques connues sont prises en compte dans les équations de la chaine radioactive. Le pire cas, quant à lui, peut être déterminé en attribuant l'émissivité alpha dont les émetteurs sources ne sont pas connues à un radioélément particulier ayant un temps de demi-vie assez long. Au final, nous pouvons encadrer la valeur de l'émissivité au cours du temps et nous devrions donc pouvoir prévoir une hausse anormale du taux d'erreurs durant la vie du composant.

Références (chapitre IV)

- T. C. May and M. H. Woods, "Alpha-particle-induced soft errors in dynamic memories," *IEEE Transactions on Electron Devices*, vol. 26, no. 1, pp. 2–9, 1979.
- [2] C. M. Hsieh, P. C. Murley, and R. R. O'Brien, "Dynamics of charge collection from alphaparticle tracks in integrated circuits," in *Reliability Physics Symposium*, 1981. 19th Annual, 1981, pp. 38–42.
- [3] R. C. Baumann, "Radiation-induced soft errors in advanced semiconductor technologies," *IEEE Transactions on Device and Materials Reliability*, vol. 5, no. 3, pp. 305–316, Sep. 2005.
- [4] M. Gedion, F. Wrobel, F. Saigne, M. Portier, A. D. Touboul, and R. D. Schrimpf, "Effect of the Uranium Decay Chain Disequilibrium on Alpha Disintegration Rate," *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 58, no. 6, pp. 2793–2797, 2011.
- [5] M. S. Gordon, K. P. Rodbell, D. F. Heidel, C. E. Murray, H. H. . Tang, B. Dwyer-McNally, and W. K. Warburton, "Alpha-Particle Emission Energy Spectra From Materials Used for Solder Bumps," *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 57, no. 6, pp. 3251–3256, Dec. 2010.
- [6] A. Kaouache, F. Wrobel, F. Saigne, A. D. Touboul, R. Schrimpf, and J. Autran, "An Analytical Model to Quantify Decay Chain Disequilibrium–Application to the Thorium Decay Chain."
- [7] G. Warot and P. Loaiza, "Mesures de très faible radioactivité au Laboratoire Souterrain de Modane," *REE. Revue de l'électricité et de l'électronique*, no. 3, 2010.
- [8] P. Loaiza, C. Chassaing, P. Hubert, A. Nachab, F. Perrot, J.-L. Reyss, and G. Warot, "Low background germanium planar detector for gamma-ray spectrometry," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 634, no. 1, pp. 64–70, 2011.
- [9] V. Chazal, R. Brissot, J. F. Cavaignac, B. Chambon, M. De Jésus, D. Drain, Y. Giraud-Heraud,
 C. Pastor, A. Stutz, and L. Vagneron, "Neutron background measurements in the underground laboratory of Modane," *Astroparticle Physics*, vol. 9, no. 2, pp. 163–172, 1998.
- [10] P. E. Hodgson, E. Gadioli, and E. G. Erba, Introductory nuclear physics. Clarendon Press, 1997.
- [11] T. Mitsugashira, M. Hara, P. Kim, K. Nakashima, and K. Nakayama, "Enrichment of daughter nuclides of natural alpha-decay series in high purity aluminum for LSI fabrication," *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, vol. 255, no. 1, pp. 201–205, 2003.
- [12] T. Mitsugashira, M. Hara, Y. Suzuki, M. Watanabe, S. Hirai, Y. Okada, and A. Mori, "Natural alpha-active isotopes contained in modern memory device materials," *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, vol. 239, no. 2, pp. 345–349, 1999.
- [13] M. S. Gordon, D. F. Heidel, K. P. Rodbell, B. Dwyer-McNally, and W. K. Warburton, "An evaluation of an ultralow background alpha-particle detector," *Nuclear Science, IEEE Transactions on*, vol. 56, no. 6, pp. 3381–3386, 2009.

- [14] M. J. Berger, "ESTAR, PSTAR, and ASTAR: computer programs for calculating stopping-power and range tables for electrons, protons, and helium ions," *Unknown*, vol. 1, 1992.
- [15] S. Martinie, J.-L. Autran, D. Munteanu, F. Wrobel, M. Gedion, and F. Saigne, "Analytical Modeling of Alpha-Particle Emission Rate at Wafer-Level," *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 58, no. 6, pp. 2798–2803, 2011.

Conclusion générale

L'intégration croissante des technologies à base de transistors MOS a rendu les composants micro et nanoélectroniques de plus en plus sensibles aux effets des différentes radiations. C'est en particulier le cas des particules α émises par les éléments radioactifs naturels qui se trouvent dans les matériaux entrant dans la fabrication des mémoires. La problématique liée aux particules α se traduit par une information erronée (*Single Event Upset*) au niveau des mémoires SRAM et DRAM. L'expérience montre que le taux d'erreurs déclenchées par les impuretés radioactives et les neutrons au niveau du sol sont comparables et que c'est le premier qui l'emporte pour certaines technologies (130 et 65 nm). Cela peut mettre le système électronique en dysfonctionnement temporaire et peut être critique lorsque la sécurité des biens et des personnes est en jeu.

L'évaluation expérimentale du taux d'erreurs déclenchées par les particules α consiste à enregistrer les erreurs logiques dans les mémoires pendant une période suffisamment longue (plusieurs mois) dans un environnement qui élimine pratiquement la contribution des neutrons (en souterrain). C'est une méthode assez lourde à mettre en œuvre. Le taux d'erreurs peut également être évalué par simulation. Jusqu'à aujourd'hui cette méthode d'évaluation était toujours faite dans le cadre de l'approximation de l'équilibre séculaire. Or, les mesures effectuées et décrites au chapitre IV confirment que les chaines radioactives dans les matériaux utilisés dans la fabrication de mémoires se trouvent souvent dans un état de déséquilibre, ce qui signifie que chaque émetteur de la filiation radioactive possède une activité différente et a priori inconnue. C'est pour cette raison qu'il apparaît nécessaire de développer des méthodes d'évaluation qui prennent en compte cet état de déséquilibre permettant ainsi une approche plus réaliste de l'effet de la contamination naturelle des matériaux utilisés. Dans le cadre de ce travail de thèse, nous avons mis au point des méthodes d'évaluation de ces risques associés à une technologie donnée. Ces méthodes sont valables pour un état d'équilibre séculaire mais aussi de déséquilibre.

Ainsi, nous avons développé un formalisme concernant l'émissivité alpha qui permet de quantifier l'effet du déséquilibre des chaines radioactives sur cette émissivité sans avoir recours à des simulations Monte Carlo qui sont souvent coûteuses en temps de calcul. Grâce à cette méthode, nous avons montré que l'enrichissement de certains radioéléments entraine une augmentation significative de l'émissivité alpha totale pendant la durée de vie du composant, et cela, même si l'émissivité est initialement mesurée à un niveau acceptable. Ces radioéléments, que l'ont peut qualifier de « critiques », sont le ²³²Th, le ²²⁸Ra et le ²²⁸Th pour la chaine du thorium et l'²³⁸U, l'²³⁴U, le ²³⁰Th, le ²¹⁰Po, le ²²⁶Ra et le ²¹⁰Pb pour la chaine de l'uranium. Ils peuvent être enrichis par les eaux et les produits chimiques contaminés utilisés pendant la purification des matériaux par séparation chimique et pendant les différents processus de fabrication des mémoires. Par conséquent, il est vivement recommandé aux fabricants de faire plus d'efforts en vue de diminuer la concentration de ces

radioéléments critiques dans tous les matériaux utilisés pour la fabrication de mémoires. Cependant même si des matériaux hautement purifiés sont disponibles, il est toujours conseillé de mesurer au cours du temps l'émissivité alpha, la radioactivité ou les concentrations de ces radioéléments critiques.

L'effet du déséquilibre d'une chaine radioactive se manifeste directement par une augmentation du taux d'erreurs au fil du temps. Nous avons développé une méthode analytique pour évaluer le taux d'erreurs dû aux impuretés radioactives qui contaminent les matériaux utilisés dans la fabrication de ces mémoires. Nous avons pris soin de considérer à la fois l'état d'équilibre séculaire et celui de déséquilibre. Ainsi, nous avons proposé un modèle basé uniquement sur des considérations géométriques. Ce modèle permet une évaluation rapide du taux d'erreurs déclenchées (temps de calcul de l'ordre d'une seconde) dans les technologies les plus intégrées (≤ 45 nm). Cependant, cette estimation est valable seulement lorsque ces technologies sont caractérisées par des valeurs de volume sensible et de charges critiques faibles. L'inconvénient majeur de ce modèle est la lourdeur des équations obtenues. C'est la raison pour laquelle, nous avons également proposé une expression analytique simple qui prend en compte, outre les aspects géométriques, la charge critique propre au composant. Cette expression améliore de manière significative le modèle géométrique et permet d'obtenir les grandes tendances du *SER* en fonction des paramètres technologiques (*SV* et Q_c).

Dans le dernier volet de ce travail, nous avons proposé une méthode expérimentale pour évaluer le taux d'erreurs déclenchées par les particules alpha. Cette approche consiste à étudier l'état radioactif des chaines de l'uranium et du thorium dans les matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires en fonction de leurs grades de pureté en combinant trois techniques complémentaires : la spectroscopie gamma, la spectroscopie alpha et l'ICP-MS. La spectroscopie gamma permet de déterminer l'activité des émetteurs gamma. À l'exception du plomb, dans l'ensemble des matériaux que nous avons étudiés, cette technique a permis de déterminer l'activité des radioéléments suivants : ²³⁸U, ²¹⁰Pb et ²²⁸Th. Cependant, cela n'a été possible que lorsque le grade de pureté est inférieur à 4N. L'idée de notre technique est de proposer aux fabricants une méthode pour faire un tri préalable des matériaux bruts en fonction de leurs provenances. Par ailleurs, cette technique confirme que les matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires se trouvent dans un état de déséquilibre radioactif. Nous avons souligné également que la purification qui fait gagner un N (donc divise par 10 l'ensemble des impuretés) entraine une purification des impuretés radioactives par un facteur largement inférieur à 10.

Malheureusement, la spectroscopie gamma ne nous fournit pas l'activité des radioéléments de la chaine qui sont émetteurs alpha purs. Par suite, l'utilisation d'une seule technique d'investigation s'avère insuffisante pour pouvoir prédire l'évolution de l'état radioactif d'une chaine par rapport à l'équilibre, d'où la nécessité de compléter nos informations par la spectroscopie alpha et l'ICPMS. En effet, l'ICPMS a permis d'obtenir l'activité de l'isotope du thorium ²³²Th. Cependant, cette technique devient inefficace pour des concentrations très faibles (moins de quelques ppt). Or, la spectroscopie

alpha fournit l'émissivité alpha totale d'une couche de matériau ce qui permet de déterminer son grade de pureté. Ainsi, la méthodologie expérimentale adoptée ici permet d'évaluer l'évolution temporelle de l'émissivité alpha afin d'indiquer si une augmentation du taux d'erreurs peut se produire pendant la durée de vie du composant. Lors de l'analyse d'un échantillon d'aluminium avec cette méthode, nous avons déterminé deux scénarii qui correspondent à un pire et un meilleur cas et nous avons conclu que l'augmentation du taux d'erreurs pouvait être catastrophique pour la fiabilité du composant.

Afin d'assurer une meilleure fiabilité des composants et des systèmes électroniques, les méthodes et outils proposés dans ce travail montrent que l'industrie doit prendre en compte l'état de déséquilibre des impuretés radioactives qui contaminent les matériaux utilisées dans la fabrication de mémoires.

Annexe I-A La chaine de l'uranium et du thorium

Isotope Elément		Temps	Energie (MeV) / Probabilité d'émission (%)				
radioactif	chimique	de demi-vie $T_{1/2}$	α	β-	γ		
²³⁸ 92U	Uranium	4,47 · 10 ⁹ ans	4,196 (77) 4,149 (23)	_	0,048 (23)		
²³⁴ ₉₀ Th	Thorium	24,1 jours	_	0,19	0,09 (4)		
²³⁴ 91Pa	Protactinium	6,67 heures	_	2,29	1,0 (0,6)		
²³⁴ 92U	Uranium	$2,45 \cdot 10^5$ ans	4,774 (72) 4,723 (28)	_	0,05 (28)		
²³⁰ ₉₀ Th	Thorium	$7,54\cdot 10^4$ ans	4,688 (74) 4,621 (26)	_	0,068 (24)		
²²⁶ 88Ra	Radium	$1,60 \cdot 10^3$ ans	4,785 (95) 4,602 (5)	_	0,186 (4)		
²²² ₈₆ Rn	Radon	3,82 jours	5,490	—	0,5 (0,07)		
²¹⁸ ₈₄ Po	Polonium	3,05 minutes	6,002	_	_		
²¹⁴ ₈₂ Pb	Plomb	26,8 minutes	_	0,65	0,24 (4)		
²¹⁴ ₈₃ Bi	Bismuth	19,7 minutes	_	1,5	0,61 (47)		
²¹⁴ ₈₄ Po	Polonium	164 μs	7,687	_	0,8 (0,014)		
²¹⁰ ₈₂ Pb	Plomb	22,3 ans	_	0,016	0,046 (81)		
²¹⁰ ₈₃ Bi	Bismuth	5,01 jours	_	1,16	_		
²¹⁰ ₈₄ Po	Polonium	138,4 jours	5,305	_	0,8 (0,001)		
²⁰⁶ ₈₂ Pb	Plomb	Stable	_	_	_		

*Tableau 1. La chaine de désintégration d'uranium*²³⁸U [1][2].

Isotope	Elément	Temps de demi-vie	Energie (MeV)/Probabilité d'émission (%)			
radioactif	chimique	<i>T</i> _{1/2}	α	β	γ	
²³² 90 Th	Thorium	1,41 · 10 ¹⁰ ans	4,016 (77) 3,957 (23)	_	0,06 (23)	
²²⁸ 888a	Radium	5,76 ans	_	0,054	_	
²²⁸ ₈₉ Ac	Actinium	6,13 heures	_	1,11	0,09 (30)	
²²⁸ 90Th	Thorium	1,91 ans	5,426 (71) 5,343 (29)	_	0,08 (28)	
²²⁴ 88Ra	Radium	3,66 jours	5,686 (94) 5,449 (6)	_	0,24 (5)	
²²⁰ ₈₆ Rn	Radon	55,6 s	6,288		_	
²¹⁶ ₈₄ Rn	Polonium	0,15 s	6,779		_	
²¹² ₈₂ Pb	Lead	10,64 heures	_	0,36	0,238 (81)	
²¹² 83Bi	Bismuth	60,6 minutes ⁽¹⁾	_	2,20 (64)	_	
		2,251 heures ⁽²⁾	6,336 (57) 6,297 (43) (36)	_	_	
²¹² ₈₄ Po	Polonium ⁽¹⁾	0,30 µs	8,785	_	—	
²⁰⁸ ₈₂ Pb	Lead ⁽¹⁾	Stable				
²⁰⁸ 81TI	Thallium ⁽²⁾	3,05 minutes	_	1,79	2,62 (100)	
²⁰⁸ ₈₂ Pb	Lead ⁽²⁾	Stable				

*Tableau 2. La chaine de désintégration du thorium*²³²Th [1] [2].

Annexe I-B

L'émissivité alpha et la concentration radioactive

Dans le cadre de l'approximation d'équilibre séculaire, la simulation Monte Carlo permet d'établir le lien entre la concentration en impuretés radioactives et l'émissivité alpha d'une couche de matériau. En effet, après avoir défini la nature du matériau et les dimensions appropriées de cette couche, nous supposons que cette dernière est contaminée par une concentration radioactive déterminée (un 1 ppb par exemple) d'un noyau père comme l'²³⁸U et le ²³²Th. L'hypothèse de l'équilibre séculaire d'une chaine (ou sous-chaine) consiste à supposer que ses radioéléments ont la même activité, c'est-à-dire le même nombre de particules alpha émises par unité de temps pour chaque émetteur. Un outil de simulation Monte Carlo approprié permet de trouver l'émissivité correspondante produite par la couche du matériau étudiée (généralement exprimée en $\alpha/hr-cm^2$). Finalement, une règle de trois permet d'établir la correspondance entre des valeurs quelconques de l'émissivité alpha et la concentration radioactive.

Nous résumons dans le tableau 1 quelques exemples de valeurs de l'émissivité et la contamination en uranium ²³⁸U correspondantes obtenues en utilisant MC-Oracle [3] pour quelques matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires.

Matériau	AER (α/hr-cm ²)	Contamination	
Wafer en fin de processus de fabrication (Fully Processed Wafer)	< 4 x 10 ⁻⁴	< 110 ppt	
Couche de cuivre de 30 µm	< 3 x 10 ⁻⁴	< 220 ppt	
Flip Chip Underfill	$7 \ge 10^{-4} \le \le 4 \ge 10^{-3}$	150 ppt < < 855 ppt	
Pb based Solder Bump	9 x 10 ⁻⁴ < < 7,2	0,44 ppb < <3523 ppb	

Tableau 1. L'émissivité et la contamination en uranium ²³⁸U correspondantes obtenues par simulation Monte Carlo en utilisant MC-Oracle [3] pour quelques matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires [4]. ppt pour part per trillion 10⁻¹² et ppb pour part per billion 10⁻⁹ au sens de rapport d'atomes.

En réalité, un échantillon est susceptible d'être contaminé à la fois par l'uranium et le thorium. Prenons l'exemple d'un wafer en fin de processus de fabrication. Le rapport des concentrations radioactives 232 Th/ 238 U est estimé de 1,33 [5]. Tenant compte de ce rapport et en supposant l'équilibre séculaire des deux chaines, l'outil de simulation MC-Oracle montre une contamination de 76 ppt en 238 U et 101 ppt en 232 Th [6] (ppt pour part per trillion 10⁻¹² au sens de rapport d'atomes). Notons que pour la même concentration en uranium et en thorium et pour une énergie de seuil caractéristique du spectromètre alpha $E_{th} = 2$ MeV, l'émissivité produite par l'uranium est environ deux fois plus grande que celle produite par le thorium.

Annexe II-A

Parcours d'une particule alpha en fonction de son énergie d'émission

La fonction R(E) introduite dans le chapitre II exprime le parcours d'une particule α émise par une impureté radioactive avec une énergie E dans le silicium. L'expression analytique que nous proposons pour cette fonction est donnée comme suit :

$$R(E) = \frac{13}{6} \cdot 10^{-4} \cdot E^{3/2} \tag{II-A-1}$$

où le parcours R est exprimé en cm et l'énergie E en MeV.

Afin de vérifier la précision de cette expression, nous la comparons aux points correspondants obtenus en utilisant SRIM (figure 1). L'erreur commise est également illustrée sur la figure 2.



Figure 1. Comparaison entre l'expression analytique du parcours R d'une particule a émise avec une énergie E dans le silicium et les points correspondants obtenus en utilisant SRIM.



Figure 2. La différence entre la fonction R(*E*) *et les points correspondants obtenus en utilisant SRIM.*

D'après la figure 2, cette erreur ne dépasse pas 1,4 µm sur l'intervalle d'énergie [0-10] MeV. Ainsi, les figures 1 et 2 montrent que l'expression proposée (II-A-1) présente une très bonne approximation aux points correspondants obtenus en utilisant SRIM.

Annexe III-A

Le volume sensible et la charge critique des technologies en dessous de 65 nm

Le taux d'erreurs déclenchées par les émetteurs alpha dans une mémoire peut être évalué par simulation de type Monte Carlo. Afin d'effectuer une telle évaluation, nous avons besoin de connaître la charge critique et le volume sensible associés au nœud technologique de la mémoire. Malheureusement, ces informations ne sont pas accessibles pour les technologies les plus avancées, en l'occurrence les nœuds 45, 32, 28, 25 et 22 nm, et cela à cause de leur caractère confidentiel. Pour surmonter ce problème, nous avons extrapolé ces paramètres (volume sensible et charge critique) en se basant sur les valeurs fournies par STMicroelectronics pour les technologies précédentes (au dessus de 65 nm). Ainsi, la dégradation de la charge critique Q_c en fonction du nœud technologique peut être extrapolée en dessous de 65 nm par l'équation adéquate suivante :

$$Q_c = 1,95 \cdot 10^{-4} \cdot n \omega u d^2 \tag{III-A-1}$$

où Q_c est exprimée en fC et *noeud* en nm. Quant au volume sensible *SV*, ces valeurs peuvent être extrapolées en dessous de 65 nm en utilisant l'équation suivante :

$$SV = 0.40 \cdot 10^{-6} \cdot n \omega u d^2 \tag{III-A-2}$$

où SV est exprimé en μ m³ et *nœud* en nm. Les figures 1 et 2 illustrent cette extrapolation pour la charge critique et le volume sensible respectivement.



Figure 1. Les valeurs de la charge critique obtenues par extrapolation pour les nœuds en dessous de la 65 nm.



Figure 2. Les valeurs du volume sensible obtenues par extrapolation pour les nœuds en dessous de 65 nm. SV (Extrapolation [7]) pour les valeurs obtenues selon la référence [7].

Nous résumons dans le tableau 1 les valeurs de la charge critique et du volume sensible associées à chaque technologie obtenues par extrapolation et utilisées dans nos simulations. La valeur de l'arrête de la cellule mémoire *EL* de chaque technologie est également mentionnée.

Nœud (nm)	250	130	90	65	45	32	28	25	22
Q _c (fC)	8	2,5	1,25	0,8	0,4	0,2	0,15	0,12	0,1
<i>SV</i> (μm ³)	0,245	0,025	0,01	0,0035	0,0011	0,00037	0,00031	0,00025	0,00019
EL (µm)	2,75	1,58	1	0,71	0,5	0,35	0,21 (ITRS2010)	0,18 (ITRS2010)	0.16 (ITRS2010)

Tableau 1. Les valeurs de la charge critique, du volume sensible et de l'arrête de la cellule mémoire associés à chaque technologie utilisées dans nos simulations [7][8].
Références (annexes)

- R. C. Baumann, "Soft errors in advanced semiconductor devices-part I: the three radiation sources," *IEEE Transactions on Device and Materials Reliability*, vol. 1, no. 1, pp. 17–22, Mar. 2001.
- [2] P. E. Hodgson, E. Gadioli, and E. G. Erba, Introductory nuclear physics. Clarendon Press, 1997.
- [3] F. Wrobel and F. Saigné, "MC-ORACLE: A tool for predicting soft error rate," *Computer Physics Communications*, vol. 182, no. 2, pp. 317–321, 2011.
- [4] J. S. JESD89A, "Measurement and reporting of alpha particle and terrestrial cosmic ray-induced soft errors in semiconductor devices," *JEDEC solid state technology association*, 2006.
- [5] F. F. Dyer, J. F. Emery, K. J. Northcutt, and R. M. Scott, "Determination of uranium and thorium in semiconductor memory materials by high fluence neutron activation analysis," *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, vol. 72, no. 1, pp. 53–67, 1982.
- [6] M. Gedion, F. Wrobel, F. Saigne, and R. D. Schrimpf, "Uranium and Thorium Contribution to Soft Error Rate in Advanced Technologies," *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 58, no. 3, pp. 1098–1103, Jun. 2011.
- [7] M. Gedion, F. Wrobel, F. Saigné, R. D. Schrimpf, and J. Mekki, "Monte Carlo Simulations to Evaluate the Contribution of Si Bulk, Interconnects, and Packaging to Alpha-Soft Error Rates in Advanced Technologies," *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 57, no. 6, pp. 3121–3126, Dec. 2010.
- [8] www.itrs.net/Links/2010ITRS/Home2010.htm.

Liste des Publications et Conférences nationales et internationales

Revues internationales

Analytical Method to Evaluate Soft Error Rate Due to Alpha Contamination.

A. Kaouache, F. Wrobel, F. Saigné, A. D. Touboul, and R. D. Schrimpf.

IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 60, no. 6, pp. 4059-4066, décembre 2013.

An Analytical Model to Quantify Decay Chain Disequilibrium – Application to the Thorium Decay Chain.

A. Kaouache, F. Wrobel, F. Saigne, A. D Touboul, R.D. Schrimpf and J.L. Autran. IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 61, no. 3, pp. 1414-1419, juin 2014.

Conférences internationales

Analytical Method to Evaluate Soft Error Rate Due to Alpha Pollutants.A. Kaouache, F. Wrobel, F. Saigné, A. D. Touboul and R.D. Schrimpf.IEEE *Nuclear and Space Radiation Effects*, San Francisco, USA, 2013.

Effect of thorium decay chain disequilibrium on alpha emissivity. A. Kaouache, F. Wrobel, F. Saigné, A. D. Touboul, R.D. Schrimpf, and J. L. Autran.

IEEE Radiation Effects on Components and Systems, Oxford, UK, 2013.

Conférences nationales

Effets de la contamination en émetteurs alpha sur les technologies CMOS nanométriques.

A. Kaouache, F. Wrobel, F. Saigné.

RADSOL (électronique et RAyonnements naturels au niveau Du SoL), Paris, 2013 et 2014.

TITRE : DEFIABILISATION DES COMPOSANTS NANOELECTRONIQUES PAR DES ELEMENTS RADIOACTIFS NATURELS.

La miniaturisation croissante des transistors MOS a rendu les mémoires RAM de plus en plus sensibles aux particules alpha émises par les éléments radioactifs naturellement présents dans les matériaux utilisés dans la fabrication de ces mémoires. En effet, au niveau du sol, le taux d'erreurs logiques déclenchées par ces particules est comparable à celui déclenché par les neutrons issus du rayonnement cosmique. L'objectif principal de ce travail de thèse est la mise au point de méthodes d'évaluation de ce taux et permettre par la suite de proposer des solutions technologiques.

Ainsi, dans le cadre d'une approche théorique, nous avons développé des modèles permettant d'évaluer le taux des erreurs logiques déclenchées par les chaines de l'uranium et du thorium dans un état d'équilibre séculaire mais aussi de déséquilibre. Ceci passe par une identification des radioéléments critiques, c'est-à-dire ceux qui sont capables d'augmenter l'émissivité (et ainsi le taux d'erreurs d'aléas logiques) à des niveaux inacceptables pendant la durée de vie du composant. La prise en compte de l'état de déséquilibre des chaines de désintégration radioactive dans ce volet théorique permet une approche réaliste de la contamination. Nous avons également proposé une méthode expérimentale pour analyser l'évolution de l'état radioactif dans les matériaux utilisés dans la fabrication des mémoires. Dans cette approche expérimentale, nous avons combiné trois techniques de mesure complémentaires : la spectroscopie alpha, la spectroscopie gamma et l'ICPMS.

MOTS CLES : SEU, SER, SRAM, DRAM, PARTICULE ALPHA, URANIUM, THORIUM, SIMULATION MONTE CARLO, SPECTROSCOPIE ALPHA, SPECTROSCOPIE GAMMA, ICPMS

TITLE: EFFECT OF NATURAL RADIOACTIVE ELEMENTS ON NANOELECTRONICS DEVICES RELIABILITY.

The increasing miniaturisation of MOS transistors has made RAM memories more and more sensitive to alpha particles emitted by radioactive elements naturally present in the materials used for memory fabrication. Indeed, at ground level, the soft error rate triggered by these particles is comparable to that triggered by neutrons from cosmic rays. The main purpose of this work aims to develop methods to evaluate this rate allowing thereafter suggesting technologies mitigations.

Thus, in the context of a theoretical approach, we have developed models to estimate soft errors rate triggered by uranium and thorium chains in secular equilibrium but also disequilibrium state. This requires identification of critical radionuclides those are able to increase the emissivity (and thus the soft error rate) to unacceptable levels during device lifetime. Taking into account disequilibrium state of decay chains in theoretical study provides a realistic approach to the contamination. We have also proposed an experimental method to analyze the radioactive state evolution in materials used for memory fabrication. In this experimental approach, we have combined three complementary measurement techniques: alpha spectroscopy, gamma spectroscopy and ICPMS.

KEYWORDS: SEU, SER, SRAM, DRAM, ALPHA PARTICULE, URANIUM, THORIUM, MONTE CARLO SIMULATION, ALPHA SPECTROSCOPIE, GAMMA SPECTROSCOPIE, ICPMS